

19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 946 789**

51 Int. Cl.:

C01B 33/18 (2006.01)

C01B 33/193 (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

86 Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **07.11.2017 PCT/US2017/060402**

87 Fecha y número de publicación internacional: **24.05.2018 WO18093611**

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **07.11.2017 E 17811748 (7)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **07.06.2023 EP 3541746**

54 Título: **Partículas esféricas a base de sílice y métodos para preparar las mismas**

30 Prioridad:

18.11.2016 US 201662423887 P
03.11.2017 US 201715802511

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:
26.07.2023

73 Titular/es:

PPG INDUSTRIES OHIO, INC. (100.0%)
3800 West 143rd Street
Cleveland, OH 44111, US

72 Inventor/es:

ZHANG, XIAOFENG y
KOLLAH, RAPHAEL, O.

74 Agente/Representante:

FERNÁNDEZ POU, Felipe

ES 2 946 789 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

Partículas esféricas a base de sílice y métodos para preparar las mismas

5 Antecedentes de la invención

Campo de la invención

10 La presente invención se refiere a partículas esféricas a base de sílice y a métodos para preparar las partículas esféricas a base de sílice.

Descripción de la técnica relacionada

15 La sílice, tal como la sílice precipitada, se usa en una variedad de aplicaciones. Por ejemplo, la sílice se usa comúnmente como relleno de refuerzo en materiales poliméricos, en una membrana porosa (por ejemplo, separador de batería) para proporcionar humectabilidad y porosidad, y como un aditivo en recubrimientos y adhesivos para modificar la apariencia, la reología y la durabilidad. La sílice también se ha usado como un auxiliar de flujo, material de apoyo, absorbente y portador. Se aprecia que las propiedades físicas y la química superficial de la sílice influyen en las diferentes aplicaciones de uso final de esa sílice. Por lo tanto, es conveniente proporcionar una sílice con una estructura única que tenga propiedades mejoradas que amplíen las diversas aplicaciones a las que se puede aplicar la sílice.

20 El documento núm. US 4,681,750 A se dirige a una sílice precipitada amorfa, su preparación y un separador de batería polimérico microporoso reforzado con relleno silíceo que comprende la sílice precipitada amorfa.

25 El documento núm. EP 0 396 450 A1 se refiere a perlas de sílice que tienen una morfología sustancialmente esférica y un tamaño de partícula medio de al menos 80 μm , una área superficial específica BET máxima de 130 m^2/g , una densidad de relleno en estado comprimido superior a 0,32 y un volumen total de poros de al menos 1,6 cm^3/g .

30 Resumen de la invención

La presente invención se dirige a la sílice de forma esférica. La sílice de forma esférica es un polvo de sílice precipitada que comprende: un tamaño de partícula d_{50} seleccionado dentro de un intervalo superior a 20 μm y hasta 80 μm ; una absorción de aceite de adipato de dioctilo (DOA) seleccionada dentro de un intervalo de 150 $\text{ml}/100 \text{ g}$ a 500 $\text{ml}/100 \text{ g}$; una circularidad promedio seleccionada dentro de un intervalo de 0,70 a 1,0; y un ángulo de reposo inferior a 30°. En algunos ejemplos, la sílice de forma esférica tiene una circularidad promedio seleccionada dentro de un intervalo de 0,70 a 0,95.

40 La sílice de forma esférica también puede tener una densidad compactada promedio superior a 150 g/l , o superior a 250 g/l . La sílice precipitada de forma esférica puede tener además un área superficial BET de 80 a 600 m^2/g , un área superficial CTAB de 80 a 500 m^2/g , un tamaño de partícula d_{10} seleccionado dentro de un intervalo superior a 3 μm y hasta 40 μm , un tamaño de partícula d_{90} seleccionado dentro de un intervalo superior a 40 μm y hasta 90 μm , y una densidad en masa seleccionada dentro de un intervalo de al menos 0,08 g/cm^3 (5 libras/pie³) y hasta 0,48 g/cm^3 (30 libras/pie³). Además, al menos el 90 % en peso de una muestra de sílice de forma esférica puede pasar a través de un tamiz de malla 200.

50 La sílice precipitada de forma esférica puede usarse para preparar varios tipos de composiciones. Por ejemplo, la sílice precipitada puede usarse para preparar una composición de caucho tal como para un neumático, una composición de recubrimiento, una composición de membrana polimérica porosa y/o una composición portadora o adsorbente. La presente invención también se refiere a una composición que comprende sílice de forma esférica.

La presente invención también se refiere a un proceso para preparar polvo de sílice precipitada de forma esférica. El proceso incluye: (a) preparar una primera solución acuosa de silicato de metal alcalino; (b) preparar una segunda solución acuosa de silicato de metal alcalino que tenga un pH superior a 7 con la primera solución acuosa de silicato de metal alcalino y agua; (c) añadir simultáneamente la primera solución acuosa de silicato de metal alcalino y un agente acidificante a la segunda solución acuosa de silicato de metal alcalino acuoso para formar una suspensión de sílice que comprende sílice precipitada; (d) envejecer la suspensión de sílice a un pH dentro de un intervalo de 7 a 14; (e) añadir un agente acidificante adicional después del envejecimiento de manera que el pH de la suspensión sea inferior a 7; y (f) lavar y secar la sílice precipitada. El tiempo total para las etapas (c) y (d) es inferior a 150 minutos. La sílice precipitada puede secarse al dispersar la sílice en un medio acuoso y a continuación secar por pulverización la sílice dispersada. En la etapa de secado, la sílice precipitada puede dispersarse en el medio acuoso para formar una solución con un contenido de sólidos inferior a 20 %. Además, al menos una de las etapas de (a) a d) puede realizarse a una temperatura seleccionada dentro de un intervalo de 37,8 °C (100 °F) a 104,4 °C (220 °F).

65 Además, la primera solución acuosa de silicato de metal alcalino y el agente acidificante pueden añadirse simultáneamente en la etapa (c) durante un período de tiempo dentro de un intervalo de 2 a 90 minutos. La

suspensión de sílice también puede envejecerse en la etapa (d) durante un período de tiempo seleccionado dentro de un intervalo de 1 a 120 minutos.

Además, al menos una de las soluciones acuosas de silicato de metal alcalino primera y segunda puede representarse por $x(\text{SiO}_2) \cdot \text{Na}_2\text{O}$, en donde x es un valor seleccionado dentro de un intervalo de 1 a 4. La primera solución acuosa de silicato de metal alcalino usada en el proceso de la presente invención puede tener una concentración inferior a 85 g/L Na_2O . La segunda solución acuosa de silicato de metal alcalino puede tener un valor AZ de alcalinidad seleccionado dentro de un intervalo de 1 a 40. En algunos ejemplos, el valor AZ de alcalinidad de la segunda solución acuosa de silicato de metal alcalino disminuye durante la etapa de adición simultánea (c). Alternativamente, el valor AZ de alcalinidad de la segunda solución acuosa de silicato de metal alcalino se mantiene en la etapa de adición simultánea (c). La primera solución acuosa de silicato de metal alcalino y el agente acidificante también pueden añadirse simultáneamente una vez en una sola etapa. La sílice precipitada de forma esférica de la presente invención puede formarse en ausencia de trituración o molienda mecánica adicional.

Breve descripción de las figuras

La Figura 1 es una imagen de microscopía electrónica de barrido (SEM) de sílice en polvo de forma esférica de acuerdo con la presente invención;

La Figura 2 es una imagen SEM del polvo de sílice de forma esférica que se muestra en la Figura 1 con diferente grado de aumento; y

La Figura 3 es un análisis de forma de partícula con imagen del polvo de sílice de forma esférica que se muestra en las Figuras 1 y 2.

Descripción de la invención

Para los propósitos de la siguiente descripción detallada, debe entenderse que la invención puede asumir varias variaciones alternativas y secuencias de etapas, excepto donde se especifique expresamente lo contrario. Además, excepto en cualquiera de los ejemplos operativos, o donde se indique de cualquier otra manera, todos los números que expresan, por ejemplo, cantidades de ingredientes usados en la descripción y reivindicaciones deben entenderse como modificados en todos los casos por el término "aproximadamente". En consecuencia, a menos que se indique lo contrario, los parámetros numéricos que se exponen en la siguiente especificación y las reivindicaciones adjuntas son aproximaciones que pueden variar en dependencia de las propiedades que se desean obtener por la presente invención. Por lo menos, y no como un intento de limitar la aplicación de la doctrina de los equivalentes al alcance de las reivindicaciones, cada parámetro numérico se debe al menos interpretar a la luz del número de dígitos significativos informados y mediante la aplicación de técnicas de redondeo habituales.

A pesar de que los intervalos y parámetros numéricos que exponen el amplio alcance de la invención son aproximaciones, los valores numéricos que se exponen en los ejemplos específicos se informan tan precisos como sea posible. Cualquier valor numérico, sin embargo, contiene necesariamente determinados errores inherentes como resultado de la desviación estándar encontrada en sus respectivas mediciones de prueba.

Además, debe entenderse que cualquier intervalo numérico enumerado en la presente descripción pretende incluir todos los sub-intervalos incluidos en la misma. Por ejemplo, un intervalo de "1 a 10" pretende incluir todos los subintervalos entre (y que incluyen) el valor mínimo enumerado de 1 y el valor máximo enumerado de 10, o sea, tener un valor mínimo igual a o superior a 1 y un valor máximo de igual a o inferior a 10.

En esta solicitud, el uso del singular incluye el plural y el plural abarca el singular, a menos que se indique específicamente de cualquier otra manera. Además, en esta solicitud, el uso de "o" significa "y/o" a menos que se indique específicamente de cualquier otra manera, aunque "y/o" se puede usar explícitamente en ciertos casos.

Como se ha descrito anteriormente, la presente invención se refiere a la sílice de forma esférica. Como se usa en la presente descripción, "sílice de forma esférica" se refiere a partículas de sílice que tienen una geometría que es esférica o redondeada y que tiene una circularidad promedio dentro de un intervalo de 0,7 a 1,0, que se explica con más detalle en la presente descripción. El término "esférico" se usa indistintamente en la presente descripción con el término "circular". Las partículas de sílice pueden ser sílice precipitada amorfa. Tal sílice incluye, pero no se limita a, aglomerados precipitados y/o agregados de partículas primarias o últimas de sílice amorfa. La sílice precipitada amorfa también puede incluir floculados de agregados y/o aglomerados. La sílice de la presente invención también puede comprender diversas formas que incluyen, pero no se limitan a, polvo, cuentas, perlas y gránulos. Además, se aprecia que una muestra de sílice puede contener varias impurezas; sin embargo, una muestra de sílice, tal como una muestra de polvo de sílice, de la presente invención puede producirse con un contenido de al menos 80 % en peso, o al menos 90 % en peso, de las partículas de sílice de forma esférica descritas en la presente descripción. También se aprecia que la sílice precipitada amorfa es diferente del gel de sílice y tiene propiedades diferentes, como se describió en R. K. Her en *The Chemistry of Silica*, John Wiley & Sons, Nueva York (1979), núm. de catálogo de la Biblioteca del Congreso QD 193, 181.S6144 en las páginas 15-29, 172-176, 218-233, 364-365, 462-465, 554-564 y 578-579. La diferencia entre la sílice precipitada amorfa y el gel de sílice también se describe en la patente de Estados Unidos núm. 5,922,298.

De acuerdo con la presente invención, las partículas de sílice se moldean para proporcionar una circularidad particular tal como, por ejemplo, una circularidad promedio dentro de un intervalo de 0,70 a 1,0, o de 0,70 a 0,95, o de 0,70 a 0,90, o de 0,75 a 1,0, o de 0,75 a 0,95, o de 0,75 a 0,90. La circularidad se determina al dispersar primero partículas de sílice en un líquido Cargille 1,55 RI y analizar las muestras mediante microscopía de campo oscuro mediante el uso de un Nikon Microphot-FXA para microscopía de contraste de fase. Se obtienen diez campos de cada muestra de sílice mediante el uso de la configuración de campo oscuro y una combinación de objetivos calibrados de 10x2x. A continuación, las imágenes se obtienen con una cámara digital de visión puntual calibrada y se analizan mediante el programa Imaged (Institutos nacionales de salud, Estados Unidos). Estas imágenes calibradas se convierten en imágenes binarias (en blanco y negro) con umbral y se analizan para determinar varias propiedades, que incluyen, pero no se limitan a, área, Feret, MinFeret, relación de aspecto, redondez y solidez. A continuación, la circularidad se calcula con la siguiente ecuación: $\text{circularidad} = 4 \pi \frac{[\text{Área}]}{[\text{Perímetro}]^2}$ en el que el perímetro se refiere a la longitud del límite exterior de la sílice y el área se refiere al área de la partícula de sílice seleccionada como se describe en la guía del usuario para Imaged, Sección 30,7, State of the Art of Compactness and Circularity Measures, Foro matemático internacional, 4, 2009, núm. 27, P1306, párrafo 3. Un valor de 1,0 es una partícula perfectamente circular (o esférica). A medida que el valor se acerca a 0,0, la forma de la sílice se vuelve menos circular (o esférica). Este método se denomina en la presente descripción método de medición de la circularidad.

Además de las pruebas anteriores, la morfología de las partículas también puede obtenerse mediante el uso de la microscopía electrónica de barrido (SEM). Cuando se usa SEM, las muestras de sílice se rocían sobre adhesivo de carbón conductor en SEM Stubs y se recubren con una nanocapa de oro. A continuación, se obtienen micrografías electrónicas de alta resolución (1024 x 1024 píxeles) con un aumento de visualización de 150x con un Aspek PSEM II a 5-kV con un detector de electrones secundario y a 20-kV con un detector de electrones de retrodispersión.

La sílice de la presente invención también tiene un tamaño de partícula primaria o final promedio dentro de un intervalo de 1 a 100 nanómetros (nm), tal como dentro de un intervalo de 5 a 50 nm. Como se usa en la presente, "tamaño de partícula primaria o final promedio" se refiere al diámetro promedio de las partículas de sílice más pequeñas que forman los agregados, los aglomerados y/o las partículas secundarias y/o en general partículas de sílice. El tamaño de partícula final promedio se determina mediante el uso de microscopía electrónica de transmisión (TEM).

Además, las partículas de sílice pueden tener un tamaño de partícula d_{50} superior a 20 micras (μm), tal como superior a 22 μm o superior a 24 μm . Las partículas de sílice pueden tener además un tamaño de partícula d_{50} de hasta 80 μm , hasta 70 μm , hasta 60 μm , hasta 50 μm , hasta 40 μm , hasta 35 μm o hasta 30 μm . Las partículas de sílice también pueden tener un tamaño de partícula d_{50} seleccionado dentro de un intervalo tales como, por ejemplo, superior a las 20 μm y hasta las 80 μm , o superior a las 20 μm y hasta las 60 μm , o superior a las 20 μm y hasta 40 μm , o superior a 20 μm y hasta 30 μm , o superior a 22 μm y hasta 30 μm . Como se usa en la presente descripción, un "tamaño de partícula d_{50} " se refiere al diámetro medio de una muestra de partículas donde el 50 por ciento en volumen de las partículas tienen tamaños inferiores al valor d_{50} dado. El tamaño de partícula d_{50} se determina por difracción láser. Por ejemplo, el tamaño de partícula d_{50} puede determinarse mediante el uso de un difractómetro láser Beckman Coulter Inc. (Hialeah, Fla.) modelo LS 230 siguiendo las instrucciones contenidas en el manual. La medición del tamaño de partícula se describe adicionalmente en las patentes de Estados Unidos núms. 7,253,224 (columna 4, líneas 45-63) y 5,104,221.

Además, las partículas también pueden tener un tamaño de partícula d_{90} superior a 40 μm , tal como superior a 45 μm o superior a 50 μm . Las partículas de sílice pueden tener además un tamaño de partícula d_{90} de hasta 90 μm , hasta 80 μm , hasta 70 μm , hasta 65 μm o hasta 60 μm . Las partículas de sílice también pueden tener un tamaño de partícula d_{90} seleccionado dentro de un intervalo tales como, por ejemplo, superior a 40 μm y hasta 90 μm , o superior a 40 μm y hasta 80 μm , o superior a 50 μm y hasta 70 μm , o superior a 45 μm y hasta 65 μm , o superior a 50 μm y hasta 60 μm . Como se usa en la presente descripción, un "tamaño de partícula d_{90} " se refiere al diámetro promedio de una muestra de partículas donde el 90 por ciento en volumen de las partículas tienen tamaños más pequeños que el valor d_{90} dado. El tamaño de partícula de d_{90} se determina por difracción láser como se describió anteriormente.

Además, las partículas también pueden tener un tamaño de partícula d_{10} superior a 3 μm , tal como superior a 5 μm o superior a 8 μm . Las partículas de sílice pueden tener además un tamaño de partícula d_{10} de hasta 40 μm , hasta 30 μm , hasta 20 μm , hasta 17 μm o hasta 15 μm . Las partículas de sílice también pueden tener un tamaño de partícula d_{10} seleccionado dentro de un intervalo tales como, por ejemplo, superior a 3 μm y hasta 40 μm , o superior a 3 μm y hasta 30 μm , o superior a 5 μm y hasta 20 μm , o superior a 5 μm y hasta 17 μm , o superior a 8 μm y hasta las 15 μm . Como se usa en la presente descripción, un "tamaño de partícula d_{10} " se refiere al diámetro promedio de una muestra de partículas donde el 10 por ciento en volumen de las partículas tienen tamaños más pequeños que el valor d_{10} dado. El tamaño de partícula d_{10} se determina por difracción láser como se describió anteriormente.

Se aprecia que los tamaños de partículas de sílice se pueden ajustar mediante métodos de procesamiento posterior. Por ejemplo, los tamaños de partículas de sílice pueden reducirse mediante métodos de procesamiento posterior que incluyen, pero no se limitan a, trituración, molienda, clasificación y combinaciones de los mismos. Los tamaños

de las partículas de sílice también pueden aumentarse mediante métodos de procesamiento posterior que incluyen, pero no se limitan a, granulación, compactación, granulación, cristalización y combinaciones de los mismos. La sílice de la presente invención también puede prepararse en ausencia de métodos de procesamiento posterior tales como los métodos de procesamiento posterior mecánico descritos anteriormente.

Como se indica, el tamaño de partícula puede determinarse mediante el uso de difracción láser. También pueden usarse otros métodos para determinar el tamaño de partícula. Por ejemplo, el tamaño de partícula también puede determinarse mediante el uso de análisis de fracciones de tamiz. De acuerdo con el análisis de fracciones de tamiz, la sílice se tamiza durante 5 minutos a través de un nido de tamices en un agitador de tamiz de control Retsch AS200 (vibrador) a una amplitud preestablecida. Cada tamiz tiene un valor de "malla US", como un tamiz de malla 50, un tamiz de malla 100 o un tamiz de malla 200 que corresponde a un determinado tamaño de partícula. Los tamices están dispuestos con la malla más gruesa en la parte superior, descendiendo en grosor con una bandeja colectora más abajo del tamiz de malla más fina. Después del tamizado, se pesan los tamices que contienen sílice y se restan los pesos de los tamices vacíos. Se miden los pesos netos individuales y se calculan las fracciones tamizadas y se expresan como por ciento retenido. Este método se denomina en la presente descripción método de medición por tamiz.

En algunos ejemplos, al menos el 90 por ciento en peso, al menos el 95 por ciento en peso o al menos el 96 por ciento en peso de la sílice de la presente invención puede pasar a través de un tamiz de malla 200. Además, en algunos ejemplos, al menos el 95 por ciento en peso, al menos el 98 por ciento en peso o al menos el 99 por ciento en peso de la sílice de la presente invención puede pasar a través de un tamiz de malla 100. Aún más, en algunos ejemplos, al menos el 95 por ciento en peso, al menos el 98 por ciento en peso o al menos el 99 por ciento en peso de la sílice de la presente invención puede pasar a través de un tamiz de malla 50.

Además, la sílice de la presente invención muestra una buena friabilidad. Como se usa en la presente descripción, "friabilidad" describe la tendencia de las partículas de sílice precipitada a romperse en fragmentos más pequeños, como aglomerados y/o agregados, bajo fuerzas como vibración, presión, cizallamiento, colisión y similares. La friabilidad se determina mediante sonicación con sonda en la que se dispersan aproximadamente 2,00 g de sílice en 50 mL de agua desionizada y a continuación se sonicar con un sonicador Ultrasonic Processor Modelo VCX 500 con un cuerno cónico con una punta plana (sonda). La frecuencia fija de la sonda es de 20 kHz y la amplitud es del 100 %. Se usan para romper las partículas de sílice dos tiempos de sonicación, 30 segundos y 60 segundos. El tamaño de partícula y la distribución de tamaños se determinan mediante un difractómetro láser. Un tamaño de partícula más pequeño después de la sonicación refleja una mejor friabilidad de las partículas de sílice, es decir, una mayor tendencia a romperse en fragmentos más pequeños.

La sílice de la presente invención también tiene un área superficial BET dentro de un intervalo de 80 a 600 m²/g, tales como dentro de un intervalo de 100 a 550 m²/g, o dentro de un intervalo de 120 a 500 m²/g, o dentro de un intervalo de 150 a 500 m²/g. El área superficial BET de la sílice es el área superficial determinada por el método Brunauer-Emmett-Teller (BET) de acuerdo con ASTM D1993-03 mediante el uso de nitrógeno como adsorbato y modificado mediante la desgasificación del sistema y la muestra durante 60 minutos a 160 °C.

La sílice también puede tener un área superficial de bromuro de cetiltrimetilamonio (CTAB) dentro de un intervalo de 80 a 500 m²/g, tales como dentro de un intervalo de 100 a 450 m²/g, o dentro de un intervalo de 120 a 400 m²/g, o dentro de un intervalo de 150 a 400 m²/g. El área superficial CTAB se determina de acuerdo con el método descrito en la patente de Estados Unidos núm. 8,846,806 en la columna 9, línea 19 a la columna 10, línea 63, y en el documento núm. U.S. 9,073,041, en la columna 5, línea 54 a la columna 7, línea 344.

De acuerdo con la presente invención, la sílice puede tener una densidad en masa (BD) de al menos 0,08 g/cm³ (5 libras/pie³), o al menos 0,13 g/cm³ (8 libras/pie³), o al menos 0,16 g/cm³ (10 libras/pie³), o al menos 0,19 g/cm³ (12 libras/pie³). La sílice puede tener además una BD de hasta 0,48 g/cm³ (30 libras/pie³), hasta 0,40 g/cm³ (25 libras/pie³), o hasta 0,32 g/cm³ (20 libras/pie³), o hasta 0,29 g/cm³ (18 libras/pie³). Las partículas de sílice también pueden tener una BD seleccionada dentro de un intervalo tal como, por ejemplo, de 0,08 g/cm³ (5 libras/pie³) a 0,48 g/cm³ (30 libras/pie³), o de 0,08 g/cm³ (5 libras/pie³) a 0,40 g/cm³ (25 libras/pie³), o de 0,13 g/cm³ (8 libras/pie³) a 0,32 g/cm³ (20 libras/pie³), o de 0,16 g/cm³ (10 libras/pie³) a 0,32 g/cm³ (20 libras/pie³), o de 0,19 g/cm³ (12 libras/pie³) a 0,29 g/cm³ (18 libras/pie³). La BD se determina mediante el uso de una copa de acero inoxidable de 100 ml y un embudo de acero inoxidable con trampilla. La copa de acero inoxidable vacía se limpia, se seca y se tara a cero, y a continuación se coloca debajo de la abertura del embudo. Con la trampilla cerrada, la sílice se transfiere al embudo de acero inoxidable en una cantidad suficiente para rebosar la copa tarada. La trampilla se abre lentamente y se permite que las muestras de sílice fluyan o caigan en la copa de acero. Después de llenar la copa, el material del vaso se nivela mediante el uso de una espátula u otra herramienta de borde recto. A continuación, se pesa la muestra con una precisión de 0,01 g. El procedimiento se repite hasta que se hayan registrado un total de seis pesos. La densidad en masa se calcula a partir de la relación entre el volumen y el peso de la muestra de sílice. Este método se denomina en la presente descripción método de medición de BD.

Se observó que la sílice de la presente invención muestra un comportamiento de fluidez excelente. Particularmente, no se forma ningún cono definido después de rebosar la copa durante el procedimiento de medición de la densidad

en masa, lo que corresponde a un material que fluye muy libremente. Se aprecia que la buena fluidez de la sílice indica además la forma esférica de las partículas de sílice en comparación con las partículas no esféricas.

La fluidez de la sílice se demuestra además por un bajo ángulo de reposo (AOR). Por ejemplo, la sílice de la presente invención puede tener un AOR inferior a 30°, inferior a 20° o inferior a 10°. El AOR se determina mediante el uso de un aparato que tiene marcas de ángulo y al dejar caer una muestra de sílice de 30 gramos $\pm$ 5 gramos desde un embudo (4 pulgadas de diámetro en la parte superior y 0,5 pulgadas en la parte inferior) desde una altura de 18 pulgadas en el aparato para formar un montículo cónico. La superficie inferior del aparato donde cae la mezcla consiste en dos piezas, de modo que una pieza lateral puede separarse en la línea central del montón de mezcla. El otro lado de la base, que contiene las marcas de los ángulos y el embudo, se fija y se une con el resto del dispositivo. La pieza móvil se retira con suavidad y firmeza. El ángulo de la superficie del montón recién generada (de cono de sílice) se lee en el aparato con la ayuda de una regla mantenida paralela a la superficie. El AOR se mide entre 0° y 90°. Cuanto menor sea el AOR, mejor será la fluidez de la sílice. Este método se denomina en la presente descripción método de medición de AOR. La medición de AOR también se describe en la patente de Estados Unidos núm. 7,253,224 en la columna 10, línea 54 a la columna 11, línea 17.

Además, la fluidez de la sílice también se determina al medir el tiempo (segundos) que tarda una cantidad dada de sílice en fluir a través de la abertura de un cono de flujo con una abertura de diámetro específico (mm). Los conos de flujo usados en este método están hechos de vidrio y tienen una altura total de 80 mm, un diámetro interior del cilindro de 36 mm. La porción inferior de los conos de flujo se estrecha sobre una altura específica hasta una abertura a través de la cual puede fluir la sílice. Por ejemplo, los conos de flujo usados para medir la fluidez de la sílice pueden tener las siguientes dimensiones cónicas inferiores: (i) altura del cono de 35 mm y diámetro de abertura de 5,0 mm; y (ii) altura de cono de 30 mm y diámetro de abertura de 8,0 mm. Antes de la prueba, el cono de flujo se llena con el material de interés con el orificio inferior cerrado. Una vez lleno, se abre el fondo y se registra el tiempo que tarda la sílice en vaciar el vaso de precipitados como la fluidez, en segundos. Se ha encontrado que la sílice de la presente invención exhibe una fluidez inferior a 10 segundos a través de un vaso de precipitados que tiene un diámetro de abertura de 5,0 mm y una altura de cono de 35 mm, tales como dentro de un intervalo de 0,1 segundos a 9 segundos, o dentro de un intervalo de 2 segundos a 8 segundos. Se ha encontrado que la sílice de la presente invención exhibe una fluidez inferior a 10 segundos a través de un vaso de precipitados que tiene un diámetro de abertura de 8,0 mm y una altura de cono de 30 mm, tales como dentro de un intervalo de 0,1 segundos a 8 segundos, o dentro de un intervalo de 1 segundo a 4 segundos.

La sílice de la presente invención también tiene una densidad compactada aparente (ATD) superior a 150 g/L, tal como superior a 200 g/L, superior a 220 g/L o superior a 250 g/L. La sílice de la presente invención puede tener además una ATD de hasta 500 g/L, tal como hasta 450 g/L, o hasta 400 g/L, o hasta 380 g/L. Las partículas de sílice también pueden tener una ATD seleccionada dentro de un intervalo tal como, por ejemplo, superior a 150 g/L y hasta 500 g/L, o superior a 200 g/L y hasta 450 g/L, o superior a 250 g/L y hasta 400 g/L. La ATD se determina mediante el método ISO 787/11-1981 (E)2, que se obtiene al medir un peso conocido de una muestra de sílice que se ha compactado para completar el asentamiento. Específicamente, la ATD se obtiene al golpear mecánicamente un cilindro graduado de 250 ml que contiene la muestra con un volúmetro Stampf modelo STAV 2003, configurado para golpear 1250 veces por ciclo en cada muestra, hasta que se observe poco o ningún cambio de volumen adicional. Después del primer ciclo, se estima el volumen del polvo de sílice en la probeta graduada de 250 ml. A continuación, lleva a cabo otro ciclo de 1250 golpes. La compactación continúa hasta que el cambio de volumen después de dos ciclos sucesivos es de aproximadamente 1 ml o menos. El volumen final se usa luego para calcular el valor de ATD en vista del peso de la muestra (es decir, la relación entre el peso y el volumen final de la muestra). Este método se denomina en la presente descripción método de medición de ATD. Se aprecia que la densidad compactada (TD) o la densidad filtrada automatizada también son equivalentes o intercambiables con ATD.

La sílice de la presente invención también presenta otras propiedades superiores. Por ejemplo, la sílice también tiene una absorción de aceite de adipato de dioctilo (DOA) dentro de un intervalo tal como, por ejemplo, de 150 ml/100 g a 500 ml/100 g, o de 200 ml/100 g a 450 ml/100 g, o de 200 ml/100 g a 400 ml/100 g, o de 220 ml/100 g a 400 ml/100 g. La absorción de aceite DOA se determina de acuerdo con la norma ASTM D6854-12a (2014) con un C.W. Brabender Absorptometer-C mediante el uso de adipato de dioctilo. La configuración de velocidad estándar durante la prueba de sílice es de aproximadamente 125 rpm. La lectura de temperatura estándar durante la mezcla es de aproximadamente 23 °C. Para la evaluación se usa un punto final al 70 % del par máximo, aplicando la corrección de humedad en el cálculo. Los resultados se informan como "ml/100 g".

Además, la sílice de la presente invención tiene una relación de aspecto (AR) baja, tal como inferior a 1,5 o inferior a 1,2. La AR se determina mediante el uso del programa Imaged para obtener la elipse ajustada de la partícula, que es el [Eje mayor/[Eje menor], basado en un tamaño de muestra dentro de un intervalo de 30 a 90 partículas.

Debido a las propiedades descritas en la presente descripción, la sílice de la presente invención puede usarse para formar varias composiciones y usarse en una variedad de aplicaciones. Por ejemplo, la sílice puede usarse como un auxiliar de flujo, relleno de refuerzo de polímero, portador, agente formador de poros, modificador de la reología e ingrediente de recubrimiento. Como tal, la sílice puede usarse, por ejemplo, en un separador de batería, como un portador para alimentos para animales, un relleno de refuerzo en materiales poliméricos, que incluyen materiales de

caucho, y un aditivo en recubrimientos y adhesivos para modificar la apariencia, la reología y la durabilidad.

La presente invención también se refiere a un método para preparar sílice precipitada. El método incluye preparar una primera solución acuosa de silicato de metal alcalino. El término "metal alcalino" se refiere a un elemento del Grupo 1 (International Union of Pure and Applied Chemistry (IUPAC)) de la tabla periódica de elementos químicos e incluye, por ejemplo, cesio (Cs), francio (Fr), litio (Li), potasio (K), rubidio (Rb), y sodio (Na). Además, un "silicato de metal alcalino" se refiere a un compuesto formado con un metal alcalino y un silicato. En algunos ejemplos, el silicato de metal alcalino usado con la presente invención es un compuesto representado por $x(\text{SiO}_2)\text{-Na}_2\text{O}$, donde x es un valor seleccionado dentro de un intervalo de 1 a 4, tal como dentro de un intervalo de 2 a 4, o dentro de un intervalo de 3 a 4, que incluye los números fraccionarios tales como 3,2, por ejemplo.

En algunos ejemplos, cuando el silicato de metal alcalino usado con la presente invención es un compuesto representado por $x(\text{SiO}_2)\text{-Na}_2\text{O}$, la concentración de la solución acuosa de silicato alcalino puede determinarse mediante la concentración de Na_2O . El Na_2O es la porción alcalina del silicato de sodio, cuya concentración se determina mediante titulación con naranja de metilo-xileno cianol como indicador, y se usa como un indicador de la alcalinidad y concentración de silicato de sodio en solución. La primera solución acuosa de silicato de metal alcalino puede tener una concentración inferior a 85 g/L de Na_2O , o inferior a 80 g/L de Na_2O , o inferior a 70 g/L de Na_2O , o inferior a 60 g/L de Na_2O .

Puede prepararse una segunda solución acuosa de silicato de metal alcalino en un recipiente de precipitación o reactor equipado con un mecanismo de agitación y calentamiento. La segunda solución acuosa de silicato de metal alcalino puede denominarse como un Foreshot, un talón, una semilla, un precursor o similar para las reacciones de precipitación. La segunda solución acuosa de silicato de metal alcalino se prepara mediante el uso de la primera solución acuosa de silicato de metal alcalino y agua, de manera que el concentrado de silicato sea superior a 1 g/L (expresado como Na_2O para $x(\text{SiO}_2)\text{-Na}_2\text{O}$). El pH de la segunda solución acuosa de silicato de metal alcalino puede ser superior a 7, superior a 8 o superior a 9. El reactor también se calienta a una temperatura apropiada tal como una temperatura seleccionada dentro de un intervalo de 37,8 °C (100 °F) a 104,4 °C (220 °F), o de 37,8 °C (100 °F) a 98,9 °C (210 °F), o de 43,3 °C (110 °F) a 104,4 °C (220 °F), o de 43,3 °C (110 °F) a 98,9 °C (210 °F), o de 43,3 °C (110 °F) a 96,1 °C (205 °F). Estas temperaturas pueden usarse durante al menos una porción del proceso de formación de la sílice o, alternativamente, las temperaturas pueden usarse a lo largo de todo el proceso de formación de la sílice.

Además, la alcalinidad de la segunda solución de silicato de metal alcalino puede expresarse como un valor AZ. Por ejemplo, el valor AZ puede estar dentro de un intervalo de 1 a 40, tal como de 1 a 20, o de 1 a 15, o de 5 a 15, o de 6 a 12, o un valor de 8 a 10. El valor AZ es una medida de la alcalinidad de una muestra del reactor obtenida por el siguiente método: Se transfiere una muestra de 50 mL a un vaso de precipitados de 400 mL que tiene una barra de agitación magnética a la que se añaden aproximadamente 100 mL de agua desionizada. La mezcla resultante se agita moderadamente en una placa de agitación magnética y se añaden seis gotas de un indicador de fenolftaleína [Catálogo SP 62-1, Fisher Scientific]. El color de la solución es rosa. A continuación, la solución se titula con HCl 0,645 N de una bureta de 50 mL hasta que el color de la solución se aclare. Los mL de valorante se registran y usan en la siguiente ecuación para determinar el valor AZ.

$$\text{Valor AZ} = \frac{\text{ml de HCl } 0,645 \text{ N} \times 64,5}{50}$$

Después de preparar la segunda solución acuosa de silicato de metal alcalino en el recipiente de precipitación, se añaden simultáneamente a la solución anterior la primera solución acuosa de silicato de metal alcalino y un agente acidificante para producir una suspensión de sílice que comprende una dispersión de sílice precipitada. Los ejemplos no limitantes de agentes acidificantes adecuados incluyen ácido sulfúrico, ácido clorhídrico, ácido fosfórico, ácido nítrico, ácido acético, sulfuro de hidrógeno, cloro, ácido carbónico, bicarbonato de sodio, bicarbonato de amonio, sulfato de ácido de sodio, fosfato de ácido de disodio, dióxido de azufre y mezclas de los mismos. La primera solución acuosa de silicato de metal alcalino y el agente acidificante pueden añadirse simultáneamente a una velocidad rápida y a temperaturas elevadas, tales como una temperatura seleccionada dentro de cualquiera de los intervalos descritos anteriormente. La primera solución acuosa de silicato de metal alcalino y el agente acidificante también pueden añadirse simultáneamente durante un período de tiempo corto, tal como durante un período de tiempo dentro de un intervalo de 2 a 100 minutos, o dentro de un intervalo de 10 a 60 minutos, o dentro de un intervalo de 30 a 60 minutos, o dentro de un intervalo de 40 a 50 minutos.

Durante las etapas de adición simultánea, la alcalinidad de la solución (expresada como el valor AZ) puede mantenerse o variarse durante el proceso de precipitación. En algunos ejemplos, el valor AZ disminuye durante la etapa de adición simultánea, por ejemplo, de 15 a 1 o de 10 a 4.

A continuación, se lleva a cabo una etapa de envejecimiento después de formar la suspensión de sílice. El pH de la suspensión se ajusta a un pH dentro de un intervalo de 7 a 14, tal como un pH de 7 a 10 o de 7,5 a 9, al principio de la etapa de envejecimiento. Subsecuentemente, se añade un agente acidificante adicional a la suspensión

envejecida para llevar el pH de la solución envejecida final por debajo de 7, por ejemplo, por debajo de 6 o por debajo de 5. La suspensión puede envejecerse durante un período de tiempo seleccionado dentro de un intervalo de 1 minuto a 120 minutos, tal como dentro de un intervalo de 20 minutos a 90 minutos, o dentro de un intervalo de 20 minutos a 60 minutos, o durante aproximadamente 30 minutos.

En algunos ejemplos, las etapas de adición y envejecimiento simultáneos pueden completarse en inferior a 150 minutos, tales como inferior a 130 minutos, inferior a 120 minutos, inferior a 100 minutos, inferior a 80 minutos o inferior a 60 minutos o inferior a 40 minutos.

La reacción de precipitación de la sílice se completa al final del proceso de envejecimiento. Al menos una porción o todo el proceso de precipitación pueden tener lugar a temperaturas elevadas, tales como una temperatura seleccionada dentro de cualquiera de los intervalos descritos anteriormente. Todo el proceso de precipitación también puede completarse en un período de tiempo seleccionado dentro de un intervalo de 40 minutos a 100 minutos, tales como dentro de un intervalo de 60 minutos a 100 minutos, o dentro de un intervalo de 70 minutos a 90 minutos, o durante aproximadamente 80 minutos.

Después del envejecimiento, la suspensión de sílice se lava y se seca. El proceso de secado puede incluir dispersar la sílice precipitada en un medio acuoso y luego secar por pulverización la sílice. La sílice precipitada puede dispersarse en un medio acuoso para formar una solución con un contenido de sólidos inferior a 20 %, o inferior a 15 %, o dentro de un intervalo de 12 % a 13 %. Como se usa en la presente descripción, un "medio acuoso" se refiere a un medio líquido que comprende 50 % o más de agua, o 60 % o más de agua, o 70 % o más de agua, o 80 % o más de agua, o 85 % o más de agua. La porción restante del medio acuoso puede incluir solventes orgánicos.

Al controlar las condiciones y los componentes de la reacción, el proceso descrito anteriormente ayuda a reducir la formación de grandes aglomerados para producir sílice fina de forma esférica. Por ejemplo, la concentración de la primera solución acuosa de silicato de metal alcalino se disminuye para reducir la formación de aglomerados más grandes. La temperatura del reactor también ayuda a lograr los tamaños de partícula primaria y la resistencia de los agregados deseados. Además, los tiempos de reacción descritos anteriormente también ayudan a lograr una distribución fina del tamaño de partícula. El contenido de sólidos durante la etapa de secado por pulverización también es más bajo para producir partículas secas finas del secador. Se aprecia que el proceso descrito anteriormente puede estar libre de etapas de molienda, tamizaje o clasificación. Como tal, la sílice precipitada esférica puede formarse sin trituración mecánica o procesamiento de molienda, así como también sin procesamiento de molienda química.

Los siguientes ejemplos se presentan para demostrar los principios generales de la invención. La invención no se debe considerar como limitada a los ejemplos específicos presentados. Todas las partes y porcentajes en los ejemplos son en peso a menos que se indique de otra forma.

Ejemplo comparativo 1

Preparación de polvo de sílice precipitada

Se preparó una solución madre de silicato con una concentración de Na_2O de 85 g/L y una relación molar $\text{SiO}_2:\text{Na}_2\text{O}$ de 3,2:1 en un reactor de 150 L equipado con bobinas de calentamiento de vapor, una entrada de ácido, una entrada de silicato de sodio, una salida de drenaje, un agitador principal y un agitador de alta velocidad complementario cerca de la entrada de ácido para mejorar la dispersión. La velocidad de flujo de silicato y ácido se controló con un ordenador programado para una buena consistencia y precisión. Primero se descargaron aproximadamente 75 L de agua en el reactor y a continuación se calentaron hasta 75,6 °C (168 °F) mediante el uso de la bobina de vapor. Durante un período de 4-5 minutos, se descargaron 2,4 L de silicato de sodio ($3,2\text{SiO}_2\cdot\text{Na}_2\text{O}$) en el reactor con el agitador principal encendido. Después de la adición de silicato de sodio, la concentración de Na_2O en el reactor fue de alrededor de 2,6 g/L para la solución de silicato de metal alcalino ("Foreshot"). El número inicial de AZ (alcalinidad) fue de aproximadamente 7,7 en el Foreshot. A continuación, con el agitador secundario (o agitador de alto cizallamiento) cerca de la entrada de ácido encendido, se descargaron simultáneamente en el reactor 47,3 L de silicato de sodio y 3,2 L de ácido sulfúrico concentrado (96 %) durante un período de 90 minutos. Al final de esta etapa de adición simultánea, el pH de la solución en el reactor estaba alrededor de 9,5. A continuación, se realizó un envejecimiento de 130 minutos. El número AZ (alcalinidad) durante la etapa de adición simultánea se mantuvo en un intervalo de 7,7-8,0 en los primeros 25 minutos, mediante el ajuste de la velocidad de alimentación de ácido. Por lo tanto, esta precipitación fue un proceso de precipitación controlado por AZ (alcalinidad). Al principio de la etapa de envejecimiento, se descargó ácido adicional en el reactor hasta que se alcanzó un pH de 8,5. Se añadieron al reactor aproximadamente 0,01 L/minuto de H_2SO_4 (96 %) durante aproximadamente 30 minutos para bajar el pH de 9,5 a 8,5. Después de terminar la etapa de envejecimiento que proporcionó la sílice precipitada final, el pH se ajustó a 4,0 mediante la adición de H_2SO_4 (96 %) a una velocidad de alimentación de 0,01 L/minutos para neutralizar todas las especies alcalinas que no reaccionaron.

Durante la precipitación de la sílice, la temperatura del reactor se mantuvo a 75,6 °C (168 °F). Al finalizar todas las

etapas de precipitación en el precipitador, la suspensión resultante se transfirió a un filtro prensa y se lavó con agua hasta que la conductividad del agua de lavado alcanzó aproximadamente 1 mS. La torta de filtración resultante tenía un contenido de sólidos de aproximadamente 24 %. La torta de filtración se eliminó del filtro prensa y se dejó caer en un licuador, donde la torta de filtración se licuó mediante un agitador en una suspensión de sílice bombeable con un contenido de sólidos de aproximadamente 18 % en agua. A continuación, la suspensión de sílice se secó con un secador por pulverización Niro que tenía un atomizador rotatorio.

Ejemplo 2

Preparación de polvo de sílice precipitada

Una solución concentrada de silicato que tenía una relación molar de 3,2 SiO₂ Na₂O se diluyó en agua para formar una concentración de Na₂O de 55 g/L. A continuación, se descargaron aproximadamente 83 L de agua en un reactor de 150 L como se describe en el Ejemplo comparativo 1 y el reactor se calentó hasta 87,8 °C (190 °F) mediante la bobina de calentamiento. Durante un período de 4-5 minutos, se descargaron 4,1 L de silicato de sodio (3,2 SiO₂ Na₂O) en el reactor con el agitador principal encendido. La concentración objetivo de Na₂O en el reactor fue de aproximadamente 3,0±0,1 g/L de Na₂O en el Foreshot. El número inicial de AZ (alcalinidad) fue de aproximadamente 8,6 en el Foreshot. En la etapa de adición simultánea, se añadieron al reactor 41 L de silicato de sodio (55 g/L Na₂O) y 1,94 L de ácido sulfúrico concentrado (96 %) durante un período de 40 minutos para producir precipitado de sílice y sulfato de sodio. Al final de la etapa de adición simultánea, el pH del reactivo fue de aproximadamente 9,4. El número AZ (alcalinidad) durante la etapa de adición simultánea se mantuvo en un intervalo de 8,6-9,0 en los primeros 25 minutos, mediante el ajuste de la velocidad de alimentación de ácido. Por lo tanto, esta precipitación fue un proceso de precipitación controlado por AZ (alcalinidad). A continuación, se realizó un envejecimiento de 30 minutos. Al principio de la etapa de envejecimiento, el pH de la solución se ajustó a 8,5 mediante el uso de ácido sulfúrico a una velocidad de descarga de 48 ml/minuto. Una vez terminada la etapa de envejecimiento que terminó la precipitación de la sílice, se ajustó el pH a 4,5 al añadir ácido sulfúrico a una velocidad de flujo de 48 ml/minuto.

Durante todo el proceso de precipitación, la temperatura del reactor se mantuvo a 87,8 °C (190 °F). El tiempo de precipitación total fue de aproximadamente 90 minutos desde el principio hasta el final, que fue aproximadamente inferior a 1/2 del tiempo de precipitación del Ejemplo comparativo 1. A continuación, los precipitados de sílice se transfirieron a un filtro prensa, se lavaron para formar una torta de filtración con un contenido de sólidos de aproximadamente 18 %. Antes del secado por pulverización, la torta de filtración se licuó para formar una suspensión bombeable con un contenido de sólidos de 12-13 %. La sílice se secó en un secador Niro con un atomizador rotatorio.

Ejemplo 3

Preparación de polvo de sílice precipitada

Una solución concentrada de silicato que tiene una relación molar de 3,2 SiO₂ Na₂O se diluyó en agua para formar una concentración de Na₂O de 55 g/L. A continuación, se descargaron aproximadamente 415 L de agua en un reactor de 200 galones como se describe en el Ejemplo comparativo 1 y el reactor se calentó hasta 93,9 °C (201 °F) mediante la bobina de calentamiento. Durante un período de 4-5 minutos, se descargaron 26,5 L de silicato de sodio (3,2 SiO₂ Na₂O) en el reactor con el agitador principal encendido. La concentración objetivo de Na₂O en el reactor fue de aproximadamente 3,3±0,1 g/L en el Foreshot. El número inicial de AZ (alcalinidad) fue de aproximadamente 8,9 en el Foreshot. En la etapa de adición simultánea, se añadieron al reactor 205,3 L de silicato de sodio (55 g/L Na₂O) y 9,64 l de ácido sulfúrico concentrado (96 %) durante un período de 40 minutos para producir precipitado de sílice y sulfato de sodio. El número AZ (alcalinidad) durante la adición simultánea cayó de 8,9 a 6,4 a una velocidad de alimentación de ácido constante después de 40 minutos. Por lo tanto, esta precipitación fue un proceso de precipitación controlado por AZ (alcalinidad). Al final de la etapa de adición simultánea, el pH del reactivo fue de aproximadamente 8,9. A continuación, se realizó un envejecimiento de 30 minutos. Al principio de la etapa de envejecimiento, el pH de la solución se ajustó a 8,5 mediante el uso de 0,2 L de ácido sulfúrico. Después de terminar la etapa de envejecimiento que terminó la precipitación de la sílice, se ajustó el pH a 4,5 mediante la adición de 1 L de ácido sulfúrico.

Durante todo el proceso de precipitación, la temperatura del reactor se mantuvo a 93,9 °C (201 °F). El tiempo de precipitación total fue de aproximadamente 80 minutos desde el principio hasta el final, que fue aproximadamente inferior a 1/3 del tiempo de precipitación del Ejemplo comparativo 1. A continuación, los precipitados de sílice se transfirieron a un filtro prensa, se lavaron para formar una torta de filtración con un contenido de sólidos de aproximadamente 18 %. Antes del secado por pulverización, la torta de filtración se licuó para formar una suspensión bombeable con un 12 % de contenido de sólidos. La sílice se secó en un secador Niro con un atomizador rotatorio.

Ejemplo 4

Preparación de polvo de sílice precipitada

Una solución concentrada de silicato que tiene una relación molar de 3,2 SiO₂ Na₂O se diluyó en agua para formar una concentración de Na₂O de 55 g/L. A continuación, se descargaron aproximadamente 83 L de agua en un reactor de 150 L como se describe en el Ejemplo comparativo 1 y el reactor se calentó hasta 93,3 °C (200 °F) mediante la bobina de calentamiento. Durante un período de 4-5 minutos, se descargaron 4,1 L de silicato de sodio (3,2 SiO₂ Na₂O) en el reactor con el agitador principal encendido. La concentración objetivo de Na₂O en el reactor fue de aproximadamente 3,3±0. 1 g/L en el Foreshot. El número inicial de AZ (alcalinidad) fue de aproximadamente 9,0 en el Foreshot. En la etapa adicional simultánea, se añadieron al reactor 41 L de silicato de sodio (55 g/L de Na₂O) y 1,94 L de ácido sulfúrico concentrado (96 %) durante un período de 40 minutos para producir precipitado de sílice y sulfato de sodio. El número AZ (alcalinidad) durante la adición simultánea cayó de 9,0 a 6,3 a una velocidad de alimentación de ácido constante después de 35 minutos. Por lo tanto, esta precipitación fue un proceso de precipitación controlado por volumen. Al final de la etapa de adición simultánea, el pH del reactivo fue de aproximadamente 9,4. A continuación, se realizó un envejecimiento de 30 minutos. Al principio de la etapa de envejecimiento, el pH de la solución se ajustó a 8,5 mediante el uso de ácido sulfúrico a una velocidad de descarga de 48 ml/minuto. Una vez terminada la etapa de envejecimiento que terminó la precipitación de la sílice, se ajustó el pH a 4,5 al añadir ácido sulfúrico a una velocidad de flujo de 48 ml/minuto.

Durante todo el proceso de precipitación, la temperatura del reactor se mantuvo a 93,3 °C (200 °F). El tiempo de precipitación total fue de aproximadamente 80 minutos desde el principio hasta el final, que fue aproximadamente inferior a 1/3 del tiempo de precipitación del Ejemplo comparativo 1. A continuación, los precipitados de sílice se transfirieron a un filtro prensa, se lavaron para formar una torta de filtración con un contenido de sólidos de aproximadamente 18 %. Antes del secado por pulverización, la torta de filtración se licuó para formar una suspensión bombeable con un contenido de sólidos de 12-13 %. La sílice se secó en un secador Niro con un atomizador rotatorio.

Ejemplo 5

Preparación de polvo de sílice precipitada

Una solución concentrada de silicato que tenía una relación molar de 3,2 SiO₂ Na₂O se diluyó en agua para formar una concentración de Na₂O de 55 g/L. A continuación, se descargaron aproximadamente 83 L de agua en un reactor de 150 L como se describe en el Ejemplo comparativo 1 y el reactor se calentó hasta 82,2 °C (180 °F) mediante la bobina de calentamiento. Durante un período de 4-5 minutos, se descargaron 4,1 L de silicato de sodio (3,2 SiO₂ Na₂O) en el reactor con el agitador principal encendido. La concentración objetivo de Na₂O en el reactor fue de aproximadamente 3,3±0. 1 g/L en el Foreshot. El número inicial de AZ (alcalinidad) fue de aproximadamente 9,7 en el Foreshot. En la etapa de adición simultánea, se añadieron al reactor 41 L de silicato de sodio (55 g/L Na₂O) y 1,94 L de ácido sulfúrico concentrado (96 %) durante un período de 40 minutos para producir precipitado de sílice y sulfato de sodio. El número AZ (alcalinidad) durante la adición simultánea cayó de 9,7 a 6,6 a una velocidad de alimentación de ácido constante después de 40 minutos. Por lo tanto, esta precipitación fue un proceso de precipitación controlado por volumen. Al final de la etapa de adición simultánea, el pH del reactivo fue de aproximadamente 9,4. A continuación, se realizó un envejecimiento de 30 minutos. Al principio de la etapa de envejecimiento, el pH de la solución se ajustó a 8,5 mediante el uso de ácido sulfúrico a una velocidad de descarga de 48 ml/minuto. Una vez terminada la etapa de envejecimiento que terminó la precipitación de la sílice, se ajustó el pH a 4,5 al añadir ácido sulfúrico a una velocidad de flujo de 48 ml/minuto.

Durante todo el proceso de precipitación, la temperatura del reactor se mantuvo a 82,2 °C (180 °F). El tiempo de precipitación total fue de aproximadamente 80 minutos desde el principio hasta el final, que fue aproximadamente inferior a 1/3 del tiempo de precipitación del Ejemplo comparativo 1. A continuación, los precipitados de sílice se transfirieron a un filtro prensa, se lavaron para formar una torta de filtración con un contenido de sólidos de aproximadamente 18 %. Antes del secado por pulverización, la torta de filtración se licuó para formar una suspensión bombeable con un contenido de sólidos de 12-13 %. La sílice se secó en un secador Niro con un atomizador rotatorio.

Ejemplo 6

Preparación de polvo de sílice precipitada

Una solución concentrada de silicato que tenía una relación molar de 3,2 SiO₂ Na₂O se diluyó en agua para formar una concentración de Na₂O de 55 g/L. A continuación, se descargaron aproximadamente 83 L de agua en un reactor de 150 L como se describe en el Ejemplo comparativo 1 y el reactor se calentó hasta 76,7 °C (170 °F) mediante la bobina de calentamiento. Durante un período de 4-5 minutos, se descargaron 4,1 L de silicato de sodio (3,2 SiO₂ Na₂O) en el reactor con el agitador principal encendido. La concentración objetivo de Na₂O en el reactor fue de aproximadamente 3,3±0. 1 g/L en el Foreshot. El número inicial de AZ (alcalinidad) fue de aproximadamente 9,4 en el Foreshot. En la etapa de adición simultánea, se añadieron al reactor 41 L de silicato de sodio (55 g/L Na₂O) y 1,94 L de ácido sulfúrico concentrado (96 %) durante un período de 40 minutos para producir precipitado de sílice y

sulfato de sodio. El número AZ (alcalinidad) durante la adición simultánea cayó de 9,4 a 5,8 a una velocidad de alimentación de ácido constante después de 40 minutos. Por lo tanto, esta precipitación fue un proceso de precipitación controlado por volumen. Al final de la etapa de adición simultánea, el pH del reactivo fue de aproximadamente 9,4. A continuación, se realizó un envejecimiento de 30 minutos. Al principio de la etapa de envejecimiento, el pH de la solución se ajustó a 8,5 mediante el uso de ácido sulfúrico a una velocidad de descarga de 48 ml/minuto. Una vez terminada la etapa de envejecimiento que terminó la precipitación de la sílice, se ajustó el pH a 4,5 al añadir ácido sulfúrico a una velocidad de flujo de 48 ml/minuto.

Durante todo el proceso de precipitación, la temperatura del reactor se mantuvo a 76,7 °C (170 °F). El tiempo de precipitación total fue de aproximadamente 80 minutos desde el principio hasta el final, que fue aproximadamente inferior a 1/3 del tiempo de precipitación del Ejemplo comparativo 1. A continuación, los precipitados de sílice se transfirieron a un filtro prensa, se lavaron para formar una torta de filtración con un contenido de sólidos de aproximadamente 18 %. Antes del secado por pulverización, la torta de filtración se licuó para formar una suspensión bombeable con un contenido de sólidos de 12-13 %. La sílice se secó en un secador Niro con un atomizador rotatorio.

Ejemplo 7

Preparación de polvo de sílice precipitada

Una solución concentrada de silicato que tenía una relación molar de 3,2 SiO₂ Na₂O se diluyó en agua para formar una concentración de Na₂O de 55 g/L. A continuación, se descargaron aproximadamente 83 L de agua en un reactor de 150 L como se describe en el Ejemplo comparativo 1 y el reactor se calentó hasta 71,1 °C (160 °F) mediante la bobina de calentamiento. Durante un período de 4-5 minutos, se descargaron 4,1 L de silicato de sodio (3,2 SiO₂ Na₂O) en el reactor con el agitador principal encendido. La concentración objetivo de Na₂O en el reactor fue de aproximadamente 3,3±0. 1 g/L en el Foreshot. El número inicial de AZ (alcalinidad) fue de aproximadamente 9,6 en el Foreshot. En la etapa de adición simultánea, se añadieron al reactor 41 l de silicato de sodio (55 g/L de Na₂O) y 1,94 L de ácido sulfúrico concentrado (96 %) durante un período de 40 minutos para producir precipitado de sílice y sulfato de sodio. El número AZ (alcalinidad) durante la adición simultánea cayó de 9,6 a 5,9 a una velocidad de alimentación de ácido constante después de 40 minutos. Por lo tanto, esta precipitación fue un proceso de precipitación controlado por volumen. Al final de la etapa de adición simultánea, el pH del reactivo fue de aproximadamente 9,4. A continuación, se realizó un envejecimiento de 30 minutos. Al principio de la etapa de envejecimiento, el pH de la solución se ajustó a 8,5 mediante el uso de ácido sulfúrico a una velocidad de descarga de 48 ml/minuto. Una vez terminada la etapa de envejecimiento que terminó la precipitación de la sílice, se ajustó el pH a 4,5 al añadir ácido sulfúrico a una velocidad de flujo de 48 ml/minuto.

Durante todo el proceso de precipitación, la temperatura del reactor se mantuvo a 71,1 °C (160 °F). El tiempo de precipitación total fue de aproximadamente 80 minutos desde el principio hasta el final, que fue aproximadamente inferior a 1/3 del tiempo de precipitación del Ejemplo comparativo 1. A continuación, los precipitados de sílice se transfirieron a un filtro prensa, se lavaron para formar una torta de filtración con un contenido de sólidos de aproximadamente 18 %. Antes del secado por pulverización, la torta de filtración se licuó para formar una suspensión bombeable con un contenido de sólidos de 12-13 %. La sílice se secó en un secador Niro con un atomizador rotatorio.

Ejemplo 8

Preparación de polvo de sílice precipitada

Una solución concentrada de silicato que tiene una relación molar de 3,2 SiO₂ Na₂O se diluyó en agua para formar una concentración de Na₂O de 55 g/L. A continuación, se descargaron aproximadamente 83 L de agua en un reactor de 150 L como se describe en el Ejemplo comparativo 1 y el reactor se calentó hasta 48,9 (120 °F) mediante la bobina de calentamiento. Durante un período de 4-5 minutos, se descargaron 4,1 L de silicato de sodio (3,2 SiO₂ Na₂O) en el reactor con el agitador principal encendido. La concentración objetivo de Na₂O en el reactor fue de aproximadamente 3,3±0. 1 g/L en el Foreshot. El número inicial de AZ (alcalinidad) fue de aproximadamente 9,3 en el Foreshot. En la etapa de adición simultánea, se añadieron al reactor 41 L de silicato de sodio (55 g/L de Na₂O) y 1,94 L de ácido sulfúrico concentrado (96 %) durante un período de 40 minutos para producir precipitado de sílice y sulfato de sodio. El número AZ (alcalinidad) durante la adición simultánea cayó de 9,3 a 7,8 a una velocidad de alimentación de ácido constante después de 20 minutos. Por lo tanto, esta precipitación fue un proceso de precipitación controlado por volumen. Al final de la etapa de adición simultánea, el pH del reactivo fue de aproximadamente 9,4. A continuación, se realizó un envejecimiento de 30 minutos. Al principio de la etapa de envejecimiento, el pH de la solución se ajustó a 8,5 mediante el uso de ácido sulfúrico a una velocidad de descarga de 48 ml/minuto. Una vez terminada la etapa de envejecimiento que terminó la precipitación de la sílice, se ajustó el pH a 4,5 al añadir ácido sulfúrico a una velocidad de flujo de 48 ml/minuto.

Durante todo el proceso de precipitación, la temperatura del reactor se mantuvo a 48,9 °C (120 °F). El tiempo de precipitación total fue de aproximadamente 80 minutos desde el principio hasta el final, que fue aproximadamente

inferior a 1/3 del tiempo de precipitación del Ejemplo comparativo 1. A continuación, los precipitados de sílice se transfirieron a un filtro prensa, se lavaron para formar una torta de filtración con un contenido de sólidos de aproximadamente 18 %. Antes del secado por pulverización, la torta de filtración se licuó para formar una suspensión bombeable con un contenido de sólidos de 12-13 %. La sílice se secó en un secador Niro con un atomizador rotatorio.

La alcalinidad y Foreshot Na₂O de los Ejemplos 1-8 se ilustran con más detalle en la Tabla 1.

Tabla 1

Propiedad		Comp Ejemplo 1	Ejemplo 2	Ejemplo 3	Ejemplo 4	Ejemplo 5	Ejemplo 6	Ejemplo 7	Ejemplo 8
Foreshot Na ₂ O (g/l)		2,7	3,0	3,4	3,4	3,4	3,3	3,4	3,4
Valores AZ en la etapa de adición simultánea	0 min	7,7	8,6	8,9	9,0	9,7	9,4	9,6	9,3
	5 min	7,9	8,9		8,9				
	10 min			8,2		9,0	8,4	8,6	8,4
	15 min	7,9	9,0		8,4				
	20 min			7,1		8,0	7,6	7,9	7,8
	25 min	8,0	8,6		7,1				
	30 min			6,8		7,1	7,0	7,0	
	35 min				6,3				
	40 min			6,4		6,6	5,8	5,9	

Ejemplo 9

Evaluación de propiedades del polvo de sílice precipitada

La sílice precipitada formada en el Ejemplo comparativo 1 y los Ejemplos 2-9 se evaluaron en cuanto a varias propiedades. La Tabla 2 enumera las propiedades de la sílice precipitada.

Tabla 2

5	Propiedad	Comp. Ejemplo 1	Ejemplo 2	Ejemplo 3	Ejemplo 4	Ejemplo 5	Ejemplo 6	Ejemplo 7	Ejemplo 8
	BET (m ² /g) ^a	174	203	174	151	231	304	351	485
10	CTAB (m ² /g) ^b	144	185	172	150	221	254	283	368
	Absorción de aceite DOA (ml/100g) ^c	246	265	245	266	255	331	315	266
15	N ₂ Volumen de poros (ml/g) ^d	0,83	1,26	0,99	0,90	1,57	1,73	1,74	1,33
	Diámetro promedio de poro (nm) ^e	24,59	29,10	24,68	27,38	30,34	21,21	20,28	9,52
20	d ₁₀ (pm) ^f	10	12	9,9	12	11	9	9,8	7,6
	d ₅₀ (pm) ^f	33,0	27,7	24,3	27,4	26,7	24,3	26,8	26,5
25	d ₅₀ , 30 s de sonicación (pm) ^g	13,0	7,5	17,7	4,4	17,3	22,1	23,6	22,6
	d ₅₀ , 60 s de sonicación (pm) ^g	10,0	0,5	7,3	0,4	6,9	19,4	22,0	21,4
30	d ₉₀ (pm) ^f	70	54	51	53	53	55	60	56
	Tamaño de partícula S.D. ^h	2,05	1,79	1,88	1,79	1,80	2,01	2,03	2,14
35	ATD(g/l) ⁱ	255	264	278	247	276	301	307	366
	BD (g/cm ³ (libra/pie ³)) ^j	0,189 (11,8)	0,210 (13,1)	0,211 (13,2)	0,192 (12)	0,218 (13,6)	0,235 (14,7)	0,245 (15,3)	0,290 (18,1)
40	Tamiz retenido % - malla 50 ^k	0,3	-	0,2	0,2	0,3	0,2	0,2	0,3
	Tamiz retenido % - malla 100 ^k	0,4	0,5	0,4	0,3	0,6	0,6	0,5	0,4
45	Tamiz retenido % - malla 200 ^k	55,8	2,5	1,2	1,2	1,5	2,2	2,7	1,6
	Tamiz % - Bandeja de colección ^l	43,5	97,0	98,2	98,3	97,6	97,0	96,6	97,7

50 ^a El área superficial BET se determinó mediante el uso del método Brunauer-Emmett-Teller (BET) de acuerdo con ASTM D1993-03 mediante el uso de nitrógeno como adsorbato y modificado mediante la desgasificación del sistema y la muestra durante 60 minutos a 160 °C. Se usó un TriStar® 3000 (disponible de Micromeritics Instrument Corporation) para áreas superficiales de nitrógeno BET multipunto, con cinco puntos de presión relativa.

55 ^b El área superficial CTAB se determinó de acuerdo con el método descrito en la patente de Estados Unidos núm. 8,846,806 en la columna 9, línea 19 a la columna 10, línea 63, y en el documento núm. U.S. 9,073,041 en la columna 5, línea 54 a la columna 7, línea 34.

60 ^c Según lo determinado por C.W. Brabender Absorptometer-C mediante el uso de adipato de dioctilo. El ajuste de velocidad estándar durante la prueba de sílice fue de aproximadamente 125 rpm. La lectura de temperatura estándar durante la mezcla fue de aproximadamente 23 °C.

65 ^d El volumen de poro de N₂ se determinó mediante el método BET multipunto en el instrumento Micromeritics Tri Star 3000™. "Volumen de poro" en la presente descripción se refiere al volumen de poro acumulativo de deposición de BJH (Barrett-Joy ner-Halenda), cm³/g. El análisis BJH (Barret-Joy ner-Halenda), como conoce un experto en la técnica, se inicia para determinar el área de poro y el volumen de poro específico con el uso de la isoterma de

desorción de nitrógeno a través de múltiples presiones relativas. El programa del instrumento registró y analizó un mínimo de 48 puntos para estos análisis.

^e El diámetro promedio de poro se determinó mediante el método BET multipunto en el instrumento Micromeritics Tri Star 3000™ como se describió anteriormente con respecto al volumen de poro N₂. "Diámetro promedio de poro" en la presente descripción se refiere al diámetro promedio de poro de desorción BJH, A.

^f Los tamaños de partículas d₅₀, y d₉₀ se determinaron en suspensiones acuosas de la sílice mediante el uso de un difractómetro láser Beckman Coulter Inc. (Hialeah, Fla.) modelo LS 230 siguiendo las instrucciones contenidas en el manual.

^g Los tamaños de partículas d modificados d₁₀, d₅₀, y d₉₀ se determinaron con un difractómetro láser Beckman Coulter Inc. (Hialeah, Fla.) modelo LS 230 siguiendo las instrucciones contenidas en el manual después de 30 segundos o 60 segundos de sonicación con sonda de la suspensión de sílice para efectuar la rotura mecánica.

^h La desviación estándar del tamaño de partícula se determinó con un Beckman Coulter LS 230 siguiendo las instrucciones contenidas en el manual de Beckman Coulter LS 230.

ⁱ La ATD se determinó mediante el uso del método de medición de ATD descrito anteriormente.

^j La BD se determinó mediante el uso del método de medición de BD descrito anteriormente.

^k El 50, 100 y 200 % de tamiz se determinó mediante el uso del método de medición por tamiz descrito anteriormente con los tamices de malla de tamaño apropiado.

^l El % de tamiz en la bandeja de recolección fue la cantidad total de partículas que se distribuyeron a través de las mallas.

Ejemplo 10

Evaluación de forma y fluidez del polvo de sílice precipitada

También se evaluaron la forma y fluidez de la sílice precipitada formada en el Ejemplo comparativo 1 y los Ejemplos 2 y 3. La Tabla 3 enumera las propiedades de forma y fluidez.

Tabla 3

Propiedad	Comp. Ejemplo 1	Ejemplo 2	Ejemplo 3
Circularidad ^m	0,65	0,83	0,86
Circularidad STD ⁿ	0,13	0,06	0,09
Relación de aspecto ^o	1,22	1,13	1,16
Relación de aspecto STD ^p	0,23	0,15	0,23
AOR ^q	N/A	~0	~0
Fluidez, vaso de precipitados A (segundos) ^r	No hay flujo	6	5
Fluidez, vaso de precipitados B (segundos) ^r	No hay flujo	2	2

^m La circularidad se determinó mediante el uso del método de medición de la circularidad descrito anteriormente con base en un tamaño de muestra dentro de un intervalo de 30 a 90 partículas.

ⁿ La desviación estándar de circularidad fue la desviación estándar basada en las mediciones de circularidad.

^o La relación de aspecto se determinó mediante el uso de ImageJ para obtener la elipse ajustada de la partícula, que es el [Eje mayor\Eje menor], basado en un tamaño de muestra dentro de un intervalo de 30 a 90 partículas.

^p La desviación estándar de la relación de aspecto fue la desviación estándar basada en las mediciones de la relación de aspecto.

^q El ángulo de reposo se determinó mediante el uso del método de medición de AOR descrito anteriormente.

^r La fluidez se determinó mediante el uso del método de medición del flujo del vaso de precipitados descrito

anteriormente. Tanto el vaso de precipitados A como el vaso de precipitados B tenían una altura de 80 mm, un diámetro interior de 36 mm y un diámetro exterior de 40 mm. El vaso de precipitados A tenía un diámetro de abertura de 5,0 mm y una altura de cono de 35 mm, mientras que el vaso de precipitados B tenía un diámetro de abertura de 8,0 mm y una altura de cono de 30 mm.

5 Como se muestra en la Tabla 3, la sílice preparada en los Ejemplos 2 y 3 de acuerdo con la presente invención mostró una partícula altamente esférica en comparación con la partícula de sílice preparada en el Ejemplo comparativo 1 que mostró menos esfericidad como lo indican los valores de circularidad. Además, no pudo determinarse el AOR de la sílice del Ejemplo comparativo 1 porque la muestra se adhirió al embudo y no fluyó.

10 Además, el AOR de la sílice preparada en los Ejemplos 2 y 3 de acuerdo con la presente invención se extendió sin formar un cono distinto y, por lo tanto, se designó como AOR de aproximadamente 0.

15 Para seguir en el análisis de la forma, se evaluó la sílice preparada en el Ejemplo 2 mediante el uso de varias técnicas de formación de imágenes y que se ilustra en las Figuras 1-3. Particularmente, la Figura 1 es una imagen SEM de la sílice de forma esférica obtenida en el Ejemplo 2, la Figura 2 es una imagen SEM de la sílice de forma esférica obtenida en el Ejemplo 2 con un grado de aumento diferente al de la Figura 1, y la Figura 3 es un análisis de partículas ImageJ de la sílice de forma esférica del Ejemplo 2. Como se muestra en las Figuras 1-3, la sílice preparada en el Ejemplo 2 era muy esférica/circular.

20

REIVINDICACIONES

1. Sílice de forma esférica que comprende:

- 5 un tamaño de partícula d_{50} seleccionado dentro de un intervalo superior a 20 μm y hasta 80 μm ;
 una absorción de aceite de adipato de dioctilo seleccionada dentro de un intervalo de 150 ml/100 g a 500 ml/100 g;
 una circularidad promedio seleccionada dentro de un intervalo de 0,70 a 1,0; y un ángulo de reposo inferior a 30°,
 10 en donde la sílice de forma esférica es un polvo de sílice precipitada.

2. La sílice precipitada de forma esférica de acuerdo con la reivindicación 1, en donde la sílice de forma esférica comprende una densidad compactada promedio superior a 150 g/l, preferentemente superior a 250 g/l.

15 3. La sílice precipitada de forma esférica de acuerdo con las reivindicaciones 1 o 2, en donde la sílice de forma esférica comprende un área superficial BET de 80 a 600 m^2/g , un área superficial CTAB de 80 a 500 m^2/g , un tamaño de partícula d_{10} seleccionado dentro de un intervalo superior a 3 μm y hasta 40 μm , y/o un tamaño de partícula d_{90} seleccionado dentro de un intervalo superior a 40 μm y hasta 90 μm .

20 4. La sílice precipitada de forma esférica de cualquiera de las reivindicaciones 1 a 3, en donde al menos el 90 % en peso de una muestra de sílice de forma esférica pasa a través de un tamiz de malla 200.

5. La sílice precipitada de forma esférica de cualquiera de las reivindicaciones 1 a 4, en donde la sílice de forma esférica comprende una densidad en masa seleccionada dentro de un intervalo de al menos 0,08 g/cm^3 y hasta 0,48 g/cm^3 y/o tiene una circularidad promedio seleccionada dentro de un intervalo de 0,70 a 0,95.
 25

6. Un proceso para preparar polvo de sílice precipitada de forma esférica que comprende:

- 30 a) preparar una primera solución acuosa de silicato de metal alcalino;
 b) preparar una segunda solución acuosa de silicato de metal alcalino que tiene un pH superior a 7 con la primera solución acuosa de silicato de metal alcalino y agua;
 c) añadir simultáneamente la primera solución acuosa de silicato de metal alcalino y un agente acidificante a la segunda solución acuosa de silicato de metal alcalino acuoso para formar una suspensión de sílice que comprende sílice precipitada;
 35 d) envejecer la suspensión de sílice a un pH dentro de un intervalo de 7 a 14;
 e) añadir un agente acidificante adicional después del envejecimiento de manera que el pH de la suspensión sea inferior a 7; y
 f) lavar y secar la sílice precipitada,
 40 en donde el tiempo total para las etapas c) y d) es inferior a 150 minutos.

7. El proceso de acuerdo con la reivindicación 6, en donde el secado de la sílice precipitada comprende dispersar la sílice en un medio acuoso y secar por pulverización la sílice dispersada, en donde la sílice precipitada se dispersa en el medio acuoso para formar una solución con un contenido de sólidos inferior a 20 %, en donde al menos uno de las etapas de a) a d) se realiza a una temperatura seleccionada dentro de un intervalo de 37,8 °C a 104,4 °C, en donde la primera solución acuosa de silicato de metal alcalino y el agente acidificante se añaden simultáneamente en la etapa c) durante un período de tiempo dentro de un intervalo de 2 a 90 minutos y/o en donde la suspensión de sílice se envejece en la etapa d) por un período de tiempo seleccionado dentro de un intervalo de 1 minuto a 120 minutos.
 45

8. El proceso de acuerdo con las reivindicaciones 6 o 7, en donde al menos una de las soluciones acuosas de silicato de metal alcalino primera y segunda está representada por $x(\text{SiO}_2) \text{Na}_2\text{O}$, en donde x es un valor seleccionado dentro de un intervalo de 1 a 4.
 50

9. El proceso de cualquiera de las reivindicaciones 6 a 8, en donde la primera solución acuosa de silicato de metal alcalino tiene una concentración inferior a 85 g/L de Na_2O y/o la segunda solución acuosa de silicato de metal alcalino tiene un valor AZ de alcalinidad seleccionado dentro de un intervalo de 1 a 40.
 55

10. El proceso de cualquiera de las reivindicaciones 6 a 9, en donde el valor AZ de alcalinidad de la segunda solución acuosa de silicato de metal alcalino disminuye durante la etapa de adición simultánea c).
 60

11. El proceso de cualquiera de las reivindicaciones 6 a 9, en donde se mantiene un valor AZ de alcalinidad de la segunda solución acuosa de silicato de metal alcalino durante la etapa de adición simultánea c).
 65

12. El proceso de cualquiera de las reivindicaciones 6 a 11, en donde la sílice precipitada de forma esférica se forma en ausencia de trituración o molienda mecánica adicional.

13. El proceso de cualquiera de las reivindicaciones 6 a 12, en donde la primera solución acuosa de silicato de metal alcalino y el agente acidificante se añaden simultáneamente una vez en una sola etapa.

5

14. Una composición que comprende la sílice de forma esférica de cualquiera de las reivindicaciones 1 a 5.

15. La composición de acuerdo con la reivindicación 14, en donde la composición es una composición de caucho, una composición de recubrimiento, una composición de membrana polimérica porosa, una composición portadora o adsorbente.

10

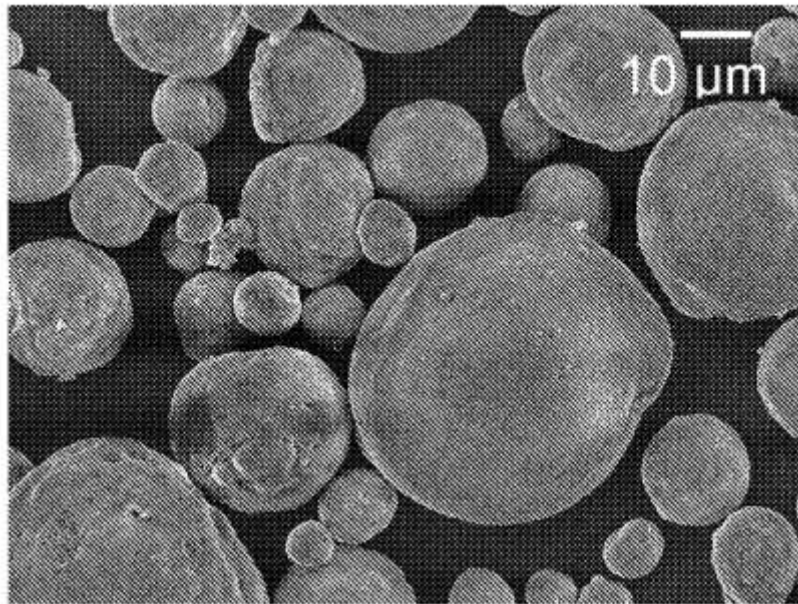


Figura 1

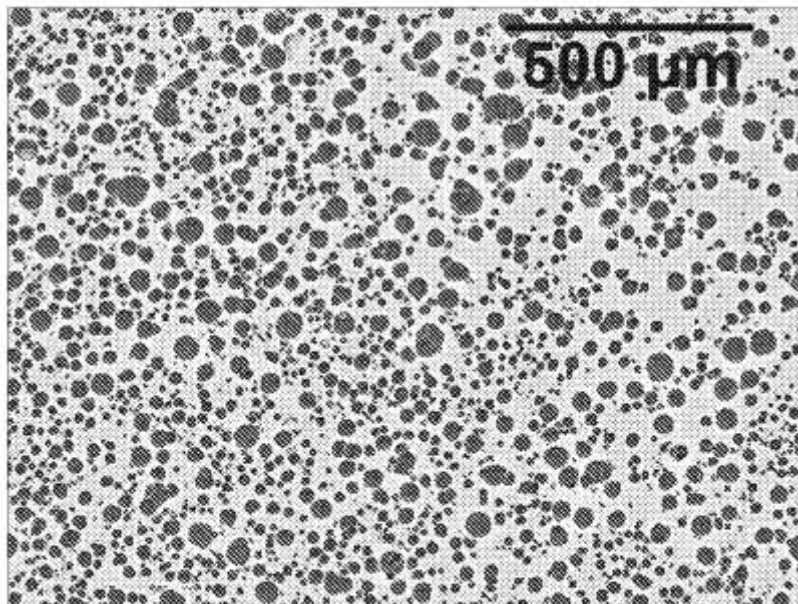


Figura 2

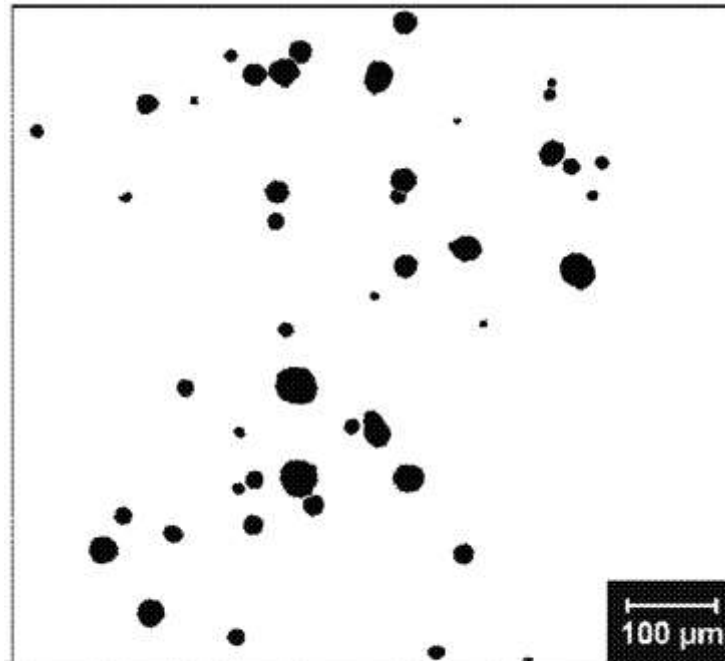


Figura 3