

P. - 23.011
Case 971

278427



- 1 OCT. 1962

278427

MEMORIA DESCRIPTIVA

que se presenta para unir a la solicitud
de

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

formulada el 18 de Junio de 1962, con el nr 278.427

en

E S P A Ñ A

por VEINTE años

a nombre de UNIVERSAL OIL PRODUCTS COMPANY, entidad norteamericana, establecida en 30 Algonquin Road, Des Plaines, Illinois, Estados Unidos de América.

por:

" PROCEDIMIENTO PARA LA DESALCOHILACIÓN
DE HIDROCARBURÓS "

La presente invención se refiere a un procedimiento para la desalcoholación de compuestos alquilaromáticos.- Más en particular la invención concierne a un procedimiento para desalcoholar hidrocarburos alquilaromáticos en presencia de un exceso de hidrógeno y de un compuesto de azufre.

En años recientes ha venido acrecentando de manera apreciable la necesidad de obtener benceno y naftaleno de gran pureza.- Por ejemplo, el benceno de calidad industrial de gran pureza es un importante mate-

278427

F10



rial inicial para la producción de sulfonatos alquilaro-
máticos, útiles como detergentes y agentes activos de su
perficie.- También puede emplearse el benceno en la fa-
bricación de fenol, estireno, y como agente intermedio -
5 en la preparación de fibras sintéticas.- Igualmente se
encuentra una gran demanda de naftaleno de buena calidad,
en la fabricación de anhídrido ftálico.

Conocida es la producción de benceno, --
naftaleno e hidrocarburos aromáticos superiores, polinu-
10 cleares y sin sustituciones, por desalcoholación de los
correspondientes compuestos alcohilados.- Usualmente, -
el hidrocarburo alquilaromático, o la fracción hidrocar-
burada que contenga el alquilaromático, se hace pasar --
por una zona de reacción a temperatura y presión eleva-
15 das y en presencia de hidrógeno y, si así conviene, de -
un catalizador de desalcoholación, y el hidrocarburo aro-
mático desalcoholado se recupera del efluente de la zona
de reacción.- En general, resultan adecuadas para la --
reacción las temperaturas comprendidas entre unos 540°C
20 y alrededor de 320°C y las presiones comprendidas aproxi-
madamente entre 20 y 60 atmósferas.- La reacción se de-
nomina asimismo de "hidrodesalcoholación", porque el hi-
drógeno presente reemplaza al grupo alquílico separado -
del anillo aromático, y al propio tiempo satura al radi-
25 cal alquílico así separado.

La materia prima de carga o alimentación
empleada originalmente contiene compuestos orgánicos ni-
trogenados y/o sulfurosos en proporción suficiente para
perjudicar al catalizador, si se utiliza alguno (debido
30 a lo cual el rendimiento de dicho catalizador es perjudi-

278427



cado en grado tal que se hace necesaria la regeneración o la sustitución del catalizador), o en todo caso para contaminar el producto.

Por consiguiente, estas impurezas de nitrógeno y azufre pueden ser eliminadas o separadas antes de la etapa de hidrodeshidratación del presente procedimiento, por unos medios cualesquiera ya conocidos en el ramo.- Cuando se aplican estos tratamientos previos, los materiales iniciales, al ser pasados a la zona de hidrodeshidratación, se hallan en forma relativamente pura, esto es, esencialmente exenta de compuestos de azufre o de nitrógeno.- Ahora bien, se ha descubierto ahora que si el nivel de azufre del sistema se reduce a tal punto, se producen ciertas consecuencias no deseables.- La primera de éstas es que tiene lugar una desmetilación del anillo aromático.- Si esto sucede, la reacción será fuertemente exotérmica, y el metano así formado se descompondrá a su vez dando carbono libre.- Si se deja que ocurra tal descomposición del metano dando carbono libre, ello traerá como consecuencia una formación de carbono en masa, y el carbono libre se depositará en las paredes del recipiente de reacción y en otras piezas del aparato, así como en los espacios que circundan las partículas de catalizador u otro material de contacto, haciendo necesarias por esta causa frecuentes paradas para descoquefacción del sistema.

Es, por consiguiente, objeto de esta invención un procedimiento para la hidrodeshidratación de compuestos aromáticos con sustituciones de alquilo, en presencia de hidrógeno y de una proporción controlada de

278427



un compuesto de azufre, con lo cual la reacción proseguirá con un rendimiento relativamente mayor y menos formación de carbono.

5 Por consiguiente, la invención tiende a un procedimiento para desalcoholar un hidrocarburo alquilaromático, procedimiento en el cual una fracción hidrocarburada que contiene dicho hidrocarburo alquilaromático es sometida, en presencia de hidrógeno, a desalcoholación a una temperatura comprendida entre los límites aproximados de 540°C a 820°C, y a una presión comprendida entre los límites aproximados de 20 y 68 atmósferas, y el producto desalcoholado es separado de la mezcla de reacción resultante; y la invención se caracteriza por el hecho de que la fracción que contiene el hidrocarburo alquilaromático es sometida a la reacción de desalcoholación en presencia de un compuesto de azufre en proporción equivalente a entre 20 y 200 partes en peso de azufre por un millón de partes en peso del hidrocarburo alquilaromático.

20 La carga o materia prima a desalcoholar es tratada en presencia de hidrógeno y de una proporción controlada de compuesto de azufre de manera bien térmica o bien catalítica para obtener el producto aromático deseado.- Las materias primas de alimentación que se utilizan en el procedimiento de esta invención pueden obtenerse de distintas procedencias.- Por ejemplo, el naftaleno puede ser preparado a base de ciertos materiales como los copolímeros de etileno, extractos de aceite cíclico ligero y subproductos de hornos de coque, en tanto que el benceno puede prepararse a partir del tolueno, los xileno isoméricos y el etilbenceno, etc., que pueda haber

278427



presentes en "crudos" de alquitrán de hulla.- Una vez
refinado el alquitrán y separados entre sí los hidrocar-
buros presentes, por destilación fraccionada, los xilenos
y el tolueno restantes mencionados que se recuperan pue-
den ser entonces desalcoholados con arreglo al procedi-
miento de esta invención.- Otro manantial de proceden-
cia de cargas de alimentación comprende los productos re-
sultantes de la reformación de una mezcla de hidrocarbu-
ros, teniendo dichos productos un margen de ebullición -
superior al de los hidrocarburos de gasolina normales.-
Se prevé asimismo como comprendido dentro del ámbito de
esta invención el posible uso, como materia prima de ali-
mentación, de compuestos aromáticos con o sin sustitucio-
nes alquílicas, resultantes de la separación de una car-
ga de alimentación que contiene una mezcla de hidrocarbu-
ros aromáticos y parafínicos sometidos a extracción me-
diante el uso de un disolvente líquido.

Son muy adecuados como carga de alimenta-
ción los concentrados de uno o más de los siguientes com-
puestos: tolueno, m-xileno, o-xileno, p-xileno, etilben-
ceno, o-dietilbenceno, m-dietilbenceno, p-dietilbenceno,
metilnaftaleno, 1,2-dimetilnaftaleno, y 1,4-dimetilnafta-
leno.

La concentración prescrita, de compuesto
de azufre en la mezcla en reacción, puede asegurarse mer-
ced a la introducción de azufre en proporción controlada
con respecto a todo azufre presente en la carga hidrocar-
burada.- El azufre puede ser agregado en forma de com-
puesto sulfúreo adecuado, de preferencia uno que se diso-
cie fácilmente en las condiciones en que tiene lugar la

278427



reacción.- Así, el azufre puede ser agregado en forma de un mercaptano, tal como metil-mercaptano, etil-mercaptano, propil-mercaptano, n-butil-mercaptano, t-butil-mercaptano y similares, o en forma de un tioéter, tal como el sulfuro de dimetilo, sulfuro de dietilo o sulfuro de dipropilo.

La fracción hidrocarburada que constituye la materia prima de carga en el procedimiento de hidrodesalcohilación es suministrada convenientemente primero a un calentador adecuado, en unión de una corriente que contiene hidrógeno.- La temperatura de reacción, de preferencia, estará comprendida entre los límites aproximados de 650° a 750°C.- La presión se mantendrá aproximadamente entre 20 y 63 atmósferas, y de preferencia entre los límites aproximados de 34 a 41 atmósferas.- El efluente retirado de la parte inferior del recipiente de reacción pasa primero a un separador de alta presión que está mantenido a la presión de reacción.- De la cabeza o parte superior del separador se retira una fase gaseosa rica en hidrógeno, en la cual el hidrógeno tiene una pureza superior a un 50% aproximadamente; esta fase es comprimida y devuelta a la zona de reacción con nueva carga alquilaromática, añadiéndose el hidrógeno de reposición que haga falta.- La fase líquida de hidrocarburo retirada del separador de alta presión se lleva usualmente a un separador de baja presión, mantenido, por ejemplo, a la presión atmosférica, en el cual se separan por evaporación instantánea los hidrocarburos ligeros, tales como el etano- metano y similares, que de preferencia son recogidos y utilizados como combustible.

La fase hidrocarburada líquida es retirada

278427



da del separador de baja presión, y una parte de ella se
combina con el efluente de la zona de reacción que entra
en el separador de alta presión, para absorber parte de
los hidrocarburos ligeros del efluente de la zona de reac
5 ción y permitir así la recuperación del hidrógeno en un
estado de pureza relativamente mayor.- Una segunda por
ción del hidrocarburo líquido procedente del separador -
de baja presión se lleva a la parte inferior de la zona
de reacción de desalcoholación, donde se mezcla con el -
10 efluente de la zona de reacción justamente antes de la
retirada de este último, actuando así de entriador rápi
do de dicho efluente, rebajando la temperatura del mismo
y con ello reduciendo todo problema metalúrgico en el --
sistema de salida.- Por ser fuertemente exotérmica la -
15 desmetilación de los hidrocarburos alquilaromáticos tales
como el tolueno, los xilenos o el metilnaftaleno, la tem
peratura debe controlarse necesariamente dentro de unos
límites convenientes, a fin de extraer la gran cantidad
de calor de reacción que tiende a acumularse y a destruir
20 el producto deseado, por hidrocraeking del benceno o del
naftaleno.

La parte restante del hidrocarburo líqui
do retirada del separador de baja presión se hace pasar
usualmente por un dispositivo de tratamiento a base de -
25 arcilla, para eliminar toda impureza presente, de modo que
el producto final satisfaga los convenientes requisitos
especificados en cuanto a color de lavado ácido e índice
de bromo.- El producto tratado es luego destilado frac
cionadamente, para separar del producto de benceno o naf
30 taleno deseado todos los hidrocarburos ligeros y los hi

278427



drocarburos alquilaromáticos que no hayan reaccionado.-
Los hidrocarburos alquilaromáticos sin reaccionar son,
naturalmente, devueltos a la zona de reacción con la nueva carga de alimentación.

5 Pueden emplearse diversas variantes o modificaciones de la precedente disposición general de circulación para el proceso.- Por ejemplo, se pueden emplear tres separadores o tambores de evaporación instantánea independientes (en lugar de dos) para la separación de la fase gaseosa rica en hidrógeno, de los hidrocarburos ligeros y de las fracciones hidrocarbурadas líquidas.- En el caso de que se utilice esta modificación, el separador intermedio está de preferencia a una presión comprendida entre alrededor de 3,5 y aproximadamente 10 atmósferas.

15 El compuesto de azufre que se suministra a la zona de reacción es añadido de preferencia a la corriente de nueva carga de hidrocarburo que pasa al calentador de la carga, y, bien antes o después, esta corriente es combinada con el material alquilaromático sin reaccionar devuelto desde el fraccionador de producto y con la corriente de hidrógeno.- Como alternativa, el compuesto de azufre puede ser introducido directamente en la zona de reacción.- Para el suministro del azufre necesario se prefiere, como compuesto de azufre, el terc-butylmercaptano.

25 El compuesto de azufre que se ha añadido en proporciones tales que el contenido total de azufre del compuesto está presente entre los límites aproximados de 30 a 200 ppm (partes por millón) de azufre equivalente,-

278427



basadas en el peso de la nueva carga, impedirán, como ya se ha expuesto, la excesiva desmetilación del anillo aromático y la formación de carbono a partir del metano, y se disociará con la consiguiente formación de sulfuro de hidrógeno y los hidrocarburos correspondientes.- Este sulfuro de hidrógeno es disuelto en el efluente de la zona de reacción, para su retirada de la zona de reacción de desalcoholación, y pasado al separador de alta presión, o tambor de evaporación instantánea.- Una parte de él pasará como cabeza en la fracción gaseosa rica en hidrógeno, y será devuelta a la zona de desalcoholación, con lo cual es menor la proporción de compuesto de azufre -- que hay que añadir directamente al recipiente de reacción para mantener entre los límites arriba citados el contenido total de azufre o equivalentes.- Todo sulfuro de hidrógeno restante, disuelto en la fracción de hidrocarburo líquido que pasa al separador de baja presión, se evaporará instantáneamente saliendo como cabeza con el etano, metano y otros hidrocarburos ligeros que pasan al absorbedor de gases, y será eliminado en unión de dichos hidrocarburos ligeros.

Como se ha expuesto en lo que antecede, la hidrodesalcoholación de los hidrocarburos alquilaromáticos puede efectuarse, según un procedimiento de tipo ya sea térmico o catalítico, en presencia de hidrógeno y de una proporción controlada de compuesto de azufre.- En el caso de que convenga emplear un catalizador, la zona de reacción de desalcoholación puede contener un catalizador tal como un metal noble del grupo VIII de la Tabla periódica, tal como platino, paladio, rodio, rubidio, osmio o iridio preparado sobre un óxido refractario apropiado; cesio, vanadio, cromo o tungsteno, o combinaciones de

278427



estos últimos entre sí o con un metal noble del grupo --
VIII de la Tabla periódica, o preparados sobre un óxido_
refractario como la alúmina, sílice, óxido de circonio,-
sílice-alúmina, alúmina, óxido de boro o sílice óxido de
5 circonio-alúmina.- Un preparado catalítico particularmen
te eficaz, que activamente desalcohila los hidrocarburos
alquilaromáticos, y que puede utilizarse en la práctica_
de este invento comprende un preparado de óxido de cromo
alúmina en el cual hay una alúmina que contiene un área_
10 de superficie relativamente grande, tal como gamma-alúmi
na, eta-alúmina o theta-alúmina, es impregnada de ácido cró
mico, secada y oxidada a una temperatura relativamente al
ta, de unos 700°C.- El catalizador terminado contendrá_
de alrededor de 10% a aproximadamente 20% de óxido de --
15 cromo, en peso de la alúmina.

Los ejemplos que siguen ilustrarán de mo
do más completo el procedimiento de la presente invención.

E J E M P L O I

20 Una materia prima de carga de tolueno, -
de un índice de peróxido de 0,8 y conteniendo alrededor_
de 2,1 ppm de azufre, se introdujo en un recipiente de_
reacción de acero inoxidable que contenía un catalizador
de hidrodesalcoholación, a base de óxido de cromo deposi
25 tado sobre alúmina.- También se introdujo en el recipien
te de reacción un compuesto de azufre que contenía t-bu-
til-mercaptano (TBM), a razón de 50 partes en peso por -
millón de azufre, basadas en la nueva carga de alimenta-
ción.- La desalcoholación del tolueno se efectuó a una_
30 presión de 34 atmósferas; una velocidad espacial horaria

278427



de líquido de 1,0; una relación de hidrógeno a carga de hidrocarburo igual a 10; una temperatura de bloque comprendida entre 593°C y 704°C; y una velocidad de carga de tolueno de 1 mol por hora.

5 Las condiciones de trabajo, caudales, composiciones y equilibrios de pesos de la desalcoholación mencionada se exponen en la Tabla I que sigue:

T A B L A I

10	Período en	1	2
	Horas en corriente	10	10
<u>CONDICIONES Y CAUDALES:</u>			
	Tolueno, carga, gramos	921	915
	g/hora	92,1	91,5
15	cm ³ /hora a 15,6°C	105,6	104,9
	VEL (veloc. espacial horaria de líq.)	1,06	1,05
	Carga de H ₂ , m ³ /hora	0,22	0,22
	Relación H ₂ /carga hidrocarburo	10,00	10,07
	Presión, atmósferas	34	34
20	Temperatura de bloque, °C (promedio)	677	677
<u>DATOS DE TEMPERATURA DEL CATALIZADOR, °C:</u>			
	Entrada	677	677
	Máxima	688	688
25	cm. en lecho	9,8-30	18-28
	Salida	685	685
<u>CORRIENTES DE PRODUCTO:</u>			
	Líquido, gramos	756	757
	g/hora	75,6	75,7

30

278427



Gas, m ³ /hora	0,233	0,233
moles total	104,131	103,969
moles/hora	10,41	10,40

COMPOSICION DEL PRODUCTO, % AREA, % PESO, GLC:

5	Líquido, P + N	0,3	Nulo
	Benceno	83,7	83,5
	Tolueno	15,2	15,8
	Bifenilo	0,7	0,6
	Nafteno	0,1	0,1

10

EQUILIBRIOS Y RENDIMIENTOS EN PESO:

	Carga, gramos	921	915
	Producto líquido, gramos	756	757
	HC gaseosos, gramos	167,1	160,4
	Producto total, gramos	932,1	917,4
15	Recuperación de líquido, % en peso	82,1	82,7
	Recuperación total, % en peso	100,2	100,3
	Rendimiento aparente de benceno, % peso. de la carga	68,7	69,0
20	Entrada azufre como TEM, mg/h	4,6 (50 ppm como TBH)	
	Salida azufre como H ₂ S, mg/h	----- 2,05 -----	
	Salida azufre como RSH, mg/h	----- 0,16 -----	

DISTRIBUCION DEL PRODUCTO, % PESO (RECUPERACION 100%):

25	Metano	16,1	15,8
	Eetano	2,0	1,7
	Benceno	68,6	68,9
	Tolueno	12,4	13,0
	Parafinas C ₇ o naftenos C ₈	0,2	--
	Bifenilo	0,6	0,5
30	Naftalenos	0,1	0,1
	Total	100,0	100,0

978127



	% en peso de recuperación	100,2	100,3
	Benceno/benceno + tolueno, % en peso	84,7	84,1

MOLES/100 MOLES DE CARGA:

5	Metano	92,68	91,04
	Etano	6,25	5,23
	Benceno	81,01	81,46
	Tolueno	12,48	13,07
	Parafinas C ₇ o naftenos C ₈	0,23	--
10	Bifenilo	0,34	0,29
	Naftalenos	0,06	0,06
	Total	193,05	191,15
	Benceno/metano, relación molar	0,87	0,89
	Benceno/benceno + tolueno, relación molar	0,87	0,86
15	Rendimiento final de benceno, % en peso	78,3	79,2

E J E M P L O II

20 Otra porción de materia prima de carga - de tolueno, similar a la indicada en el Ejemplo I que antecede, se sometió a hidro-desalcoholación en presencia de un catalizador semejante; ahora bien, en este ejemplo se prescindió de la adición de un compuesto de azufre, -
25 de reacción.- Los resultados de este ensayo se exponen en la Tabla II que sigue:

T A B L A II

	Período nº	1	2
30	Horas en corriente	10	10

278427



CONDICIONES Y CAUDALES:

5	Carga de tolueno, gramos	897	924
	g/hora	89,7	92,4
	cm ³ /hora a		
	15,6 ^o C	102,9	106,0
	VEHL	1,03	1,06
	Carga de H ₂ , m ³ /hora	0,22	0,22
	Presión, atmósferas	34	34
	Temperatura de bloque, ^o C		
	(promedio)	674	674

10

DATOS DE TEMPERATURA DEL CATALIZADOR, ^oC:

Entrada	674	674
Máxima	688	690
cm. en lecho	9,8	9,8
Sálida	685	685

15

CORRIENTES DE PRODUCTO:

Líquido, gramos	703	708
g/hora	70,3	70,8
Gas, m ³ /hora	0,23	0,23
moles total	102,019	102,698
moles/hora	10,20	10,27

20

COMPOSICION DEL PRODUCTO, % área,
% pesc, GLC:

Líquido, P + N	0,2	0,2
Benceno	93,3	93,9
Tolueno	5,3	4,6
Bifenilo	1,0	1,1
Nafteno	,2	0,2

25

EQUILIBRIOS Y RENDIMIENTOS EN PESO:

30

Carga, gramos	897	924
---------------	-----	-----

278427



	Producto líquido, gramos	703	708
	HC gaseosos, gramos	--	219,5
	Producto total, gramos	--	927,5
	Recuperación de líquido, % peso	78,4	76,6
5	Recuperación total, % en peso	--	100,4
	Rendimiento aparente de benceno, % peso de la carga	73,1	71,9
	Entrada azufre como TSM, mg/h	-----	nada -----
	Salida azufre como H ₂ S, mg/h	-----	0,75 -----
	Salida azufre como RSH, mg/h	-----	0,25 -----

10

DISTRIBUCION DEL PRODUCTO, % PESO (RECUPERACION 100%):

	Metano	19,7	19,4
	Etano	4,0	4,0
	Benceno	71,6	72,0
15	Tolueno	3,5	3,4
	Parafinas C ₇ o naftenos C ₈	0,2	0,2
	Bifenilo	0,8	0,8
	Naftaleno	0,2	0,2
	Total	100,0	100,0
20	% en peso de recuperación	100,4	102,6
	Benceno/tolueno + benceno, % en peso	95,3	95,5

MOLES/100 moles de carga:

	Metano	113,61	114,73
25	Etano	12,29	12,64
	Benceno	84,84	87,22
	Tolueno	3,53	3,45
	Parafinas C ₇ o naftenos C ₈	0,14	0,14
	Bifenilo	0,51	0,52
30	Naftalenos	0,11	0,11

278427



	Total	215,03	218,81
D	Benceno metano, relación molar	0,75	0,76
	Benceno benceno + tolueno, relación molar	0,96	0,96
5	Rendimiento final de benceno, % en peso	74,2	74,5

Como se observa comparando las tablas anteriores, la adición de un compuesto de azufre dentro de los límites especificados en lo que antecede dará lugar a un mayor rendimiento final de benceno.

10 Esta solicitud, que corresponde a la presentada en E.U.A. el 19 de Junio de 1961, bajo el nº 118.192, se acoge a los beneficios del artículo 51 del vigente Estatuto sobre Propiedad Industrial.

15

--- N O T A ---

20

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

25

1.- Un procedimiento para la desalcoholación de un hidrocarburo alcohol-aromático, en el cual una fracción de hidrocarburos que contiene dicho hidrocarburo alcohol-aromático, se somete, en presencia de hidrógeno, a desalcoholación a una temperatura dentro de la gama de unos 500º C a unos 820º C, y a una presión --

30

278427



dentro de los límites de unas 20 a unas 68 atmósferas, y el producto de hidrocarburo desalcoholado es separado de la mezcla de reacción resultante, caracterizado porque la fracción que contiene hidrocarburo alcohol aromático se somete a la reacción de desalcoholación en presencia de un compuesto de azufre en una cantidad equivalente a desde 20 a 200 partes en peso de azufre por 1.000.000 de partes en peso del hidrocarburo alcohol aromático.

2.- Un procedimiento según el punto 1, caracterizado además por someter el hidrocarburo alcohol aromático a la reacción de desalcoholación en presencia de un compuesto de azufre que se discia rápidamente en las condiciones de la reacción de desalcoholación.

3.- Un procedimiento según los puntos 1 ó 2, caracterizado además por suministrar a sulfuro a la reacción en forma de mercaptano.

4.- Un procedimiento según el punto 3, caracterizado además por suministrar terc.-butil-mercaptano a la reacción.

5.- Un procedimiento según cualquiera de los puntos 1 a 4, caracterizado además por someter el hidrocarburo alcohol aromático a la reacción de desalcoholación a una temperatura en la gama de 650 a 760°C y a una presión dentro de los límites de 34 a 41 atmósferas.

6.- Un procedimiento según cualquiera de los puntos 1 a 5, caracterizado además porque una fracción de carga hidrocarbonada, que es rica en hidrocarburos alcohol-aromáticos y que ha sido sometida a tratamiento de purificación preliminar, en el cual su contenido en azufre ha sido reducido a menos de 20 partes por millón,

278427

-1 OCT.



es sometida a la reacción de desalcoholación en presencia
de compuesto de azufre añadido en una cantidad suficien-
te para elevar el equivalente de azufre de la fracción -
de carga hasta dentro de la gama de 20 a 200 partes por
5 millón.

7.- PROCEDIMIENTO PARA LA DESALCOHILA-
CION DE HIDROCARBUROS.

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

10 Esta Memoria consta de dieciocho hojas -
escritas a máquina por una sola de sus caras.

Madrid, 1 OCT. 1962

P. A.

Alberto de Elzaburu
Por Poder