



370240

SECCION TECNICA
CLASIFICACION I. P. C.
CLASE <u>C 01</u>
SUBCLASE <u>B</u>

MEMORIA DESCRIPTIVA

DE UN CERTIFICADO DE ADICION A FAVOR DE MONSANTO  
CHEMICALS LTD., DE NACIONALIDAD INGLESA, RESIDENTE  
EN SW1 LONDRES 10-18 Victoria Street

S o b r e

MEJORAS INTRODUCIDAS EN EL OBJETO DE LA PATENTE PRINCIPAL  
Nº 345.420, POR PROCEDIMIENTO PARA LA PRODUCCION DE SOLES  
ACUOSOS DE SILICE.

POOR  
QUALITY



La patente principal se refiere a un procedimiento para la producción de soles de sílice, en particular a un procedimiento para la producción de acuasoles de sílice.

5.- Los acuasoles de sílice, esto es, las dispersiones de tamaños de partículas coloidales de sílice en un medio acuoso son materias comerciales. Se conocen varias clases, y el aspecto, las propiedades y la utilización de un acuasol de sílice dependen en alto grado del tamaño medio de partícula del sílice.

10.- La presente adición proporciona un nuevo procedimiento para elaborar acuasoles de sílice en los que el tamaño medio de partícula es tal que el producto tiene un aspecto "lechoso", en contraste con la característica transparente o clara de los soles de partículas de menor diámetro, y es un perfeccionamiento o modificación de la invención descrita en nuestra Memoria de patente británica nº 1.143.019.

15.- Esta última se refiere a un procedimiento para la producción de una dispersión acuosa de partículas de sílice que tienen un diámetro disimétrico mayor de  $500 \text{ \AA}$  donde se añade un ácido silícico acuoso que tiene un pH ácido, a un recipiente caldeado conteniendo un resto de contenido que comprende una dispersión de partículas de sílice que tienen un diámetro disimétrico mayor de  $500 \text{ \AA}$ , en una disolución de silicato de metal alcalino acuoso y el agua se evapora del recipiente durante la adición del ácido silícico, siendo tal la composición inicial del resto del recipiente que la proporción molar de  $M_2O$  (donde M representa un metal alcalino) con el  $SiO_2$  total es de 1:5 a 1:40 y la cantidad de ácido silícico acuoso añadido tal que el sílice presente partículas que tienen un diámetro disimétrico no inferior a  $500 \text{ \AA}$  y el resto

20.-

25.-

30.-



inicial del recipiente representa no menos del 1 % del contenido total de sílice del producto y siendo tal, también, que la proporción molar del sílice total con  $M_2O$  en el producto no es inferior a 50:1. El diámetro disimétrico es una medida del tamaño de partícula medio y se determina tal y como se describe por F. Debye, J. Physical Chemistry, 1947, 51, 18, y B. R. Jennings y H. G. Gerrard, J. Colloid Science, 1965 20, 448.

La solicitante ha descubierto ahora que pueden elaborarse soles esencialmente similares a los soles "lechosos" obtenibles por el procedimiento arriba indicado, mediante un procedimiento que es algo más inmediato, en el sentido de que el resto original del recipiente puede ser, simplemente, una disolución de silicato de metal alcalino acuoso, en lugar de una dispersión de las partículas de sílice preformadas en dicha disolución.

El procedimiento de la presente solicitud es, por consiguiente, un procedimiento destinado a la producción de un acuasol de sílice en el que las partículas de sílice tienen un diámetro disimétrico mayor de  $500 \text{ \AA}$ , que comprenda la adición de un ácido silícico acuoso que tiene un pH inferior a 7, a un recipiente caldeado que contiene como resto una disolución de silicato de metal alcalino acuoso que tiene una concentración inicial expresada como  $SiO_2$  del 2,5% al 10% por peso, siendo tal la cantidad de ácido silícico acuoso añadida que la proporción molar del  $SiO_2$  añadido como ácido silícico al contenido en  $M_2O$  del silicato de metal alcalino en el resto (donde M es un átomo de metal alcalino) es, por lo menos, de 25:1.

En la disolución de silicato de metal alcalino, la



proporción molar de  $\text{SiO}_2$  a  $\text{M}_2\text{O}$  puede ser, por ejemplo, de 1:1 a 4.5:1 y es, generalmente, de 2:1 a 4:1. La disolución de silicato de metal alcalino del resto del recipiente es, usualmente, silicato de sodio. Pueden utilizarse otros silicatos de metal alcalino, por ejemplo, silicato de potasio o una mezcla de silicatos de metal alcalino, pero su utilización queda excluida sobre la base de la economía.

Según se indica más arriba, una característica del presente procedimiento es que no hay necesidad de que el resto del recipiente contenga partículas preformadas de sílice. por otra parte, la presencia de pequeñas cantidades de estas partículas no afecta adversamente el funcionamiento del proceso. Por ejemplo, cuando se hace uso de un recipiente de reacción para confeccionar una sucesión de lotes de sol, el resto de un lote puede contener trazas de sol que han quedado en el recipiente del lote anterior. Cuando las partículas de sílice están presentes, la cantidad debe ser tal que la relación molar del  $\text{SiO}_2$  total (esto es,  $\text{SiO}_2$  presente como partículas más el presente como silicato de metal alcalino) con el  $\text{M}_2\text{O}$  sea menor de 5:1, y es condición que la concentración de silicato en la disolución está dentro de la gama indicada. Preferente y esencialmente, el resto consiste en una disolución de silicato de metal alcalino acuoso, es decir, que esté inicial o esencialmente libre de partículas de sílice coloidales.

En la práctica, el procedimiento de la invención se lleva a efecto, usualmente, en un recipiente equipado con un agitador u otros medios, para mantener el contenido del recipiente en movimiento, y se deja que el agua se evapore durante la adición de, por lo menos, parte de la disolución de á-



cido silícico. El procedimiento se lleva a cabo normalmente a la presión atmosférica y el contenido del recipiente se mantiene en el punto de ebullición, o próximo a él, para proporcionar una temperatura de proceso de unos 100° C. Puede hacerse uso de presiones elevadas o reducidas que den temperaturas de ebullición sobre o bajo los 100° C, pero, preferentemente, la temperatura durante la adición del ácido silícico no debe ser inferior a los 90° C, y una operación por bajo de aproximadamente 80° C, por lo menos durante la adición, puede ejercer un efecto adverso sobre el producto.

La cantidad y concentración de la disolución de ácido silícico y los correspondientes grados de evaporación y adición son generalmente tales que el volumen del sol excede del de la disolución inicial del silicato de metal alcalino. Sin embargo, no necesita ser constante el grado de aumento de volumen. A un grado o porcentaje dado de evaporación, parece haber cierta correlación entre el porcentaje de adición del ácido silícico durante las primeras fases del proceso y el tamaño medio de partícula del producto. Esto, a su vez, está relacionado con el hecho de que la concentración de la disolución inicial del silicato de metal alcalino en el resto del recipiente es un factor principal en la determinación del tamaño medio de partícula del producto, que aumenta con la concentración de la disolución. De este modo, hay que evitar una dilución demasiado rápida del resto inicial, al permitir que el porcentaje de adición del ácido silícico deje atrás, por un margen muy amplio, el porcentaje de evaporación, y en una forma preferida de operación, el equilibrio entre los dos porcentajes se ajusta de forma que la concentración del silicato en disolución en el contenido del recipiente, expresada



5.- como  $\text{SiO}_2$ , no baje por debajo del 2,5% por peso de la disolución (esto es, del peso combinado del agua y del silicato soluble), hasta que la relación molar de  $\text{SiO}_2$  añadido como ácido silícico al  $\text{M}_2\text{O}$  en disolución, sea, por lo menos, de 20:1.

10.- El procedimiento de la presente invención es de particular valor para la producción de soles que tienen diámetros disimétricos de, aproximadamente, 750 Å a 1500 Å por ejemplo, de aproximadamente 1000 Å a 1500 Å y las disoluciones correspondientes de silicato de metal alcalino utilizadas para formar el resto son las que tienen concentraciones de  $\text{SiO}_2$  del 3% al 5% por peso.

15.- La relación molar del  $\text{SiO}_2$ , añadido como ácido silícico acuoso al  $\text{H}_2\text{O}$  presente en el resto también ejerce cierto efecto sobre el tamaño de partícula del producto. Cuanto más alta es esta relación, mayor es el tamaño de partícula del producto. La relación debe ser, por lo menos, de 25:1; por ejemplo, de 25:1 a 500:1 y es preferentemente de 50:1 a 250:1 y más preferentemente de 100:1 a 200:1. Las relaciones preferidas dan soles que tienen pH medidos a 20°C, en la gama de 8,5 a 11,0, más especialmente de 8,7 a 10,5.

20.- Los soles producidos por el presente procedimiento pueden tener cualquier concentración deseada de sílice dentro de una amplia gama. Para ciertas aplicaciones, se necesitan soles que tengan un contenido de sílice de aproximadamente un 15% por peso; más usualmente, se prefieren productos más concentrados; por ejemplo, soles conteniendo por lo menos un 20% por peso de silicio, y preferentemente, del 30 al 50% o incluso más, por ejemplo sobre el 55 o 60% incluso 65% por peso de sílice. Estos soles pueden obtenerse mediante un procedimiento

25.-

30.-



en el que las relaciones de evaporación y adición se ajustan de manera que el producto, al terminar la adición, tiene la concentración necesaria de sílice. En otro procedimiento de producir un sol de sílice concentrado, el procedimiento de la invención tal y como se define más arriba, se utiliza para producir un sol de sílice diluido que contiene hasta un 15%, por ejemplo, del 4% al 10% y, mas especialmente, del 5% al 7% por peso de sílice. El sol de sílice diluido se evapora entonces sin la adición de más ácido silícico hasta que se alcanza la concentración necesaria de sílice en el sol residual. El sol sigue siendo estable durante la concentración, y el tamaño de partícula queda, esencialmente sin alterar. Es también posible evaporar el sol diluido bajo presión reducida a temperaturas por debajo de lo que se consideraría deseables, durante la formación del sol del ácido silícico. De este modo, puede conseguirse una gran economía de operación, ya que pueden utilizarse evaporadores más eficientes.

En general, hay un tiempo mínimo preferido de balanceo y, correspondientemente, un porcentaje máximo preferido de evaporación durante la formación del sol. Cual es éste, depende de una variedad de factores que incluye la escala de operaciones y las características de termotransferencia del recipiente utilizado. Por consiguiente, quizá sea necesaria cierta cantidad de experimentación con el fin de establecer condiciones óptimas en cualquier caso particular. En nuestra experiencia, la adición del ácido silícico durante un periodo de 3 a 25 horas da, generalmente resultados satisfactorios, y el periodo óptimo es, a menudo, de 6 a 12 horas.

En una serie dada de condiciones de procedimiento, la mayoría de las partículas de sílice en el producto tienen diá-



- metros que varían dentro de una gama de, quizá 200 ó 300 Å pero se forman ciertas partículas más pequeñas y más grandes. Las partículas que tienen un diámetro de 500 Å a, aproximadamente 2500 Å permanecen en suspensión en un medio de dispersión acuosa durante un período casi indefinido, en tanto que las partículas mayores tienen a depositarse en forma de sedimento. Por consiguiente, el procedimiento de la invención puede incluir una fase adicional en la que el producto inicial se separa en fracciones que corresponden a diferentes gamas de tamaño de partícula. La separación puede efectuarse mediante simple decantación de un sol sobrenadante procedente de un sedimento que se ha formado después de que el producto inicial se ha almacenado durante cierto período de tiempo, o el producto inicial puede centrifugarse.
- 5.-
- 10.-
- 15.- En el gremio, se conocen varios procedimientos para preparar ácido silícico. El ácido silícico acuoso puede considerarse que contiene sílice en forma "activa" que puede sufrir, fácilmente, una polimerización. Por consiguiente, las composiciones de ácido silícico acuoso son relativamente inestables y, en general, existen en forma líquida solamente, a bajas concentraciones que corresponden a no más de aproximadamente un 4% ó un 5% por peso de sílice, aunque pueden obtenerse concentraciones más elevadas, por ejemplo, hasta el 8% en ciertas condiciones.
- 20.-
- 25.- El ácido silícico acuoso preferente en el caso presente se obtiene poniendo en contacto una disolución de silicato de metal alcalino diluido, usualmente silicato de sodio, con una resina de canje catiónico en forma de hidrógeno tal y como se describe por ejemplo, en la memoria de la patente británica 645.703. Se elimina del producto una proporción
- 30.-



- lo suficientemente alta de los iones del metal alcalino, para que el producto tenga un pH ácido. De este modo, el ácido silícico acuoso tendrá normalmente un pH por lo menos no mayor de 6, a 15°, y preferentemente el pH a 15° C entra dentro de
- 5.- la gama de 2,5 a 4,0. Un ácido silícico de este tipo tiene una vida de conservación limitada y, por lo tanto, es de gran ventaja operar el proceso para la producción del ácido silícico en serie con el procedimiento principal de la invención, de modo que haya un retraso mínimo en la utilización del ácido
- 10.- silícico después de haberse preparado. Es deseable no utilizar una disolución de ácido silícico que esté más diluida de lo necesario, y las disoluciones que tienen concentraciones de  $\text{SiO}_2$  de un 3% a un 4% por peso representan un compromiso satisfactorio entre la concentración y la estabilidad. La pre-
- 15.- paración del ácido silícico también puede incluir un tratamiento con una resina permutadora de aniones, por lo que los aniones extraños, por ejemplo el cloruro y el sulfato, que están generalmente presentes en las disoluciones de silicato de metal alcalino comerciales, se eliminan. Una forma de tratamiento
- 20.- para remover o eliminar los aniones o para reducir su concentración a un nivel aceptable, es esencial cuando el ácido silícico se prepara mediante un procedimiento que implica la producción de aniones como subproducto, por ejemplo, la hidrólisis del tetracloruro de silicio o el sulfuro de silicio.
- 25.- La invención se representa por los siguientes ejemplos. El ácido silícico utilizado se obtuvo mediante filtración de una disolución diluida de silicato de sodio a través de una columna de resina de permutación de cationes en la forma iónica de hidrógeno y después a través de una columna de resina
- 30.- permutadora de aniones, en forma iónica hidroxilica.



EJEMPLO 1

- Una disolución de 13 gramos de silicato de sodio (conteniendo 3 gramos de óxido de sodio y 10 gramos de sílice), con 237. gramos de agua, esto es, una disolución teniendo una concentración expresada como  $\text{SiO}_2$  del 4% por peso, se hirvió y agitó en un frasco de 500 ml. A esta disolución, se añadieron 2559 gramos de una disolución acuosa de ácido silícico teniendo una concentración de sílice del 3,82% por peso y un pH de 3.12 a un régimen constante durante 3,5 horas. El agua se evaporó de la mezcla a tal porcentaje que el volumen de la mezcla en el frasco aumentó gradualmente a aproximadamente 300 ml. La totalidad del producto se trasladó entonces a un frasco de 1 litro y, mientras se continuó hirviendo y agitando, se añadieron 3583 gramos más de la disolución acuosa de ácido silícico a un porcentaje constante durante 4 horas. El agua se evaporó de la mezcla agitada a tal porcentaje que el volumen de la mezcla aumentó gradualmente a aproximadamente 709. ml., dando 850 gramos de un sol que tenía una concentración de silicio del 29,2% por peso.
- Se hirvieron 250 gramos de este sol en un frasco de 500 ml. y se añadieron 1914 gramos mas de la disolución acuosa de ácido silícico a un régimen constante durante 3,75 horas. El agua se evaporó de la mezcla a tal porcentaje que el volumen aumentó a aproximadamente 250 ml., para dar 330 gramos de un sol lechoso que presentaba las siguientes características:
- Concentración de sílice: 43,8% por peso  
Concentración de  $\text{Na}_2\text{O}$  (por titulación con ácido a pH 3.5):  
0,0594% por peso  
pH. a 20°C: 8,2.  
Viscosidad a 21°C (Redwood): 7,6 centipoises.



Area superficial específica (por titulación):  $68 \text{ m}^2/\text{g SiO}_2$   
Diámetro disimétrico de partículas (por fotodispersión):  $1200 \text{ \AA}$   
Relación molar de  $\text{SiO}_2$  añadido como ácido silícico a  $\text{Na}_2\text{O}$  en el resto del recipiente: 166:1.

5.-

EJEMPLO 2

Una disolución de 7,17 gramos de silicato de sodio (conteniendo 1,67 gramos de óxido de sodio y 5,5 gramos de sílice), con 148,4 gramos de agua, esto es, una disolución que tenía una concentración expresada como  $\text{SiO}_2$ , de 3,33% por peso, se hirvió y agitó en un frasco de 1 litro. Se añadieron 824 gramos de una disolución acuosa de ácido silícico teniendo una concentración de sílice del 3,36% por peso y un pH de 3,0 a un régimen constante durante 4 horas a la disolución hirviente y agitada de silicato de sodio y durante este tiempo, se evaporó un total de 430 gramos de agua, de la mezcla a un porcentaje constante. El volumen de este sol intermedio fué de 510 ml.

Se hirvieron y agitaron 255 ml. del sol intermedio en un frasco de dos litros; Se añadieron 1647 gramos de la disolución acuosa de ácido silícico a un régimen constante 4 horas y después se añadieron 893 gramos más de la disolución acuosa de ácido silícico a un régimen constante durante las siguientes 4 horas. Se evaporó un total de 1542 gramos de agua de la mezcla a un régimen constante durante las ocho horas durante las cuales se añadió el ácido silícico. Finalmente se evaporaron 570 gramos adicionales de agua, para dar 690 gramos de un sol lechoso que tenía las siguientes propiedades:

20.-  
25.-

Concentración de sílice: 14.8% por peso

Concentración de  $\text{Na}_2\text{O}$  (por titulación con ácido a pH 3,5):

30.-

0,071% por peso



pH a 20°C : 10,4

Area superficial específica (por titulación) : 103 m<sup>2</sup>/g de SiO<sub>2</sub>

Relación molar de SiO<sub>2</sub> añadido como ácido silícico al Na<sub>2</sub>O en el resto del recipiente: 123:1:

5.- Diámetro disimétrico de partículas: 510 Å

El procedimiento para el de titulación utilizada en la determinación de las áreas superficiales específicas de los productos de los ejemplos se da por Sears, Analytical Chemistry, 1956, 23 1981.

10.-

EJEMPLO 3

Una disolución de 6,79 gramos de silicato de sodio (conteniendo 1,58 gramos de óxido de sodio y 5,21 gramos de sílice), con 148,5 gramos de agua, esto es, una disolución teniendo una concentración expresada como SiO<sub>2</sub> del 3,35 por

15.-

ciento por peso fué hervida y agitada en un frasco de 1 litro. Se añadieron 824 gramos de una disolución acuosa de ácido silícico que tenía una concentración de sílice del 3,36% por peso y un pH de 3,0, a un régimen constante durante 4 horas y, después se añadieron 403 gramos más de la disolución

20.-

acuosa de ácido silícico a un régimen constante durante las 4 horas siguientes. Se evaporó un total de 798 gramos de agua de la mezcla a un régimen constante durante las ocho horas durante las cuales se añadió el ácido silícico. El volumen de este sol intermedio fué de 550 ml.

25.-

Se hirvieron y agitaron 220 ml. de sol intermedio y 80 gramos de agua, en un frasco de dos litros. Se añadieron 1642 gramos de la disolución acuosa del ácido silícico a un régimen constante durante 4 horas y, después, se añadieron 857 gramos más de la disolución acuosa de ácido silícico a un

30.-

régimen constante durante las 4 horas siguientes. Se evaporó



un total de 1642 gramos de agua de la mezcla a un régimen constante durante las ocho horas durante las cuales se añadió el ácido silícico. Finalmente, se evaporaron 490 gramos adicionales de agua, para dar 676 gramos de un sol lechoso que presento las siguientes propiedades:

Concentración de sílice: 15,0% por peso

Concentración de  $\text{Na}_2\text{O}$  (por titulación con ácido a pH 3,5):  
0,0432% por peso

pH a 20° : 9,92

10.- Area superficial específica (por titulación):  $97 \text{ m}^2/\text{g SiO}_2$   
Relación molar de  $\text{SiO}_2$  añadido como ácido silícico al  $\text{Na}_2\text{O}$  en el resto del recipiente: 164:1.  
Diámetro disimétrico de partículas:  $586 \text{ \AA}$

#### EJEMPLO 4

15.- Una disolución de 6,79 gramos de silicato de sodio (conteniendo 1,58 gramos de óxido de sodio y 5,21 gramos de sílice), con 138.5 gramos de agua, esto es, una disolución que tenia una concentración expresada como  $\text{SiO}_2$  del 3,58% por peso, fué hervida y agitada en un frasco de 1 litro. Se añadieron 1248 gramos de una disolución acuosa del ácido silícico teniendo una concentración de sílice del 3,4% por peso y un pH de 3,0 a un régimen constante durante 8 horas a la disolución hirviendo y agitada de silicato de sodio y durante ese tiempo, se evaporó un total de 800 gramos de agua de la mezcla a un régimen constante. El volumen de este sol intermedio fué de 585 ml.

30.- Se hirvieron y agitaron 235 ml. del sol intermedio y 60 gramos de agua en un frasco de dos litros. Se añadieron 2461 gramos de la disolución acuosa de ácido silícico a un régimen constante 3 horas y durante ese tiempo, se evaporó un total de 1612 gramos de agua de la mezcla. Finalmente, se



evaporaron 405 gramos adicionales de agua, para dar 690 gramo de un sol lechoso que presentó las siguientes propiedades

Concentración de sílice: 15,0% por peso

Concentración de Na<sub>2</sub>O (por titulación con ácido a pH 3,5):

5.- 0,0362% por peso

pH a 20°C : 9,9

Area superficial específica (por titulación): 71 m<sup>2</sup>/g. SiO<sub>2</sub>

Relación molar del SiO<sub>2</sub> añadido como ácido silícico al Na<sub>2</sub>O

en el resto: 164:1.

10.- Diámetro disimétrico de partículas: 922 Å

EJEMPLO 5

Una disolución de 45,62 gramos de silicato de sodio (conteniendo 10,61 gramos de óxido de sodio y 35,01 gramos de sílice ). con 829,7 gramos de agua, esto es, una disolución

15.- que tenía una concentración expresada como SiO<sub>2</sub> del 4,0% por peso, se hirvió y agitó en un frasco de 5 litros. Se añadieron

7344 gramos de una disolución acuosa de ácido silícico que tenía una concentración de sílice del 3,4% por peso y un pH de 3,0, a un régimen constante, durante 8 horas, a la disolu-

20.- ción hirviendo y agitada de silicato de sodio, y durante ese tiempo se evaporó un total de 4809 gramos de agua de la mezcla, a un régimen constante. El volumen de este sol intermedio fué de 3340 ml.

Se hirvieron y agitaron en un frasco de 5 litros, 668 ml del sol intermedio y 172 gramos de agua. Se añadieron 7344

25.- gramos de la disolución acuosa de ácido silícico a un régimen constante durante 8 horas y durante ese tiempo, se evaporó un total de 4800 gramos de agua de la mezcla, a un régimen constante.

Finalmente, se evaporaron 1114 g adicionales de agua para dar

30.- 2130 gramos de un sol lechoso que tenía las siguientes propie.



dades:

Concentración de sílice: 14,2% por peso

concentración de  $\text{Na}_2\text{O}$  (por titulación con ácido a pH 3,5):

0,0398% por peso

5.- pH a 20° C : 10,2

Area superficial específica (por titulación): 63 m<sup>2</sup>/g  $\text{SiO}_2$

Relación molar de  $\text{SiO}_2$  añadido como ácido silícico al  $\text{Na}_2\text{O}$

en el resto: 141:1

Se evaporaron 1414 gramos de los 1970 gramos del sol al 14,2%

10.- para dar 556 gramos de sol lechoso que presentó las siguientes propiedades:

Concentración de sílice: 50,3% por peso

pH a 20°C : 10,0

Viscosidad (Ferranti) a 21° C: 14,8 centipoises

15.- Diámetro disimétrico de partículas: 1047 Å.

N O T A

En resumen, la presente solicitud recaerá sobre las siguientes reivindicaciones.

- 20.- 1ª.- Mejoras introducidas en el objeto de la patente principal nº 345.420 por procedimiento para producción de soles acuosos de sílice, en el que las partículas de sílice tienen un diámetro disimétrico mayor de 500 Å y comprende e l añadir ácido silícico acuoso que tenga un pH menor de 7, a un recipiente caldeado conteniendo como resto una disolución de silicato de metal alcalino acuoso, teniendo una concentración inicial expresada como  $\text{SiO}_2$  de 2,5% a 10% por peso, y siendo tal la cantidad de ácido silícico acuoso que la relación molar del  $\text{SiO}_2$  añadido como ácido silícico al contenido de  $\text{M}_2\text{O}$  del silicato alcalino en el resto del recipiente (donde M es un átomo de metal alcalino), es, por lo menos, de 25:1.
- 25.-
- 30.-



5.- 2ª.- Mejoras introducidas en el objeto de la patente principal nº 345.420 por procedimiento para la producción de soles acuosos de sílice, según la reivindicación primera caracterizado porque el contenido del recipiente se mantiene a una temperatura no menor de 90°C. y se evapora agua del mismo durante la adición de, por lo menos parte de la disolución de ácido silícico

10.- 3ª.- Mejoras introducidas en el objeto de la patente principal nº 345.420 por procedimiento para la producción de soles acuosos de sílice, según la reivindicación segunda, caracterizadas porque el contenido del recipiente se mantiene, esencialmente, a la temperatura de ebullición, a la presión atmosférica.

15.- 4ª.- Mejoras introducidas en el objeto de la patente principal nº 345.420 por procedimiento para la producción de soles acuosos de sílice según cualquiera de las reivindicaciones primera a tercera, caracterizado porque la concentración del silicato de metal alcalino en la disolución acuosa es del 3% al 5% por peso, expresado como SiO<sub>2</sub>.

20.- 5ª.- Mejoras introducidas en el objeto de la patente principal nº 345.420 por procedimiento para la producción de soles acuosos de sílice según cualquiera de las reivindicaciones primera a cuarta, caracterizadas porque el silicato de metal alcalino es un silicato que tiene una relación molar de SiO<sub>2</sub> a H<sub>2</sub>O de 2:1 a 4:1.

30.- 6ª.- Mejoras introducidas en el objeto de la patente principal nº 345.420 por procedimiento para la producción de soles acuosos de sílice según cualquiera de las reivindicaciones primera a quinta, caracterizadas porque el silicato de metal alcalino es silicato de sodio.



5.- 7ª.- Mejoras introducidas en el objeto de la patente principal nº 345.420 por procedimiento para la producción de soles acuosos de sílice, según cualquiera de las reivindicaciones primera a sexta, caracterizadas porque la disolución de ácido silícico tiene un pH a 15° C de 2,5 a 4,0.

10.- 8ª.- Mejoras introducidas en el objeto de la patente principal nº 345.420, por procedimiento para la producción de soles acuosos de sílice, según cualquiera de las reivindicaciones primera a séptima, caracterizadas porque la relación molar del SiO<sub>2</sub> añadido como ácido silícico al contenido de M<sub>2</sub>O del silicato de metal alcalino en el resto del recipiente es de 50:1 a 250:1.

15.- 9ª.- Mejoras introducidas en el objeto de la patente principal nº 345.420 por procedimiento para la producción de soles acuosos de sílice, según las reivindicaciones anteriores caracterizadas porque el porcentaje a régimen correspondiente de adición de la disolución de ácido silícico y de evaporación, del agua es tal que al final de la adición al sol contiene del 4% al 10% por peso de sílice.

20.- 10ª.- Mejoras introducidas en el objeto de la patente principal nº 345.420 por procedimiento para la producción de soles acuosos de sílice, según la reivindicación novena caracterizadas por la producción de un sol que contiene del 20 al 60 por ciento por peso de sílice, en el cual se evapora el agua, sin la adición de más ácido silícico,.

25.- 11ª.- Mejoras introducidas en el objeto de la patente principal nº 345.420 por procedimiento para la producción de soles acuosos de sílice, según la reivindicación anterior caracterizada porque los porcentajes correspondientes de



adición de la disolución de ácido silícico y de evaporación de agua son tales que la concentración de silicato en la disolución, expresado como  $\text{SiO}_2$ , no baja por debajo del 2,5% por peso de la disolución hasta que la relación molar de  $\text{Si}^{+2}$  añadido como ácido silícico al  $\text{H}_2\text{O}$  en la disolución sea, por lo menos de 20:1.

12ª.- MEJORAS INTRODUCIDAS EN EL OBJETO DE LA PATENTE PRINCIPAL Nº 345.420 POR PROCEDIMIENTO PARA LA PRODUCCIÓN DE SOLES ACUOSOS DE SILICE.

10.- Según se describe en la presente memoria que consta de dieciocho hojas escritas a máquina por una sola cara.

Madrid a 5 Agosto 1.969