



(19) 대한민국특허청(KR)  
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2009년04월17일  
(11) 등록번호 10-0893688  
(24) 등록일자 2009년04월09일

(51) Int. Cl.

C07F 7/18 (2006.01) C07F 7/08 (2006.01)

(21) 출원번호 10-2004-7012330

(22) 출원일자 2004년08월10일

심사청구일자 2007년07월24일

번역문제출일자 2004년08월10일

(65) 공개번호 10-2004-0097125

(43) 공개일자 2004년11월17일

(86) 국제출원번호 PCT/US2003/001296

국제출원일자 2003년01월16일

(87) 국제공개번호 WO 2003/068780

국제공개일자 2003년08월21일

(30) 우선권주장

10/073,444 2002년02월11일 미국(US)

(56) 선행기술조사문헌

US5446181 A

US4546996 A

전체 청구항 수 : 총 7 항

심사관 : 김동석

(54) 에틸렌디아민 염 재순환에 의한 N-[2-아미노 에틸]아미노알킬알콕시실란 제조방법

(57) 요약

본 발명은 하기의 아미노알킬알콕시실란을 생산하는 반응조건 하에서 1몰의 클로로알킬알콕시실란 당 전체 에틸렌디아민의 양이 3~40몰의 공급량으로 반응기에 공급되는 에틸렌디아민, 에틸렌디아민 염화수소 염 및 적절한  $\omega$ -클로로알킬알콕시실란으로 3-[N-(2-아미노 에틸)] 아미노알킬알콕시실란을 제조하는 방법을 제공한다. 에틸렌디아민과 에틸렌디아민 염화수소 염의 부분은 상기 아미노알킬알콕시실란을 포함하는 상으로부터 상기의 반응기에 현존하는 상기 디아민 염을 포함하는 상을 분리하기 위하여 조절된다. 상기의 반응에 따라, 상기 염 상은 2상 반응기로 재순환을 위하여 상기의 실란 상으로부터 분리된다.

(72) 발명자

**와이어,스티븐,에이치.**

미합중국 미시간주 48640, 미드랜드, 애쉬맨 스트리트 2020

**맥도날드,브라이언,씨.**

미합중국 미시간주 48640, 미드랜드, 헤취우드 드라이브 5220, 아파트먼트 810

---

## 특허청구의 범위

### 청구항 1

$\omega$ -[N-(2-아미노 에틸)] 아미노알킬알콕시실란을 생산하기 위한 반응 조건하에서  $\omega$ -클로로알킬-알킬알콕시실란 1몰 당 총 에틸렌디아민 3~40몰의 공급비가 되도록 하고; 에틸렌디아민 대 에틸렌디아민 염화수소 염의 몰비가 1~20의 범위이고, 상기 염을 포함하는 하나의 상이  $\omega$ -[N-(2-아미노 에틸)] 아미노알킬알콕시실란을 포함하는 상으로부터 분리되어 반응기에 존재하도록 선택하여, 에틸렌디아민, 에틸렌디아민 염화수소 염, 및  $\text{ClR}^5\text{Si}(\text{R}^6)_{3-a}(\text{OR}^7)_a$ 의 식을 가진  $\omega$ -클로로알킬-알킬알콕시실란을 반응기에 첨가하고;

상기 염을 포함하는 상을 상기 알콕시실란을 포함하는 상으로부터 분리시키고; 그리고

상기 염을 포함하는 상의 최소한의 일부를 상기 에틸렌디아민의 일부 및 상기 에틸렌디아민 염화수소 염의 원료로서 상기 반응기에 반송하는;

단계로 이루어지는 것을 특징으로 하는,  $\text{R}^1\text{R}^2\text{NCH}_2\text{CH}_2\text{NR}^3\text{R}^4$ (여기서  $\text{R}^1$ ,  $\text{R}^2$  및  $\text{R}^3$ 은 독립적으로 수소 원자 및  $\text{R}^5\text{Si}(\text{R}^6)_{3-a}(\text{OR}^7)_a$  식을 갖는 알킬알콕시실란기로 이루어진 그룹으로부터 선택되고, 상기의  $\text{R}^5$ 는  $\text{C}_{1-8}$  알킬렌이고,  $\text{R}^6$  및  $\text{R}^7$ 은 각각 독립적으로  $\text{C}_{1-8}$  알킬이고,  $a$ 는 1, 2 또는 3이며,  $\text{R}^4$ 는 상기 알킬알콕시실란기(임)의 일반식을 갖는  $\omega$ -[N-(2-아미노 에틸)] 아미노알킬알콕시실란의 제조방법.

### 청구항 2

제1항에 있어서, 상기의  $\omega$ -클로로알킬-알킬알콕시실란은 3-클로로프로필-트리알콕시실란 또는 3-클로로이소부틸알킬알콕시실란인 것을 특징으로 하는  $\omega$ -[N-(2-아미노 에틸)] 아미노알킬알콕시실란의 제조방법.

### 청구항 3

제1항에 있어서, 상기의  $\omega$ -클로로알킬-알킬알콕시실란은 3-클로로프로필트리메톡시실란 또는 3-클로로이소부틸메틸디메톡시실란인 것을 특징으로 하는  $\omega$ -[N-(2-아미노 에틸)] 아미노알킬알콕시실란의 제조방법.

### 청구항 4

제1항 내지 제3항의 어느 한 항에 있어서, 상기의 총 에틸렌디아민 :  $\omega$ -클로로알킬-알킬알콕시실란의 몰비가 6:1 내지 30:1의 범위인 것을 특징으로 하는  $\omega$ -[N-(2-아미노 에틸)] 아미노알킬알콕시실란의 제조방법.

### 청구항 5

$\text{H}_2\text{NCH}_2\text{CH}_2\text{NHR}^1\text{SiR}^3_{(3-a)}(\text{OR}^2)_a$ 를 생산하기 위한 반응조건하에서  $3\text{-Cl-R}^1\text{SiR}^3_{(3-a)}(\text{OR}^2)_a$  1몰 당 총 에틸렌디아민 12~30몰의 공급비가 되도록 하고; 에틸렌디아민 대 에틸렌디아민 염화수소 염의 몰비가 1~20의 범위이고, 상기 염을 포함하는 상이 상기  $\text{H}_2\text{NCH}_2\text{CH}_2\text{NHR}^1\text{SiR}^3_{(3-a)}(\text{OR}^2)_a$ 을 포함하는 상으로부터 분리되어 반응기에 존재하도록 선택하여, 에틸렌디아민, 에틸렌디아민 염화수소 염, 및  $3\text{-Cl-R}^1\text{SiR}^3_{(3-a)}(\text{OR}^2)_a$ (여기서  $\text{R}^1$ 은 프로필렌기 또는 이소부틸렌기이며,  $\text{R}^2$  및  $\text{R}^3$ 은 각각 독립적으로 메틸 또는 에틸기이고,  $a$ 는 1, 2 또는 3임)를 반응기에 첨가하고;

상기 염을 포함하는 상을 상기  $\text{H}_2\text{NCH}_2\text{CH}_2\text{NHR}^1\text{SiR}^3_{(3-a)}(\text{OR}^2)_a$ 을 포함하는 상으로부터 분리시키고; 그리고

상기 염을 포함하는 상의 최소한의 일부를 상기 에틸렌디아민의 일부 및 상기 에틸렌디아민 염화수소 염의 원료로서 상기 반응기에 반송하는;

단계로 이루어지는 것을 특징으로 하는  $\text{H}_2\text{NCH}_2\text{CH}_2\text{NHR}^1\text{SiR}^3_{(3-a)}(\text{OR}^2)_a$ (여기서  $\text{R}^1$ 은 프로필렌기 또는 이소부틸렌기이며,  $\text{R}^2$  및  $\text{R}^3$ 은 각각 독립적으로 메틸 또는 에틸기이고,  $a$ 는 1, 2 또는 3임)의 제조방법.

## 청구항 6

제5항에 있어서, 상기 반응기의 온도는 상기 반응기 내에서 액상을 유지하기 위한 압력 하에서 60~200 °C 범위인 것을 특징으로 하는 방법.

## 청구항 7

제5항 또는 제6항에 있어서, 상기 반응기에 공급되는  $3\text{-Cl-R}^1\text{SiR}^3_{(3-a)}(\text{OR}^2)_a$ 의 몰당 1~15 몰의 양으로 상기 염을 포함하는 상을 상기 반응기로 반송하는 단계를 더 포함하는 것을 특징으로 하는 방법.

## 명세서

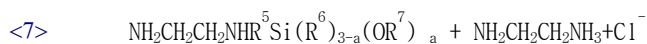
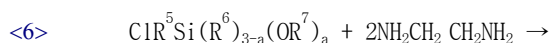
### <1> 기술 분야

<2> 본 발명은  $\omega$ -[N-(2-아미노 에틸)] 아미노알킬알콕시실란의 제조 방법에 관한 것이다. 보다 구체적으로, 본 발명은 재순환된 에틸렌디아민 염화수소 염 상의 흐름을 이용하여 과량의 에틸렌디아민과  $\omega$ -클로로알킬알콕시실란의 반응에 의해서 그러한 실란을 제조하는 방법에 관한 것이다.

### <3> 발명의 배경

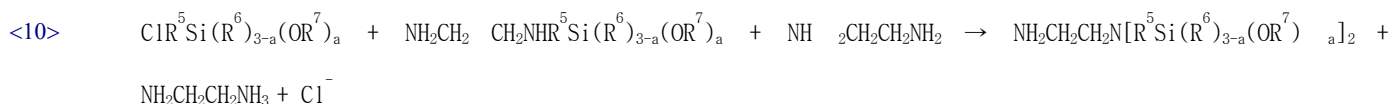
<4> 공지된 바와 같이,  $\omega$ -[N-(2-아미노 에틸)] 아미노알킬알콕시실란은  $\text{R}^1\text{R}^2\text{NCH}_2\text{CH}_2\text{NR}^3\text{R}^4$ 과 같은 일반식을 가지고 있으며, 상기의  $\text{R}^1$ ,  $\text{R}^2$  및  $\text{R}^3$ 은 수소원자 또는  $\text{R}^5\text{Si}(\text{R}^6)_{3-a}(\text{OR}^7)_a$ 의 식의 알콕시실란으로 이루어진 그룹으로부터 독립적으로 선택된 인자이고, 상기의  $\text{R}^5$ 는  $\text{C}_{1-8}$  알킬렌이고,  $\text{R}^6$  및  $\text{R}^7$ 은 각각 독립적으로  $\text{C}_{1-8}$  알킬(직선형 사슬 또는 분기형 알킬기를 포함하는)이고  $a$ 는 1, 2, 또는 3이다.  $\text{R}^4$ 는 상기의 알콕시실란 이다. 상기의  $\omega$ -[N-(2-아미노 에틸)] 아미노알킬알콕시실란은 실란 커플링제로서 넓게 사용되며, 다양한 고분자 물성 개질 목적 (예를 들어 유기물질간 접착력을 강화시킨다는 것과 같은) 을 위해서 효과적이다.

<5> 상기의 혼합물은 에틸렌디아민과  $\omega$ -클로로알킬알콕시실란의 반응에 의하여  $\omega$ -[N-(2-아미노 에틸)] 아미노알킬알콕시실란 형태로 합성된다. 정량적으로, 상기의 방법은 1몰의  $\omega$ -[N-(2-아미노 에틸)] 아미노알킬알콕시실란을 합성하기 위하여 1몰의  $\omega$ -클로로알킬알콕시실란과 2몰의 에틸렌디아민을 사용하는데, 상기의 반응에서 1몰의 에틸렌디아민과 모노하이드로클로라이드도 동시에 형성되며 이러한 반응식은 하기와 같다.



<8> 상기 반응에서  $\text{R}^5$ 은 알킬렌기이며,  $\text{R}^6$ 과  $\text{R}^7$ 은 1개 내지 8개의 탄소 원자를 가진 알킬 라디칼(radical)이고,  $a$ 는 1, 2 또는 3이다.

<9> 실제 반응에서, 상기 최종 생산물인  $\omega$ -[N-(2-아미노 에틸)] 아미노알킬알콕시-실란은 하기의 반응식과 같이 반응개시물인  $\omega$ -클로로알킬알콕시실란과 에틸렌디아민과 계속적인 반응을 하여 폴리-알킬화된 생산물을 생성한다.



- <11> 상기의 디알킬화된 에틸렌디아민은  $\omega$ -클로로알킬알콕시실란 및 에틸렌디아민과 계속적으로 반응하여 하기와 같은 트리알킬 생산물을 생성한다.
- <12> 
$$\text{NH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{N}[\text{R}^5\text{Si}(\text{R}^6)_{3-a}(\text{OR}^7)_a]_2 \{ \text{또는 } (\text{OR}^7)_a(\text{R}^6)_{3-a}\text{SiR}^5\text{NH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{NHR}^5\text{Si}(\text{R}^6)_{3-a}(\text{OR}^7)_a \} + \text{ClR}^5\text{Si}(\text{R}^6)_{3-a}(\text{OR}^7)_a + \text{NH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{NH}_2 \rightarrow (\text{OR}^7)_a(\text{R}^6)_{3-a}\text{SiR}^5\text{NH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{N}[\text{R}^5\text{Si}(\text{R}^6)_{3-a}(\text{OR}^7)_a]_2 + \text{NH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{NH}_3^+ \text{Cl}^-$$
- <13> 이론적으로, 상기의 과정은 헥사-알킬 에틸렌디아민 생산물이 생성될 때까지 계속되어야 하지만, 실제로는 단지 모노-, 디-, 및 트리-알킬화된 생성물만이 가스 크로마토그래피 분석법을 이용한 탐침에서 검출된다.
- <14> 일반적으로, 연속 흐름 공정에서  $\omega$ -[N-(2-아미노 에틸)] 아미노알킬알콕시-실란을 생산하기 위한 현재의 방법은 하기와 같다.
- <15> 에틸렌디아민 흐름은 하기와 같은 식을 가진  $\omega$ -클로로알킬알콕시실란 흐름과 함께 반응기에 공급된다.
- <16>  $\text{ClR}^5\text{Si}(\text{R}^6)_{3-a}(\text{OR}^7)_a$
- <17> 상기에서 정의된 바와 같이,  $\omega$ -클로로알킬알콕시실란 1몰 당 3~20몰의 에틸렌디아민이 공급비(feed ratio)이다. 알콕시실란에 대한 에틸렌디아민의 최적 몰 공급비는 사용된 특성의 알콕시 실란에 의존된다. 전형적으로 단지 단일 상 지역 내부 몰 공급량이 최적이지만, 또한 상기 생산물에서 원하는 폴리알킬화된 에틸렌디아민의 농도에 의존한다.
- <18> 상기 에틸렌디아민과  $\omega$ -클로로알킬알콕시실란은 상기에 기재된 바와 같이 반응한다. 반응기(계속적인 교반조 반응기, 플러그 흐름 반응기, 또는 상기 두 가지의 혼합)로부터 단일 상 배출 흐름은 에틸렌디아민, 알콜,  $\omega$ -[N-(2-아미노 에틸)] 아미노알킬알콕시실란 및 에틸렌디아민 모노하이드로클로라이드의 혼합물이며, 탈기 및/또는 증류 컬럼을 통과한다. 상기의 탈기 컬럼에서는 두 가지 액상으로 컬럼에 남아있던 물질에서 단일한 상 분리를 유도하기 위하여 충분한 에틸렌디아민이 오버헤드로 제거된다.
- <19> 상기에서 언급된 알콜은 에틸렌디아민과 알콕시실란 피드와 함께 유입되는 정제되지 않은 물과의 사이에서 발생하는 부가반응에서 생성된다. 상기의 부가반응은 하기와 같으며, 하기 반응식에서 b는 a와 같거나 적은데, a는 1, 2, 또는 3과 같다.
- <20> 
$$-\text{Si}(\text{R}^6)_{3-a}(\text{OR}^7)_a + b \cdot \text{H}_2\text{O} \rightarrow -\text{Si}(\text{R}^6)_{3-a}(\text{OR}^7)_{a-b}(\text{OH})_b + b \cdot \text{R}^7\text{OH}$$
- <21> 상기 증류 컬럼으로부터 2-상의 배출 흐름은 단일 상 분리기(중력, 물성, 전기적, 기타 등등)로 통과되는데, 여기에서 에틸렌디아민과 에틸렌디아민 모노하이드로클로라이드의 혼합물인 농후한(denser) 상이 제거된다.
- <22> 주로 에틸렌디아민, 알콜, 및 3-[N-(2-아미노에틸)]아미노알콕시실란의 혼합물인 상기 상 분리기로부터 가벼운 실란 상 배출 흐름은 아미노에틸아미노알킬알콕시실란이 정제되는 두 번째 증류 컬럼으로 통과된다. 상기 에틸렌디아민과 알콜은 컬럼의 탑(top)으로부터 제거되어 유입되는 에틸렌디아민이 처리될 에틸렌디아민 정제 컬럼으로 다시 순환된다. 상기 아미노에틸아미노알콕시실란 흐름은 때때로 폴리-알킬기화된 에틸렌디아민의 농도를 감소시키기 위하여 통기, 증류, 또는 프래쉬 시스템에서 더욱 정제된다.
- <23> 상기 에틸렌디아민 탑위흐름(overhead stream)과 새로운 에틸렌디아민은 또한 알콜이 제거된 에틸렌 정제 증류 컬럼으로 진행된다.
- <24> 상기 공정은 고급 알킬기로 치환된 에틸렌디아민이 높은 수율로 생산되는 동안, 상기에서 언급한 바와 같이, 반응기의 내용물, 반응 혼합물은 에틸렌디아민의 실질적인 양의 제거를 위하여 증류 컬럼을 통하여 통과하여야만 한다. 상기 증류 조작은 생산물의 분리와 정제를 위하여 생산물을 많이 포함하고 있는 상으로 잔여 반응 혼합물이 분리되기 전에 요구된다. 생산물을 많이 포함하는 상이 선행적인 증류단계 및 그러한 목적을 위한 증류 기구

의 사용 없이 얻어질 수 있게 하기 위해서는 반응 혼합물이 두 가지 상을 포함하는 과정을 가지는 것이 보다 더 효율적이고 경제적인 것이다. 본 발명의 목적은 그러한 과정을 제공하는 것이다.

<25> 발명의 요약

<26> 2몰의 에틸렌디아민과 1몰의 적합한  $\omega$ -클로로알킬알콕시실란 사이의 반응은 하나의  $\omega$ -[N-(2-아미노 에틸)] 아미노알킬알콕시실란과 1몰의 에틸렌디아민 염화수소를 생산한다. 상기에서 언급한 바와 같이, 상당한 과량의 에틸렌디아민은 생산물을 오염시키는 폴리실란(즉, 폴리-알킬화된 에틸렌디아민)의 생성을 억제하는데 사용된다. 따라서 상기의 원리를 이용한 연속 공정에서, 과량의 에틸렌디아민은 생산물 흐름으로부터 분리되어야만 하며, 반응기로 재순환 되어야만 한다. 본 발명에 따르면, 부산물인 에틸렌디아민 염화수소 염 또한 충분한 양으로 반응기로 재순환되어 반응기와 그것으로부터 배출되는 흐름에서 두 가지 액상을 생성한다.

<27> 상기의 반응기로부터 배출되는 두 가지 액상은  $\omega$ -[N-(2-아미노 에틸)] 아미노알킬알콕시실란, 에틸렌디아민, 에틸렌디아민 염화수소 및 외부 알코올의 혼합물이다. 상기 흐름은 증류 칼럼 보다는 상 분리 바셀(vessel)로 전해진다. 상 분리에 있어서, 상기 탑 벌크 상은 지배적으로 실란과 에틸렌디아민을 포함한다. 무거운 벌크 상은 지배적으로 에틸렌디아민 염화수소와 에틸렌디아민을 포함한다. 상기의 무거운 상은 충분한 양이 반응기 속에서 두 가지 상을 유지하고 폴리 알킬화 되는 정도를 조절하는데 사용되기 위해서 반응기로 재순환된다. 무거운 상의 잔여물(balance)이 상기 공정으로부터 제거된다.

<28> 가벼운 상은 증류 및/또는 섭광 시스템을 포함한 정제 시스템으로 전달되는데, 그곳에서  $\omega$ -[N-(2-아미노 에틸)] 아미노알킬알콕시실란은 끓는점이 보다 낮은 종류가 제거됨에 의해서 정제된다. 따라서 상기의 에틸렌디아민이 두 번째 증류에 의해서 더욱 정제되고 두 가지 상 시스템 반응기로 되돌아가는 동안 상기 실란 생성물은 높은 수율과 좋은 품질로 재생된다.

<29> 상기의 반응은 약 60 ~ 200 °C의 온도 범위에서 바람직하게 진행된다. 에틸렌디아민 염화수소 재순환을 포함한 반응기에서 알콕시실란에 대한 전체 에틸렌디아민의 물비는 최소 3:1 이며 40:1 을 넘지는 않는다.

<30> 본원발명의 상기의 공정은 특별히 3-[N-(2-아미노 에틸)] 아미노프로필알콕시실란과 3-[N-(2-아미노 에틸)] 아미노이소부틸알콕시실란의 제조에 유용하다. 예를 들어, 3-[N-(2-아미노 에틸)] 아미노프로필트리메톡시실란(또는 -트리에톡시실란) 또는 3-[N-(2-아미노 에틸)] 아미노이소부틸메틸디메톡시실란(또는 -메틸디에톡시실란)은 높은 수율과 품질로 제조될 수 있다. 생산물 필요에 따라 상기의 실란은 실질적으로 모노-알킬화된 에틸렌디아민으로 제조될 수 있으며 또는 모노-알킬화된 생성물을 주요소로 하고, 디- 및 트리-알킬화된 생산물을 일부 함유하는 혼합물로서 제조될 수도 있다.

### 발명의 상세한 설명

<32> 본원발명은 요구되는 제조 단계를 감축하기 위하여 신규하고 진보된  $\omega$ -[N-(2-아미노 에틸)] 아미노알킬알콕시실란을 생산하는 방법을 제공한다. 상기의 방법은 다음과 같은 일반식을 가진  $\omega$ -[N-(2-아미노 에틸)] 아미노알킬알콕시실란의 제조에 바람직하다:



<34> 상기에서  $R^1$ ,  $R^2$  및  $R^3$ 은 각각 수소 원자 또는 하기의 식을 가진 알킬알콕시실란을 포함하는 그룹으로부터 선택된 작용기이다:



- <36> 상기에서  $R^5$ 는  $C_{1-8}$  알킬렌이고,  $R^6$  및  $R^7$ 은 각각 독립적으로  $C_{1-8}$  알킬이고,  $a$ 는 1, 2, 또는 3이다.  $R^4$ 는 상기의 알킬알콕시실란 이다.
- <37> 상기 공정은 2-상 반응 시스템의 체제를 포함한다. 에틸렌디아민은 상기에서 정의된 바와 같이  $ClR^5Si(R^6)_3-(OR^7)_a$ 의 식을 가진  $\omega$ -클로로알킬-알킬알콕시실란과 함께 반응기로 공급된다. 바람직한 온도, 예를 들어, 60~200 °C에서 상기의 디아민과  $\omega$ -클로로알킬-알킬알콕시실란은 반응하여 실란 생성물과 에틸렌디아민 모노염화수소 염을 형성한다. 본원발명에 따르면, 이러한 부산물 염은 충분한 양이 반응 혼합물로 재순환되어 실란 생산물을 포함하는 상으로부터 분리될 수 있는 염이 풍부한 상을 형성한다. 상기의 에틸렌디아민 염 재순환은 폴리-알킬화된 에틸렌디아민의 형성을 조절한다. 3-[N-(2-아미노 에틸)] 아미노프로필트리메톡시실란을 생산하는 반응 혼합물의 경우, 예를 들어, 실란 생산물 1몰 당 약 1~15 몰의 에틸렌디아민 염이 재순환 염 상 반응기에서 방출되는 것이 반응기에서 2상 혼합물을 형성하는데 바람직하다.
- <38> 도1에 의하면, 에틸렌디아민(흐름 12), 에틸렌디아민 염 상(흐름 14) 및 하기와 같은 식을 가진  $\omega$ -클로로알킬-알킬알콕시실란(흐름 16):
- <39>  $ClR^5Si(R^6)_{3-a}(OR^7)_a$
- <40> 상기에서 정의된 바와 같이,  $\omega$ -클로로알킬-알킬알콕시실란 1몰 당 전체 에틸렌디아민 3~40 몰의 공급비(feed ratio)로 반응기 10에 함께 공급된다. 흐름 12의 에틸렌디아민과 흐름 14의 에틸렌디아민 염화수소의 비는 염화수소가 풍부한 별개의 상이 반응기 10에 존재하도록 한다. 원하는 생산물이 지배적으로 모노-알킬화된 에틸렌디아민일 때, 에틸렌디아민 대 에틸렌디아민 염화수소의 몰 공급비는 약 1~20의 범위이고, 최적비는 사용된 알콕시실란에 의존하는 것이 일반적으로 바람직하다.
- <41> 반응기로부터 방출되는(흐름 18) 두 가지 액상은 지배적인 에틸렌디아민  $\omega$ -[N-(2-아미노 에틸)] 아미노알킬알콕시실란과 에틸렌디아민 모노-염화수소의 혼합물이며, 상 분리 바셀(vessel) 20을 통과한다. 바셀 20에서 바닥 상(흐름 22)은 비교적 작은 정제된 흐름(흐름 24)과 반응기 10으로 피드백 되는 재순환 흐름 14로 나뉘어진다. 재순환 흐름 14는 전형적으로 에틸렌디아민과 그의 염화수소 염을 모두 포함한다. 상기의 비율은 상기의 실란 생산물 포함 상으로부터의 분리를 위하여 요구되는 조합에 의존한다. 재순환되는 양은 상기의 2-상 반응 시스템을 생산하여 방출하고 폴리 알킬화의 정도를 조절하기 위해 실험적으로 결정된다.
- <42> 상 분리기 20으로부터의 상기 탑 상(top phase) 방출은 지배적인 에틸렌디아민과  $\omega$ -[N-(2-아미노 에틸)] 아미노알킬알콕시실란의 혼합물로서, 정제 시스템 28을 통과하는데, 정제 시스템 28에서는 상기의  $\omega$ -[N-(2-아미노 에틸)] 아미노알킬알콕시실란이 다양한 수준으로 정제된다. 지배적인 에틸렌디아민(흐름32)은 컬럼 28의 탑을 매개로 하여 실란으로부터 제거되며, 에틸렌디아민 정제 칼럼 34로 다시 재순환된다. 상기의 실란 생산물은 흐름 30의 바닥으로부터 제거된다.
- <43> 상기 재순환된 에틸렌디아민 흐름(1)과 함께, 새로운 에틸렌디아민 흐름(흐름 36)은 바람직하게는 상기의 에틸렌디아민 정제 칼럼 34를 통하여 상기의 시스템으로 공급되는데, 상기의 정제 칼럼 34에서 낮은 끓는점을 가진 불순물/부산물(흐름 38)은 오버헤드 흐름(overhead steam)으로 제거된다. 그런 다음 상기 정제된 에틸렌디아민(흐름 12)은 상기의 2-상 시스템 반응기 10으로 공급된다.
- <44> 상기에서 언급된 바와 같이, 본원발명의 공정에 대한 바람직한 출원은  $H_2NCH_2CH_2NHR^1Si(R^2)_{3-a}(OR^3)_a$ 의 생산에 있는데, 여기에서  $R^1$ 은 프로필렌기 또는 이소부틸렌기이며,  $R^2$ 와  $R^3$ 은 각각 독립적으로 메틸 또는 에틸 그룹이고,  $a$ 는 1, 2 또는 3이다. 어떤 경우에 있어, 필수적으로 모든 모노-알킬화된 에틸렌디아민 또는 다른 정도로 폴리알킬화된 혼합물을 생산하는 것이 요구된다.
- <45> .
- <46> **실시예**
- <47> 도1에 도시된 상기 공정의 장치를 사용하여, 105 °C, 반응기에서의 체류시간(residence time)은 68분으로 한 조건에서, 에틸렌디아민, 3-클로로프로필트리메톡시실란 및 에틸렌디아민모노하이드로클로라이드와의 반응으로(각



각의 몰비는 12: 1: 1.9로 한다) 3-[N-(2-아미노 에틸)] 아미노프로필트리메톡시실란을 제조하였다. 프리 아민 (free amine)에 대한 정제된 실란 생산물 흐름의 적정 분석은 99.9 % 전환에 있는 반응을 보여주었다.

- <48> 2-상 반응기 10의 작동에서, 재순환 흐름 14는 상기의 재순환된 에틸렌디아민 모노클로라이드를 제공하였는데, 상기에서 언급된 바와 같이, 3-클로로프로필트리메톡시실란 1몰 당 1.9몰의 비로 반응기 속으로 공급하였다. 재순환 흐름 14는 또한 반응기 10으로 공급되는 약 60 %의 에틸렌디아민을 포함한다.
- <49> 상기의 염 재순환과 반응기에서의 분리 염을 사용해서 얻어진 3-[N-(2-아미노 에틸)] 아미노프로필트리메톡시실란(상기의 반응기에서 채워진 3-클로로프로필트리메톡시실란 1몰당)의 수율은 반응기에서 프리 에틸렌디아민에 단지 염만을 첨가한 종래 기술로부터 얻어졌던 수율과 동일하였다.
- <50> 본 발명의 특정  $\omega$ -[N-(2-아미노 에틸)] 아미노알킬알콕시실란 제조에 있어서, 전체 EDA 몰비와 2-상 시스템을 얻기 위해 충분한 EDA HCl 두 가지 모두를 달성하기 위해서 에틸렌디아민(EDA), 모노하이드로클로라이드(EDA HCl) 및  $\omega$ -클로로알킬알콕시실란 전구체의 반응비를 결정하는 것이 필요하다.
- <51> 본 발명의 단순한 변형 내지 변경은 이 분야의 통상의 지식을 가진 자에 의하여 용이하게 이용될 수 있으며, 이러한 변형이나 변경은 모두 본 발명의 영역에 포함되는 것으로 볼 수 있다.

### 도면의 간단한 설명

- <31> 제1도는  $\omega$ -[N-(2-아미노 에틸)] 아미노알킬알콕시실란을 생산하기 위한 본원발명 공정의 흐름도이다.

### 도면

도면1

