

P - 10.381.-

Case 749 - B

205502



22

205502

22 SEP. 1952

MEMORIA DESCRIPTIVA

para solicitar

P A T E N T E D E I N V E N C I O N

e n

E S P A Ñ A

por VEINTE años

a nombre de UNIVERSAL OIL PRODUCTS COMPANY, entidad norteamericana, establecida en 310 South Michigan Avenue, Chicago, Illinois, Estados Unidos de América, por:

" UN PROCEDIMIENTO PARA REFORMAR CATALÍTICAMENTE FRACCIONES DE LA GASOLINA ".-

Esta invención se refiere a un procedimiento para re-
formar catalíticamente fracciones de gasolina, para mejorar sus
características reguladoras de la explosión, o para convertir
una porción substancial de los componentes no aromáticos de las
fracciones de gasolina, a hidrocarburos aromáticos. Con mayor

5



205502

particularidad la invención está relacionada con la reformación de una fracción de gasolina, con presencia de hidrógeno y un catalizador que contiene un conductor sólido, de preferencia alúmina, y platino en una cantidad desde aproximadamente 0.01% hasta aproximadamente 2%, preferiblemente no más de aproximadamente 1%, por peso del catalizador, y que, si se desea, contiene también halógeno combinado, en una cantidad desde aproximadamente 0,1 hasta aproximadamente 8%, por peso del conductor.

Muchas proposiciones se han hecho en lo pasado, implicando la conversión de fracciones de la gasolina, con presencia de catalizadores que contienen platino, pero es tan solo en años recientes que un procedimiento satisfactorio, para reformar fracciones de gasolina con presencia de hidrógeno y catalizadores de la naturaleza antes definida, ha sido desarrollado e introducido en la práctica industrial en gran escala. Se ha encontrado ahora que tal procedimiento reforzador es notoriamente mejorado mediante realizar la reformación con presencia de partículas de catalizador que, si bien tienen un contenido de platino de la baja concentración antes mencionada, se distinguen por una distribución extraordinariamente uniforme del platino, en toda la masa de las partículas individuales, y por una elevada actividad y estabilidad, y las cuales han sido producidas por medio de un método particular de impregnación.

Así pues, de acuerdo con la presente invención, una fracción de gasolina es reformada con presencia de hidrógeno y partículas de catalizador, de la composición antes mencionada, y que han sido producidas mediante impregnar partículas porosas de un conductor con una solución de un compuesto de platino, con



2288

205502

presencia de un compuesto básico de nitrógeno, disuelto en la solución de compuesto de platino, y calentando las partículas impregnadas a una temperatura arriba de 260° C., de preferencia en contacto con aire, y preferiblemente a una temperatura de más elevada que aproximadamente 595° C.

5 En un arreglo específico y particularmente eficaz, de esta invención, una fracción de gasolina es reformada con presencia de partículas de catalizador, las cuales contienen alúmina, flúor combinado, en una cantidad desde aproximadamente 0,1 hasta aproximadamente 3%, por peso, de la alúmina, y platino en una cantidad desde aproximadamente 0,1 hasta 1%, por peso, del catalizador, y que han sido producidas preparando primero partículas de hidrogel de alúmina configuradas, calcinadas, conteniendo el flúor; 10 impregnar estas partículas configuradas, calcinadas, con una solución acuosa que contenga ácido cloroplatínico e hidróxido de amonio, y que tenga un pH desde aproximadamente 8 hasta aproximadamente 10, secando las partículas impregnadas a una temperatura desde aproximadamente 95% hasta 20 aproximadamente 260° C., y en seguida calentándolas en contacto con aire, a una temperatura dentro de la escala de desde 260° hasta 540° C. Las partículas de catalizador preparadas de esta manera, de partículas de hidrogel de alúmina configuradas, las cuales han sido calcinadas a una temperatura entre 480° y 700° C., con esterilidad al tratamiento de impregnación, son preferibles para uso en el presente procedimiento. 25

La fracción de gasolina suministrada al trata-



205502

miento de reformación, de la presente invención, puede ser una gasolina de escala completa de ebullición, que tenga un punto inicial de ebullición, dentro de la escala desde aproximadamente 10° hasta aproximadamente 40° C., y un punto final de ebullición dentro de la escala desde aproximadamente 175° hasta 220° C., o más, o puede ser una fracción seleccionada de la misma, la cual generalmente será una fracción de alta ebullición, a la que comunmente se hace referencia como nafta, y que tendrá, por lo general un punto inicial de ebullición de desde aproximadamente 65° hasta aproximadamente 125° C., y un punto final de ebullición dentro de la escala de desde aproximadamente 175° hasta aproximadamente 220° C., o más.

El tratamiento de reformación, de acuerdo con la presente invención, es particularmente aplicable a las gasolinas destiladas a presión atmosférica, las cuales contienen hidrocarburos nafténicos, e hidrocarburos parafínicos, los cuales son generalmente de cadena recta, o de estructura de cadena ligeramente ramificada, así como también proporciones variables de hidrocarburos aromáticos. La invención es también aplicable a la reformación de gasolinas de desintegración pirolítica, y particularmente gasolina térmicamente desintegrada pirolíticamente, ya sea sola o mezclada con una gasolina destilada a presión atmosférica. Con objeto de obtener los mejores resultados en operaciones de reformación, es conveniente deshidrogenar los hidrocarburos nafténicos de cadena recta, para formar aromáticos, así como también efectuar un tipo controlado de desintegra-



205502

ción pirolítica, el cual es selectivo tanto en calidad como en cantidad. En adición, otras diversas reacciones concomitantes ocurren, incluyendo particularmente la isomerización y la transferencia de hidrógeno.

5 La desintegración pirolítica, o separación de las ligas de carbón a carbón, es uno de los factores importantes en un procedimiento satisfactorio de reformación. La desintegración pirolítica controlada o selectiva, es altamente conveniente, desde luego que tal desintegración pirolítica se traducirá en un producto de características reguladoras de la explosión mejoradas. En lo general, los productos de peso molecular más bajo, tienen números más elevados de octanos, y así un producto final de gasolina, de peso medio molecular inferior, generalmente tendrá una graduación más alta de octanos. Además, durante la reacción de desintegración pirolítica, ocurre la isomericación, u otro re-arreglo molecular, el cual también se traduce en productos que tengan características reguladoras de la explosión más elevadas. La desintegración pirolítica es también de particular ventaja cuando el material de carga contiene componentes que ebulLEN arriba de aproximadamente 205° C., a fin de convertir estos componentes a fracciones que ebulLEN abajo de aproximadamente 205° C. Se verá, por lo tanto, que la reacción de desintegración pirolítica colectiva, durante la reformación catalítica, se traduce no solamente en un producto de calidad mejorada, sino también en un aumento en la cantidad de los productos deseados.

Sin embargo, la desintegración pirolítica debe



22007

205502

ser colectiva, y no debe traducirse en la descomposición de los hidrocarburos normalmente líquidos, substancialmente, o por completo, es hidrocarburos normalmente gaseosos. La desintegración pirolítica selectiva deseada comprende generalmente la separación de una molécula de hidrocarburo, de ebullición más elevada, en dos moléculas, ambas de las cuales son, normalmente, hidrocarburos líquidos. En un grado menor comprende la reacción de los grupos metílicos, etílicos, y propílicos, los cuales, con la presencia de hidrógeno, son convertidos a metano, etano y propano. Sin embargo, la remoción de estos radicales es controlada de tal modo que no más uno, o posiblemente dos, de dichos radicales, son removidos de una molécula dada. Por ejemplo, con la presencia del hidrógeno, decano puede ser reducido a dos moléculas de pentano, heptano a hexano; y nonano o octano o heptano. Por otra parte, la desintegración pirolítica incontrolada, o no-selectiva, se traducirá en la descomposición de los hidrocarburos normalmente líquidos, a hidrocarburos normalmente gaseosos, como, por ejemplo, por la continuada demetilación de heptano normal para producir 7 grupos metílicos, los cuales, con la presencia de hidrógeno, son convertidos a metano.

La reacción de desintegración pirolítica no-selectiva o incontrolada, en comparación con la reacción de desintegración pirolítica selectiva, se traduce en la formación más rápida de cantidades mayores de coke, o material carbonoso, que se deposita sobre el catalizador, y disminuye, o destruye, su actividad para catalizar las reac-

24 SEP 1952



205502

5 ciones deseadas. Esto, a su vez, se traduce en ciclos o periodos más cortos de tratamiento, con la necesidad de una regeneración más frecuente del catalizador, quemando los productos carbonosos del mismo, o, si la actividad del catalizador fuese destruida, será necesario parar la unidad, para remover el catalizador viejo y substituirlo con un nuevo catalizador.

10 Otra característica importante, en procedimientos satisfactorios de reformación de la cuestión de producción y consumo de hidrógeno. Las investigaciones han mostrado que la presencia de hidrógeno, en la zona de reformación, tiende adicionalmente a disminuir la cantidad de depósito carbonoso sobre el catalizador. En vista del hecho de que el costo del hidrógeno es bastante elevado, es esencial que no haya un consumo neto de hidrógeno, o en otras palabras, cuando menos debe producirse tanto hidrógeno, en el proceso como sea consumido en el mismo.

15 El procedimiento de reformación será efectuado a una temperatura dentro de la escala de desde aproximadamente 313° C; hasta 595° C.; una presión dentro de la escala desde aproximadamente 3.5 hasta aproximadamente 70 atmósferas, o más, y una velocidad del peso en el espacio por hora, de desde aproximadamente 0.1 hasta aproximadamente 20. La velocidad del peso en el espacio por hora es definida como el peso de aceite por hora, por peso unidad de catalizador en la zona de reacción.

25 Las reacciones de hidro-desintegración pirólítica son favorecidas a temperaturas dentro de la escala



22 SEP 1952

205502

desde aproximadamente 315° hasta aproximadamente 475°, y a presiones dentro de la escala desde aproximadamente 35 hasta aproximadamente 70 atmósferas, o más. La hidro-desintegración pirolítica es definida como la desintegración pirolítica o separación de las ligas de carbón, acompañada por saturación de los fragmentos así formados por hidrógeno presente en la zona de reacción, y, de acuerdo con la presente invención, la hidro-desintegración pirolítica será selectiva, tanto en cualidad como en cantidad, como se ha expresado en lo que antecede. Por otra parte, las reacciones de aromatización son favorecidas a temperaturas dentro de la escala de desde aproximadamente 343° hasta aproximadamente 595° C., y a presiones más bajas dentro de la escala de desde aproximadamente 3.5 hasta aproximadamente 27 atmósferas. Al poner en ejecución el presente tratamiento reformador, la temperatura, la presión, y la velocidad en el espacio, son correlacionadas, para producir la aromatización y selectiva hidro-desintegración pirolítica deseadas. La temperatura, presión y velocidad en el espacio exactas, dependen de la fracción particular de gasolina que está siendo tratada, y de los productos particulares deseados.

En un arreglo del presente procedimiento reformador, suficiente hidrógeno será producido en la reacción reformadora, para suministrar el hidrógeno requerido en el proceso, y, por lo tanto, puede ser innecesario ya sea introducir hidrógeno, de una fuente extraña, o reciclar hidrógeno dentro del proceso. Sin embargo, generalmente será preferible introducir hidrógeno, procedente de una fuente ex-



205502

traña al principio de la operación, y reciclar hidrógeno, dentro del proceso, durante la operación continua del mismo, con objeto de tener la seguridad de una atmósfera de hidrógeno suficiente en la zona de reacción. El hidrógeno presente en la zona de reacción, generalmente será dentro de la escala de desde aproximadamente 0,1 hasta aproximadamente 10 moléculas de hidrógeno por molécula de hidrógeno. En algunos casos, particularmente cuando la fracción de gasolina suministrada al tratamiento reformador contiene compuestos de azufre, el gas asequible para reciclar contendrá sulfuro de hidrógeno, y es preferible tratar el gas que contiene hidrógeno, para remover el sulfuro de hidrógeno u otras impurezas, antes de reciclar el hidrógeno dentro del proceso.

En las partículas de catalizador empleadas en el presente procedimiento, alúmina es un soporte o conductor, particularmente preferible, para el platino, porque parece mostrar ventajas mejoradas para uso como un componente de soporte para las concentraciones bajas de platino, aparentemente debido a alguna asociación secular de la alúmina con el platino, ya sea como una combinación química, o como una asociación física. Se ha encontrado que la combinación de alúmina y una concentración baja de platino, es un catalizador muy activo, y también tiene una larga vida como catalizador; es decir, el catalizador retiene su elevada actividad durante largos periodos de servicio. Después de estos largos periodos de servicio, el catalizador puede mostrar un descenso en actividad, y se ha encontrado, además,



1952

205502

que la combinación particular de alúmina y platino hace al catalizador susceptible a una regeneración rápida.

5 El presente procedimiento reformador puede también ser llevado a cabo con la ayuda de partículas de catalizador, en las cuales el platino es combinado con otros soportes incluyendo sílice, óxido de zinc, magnesio, zirconio, torio, así como también soportes que comprenden dos o más componentes tales como sílice-alúmina, sílice-magnesio, sílice-zirconio, sílice-torio, sílice-óxido de zinc, sílice-
10 alúmina-magnesio, sílice-alúmina-zirconio, sílice-alúmina-torio, sílice-alúmina-óxido de zinc, y similares. El uso del compuesto básico de nitrógeno, al combinar platino con el soporte brinda ventajas mejoradas en distribuir uniformemente el platino en todo el soporte, lo cual a su vez ofrece
15 ventajas en el presente procedimiento reformador empleando el catalizador acabado.

Como una característica esencial de la preparación de partículas de catalizador para el presente procedimiento, la impregnación del soporte poroso debe ser efectuada con presencia de un compuesto básico de nitrógeno,
20 que sea soluble en la solución impregnante de un compuesto de platino adecuado. Contrario a las expectativas anteriores, se ha encontrado que, a menos que la impregnación sea efectuada con presencia del compuesto básico, una distribución desigual del platino, en las partículas de soporte, es
25 obtenida. Generalmente, esta distribución desigual comprende un revestimiento superficial, es decir el compuesto de platino es distribuido solamente sobre la superficie de las



205502

partículas del conductor, y no uniformemente en toda la masa. Mediante efectuar la impregnación con presencia del compuesto básico de nitrógeno, una distribución uniforme del platino, en todas las partículas de soportes obtenida.

5 Un método particularmente satisfactorio de impregnar el soporte comprende el uso de una solución acuosa de ácido cloroplatínico. En un arreglo preferible, la solución acuosa de ácido cloroplatínico, es mezclada con la solución de compuesto básico, y la mezcla es agregada a las
10 partículas porosas del conductor. En otro arreglo, la solución de compuesto básico puede ser agregada a las partículas porosas del conductor, y la solución de ácido cloroplatínico es, en seguida, agregada a la mezcla. En otro arreglo adicional, la solución de ácido cloroplatínico puede ser agregada a las partículas porosas del conductor, y
15 la solución de compuesto básico es, en seguida, agregada. De cualquier manera, la mezcla se deja reposar, preferiblemente con o después de, una agitación adecuada, de manera que una mezcla concienzuda es obtenida, y una distribución
20 uniforme, en todo el soporte, es efectuada.

 Se comprenderá que cualquier fuente adecuada de platino puede ser usada para el objeto de la presente invención. Acido cloroplatínico es, por lo general, preferible, en virtud de que es más fácilmente asequible. Soluciones de otros compuestos que contienen platino pueden ser
25 empleadas, incluyendo las de cloruro de amonio platino, cloruro de trimetilbencil amonio platino, cloruro de tetraamino platino, nitrato de amonio platino, y dinitro diamino

2202



205502

platino. Queda entendido que, cuando se desea, otras soluciones fuera de las acuosas pueden ser empleadas, y esto es particularmente útil cuando el compuesto de platino no es protamente soluble en agua.

5 El compuesto básico de nitrógeno, preferible para uso en producir las partículas de catalizador, para el presente procedimiento, es un compuesto básico soluble en agua, y en cualquier caso, un compuesto básico que no introduce impurezas indeseables en el catalizador final.

10 Así pues, un compuesto básico preferible comprende hidróxido de amonio. Otros compuestos básicos solubles en agua comprenden compuestos amino orgánicos, tales como: las poliaminas de alquileo, incluyendo diamina de etileno, triamina de propileno y tetramina de butileno; compuestos monoaminos, tales como amina metílica, amina etílica, amina dietílica, amina trietílica, amina propílica, amina dipropílica, amina butílica, y anilina; y aminas alcanólicas, tales como aminas de etanol, amina de propanol, amina de butanol, amina de dietanol, y amina de trietanol.

15 20 compuestos amino orgánicos satisfactorios incluyen tetramina de hexametileno, diamina de hexametileno, y compuestos similares. Entre estos compuestos orgánicos, la poliaminas de alquileo son preferibles.

25 Otra clase adecuada de compuestos básicos, que puede ser usada en producir las partículas de catalizador, para el presente procedimiento, comprende los compuestos básicos de amonio, tales como carbonato de amonio, bicarbonato de amonio, carbamato de amonio, citrato de amonio,

22 SEP



205502

propionato de amonio, y butirato de amonio. En algunos
casos puede ser conveniente mezclar amoniaco con solucio-
nes de estos compuestos de nitrógeno, con objeto de asegu-
rar una basicidad definida. Como otro método alternativo,
5 pero no necesariamente equivalente, nitrato de amonio, ace-
tato de amonio, y similares, pueden ser empleados en mezcla
con hidróxido de amonio, en una concentración suficiente
para formar una solución básica. Queda entendido que los
diversos compuestos básicos no son necesariamente equiva-
lentes. En cualquier caso, el compuesto básico empleado
10 no debe dejar un residuo indeseable sobre el catalizador.

El uso de un compuesto básico se diferencia
del uso de un compuesto ácido, como, por ejemplo, cloruro
de amonio. El cloruro de amonio no puede ser usado porque,
15 el hacerse la mezcla de cloruro de amonio con ácido cloro-
platínico, un precipitado de cloroplatinato de amonio es
obtenido. Aún al calentar, o al hacer la adición de un
compuesto básico, el precipitado no se disolverá para for-
mar una solución clara. Sin embargo, en algunos casos,
20 tanto la adición de un compuesto básico como el calentamien-
to, disolverán el precipitado, para formar una solución
clara, y en tales casos, el uso de cloruro de amonio puede
ser empleado en conjunto con ambos, el compuesto básico y
el calentamiento.

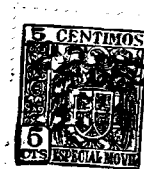
25 Con una selección apropiada de la solución de
ácido cloroplatínico, y de una solución de un compuesto bá-
sico de amonio, la mezcla de estas soluciones no formará un
precipitado. y, por lo tanto, no formará cloroplatinato de



205502

amonio. Los solicitantes no están seguros en cuanto a la fórmula química exacta del compuesto formado, pero se cree que es un producto de la hidrólisis de $\text{Pt}(\text{NH}_3)_2\text{Cl}_2$. De cualquier manera, es evidente que la solución clara formada al hacerse la mezcla de una solución de un compuesto básico de amonio, con una solución de ácido cloroplatínico, es diferente del precipitado de cloroplatinato de amonio, formado al hacer la adición del cloruro de amonio a la solución de ácido cloroplatínico. Si el cloroplatinato de amonio es formado, como se ha indicado antes, o debido al uso de una solución demasiado altamente concentrada, de ácido cloroplatínico, el cloroplatinato de amonio puede ser redissuelto para formar la solución clara, que ya no es cloroplatinato de amonio, y aparentemente es el compuesto que se ha mencionado en lo que antecede. La diferencia entre los dos compuestos es adicionalmente evidenciada por el hecho de que la adición de iones de carbonato, como por la adición de carbonato de sodio, no formará un precipitado, en el caso de la mezcla de cloruro de amonio con ácido cloroplatínico al hacerse el calentamiento, pero formará un precipitado en el caso de la solución de hidróxido de amonio con ácido cloroplatínico, al hacerse el calentamiento.

En un arreglo preferible de la presente invención, el catalizador final contiene halógeno en una concentración específica, dentro de la escala que se ha indicado en lo que antecede. La presencia de halógeno, dentro de tal escala específica, efectúa una mejora considerable en el catalizador. Se cree que el halógeno entra en alguna



1952

205502

combinación química, o complejo suelto, con el soporte y/o el platino, y sirve de ese modo para mejorar el catalizador final.

5 Si bien cualesquiera de los halógenos servirá para efectuar resultados mejorados, flúor es particularmente preferible. El siguiente en orden es cloro, mientras que bromo y yodo son, generalmente, menos preferibles. Se entiende que, si bien todos estos halógenos servirán para efectuar una mejora, no son necesariamente equivalentes.

10 En la producción del catalizador utilizado de acuerdo con la presente invención, las partículas compuestas finales, de platino y soporte, o platino-halógeno combinado-soporte, son calentados, generalmente con presencia de un gas que contenga oxígeno, particularmente aire, a una
15 temperatura desde aproximadamente 260° a 595° C., preferiblemente a una temperatura entre 260° y 540° C., siendo tal calentamiento efectuado, por lo general, durante un periodo desde aproximadamente 1 hasta 12 horas, o más. La calcinación con presencia de aire parece traducirse en una actividad
20 más conveniente del catalizador, para el presente procedimiento reformador, que la obtenida cuando el catalizador es calentado solamente con presencia de una atmósfera reductora. En otro arreglo adicional, el compuesto final puede ser reducido con presencia de hidrógeno, y en seguida
25 calcinado con presencia de aire, siendo ambas, la reducción y la calcinación, efectuadas a una temperatura de desde aproximadamente 260° hasta 595° C., y preferiblemente a 540° C.



2055 (2)

5 En un arreglo del método de producir partículas de catalizador, para uso de acuerdo con la invención, el material de soporte, o conductor, es formado en partículas porosas, de tamaño y forma uniformes, con anterioridad a
10 combinar el platino con las mismas. Es ventajoso, además, que las partículas del conductor sean sometidas a calcinación a una temperatura arriba de aproximadamente 425° C., pero abajo de la temperatura a la cual ocurre pérdida de la porosidad, y preferiblemente dentro de la escala de desde
15 aproximadamente 540° hasta aproximadamente 700° C., durante un periodo desde aproximadamente 1 a 8 horas, o más, antes de que sean llevadas a contacto con la solución impregnante. La temperatura y el tiempo de calentamiento están correlacionados; es decir, lapsos más cortos son empleados con temperaturas más elevadas, y lapsos mayores son empleados con
20 temperaturas más bajas. Por otra parte el compuesto final, conteniendo un compuesto de platino, particularmente cuando se destina para reacciones catalizadoras de compuestos orgánicos, no debe ser calentado a una temperatura substancialmente arriba de 595° C., y preferiblemente es calcinado en
aire, a una temperatura desde aproximadamente 260° hasta aproximadamente 540° C., durante un periodo desde 1 a 12 horas.

25 Un método preferible de preparar alúmina es mezclar un reactivo adecuado, tal como hidróxido de amonio, o carbonato de amonio, con una sal de aluminio, tal como cloruro de aluminio, nitrato de aluminio, acetato de aluminio etc., en una cantidad para formar hidróxido de aluminio, el



205502

5 cual, al secarse, es convertido a alúmina. Por cuestión de
simplicidad, el hidróxido de aluminio es mencionado, en lo
que sigue, como alúmina, en la presente especificación y
en las clausulas finales, con objeto de que los porcentajes
basados sobre el material conductor, se refieran a alúmina
libre de agua combinado. Se ha encontrado que el cloruro
de aluminio es generalmente preferible como la sal de alu-
minio, no solamente por conveniencia, en los procedimientos
subsiguientes de lavado y filtración, sino también porque
10 parece dar mejores resultados. La alúmina puede también
ser preparada inicialmente en forma de partículas de hidro-
gel de alúmina, las cuales son un material de soporte par-
ticularmente conveniente, después de su transformación a
partículas configuradas, calcinadas.

15 Después que la alúmina ha sido formada, gene-
ralmente es lavada, para remover las impurezas solubles.
Los procedimientos usuales de lavado comprenden lavar con
agua, ya sea en combinación con filtración, o como pesos
separados. Se ha encontrado que la filtración de la alúmi-
na es mejorada cuando el agua de lavar incluye una pequeña
20 cantidad de hidróxido de amonio. La severidad del lavado
dependerá del método particular empleado en preparar el
catalizador. En un método típico de preparar el cataliza-
dor, la alúmina es concienzudamente lavada con una canti-
dad adecuada de agua, y preferiblemente agua que contenga
25 hidróxido de amonio, para reducir el contenido de cloro,
de la alúmina, a bajo de aproximadamente 0.1%. En otro mé-
todo, este lavado puede ser selectivo, para retener el clo-



205502

ro en una cantidad desde aproximadamente 0,2% hasta aproximadamente 8%, por peso de la alúmina sobre una base en seco. De acuerdo con este método de preparar el catalizador, el cloro es obtenido del cloruro de aluminio original, y es retenido en la alúmina, evitando así la necesidad de agregar el halógeno en un peso posterior de preparación del catalizador. Sin embargo, generalmente es difícil controlar el procedimiento de lavado, para retener exactamente la cantidad deseada de halógeno, y, por esta razón generalmente es preferible lavar la alúmina para remover substancialmente todo el cloro, y en seguida agregar el halógeno en una cantidad controlada. La adición del halógeno, de esta manera, permite un mejor control de la cantidad de halógeno agregada. En otro modo de preparación de catalizador, el lavado puede ser selectivo, para retener el cloro en una cantidad que constituye una porción del halógeno total deseado, y la porción restante del halógeno es después agregada en un paso subsecuente. En este método, el halógeno puede comprender el mismo halógeno o una mezcla de dos diferentes halógenos, como, por ejemplo, cloro y flúor.

En un arreglo preferible y particularmente ventajoso, la presente invención utiliza partículas de catalizador, preparados por un método en el cual las partículas porosas del conductor, comprendiendo óxido de aluminio, son obtenidas primero produciendo partículas de hidrogel de aluminio, configuradas, conteniendo halógeno, y en seguida calcinando estas partículas. Las partículas porosas, calcinadas, resultantes, son en seguida sometidas al trata-

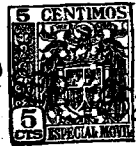
22 SEP, 1952



205502

miento de impregnación. Alúmina, al ser preparada en la manera descrita, en detalles en lo que antecede, después de lavado y filtración, es generalmente recuperada como una torta húmeda. En caso de que sea deseable agregar halógeno, es introducido, preferiblemente, en esta etapa de la preparación del catalizador. El compuesto de halógeno-alúmina, es secado para reducirlo a un contenido de humedad desde aproximadamente 30% lo cual generalmente requiere secar a una temperatura desde aproximadamente 95° hasta aproximadamente 260° C., durante un periodo desde aproximadamente 2 a 24 horas, o más. En un arreglo, el compuesto secado, es formado en partículas de tamaño y forma uniformes, como empilornado, estirando por presión, y otros métodos adecuados, y las partículas configuradas son en seguida calcinadas. En otro arreglo, la alúmina puede ser formada en partículas de tamaño y forma uniformes, después de lo cual el halógeno es agregado, y las partículas configuradas, que contienen halógeno, son calcinadas. En otro arreglo adicional, la adición del halógeno puede ser efectuada después de transformar el hidrógel de alúmina a partículas configuradas, calcinadas.

Sílice puede ser preparado reaccionando un ácido adecuado, tal como, por ejemplo, ácido sulfúrico, o ácido clorhídrico, con un silicato alcalino metálico, y particularmente vidrio soluble, bajo condiciones para precipitar sílice. Alternativamente, la sílice puede ser preparada como partículas de gel, substancialmente esferoides, mediante dejar caer una mezcla adecuada de silicato alcali-



205502

no metálico y ácido a dentro de un baño de un medio de sus-
pensión inmiscible en agua, tal como aceite de hidrocarbu-
ro, siendo la profundidad y la temperatura del medio de sus-
pensión controladas de manera que las gotas se forman en
5 partículas de gel esferoides, durante su paso a través del
medio de suspensión. En un arreglo, una capa de agua puede
ser colocada debajo del medio de suspensión del aceite, y
las partículas esferoidales pueden ser retiradas por medio
de una corriente de agua, circulante desde la zona de forma-
10 ción a dentro de un equipo adecuado de lavado secamiento y/o
calcinación, según se quiera. Cuando el soporte comprende
otros óxidos metálicos, como se ha indicado en lo que ante-
cede, éstos pueden ser preparados en cualquier manera ade-
cuada, incluyendo la formación de partículas esféricas. En
15 otro arreglo, cuando el soporte comprende dos o más compo-
nentes, estos pueden ser preparados por precipitación o ge-
lización separada, sucesiva o conjunta. queda entendido
que la descripción detallada, descrita en conexión con la
preparación y manejo posterior de la alúmina, puede también
20 aplicarse a los otros soportes.

Sin consideración de la preparación del cata-
lizador, en la cual el halógeno es agregado, el halógeno
puede ser incorporado allí de cualquier manera adecuada.
Sin embargo, el halógeno debe ser agregado en una forma que
25 reaccione prontamente con el soporte, a fin de obtener los
resultados deseados, y, además, no debe dejar depósitos in-
deseables en el catalizador. Un método preferible de agre-
gar el halógeno es en forma de un ácido, tal como fluoruro



205502

de hidrógeno, cloruro de hidrógeno, bromuro de hidrógeno y/o yoduro de hidrógeno. El fluoruro de hidrógeno es preferiblemente agregado como una solución acuosa, para facilidad en el manejo y para el control de la cantidad específica que va a ser agregada. Otra fuente satisfactoria, a ser usada, para agregar el halógeno, es constituida por las sales volátiles, tales como, por ejemplo, fluoruro de amonio y cloruro de amonio. Los iones de amonio serán removidos durante el calentamiento subsecuente del catalizador, y por lo tanto, no dejarán depósitos indeseables en el catalizador. En otro método adicional, el halógeno puede ser agregado como flúor, cloro, o bromo, o yodo, pero, en vista del hecho de que los halógenos son normalmente más difíciles de manejar, generalmente es preferible utilizarlos en forma de una solución, para facilidad en el manejo.

La concentración de halógeno, en las partículas de catalizador acabadas, estarán dentro de la escala de desde aproximadamente 0.1% hasta aproximadamente 8%, por peso, del soporte, sobre una base en seco. El flúor parece ser más activo, y, por lo tanto, será usado en la escala desde aproximadamente 0.1% hasta aproximadamente 3%, por peso del soporte, sobre una base en seco. El cloro será usado dentro de la escala desde aproximadamente 0.2% hasta aproximadamente 8%, y preferiblemente desde aproximadamente 0.5% hasta aproximadamente 5%, por peso, del soporte, sobre una base en seco. Cuando una mezcla de cloro combinado y fluoro combinado es deseada en el catalizador acabado, la cantidad total de halógeno será dentro de la escala desde

22 SEP.



205502

aproximadamente 0.1% hasta aproximadamente 8%, y la cantidad de cloro puede ser menos de 0.5%, por peso, del portador, sobre una base en seco. Parece que las concentraciones de halógeno abajo de los límites inferiores, ~~no~~ dan la mejora deseada, y, por otra parte, las concentraciones de halógeno arriba de los límites superiores afectan adversamente la selectividad del catalizador, catalizando así reacciones laterales, en un grado mayor que el conveniente.

En la producción de las partículas de catalizador, para uso en el presente procedimiento, es esencial que el compuesto de platino sea incorporado en las partículas porosas del soporte, con presencia de un compuesto básico de nitrógeno soluble en la solución del compuesto de platino, para obtener una distribución uniforme del platino en toda la masa de catalizador. Para este objeto, es ventajoso, formar el soporte, o el compuesto de soporte-halógeno, en partículas calcinadas, de tamaño y forma uniformes, con anterioridad a la adición del compuesto de platino. En lo general, partículas porosas del portador, que tienen diámetros hasta de aproximadamente 0.75 mm. son suministradas al tratamiento de impregnación requerido de acuerdo con el presente invento. Cuando el aporte va a ser formado en partículas, de tamaño y forma uniformes, mediante empilado, el soporte, con o sin halógeno, es secado a una temperatura de desde aproximadamente 95° hasta aproximadamente 260° C., durante un periodo de desde aproximadamente 2 hasta 24 horas, o más. La torta parcialmente secado es molida, y un lubricante adecuado es agregado, tal como por ejemplo,

22 SEP. 1952



205502

ácido esteárico, resina, aceite de coco hidrogenado, o gra-
fita, después de lo cual el compuesto es formado en píldo-
ras, en cualquier máquina adecuada para empildorar. Partí-
culas particularmente satisfactorias, comprenden píldoras
5 cilíndricas de un tamaño que varía desde aproximadamente
1.5 x 1.5 mm. hasta 6.5 x 6.5 mm., aproximadamente. Píldo-
ras de tamaño y forma uniformes, pueden también ser forma-
das por estiramiento por presión, y otros métodos adecuados.
Las píldoras, con anterioridad a la adición del compuesto
10 de platino, pueden ser calcinadas a una temperatura arriba
de 425° C. En algunos casos, el lubricante será removi-
do durante el calentamiento a temperaturas elevadas. En
otros casos, por ejemplo, cuando la grafita es usada como
lubricante, el paso de calentamiento con temperaturas sepa-
15 radas puede ser omitido, y el tratamiento efectivo por ca-
lor de las partículas de catalizador puede ser logrado en
la planta donde el tratamiento reformador de las fraccio-
nes de gasolina, es llevado a cabo.

De acuerdo con la invención, el soporte es
20 impregnado con una solución de compuesto de platino-nitró-
geno básico, con objeto de obtener una distribución unifor-
me del compuesto de platino en todas las partículas poro-
sas preformadas. Esto no se ha obtenido en ausencia de la
solución de compuesto básico de nitrógeno, como se ha de-
25 mostrado claramente mediante impregnación de píldoras de
alúmina con presencia y ausencia de la solución de hidróxi-
do de amonio. Las píldoras preparadas en estos dos métodos
han sido tratadas con sulfuro de hidrógeno, para fijar el

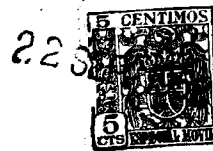


205502

compuesto de platino como el sulfuro el cual es de color oscuro. Al abrirlas, se observó que las píldoras impregnadas con presencia de la solución de hidróxido de amonio eran del mismo color en su totalidad, mientras que las píldoras impregnadas con ausencia del hidróxido de amonio eran de color oscuro en la parte externa, y de color claro en la interna.

Una explicación posible de los beneficios obtenidos con las partículas de catalizador, en el procedimiento de la presente invención, es que las moléculas de platino son desparramadas más lejos entre sí, y no se traducirán en la formación de grandes cristales de platino. Por otra parte, en las píldoras superficialmente revestidas, las moléculas de platino están espaciadas más cercanamente entre sí, y, por lo tanto, pueden formar grandes cristales. Otra ventaja, para la distribución uniforme del platino en el todo de las partículas de catalizador, es que durante el uso de estas partículas, en el proceso de reformación, el platino, en asociación con el hidrógeno, tiende a reducir la formación de carbón, y de este modo, cuando el platino es distribuido uniformemente en todo el catalizador, este efecto es acrecentado. Por otra parte, cuando el platino comprende solamente un revestimiento superficial al centro de la píldora puede catalizar la formación de carbón, por razón de no ser capaz de beneficiarse de la tendencia del platino y el hidrógeno a reducir la formación del carbón.

Otra ventaja importante para la distribución uniforme en todo el catalizador, desde un punto de vista



205502

comercial, es que un volumen menor de catalizador es requerido para una capacidad dada de planta, que en el caso de las píldoras superficialmente revestidas. Este disminuye el coste del equipo de planta, mediante permitir el uso de recipientes más pequeños, y de estructuras de soporte reducidas, así como también gastos menores de embarque del catalizador. Según se aplica a la impregnación de partículas preformadas, es ventajoso incorporar el compuesto de platino en las etapas posteriores de la preparación de catalizador, con objeto de que el platino no se pierda durante el manejo y tratamiento subsiguientes del catalizador. Así pues, muchos, de los pasos necesarios de mezclar, lavar, filtrar, y calentar, se hace antes de que el compuesto de platino sea incorporado. Además, esto permite efectuar el calentamiento deseable, a alta temperatura, de las partículas de soporte, a temperaturas arriba de 595° C., sin someter también el compuesto que contiene platino a estas temperaturas elevadas.

Como se ha indicado en lo que antecede, la impregnación del soporte, con el compuesto de platino, se efectúa con presencia de un compuesto básico de nitrógeno en solución, y en un arreglo preferible una solución de ácido cloroplatínico es mezclada con una solución de compuesto básico de nitrógeno, en proporciones para formar una solución mixta que tenga un pH dentro de la escala de desde aproximadamente 8 a aproximadamente 10. Esta mezcla es después mezclada con las partículas porosas del conductor, en la manera que se ha descrito en lo que antecede.



205502

Alternativamente, la solución de compuesto básico de nitrógeno, o la solución de compuesto de platino, pueden ser agregadas al soporte y la otra solución ser subsecuentemente agregadas a aquella.

5 Sin tomar en cuenta el orden de agregar las soluciones de compuesto básico de nitrógeno y de compuesto de platino, un método particularmente ventajoso de mezclar las soluciones con las partículas de soporte es empapar las partículas porosas del conductor, libres de halógeno, o que
10 contengan halógeno, en una solución acuosa de ácido cloroplatínico y de compuesto básico de nitrógeno, y en seguida calentar la mezcla. En este arreglo de la preparación de catalizador, el conductor poroso puede ser agregado ya sea a una solución caliente, o fría, del ácido cloroplatínico
15 y el compuesto básico. En otro arreglo, las partículas son empapadas en una solución acuosa de ácido cloroplatínico y un compuesto básico de nitrógeno, y el agua y el compuesto básico residual son removidos por decantación, filtración, o cosa similar; en este arreglo, la solución de ácido cloroplatínico es preferiblemente utilizada como una solución
20 caliente.

Después de que la solución de ácido cloroplatínico ha sido incorporada en el soporte, y el agua y el compuesto básico residual han sido removidos de allí, el
25 compuesto es secado a una temperatura desde aproximadamente 95° hasta aproximadamente 260° C., durante un periodo desde aproximadamente 2 hasta 24 horas, o más, y el compuesto es, en seguida, calentado o calcinado en aire a una temperatura



205502

de desde aproximadamente 260° hasta aproximadamente 595° C.
En otro arreglo adicional, de la preparación de catalizador,
el compuesto, después de secarlo, puede ser reducido con
presencia de hidrógeno, a una temperatura desde aproxima-
5 mente 260° hasta aproximadamente 595° B., y en seguida cal-
cinado, con presencia de aire, a una temperatura desde
aproximadamente 260° hasta aproximadamente 595° C.

Aún cuando las partículas de catalizador usa-
das de acuerdo con la presente invención, serán de larga
10 duración, puede ser necesario regenerar el catalizador des-
pués de largos periodos de servicio. La regeneración puede
ser efectuada por tratamiento con aire u otro gas que con-
tenga oxígeno, para quemar de allí los depósitos carbonosos.
En lo general, es preferible controlar la temperatura de
15 regeneración a que no exceda de 595° C., y preferiblemente
la regeneración es efectuada a una temperatura dentro de
la escala de desde aproximadamente 315° hasta aproxima-
mente 430°.

El procedimiento reformador, de la presente
20 invención puede ser ejecutado en cualquier equipo adecuado.
Un método particularmente adecuado comprende el bien conoci-
do sistema de lecho fijo, en el cual las partículas de ca-
talizador son colocadas en una zona de reacción, y la frac-
ción de gasolina que va a ser tratada y el hidrógeno son
25 pasados a través de allí, ya sea en una corriente ascenden-
te o descendente. El efluente de la zona de reacción es
fraccionado, para recuperar el producto reformado que se
desea. Otros métodos adecuados para llevar a cabo el pre-



205502

sente procedimiento reformador incluye: (1) el método de tipo de catalizador fluidizado, en el cual los reactantes y las partículas de catalizador, son mantenidos en un estado de turbulencia con obstrucción del asentamiento de las partículas del catalizador en una zona de reacción; (2) el método del tipo de lecho compacto movable, en el cual un lecho compacto movable de las partículas del catalizador es mantenido en una zona de reacción y los reactantes son pasados a través de la zona de reacción, ya sea concurrentemente con, o en contracorriente respecto al lecho movable que hay allí, y (3) el tipo suspensoides de operación, en el cual las partículas del catalizador son llevadas dentro de, y a través de una zona de reacción, como una suspensión en los restantes.

Al llevar a cabo el tratamiento de reformación de fracciones de gasolina, de acuerdo con esta invención, se ha encontrado que las partículas de catalizador manufacturadas como se ha descrito antes pueden exhibir diferentes propiedades de aromatización y de hidro-desintegración pirolítica, dependiendo de la severidad del calentamiento de las partículas, después que el platino ha sido combinado con las mismas. Así pues, se ha observado, en pruebas comparativas, que las partículas de catalizador, calcinadas a temperaturas en la proximidad de 725° C., producen un efecto más notoriamente pronunciado de hidro-desintegración pirolítica, y un efecto apreciablemente reducido de aromatización, con relación a las partículas de catalizador producidas por, de otra manera, el mismo método, pero con una



205502

5 calcinación final a una temperatura de menos de 595° C. En consecuencia, para producir elevados rendimientos de fracciones reformadas de gasolina, con un mejorado valor para regular la explosión, o de alta aromaticidad, es preferible usar partículas de catalizador que han sido calcinadas, subsecuentemente al tratamiento de impregnación, a una temperatura no más elevada que 595° C.

10 Los siguientes ejemplos son presentados para ilustrar adicionalmente la novedad y utilidad de la presente invención, pero no se dan con la intención de limitarla indebidamente.

E J E M P L O I.

15 Un catalizador fué preparado, de acuerdo con la presente invención, mediante agregar hidróxido de amonio a un hexahidrato de cloruro de aluminio para formar hidrato de alúmina. El hidrato de alúmina resultante fué lavado muy concienzudamente con objeto de reducir el contenido de cloruro a abajo de 0.1% por peso, sobre una base en seco. Este lavado implicó seis lavados separados, con grandes cantidades de agua, conteniendo una pequeña cantidad de amonio, y un lavado final con agua, con filtración interpuesta entre los lavados. Una solución acuosa de 20 fluoruro de hidrógeno fué agregada a la alúmina, sobre una base en seco. El compuesto de flúor-alúmina fué secado a 25 una temperatura de aproximadamente 170° C., durante 8-10 horas, con objeto de reducir el contenido de humedad a



205502

aproximadamente 30%. La alúmina parcialmente secada fué molida, ácido esteárico fué agregado como lubricante, y después empildorado, en una máquina empildoradora Stokes, para formar píldoras cilíndricas con tamaño de 1.6 x 1.6 mm. Las píldoras fueron calcinadas en aire, a una temperatura de aproximadamente 500° C., durante 6 horas, para remover el lubricante, y después nuevamente calcinadas a una temperatura de aproximadamente 650° C. durante 3 horas. Una solución concentrada de hidróxido de amonio (30%) fué agregada a una solución diluida de ácido cloroplatínico (0.1 grs. de ácido cloroplatínico en 10 c.c. de agua) en proporciones para formar una mezcla que tenía un pH de aproximadamente 9. Esta solución no produjo precipitado sino que permaneció como una solución clara, amarilla. Las píldoras de alúmina fueron empapadas en la solución de ácido cloroplatínico-hidróxido de amonio, siendo las cantidades controladas para formar un catalizador final que contenía 0.3%, por peso, de platino. La mezcla fué después calentada en un baño de vapor, después de lo cual el catalizador fué secado a 110° C. durante 3 horas, y en seguida calcinado en aire a 500° C. durante 3 horas.

Las partículas de catalizador, producidas de esta manera fueron usadas para la reformation de una nafta Mid-Continent destilada a presión atmosférica, que tenía una mezcla de ebullición de desde 82 hasta 205° C., a una temperatura de aproximadamente 455° C., una presión de 34 atmósferas, una velocidad de peso en el espacio por hora de aproximadamente 2, y una relación molar, de hidrógeno a



P. 1952

2055(2)

hidrocarburo, de 3:1. Los resultados obtenidos en tres intervalos de 24 horas cada uno, durante esta prueba, están dindicados en la siguiente Tabla.

5

T A B L A I.

	<u>Días</u>	<u>Cargas</u>	<u>Catalizador 1.</u>
10			
15			
20			

Se observará por los datos que anteceden que este catalizador produjo un reformado que tenía un elevado número de octanos y un alto contenido aromático.

E J E M P L O II.

Como se ha indicado en lo que antecede, la solución impregnante, del compuesto de platino, comprende

22 SEP.

205502



un compuesto básico de nitrógeno, que se disuelve en la solución de compuesto de platino. El presente ejemplo muestra que el carbonato de sodio es indeseable, y no es un equivalente del compuesto básico de nitrógeno. Dos catalizadores, comprendiendo alúmina, 0.3% de flúor, y 0.3% de platino, fueron preparados substancialmente de la misma manera, exceptuando que una solución de ácido cloroplatínico-hidróxido de amonio fué usada como el medio impregnante (Catalizador A), y una solución de ácido cloroplatínico-carbonato de sodio fué usada como el medio impregnante en el otro caso (Catalizador B).

Al ser usados para la reformación de muestras, de una y la misma nafta, en condiciones de reformación de otra manera - iguales, estos catalizadores dieron los resultados mostrados en la siguiente Tabla:

T A B L A 2.

	<u>Catalizador A</u> (Hidróxido de amonio)	<u>Catalizador B</u> Carbonato de sodio)
% de rendimiento de volumen líquido de la carga.	89.8	94.3
Número de octanos P2	79.3	55.5

Se observará que el catalizador preparado empleando carbonato de sodio (Catalizador B) rindió un producto de solamente 55.5 número de octanos, mientras que el

22 SEP. 19



205502

catalizador preparado usando hidróxido de amonio (Catalizador A) rindió un producto que tenía un número de octanos de 79.3.

5

E J E M P L O III.

10

Este ejemplo prepara los resultados obtenidos en operaciones de reformación utilizando diferentes catalizadores preparados de la misma manera, usando partículas de flúor-alúmina configuradas, calcinadas, similares a las usadas en el ejemplo I, pero en un caso usando una solución de ácido cloroplatínico-hidróxido de amonio (Catalizador C) como el medio impregnante, y en el otro caso usando ácido cloroplatínico, sin hidróxido de amonio (Catalizador D).

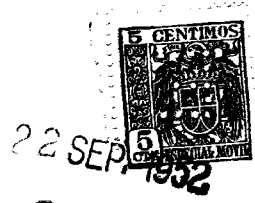
15

20

Diferentes muestras de la misma gasolina fueron usadas como material de carga para estas operaciones de reformación. La reformación en ambos casos fué efectuada a una temperatura de aproximadamente 456° C., una presión de 34 atmosferas, y una velocidad en el espacio de 2, con presencia de hidrógeno, en una relación molar respecto a hidrocarburo de aproximadamente 3.2:1.

25

Con una concentración de platino de 0.3% por peso, en cada caso, el catalizador C preparado mediante el uso de hidróxido de amonio dió un reformado que tenía un número de octanos Fl claro de 86.2. El catalizador D, preparado sin el hidróxido de amonio dió un número de octanos Fl claro de 80.4. Así pues, se verá que el uso de hidróxido



2055 2

de amonio se tradujo en un reformado de 5.8 números de octano más elevado que el catalizador preparado sin el hidróxido de amonio.

5

EJEMPLO IV.

En otra serie de hornadas de reformación, en una manera similar a la descrita en el Ejemplo III, pero con catalizadores que contenía 0.1%, por peso, de platino, en cada caso, el catalizador preparado mediante el uso de hidróxido de amonio dió un reformado de 5.9 números de octano más elevado que el catalizador preparado sin el hidróxido de amonio.

15

EJEMPLO V.

Para comparar los catalizadores preparados con la ayuda de diferentes compuestos básicos de nitrógeno un catalizador fué preparado prácticamente en la misma manera que se ilustra en el Ejemplo I, exceptuando que, en vez de la solución de ácido cloroplatínico-hidróxido de amonio, se usó una solución de ácido cloroplatínico y triamina de dietileno, y la triamina de dietileno fué usada en una concentración suficiente para elevar el pH de la solución impregnante a 9.7. Las píldoras de alúmina-flúor precalcinadas, fueron empapadas en esta solución; después de lo cual, las partículas impregnadas fueron secadas a una temperatura de aproximadamente 110° C., y en seguida calci-



205502

nadas en aire a 500° C., durante tres horas.

5 El catalizador así preparado con triamina de dietileno y una porción del catalizador preparado, como se indicó en el Ejemplo I (conteniendo cada catalizador flúor combinado en una cantidad de 0.3% por peso, de la alúmina, sobre una base en seco, y platino en la cantidad de 0.3%, por peso, del catalizador final) fueron separadamente utilizados, cada uno, para la reformación de una fracción de gasolina que tenía un punto inicial de ebullición de 206° C., y un número de octanos Fl claro de 34.8. Las hornadas de reformación fueron hechas a una temperatura de aproximadamente 455° C., una presión de 34 atmósferas, y una velocidad del líquido en el espacio por hora de 2, con presencia de hidrógeno, en una relación molar respecto a hidrocarburo de aproximadamente 3:1.

10

15

Los resultados de estas hornadas se muestran en la siguiente Tabla.

T A B L A 3.

	<u>No. de Octanos Fl claro.</u>	<u>% de peso aromáticos.</u>
Preparado mediante uso de hidróxido de amonio	87	48.6
25 Preparado mediante uso de triamina de dietileno	86.7	48.0

Se observará que los resultados obtenidos con los dos catalizadores son casi iguales y, por tanto



205502

que el uso de triamina de etileno es substancialmente equivalente al uso de hidróxido de amonio, en las soluciones impregnantes utilizadas para la preparación de los dos catalizadores.

- N O T A -

5 Los puntos de invención propia y nueva que se presentan para que sean objeto de la presente solicitud de Patente de Invención en España, por VEINTE años, son los siguientes:

10 1a.- Un procedimiento de reformar una fracción de gasolina, con presencia de hidrógeno y un catalizador que contenga un conductor sólido, preferiblemente alúmina, y platino en una cantidad de desde aproximadamente 0.01 hasta aproximadamente 2%, por peso del catalizador, y el cual, si se desea, contiene también halógeno combinado
15 en una cantidad desde 0.1 a 8%, por peso del conductor; caracterizado en que la fracción de gasolina es reformada con presencia de partículas de catalizador, las cuales han sido producidas mediante impregnar partículas porosas del
20 conductor con una solución de un compuesto de platino, con presencia de un compuesto básico de nitrógeno, disuelto en

22 SEP. 1952



205502

dicha solución, y calentando las partículas así impregnadas, a una temperatura arriba de aproximadamente 260° C.

5 2ª.- Un procedimiento, de acuerdo con la cláusula 1ª, caracterizado en la reformación es efectuada con presencia de partículas de catalizador producidas mediante impregnar las partículas porosas del conductor en una solución del compuesto de platino e hidróxido de amonio.

10 3ª.- Un procedimiento, de acuerdo con la cláusula 2ª, caracterizado por usar partículas de catalizador, que han sido producidas mediante impregnar las partículas porosas del conductor en una solución acuosa que contenga ácido cloroplatínico e hidróxido de amonio, y teniendo un pH de desde aproximadamente 8 hasta aproximadamente 10.

15 4ª.- Un procedimiento, de acuerdo con la cláusula 1ª, caracterizado en que la reformación es efectuada con presencia de partículas de catalizador, producidas mediante impregnar las partículas porosas del conductor en una solución del compuesto de platino y un compuesto básico que contenga nitrógeno, carbón e hidrógeno, preferiblemente una poliamina de alquileno.

20 5ª.- Un procedimiento, de acuerdo con cualquiera de las cláusulas 1ª a 4ª, caracterizado por usar partículas de catalizador, las cuales han sido producidas mediante impregnar las partículas configuradas del conductor, que han sido calcinadas a una temperatura entre aproximadamente 480° y 700° C., con anterioridad a su contacto, con la solución del compuesto de platino y el compuesto bá-



205502

sico de nitrógeno.

5 6º.- Un procedimiento, de acuerdo con la cláusula 5ª, caracterizado por usar partículas de catalizador, las cuales han sido producidas mediante impregnar partículas configuradas, calcinadas, del conductor, que contienen flúor combinado en una cantidad de desde 0.1 hasta 3%, por peso, de las partículas del conductor, sobre una base en seco.

10 7º.- Un procedimiento, de acuerdo con la cláusula 5ª ó 6ª, caracterizado por usar partículas de catalizador, producidas mediante impregnar partículas porosas del conductor, obtenidas calcinando partículas configuradas de hidrogel de alúmina.

15 8º.- Un procedimiento, de acuerdo con cualquiera de las cláusulas 1ª a 7ª, caracterizado en que la reformación es efectuada con presencia de partículas de catalizador, las cuales han sido producidas secando las partículas impregnadas, del conductor, a una temperatura desde aproximadamente 95° hasta aproximadamente 260° C., y después calentándolas, en contacto con aire, a una temperatura entre 260° y 595° C.

20 9º.- Un procedimiento, de acuerdo con cualquiera de las cláusulas 1ª a 8ª, caracterizado en que la fracción de gasolina es reformada a una temperatura dentro de la escala de desde 315° hasta 595° C., a una presión dentro de la escala de desde 3.5 hasta 70 atmosferas, a una velocidad en el espacio de desde 0.1 a 20 partes, por peso, de la fracción de gasolina, por hora, por una parte, por



205502²² SEP. 1952

5 peso de las partículas de catalizador; con presencia de hidrógeno en una cantidad de desde 0.1 hasta 10 moléculas por una molécula de hidrocarburo, y con presencia de partículas de catalizador, las cuales han sido calentadas, en contacto con aire, a una temperatura de no más de aproximadamente 540° C., con anterioridad a su contacto con la fracción de gasolina.

10 102.- Un procedimiento para reformar catalíticamente fracciones de la gasolina.

Tal y como se ha descrito en la Memoria que antecede y para los fines que se han especificado.

La presente Memoria consta de treinta y nueve hojas escritas a máquina por una sola de sus caras.

Madrid, 22 SEP. 1952

Alberto de Elzaburu
Por Poder.

Alberto de Elzaburu