

P.- 33.360

File P/543.62



MEMORIA DESCRIPTIVA

que se presenta para unir a la solicitud

d e

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

formulada el 28 de Octubre de 1.966, con el número 332.832

e n

E S P A Ñ A

por VEINTE años

a nombre de THE LUMMUS COMPANY, entidad norteamericana, establecida en 385 Madison Avenue, Nueva York, N. Y., Estados Unidos de América, por:

"UN PROCEDIMIENTO PARA LA PREPARACION DE UN POLINITRILLO AROMATICO"

Este invento concierne a un procedimiento para formar polinitrilos aromáticos, particularmente para formar tereftalo-nitrilo a partir de p-xileno.

Es un objeto del presente invento crear un
5 procedimiento catalítico selectivo para formar polinitrilos aromáticos. Otro objeto es el de crear un procedimien



to que esté sustancialmente exento de formación de coque. Todavía otro objeto más es el de crear un procedimiento en el que se empleen temperaturas más bajas que las temperaturas de reacción con amoníaco (amoniación) convencionales. Un nuevo objeto es el de crear un procedimiento eficaz sustancialmente exento de formación de productos oxigenados indeseables. Otro objeto es el de crear un procedimiento continuo así caracterizado. Un objeto más específico es el de crear un procedimiento para convertir xilenos en los correspondientes dinitrilos, y particularmente en tereftalo-nitrilo. Otros objetos resultarán evidentes a partir de la descripción que sigue.

De acuerdo con el presente invento, se crea un procedimiento para preparar polinitrilos aromáticos, que comprende: poner en contacto un hidrocarburo aromático con amoniaco, en fase gaseosa, a una temperatura entre aproximadamente 400°C y aproximadamente 500°C, en presencia de un catalizador oxidico, con un tiempo de contacto entre aproximadamente 0,01 segundos y aproximadamente 30 segundos y un tiempo de actividad del catalizador menor de aproximadamente 30 minutos. El hidrocarburo aromático es uno que es: estable a la descomposición térmica en fase vapor para dichas condiciones de reacción, y está representado por la fórmula general

25



en la que Ar es un grupo arileno, R es un grupo alcoholilo que tiene de 1 a 3 átomos de carbono, y n es un número entero pequeño, al menos de 2.

30

Hidrocarburos aromáticos útiles aquí incluyen:

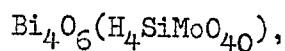
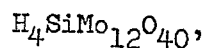


xilenos; tri-, tetra-, penta-, y hexa-metilbencenos; dietil bencenos y polietil bencenos afines; polipropil bencenos; naftalenos antracenos, etc. di- y poli-metilados, -etilados y -propilados. Se prefieren aquí los cilenos y particularmente el p-xileno. Así, el grupo arileno puede ser un anillo de benceno, de naftaleno, de antraceno, etc.

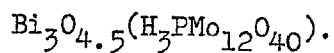
Tal como se indica anteriormente, los catalizadores aquí utilizados incluyen los conocidos como catalizadores de la reacción con amoníaco, es decir catalizadores utilizados en la conversión de hidrocarburos y amoníaco en nitrilos sin adición sustancial de oxígeno a la carga de reacción. Dichos catalizadores incluyen asociaciones u óxidos mixtos de molibdeno y/o de tungsteno, y de vanadio, hierro y/o cobalto. Los catalizadores de óxido de molibdeno/óxido de vanadio son catalizadores eficaces en el procedimiento de este invento.

Se pueden utilizar también en el presente procedimiento los denominados catalizadores de "amoniación-oxidación", aunque no se utiliza como material de carga un gas que contiene oxígeno libre. Típicos de dichos catalizadores son los catalizadores de óxido de bismuto/óxido de molibdeno antes citados.

Además de dichos catalizadores, se ha encontrado que se pueden utilizar los siguientes: asociaciones de óxido de molibdeno y óxido ferrico, tales como $\text{Fe}_2\text{O}_3\text{Mo}_6\text{O}_{18}$, asociaciones de óxido estannico y óxido de vanadio,



y





El catalizador puede ser utilizado por sí sólo, o puede estar soportado o mezclado con un soporte inerte tal como carborundo, piedra pomez, arcilla o similares, en cuyo caso se pueden controlar adecuadamente la estructura, el área superficial y el diámetro de poro. El soporte inerte puede servir para proporcionar al catalizador resistencia mecánica y resistencia a la abrasión. El catalizador, con o sin soporte, puede estar en la forma de partículas finas tales como las apropiadas para su utilización en un lecho de reactor denominado "fluidificado", de pellas, gránulos, etc.

Factores esenciales en la formación de los polinitrilos aromáticos son el tiempo de contacto y el tiempo de actividad del catalizador. El tiempo de contacto es el período de tiempo durante el cual una unidad de volumen de los reaccionantes está en contacto con una unidad de volumen de catalizador. El tiempo de actividad del catalizador es el tiempo durante el cual el catalizador está en utilización para convertir un hidrocarburo aromático y amoniaco en el polinitrilo deseado, antes de ser reactivado o regenerado. Se ha encontrado que el tiempo de contacto deberá ser de aproximadamente 0,01 segundos a aproximadamente 30 segundos, preferiblemente de 0,01 a 10 segundos, con un tiempo de actividad del catalizador menor de aproximadamente 30 minutos, preferiblemente menor de 10 minutos.

En procedimientos anteriores se han empleados breves tiempos de contacto del orden de los aquí utilizados; sin embargo, los catalizadores han sido mantenidos en actividad durante varias horas antes de la reactiva-



ción o regeneración. En dichos procedimientos, se han formado mononitrilos aromáticos, con poca o ninguna formación de polinitrilos. Adicionalmente, los tiempos de actividad mucho más largos a temperaturas elevadas han dado como resultado una formación sustancial de coque sobre el catalizador. La eliminación del coque quemándolo con oxígeno ha interferido con el balance térmico del procedimiento y, en algunos casos, ha dado como resultado un deterioro del catalizador.

En presencia de amoníaco y un hidrocarburo, los catalizadores de óxidos mixtos de metales de transición son reducidos. La forma reducida es considerablemente menos activa que una forma más oxidada, que no precisa ser necesariamente el nivel de oxidación más alto del catalizador oxidico.

En el presente procedimiento, los tiempos de actividad del catalizador relativamente cortos hacen posible mantener un alto nivel catalítico, evitando también cualquier deposición de coque sustancial sobre el catalizador. La reactivación del catalizador con un gas que contiene oxígeno libre, tal como aire u oxígeno, se puede lograr fácilmente, por lo tanto, en un período de tiempo más breve que en los procedimientos anteriores. Para reactivar un catalizador gastado, es ventajoso utilizar una cantidad suficiente de oxígeno para convertir al catalizador gastado en un estado oxidado.

En el presente procedimiento, se utiliza generalmente un exceso de amoniaco con relación a la cantidad estequiométrica de hidrocarburo aromático. Sin embargo, se puede utilizar entre aproximadamente 0,5:1 y aproxima-



damente 12:1 volúmenes de amoniaco por volumen de xileno, especialmente proporciones de aproximadamente 1:1 a 6:1. Se sobreentenderá que se utilizan proporciones mayores de amoniaco a hidrocarburo cuando un grupo Ar está más sustituido con grupos R que el anillo de benceno sustituido con grupos metilo para formar xilenos. Es económico, sin embargo, no utilizar un gran exceso de amoniaco o de un hidrocarburo aromático, particularmente en un trabajo continuo tal como se describe seguidamente con el fin de simplificar el reciclado de un reaccionante.

El reaccionante hidrocarbonado aromático puede ser utilizado por sí sólo o puede estar presente en mezcla con otros hidrocarburos inertes en la reacción, tales como parafinas o benceno. Preferiblemente, el sistema de reacción es diluido con un gas inerte tal como nitrógeno o vapor de agua. Así, se ha encontrado que la utilización de vapor de agua tiene la ventaja de retener el oxígeno del catalizador durante un período de tiempo más largo que cuando el hidrocarburo aromático es convertido en ausencia sustancial de vapor de agua añadido. Preferiblemente, se utilizan entre aproximadamente 3 y aproximadamente 10, y especialmente aproximadamente 5 volúmenes de vapor de agua por volumen de reaccionantes totales, es decir hidrocarburos aromáticos y amoniaco.

La utilización de un diluyente en el procedimiento de este invento es ventajosa en varios aspectos. Con un diluyente, el procedimiento se lleva a cabo con una producción neta de hidrógeno y ninguna generación neta de calor. El diluyente sirve también para eliminar o evacuar calor del procedimiento evitando de esta manera la



necesidad de una superficie de transferencia de calor interna, para disminuir las presiones parciales de los compuestos reductores cargados y formados.

5 La temperatura de reacción para formar un polinitrilo es un factor importante. Se han de evitar temperaturas inferiores a aproximadamente 400°C, ya que los rendimientos son insuficientes. Se han de evitar también temperaturas superiores a aproximadamente 500°C, ya que los rendimientos son reducidos en virtud de la descomposición de reaccionantes y productos. Preferiblemente, se emplean temperaturas del orden de 450 a 460°C.

10 Las presiones de reacción oscilan generalmente entre aproximadamente 1 y aproximadamente 10 atmósferas absolutas. Se prefieren presiones de 1,5 a 2 atmósferas absolutas.

15 El procedimiento se puede conducir de manera discontinua o continua, prefiriéndose la última. Esta última es particularmente ventajosa y está ilustrada de forma general en los dibujos anejos que constituyen un diagrama de flujo esquemático. En los dibujos, por ejemplo p-xileno de la conducción 10 y amoníaco de la conducción 11 son mezclados en la conducción 12 y son cargados en el reactor 13, donde reaccionan en presencia de un catalizador introducido en 13 desde la conducción 14. El reactor 25 13 puede comprender una zona inferior de precalentamiento y una zona superior de reacción. El catalizador y los reaccionantes circulan concurrentemente hacia arriba a través del reactor 13, siendo retirado el catalizador a través de la conducción 15 a una porción superior del reactivador o regenerador 16. Se introduce aire u otro 30



gas que contiene oxígeno activo apropiado desde la conducción 17 a una porción inferior del regenerador 16 y está en contacto en contracorriente con el catalizador a reactivar. Los gases formados durante la reactivación, denominados en general "gases de combustión" son retirados a través de la conducción 18. El catalizador reactivado es reciclado desde 16 a través de la conducción 14 al reactor 13. Tal como se muestra, se puede añadir catalizador de repuesto a la conducción 14 desde la conducción 19, y los finos de catalizador o el catalizador rechazado por cualquier razón pueden ser retirados a través de la conducción 20.

Los productos de reacción, que comprenden tereftalo-nitrilo, tolunitrilo, hidrogeno y agua, juntamente con amoniaco sin reaccionar, son retirados del reactor 13 a través de la conducción 21 al separador 22, desde el cual los nitrilos son descargados a través de la conducción 23. El tereftalo nitrilo y el tolunitrilo pueden ser separados uno de otro y el tolunitrilo puede ser reciclado (no mostrado) con el hidrocarburo en la conducción 10. Hidrógeno, agua y amoniaco son retirados desde 22 a través de la conducción 24 al separador de hidrógeno 25. El hidrógeno es retirado de 25 a través de la conducción 26. El amoniaco y el agua son recogidos del separador 25 a través de la conducción 27 y pueden ser hechos pasar a través de la conducción 28 a la conducción 12 para utilizarse en el reactor 13 o pueden ser hechos pasar a través de la conducción 29 a la unidad de recuperación de amoniaco 30. El amoniaco es retirado de la unidad 30 a través de la conducción 31 y es combinado con carga de amoniaco



en la conducción 11. El agua es retirada de la unidad 30 a través de la conducción 32. El diluyente puede ser cargado también a través de la conducción 33.

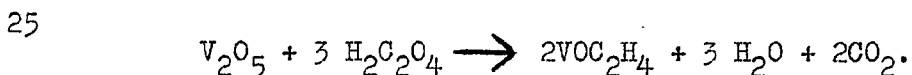
5 Durante la reactivación o regeneración del catalizador, por ejemplo en la unidad 16 de los dibujos, la temperatura deberá ser controlada para que el catalizador no sea dañado. La temperatura máxima a utilizar variará con los catalizadores empleados. Se prefiere aire como me-
10 dio de oxidación; sin embargo, se pueden utilizar satisfactoriamente oxígeno y otros gases que contengan oxígeno libre.

Los siguientes ejemplos típicos y no limitati-
vos ilustran el invento.

15 Ejemplo 1.

Se condujo una serie de ensayos con p-xileno, amoníaco y un catalizador de óxido de molibdeno-óxido de vanadio formado por el siguiente procedimiento.

20 A una suspensión de 187 g de óxido de vanadio en 700 ml de agua destilada, calentada en una placa de caldeo hasta 80°C, se añadieron lentamente 379 g de ácido oxalico dihidratado. La solución viró a color azul y escapó el dióxido de carbono mientras que el óxido de vanadio se disolvió con formación de oxalato de vanadilo:



Después que todo el óxido de vanadio hubo entrado en so-
lución, se añadieron lentamente con agitación 181 g de
30 molibdeno de amonio en 500 ml de agua destilada. Se desarrolló un color negro pero no se formó precipitado. El



pH de las soluciones combinadas era de 1,6. Fué elevado a 6,3 por la adición gradual de amoniaco acuoso concentrado (190 ml). Después de la adición de aproximadamente 100 ml de amoniaco, el pH había aumentado hasta aproximadamente 4,4, y se formó un precipitado negro. Cuando con este valor se interrumpió, toda la masa del recipiente de reacción se solidificó debido a la formación de una estructura micelar metastable. La masa podría ser licuada de nuevo continuando la agitación. La suspensión fue vertida en cubetas de hornear y fue dejada reposar durante la noche. La evaporación de la fase acuosa se efectuó muy lentamente; durante 5 días la temperatura fue llevada gradualmente hasta 100°C y fue mantenida así durante 24 horas. Finalmente, el catalizador fue calcinado en un horno de mufla. La temperatura del horno de mufla fue llevada en un espacio de 3 1/2 horas desde 40°C hasta 400°C, y fué mantenida a 400°C durante 1 hora. La masa de catalizador fue después enfriada y rota en trozos. La fracción de 2000 a 3360 micras fue utilizada para la serie de experiencias.

Todos los ensayos se efectuaron con la misma carga de catalizador que comprendía 123,2 g (200 ml) del catalizador de óxido de molibdeno/óxido de vanadio en un esquema de procedimiento tal como se muestra en los dibujos. Se acumuló producto durante períodos de 30 minutos y fue designado muestra A; después, durante uno o dos períodos subsiguientes de 30 minutos, se acumuló también producto y se le designó respectivamente como muestras B y C respectivamente. El catalizador fue reactivado con aire después de cada experiencia B de una serie de experiencias



A y B, o después de una experiencia C en una serie de experiencias A-B-C.

5 El efluente de reacción fue recogido en dos matraces enfriados. El tereftalo-nitrilo (TPN) formado como producto, es totalmente insoluble en xileno; los cristales de producto fueron filtrados, lavados con hexano, secados y pesados. Las aguas madres y los líquidos de lavado con hexano fueron combinados y analizados en cuanto
10 al tolunitrilo (TN) por cromatografía gaseosa. Los resultados están mostrados en la tabla 1 siguiente.

En la Tabla 1, x/a representa la fracción molar de p-xileno convertido en p-tolunitrilo, e y/a representa la fracción molar de p-xileno convertida en tereftalo-nitrilo.

Tabla I

Amoniación de p-xileno

(Experiencias de 30 minutos)

Expe- rien- cia Nº.	Alimentación (l de gas/min. a la temperatura)				Reactor		Producto (g)		Conversión (moles %)			
	Temp. °C.	p-Xileno	NH ₃	N ₂	H ₂ O	Total	Temp. °C.	Tiempo de con- tacto, Seg.	TN	TPN	TN 100 x/a	TPN 100 y/a
76A	25	0,0421	0,250	1,25	---	1,54	460	3,18	1,00	2,6	16	39
76B	23	0,0496	0,250	1,25	---	1,55	460	3,13	1,71	0,55	24	7
76C	25	0,0453	0,250	1,25	---	1,55	460	3,15	1,54	0,4	24	6
77A	25	0,0421	0,250	3,75	---	4,04	460	1,21	0,70	2,0	12	30
77B	25	0,0438	0,250	3,75	---	4,04	460	1,21	1,14	1,1	18	16
78A	26	0,0386	0,250	5,0	---	5,29	460	0,93	0,69	2,5	13	42
78B	26	0,0455	0,250	5,0	---	5,30	460	0,93	1,13	1,1	17	15
79A	26	0,0386	0,250	7,5	---	7,79	460	0,63	0,79	1,6	15	27
79B	26	0,0462	0,250	7,5	---	7,80	460	0,63	0,52	0,55	8	8
80A	25	0,0368	0,250	7,5	---	7,79	460	0,63	0,51	1,35	10	23
80B	25	0,0438	0,250	7,5	---	7,79	460	0,63	0,59	0,9	9	13
81A	25	0,0398	0,250	7,5	---	7,79	490	0,60	0,46	2,5	8	40
81B	25	0,0461	0,250	7,5	---	7,80	490	0,60	0,56	0,3	8	4
82A	25	0,0421	0,250	---	1,77	2,06	460	2,38	0,70	3,35	12	50
82B	25	0,0438	0,250	---	3,47	3,76	460	1,30	0,54	0,65	9	10
83A	23	0,0776	0,500	---	4,80	5,38	460	0,91	1,45	3,7	13	30
83B	21	0,0743	0,500	---	5,12	5,69	460	0,84	1,07	0,2	10	2

(A = primera media hora, B= segunda media hora, C= tercera media hora).



Los resultados mostrados en la Tabla 1 revelan que la conversión de p-xileno en tereftalo-nitrilo es sustancialmente mayor durante una experiencia inicial de 30 minutos que durante una experiencia subsiguiente de 30 minutos. Por ejemplo, en la experiencia 76A la conversión molar es de 39%; mientras que en la experiencia 76B ésta es solamente de 7%. Se ofrece el mismo cuadro para A y B en las experiencias 77 a 83, ambos inclusive. Los datos indican que el catalizador es reducido en su actividad en lo que respecta a la formación de tereftalo-nitrilo, pero tienen mayor actividad para la producción de tolunitrilo. Esto es debido a pérdida de oxígeno del catalizador.

Con tiempos de contacto muy cortos, la actividad del catalizador puede ser mantenida durante tiempos de actividad más largos pero la conversión es escasa y antieconómica. Si el tiempo de contacto es muy corto, el tiempo de actividad del catalizador se puede extender incluso más allá de aproximadamente 30 minutos, pero los resultados son similarmente antieconómicos. Con tiempos de contacto más largos, por ejemplo de 5 a 30 segundos, el tiempo de actividad del catalizador es de duración más corta pero la conversión de hidrocarburo aromático al polinitrilo deseado es más alta. Por ejemplo, se ha de sobreentender que los catalizadores aquí empleados difieren en su actividad. Así, se prefieren tiempos de contacto de 5 a 30 segundos cuando se utiliza $Fe_2O_3Mo_6O_{18}$, en lugar de tiempos de contacto más breves.

Ejemplo 2.

Una mezcla de p-xileno y amoníaco fue hecha pa



sar hacia abajo a través de un lecho estático del catalizador de óxido de molibdeno/óxido de vanadio descrito en el Ejemplo 1, a 460°C, con un tiempo de contacto de aproximadamente 3 segundos. Durante el primer período de 10 minutos, el producto era predominantemente tereftalo-nitrilo. Entonces se formó una mezcla de tereftalo-nitrilo y tolunitrilo. Finalmente, después de aproximadamente una hora, se formó sustancialmente solo tolunitrilo. Cuando se cargan aproximadamente 30 moles de amoniaco por mol de p-xileno, se producen aproximadamente 8 partes en peso de tereftalo-nitrilo por 1000 partes en peso de catalizador. Cuando, por el contrario, parte del amoniaco es reemplazada por diluyente de nitrógeno de manera que la proporción molar de p-xileno/amoniaco/N₂ sea de 1/3/30 y se empleen el mismo tiempo de contacto y el mismo tiempo de actividad, se producen aproximadamente 20 partes de tereftalo-nitrilo por 1000 partes en peso de catalizador.

Ejemplo 3.

Se repitió el Ejemplo 2 excepto que la proporción molar de alimentación de p-xileno/amoniaco/agua era de 1/3/42 y el tiempo de contacto de p-xileno era de 2,4 segundos. El tiempo de actividad del catalizador era de aproximadamente 30 minutos. Se produjeron aproximadamente 30 partes en peso de tereftalo-nitrilo por 1000 partes en peso de catalizador antes de que este último perdiese su capacidad para ayudar a la formación del dinitrilo. La introducción de vapor de agua aumentó en más del triple la vida del catalizador, aumentó la velocidad de reacción, y redujo el recilado de amoniaco en más de 10 veces.



Resultará evidente a partir de lo que antecede que se ha encontrado un procedimiento eficaz para la producción de polinitrilos aromáticos. El tereftalo-nitrilo, por ejemplo, se forma a partir de p-xileno y puede ser utilizado para la formación de ácido tereftálico, que es importante en la fabricación de fibras sintéticas. El ftalonitrilo puede ser formado a partir de o-xileno, y puede ser utilizado para la formación de colorantes de ftalocianina. Otras utilizaciones serán evidentes para los técnicos en la materia.

Se pueden efectuar muchas modificaciones y variaciones del invento tal como se describe anteriormente sin apartarse del espíritu y alcance del mismo. Consiguientemente, se pretende que las reivindicaciones siguientes incluyan dichas modificaciones y variaciones.

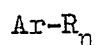
La presente solicitud que corresponde a la presentada en los Estados Unidos de América, el 29 de Octubre de 1.965, bajo el número 505.651, se acoge a los beneficios del artículo 51 del vigente Estatuto sobre Propiedad Industrial.

N O T A

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



1.- Un procedimiento para la preparación de un polinitrilo aromático, por la conversión catalítica de hidrocarburos y amoniaco, caracterizado por las mejoras de poner en contacto un hidrocarburo aromático con amoniaco, en fase gaseosa, a una temperatura desde aproximadamente 400°C hasta aproximadamente 500°C, en presencia de un catalizador oxídico, con un tiempo de contacto desde aproximadamente 0,01 segundos a aproximadamente 30 segundos y un tiempo de actividad del catalizador menor de aproximadamente 30 minutos, en que dicho hidrocarburo aromático es estable frente a la descomposición térmica y está en fase vapor a dichas temperaturas, y está representado por la fórmula general:



en la que Ar es un grupo arileno, R es un grupo alcohol que tiene 1 a 3 átomos de carbono, y n es un número entero pequeño, al menos de 2.

2.- El procedimiento definido en la reivindicación 1 en el que R es metilo.

3.- El procedimiento definido en una cualquiera de las reivindicaciones 1 ó 2, en que Ar es un anillo de benceno.

4.- El procedimiento definido en una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 3 en que el hidrocarburo aromático es un xileno.

5.- El procedimiento definido en una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 4 en que el hidrocarburo aromático es o-xileno y el polinitrilo es ftalonitrilo.

6.- El procedimiento definido en una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 5 en que el hidrocarburo



aromático es p-xileno y el polinitrilo es tereftalonitrilo.

5 7.- El procedimiento definido en una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 6 en que el catalizador es una asociación de óxido de molibdeno y óxido de vanadio.

8.- El procedimiento definido en una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 7 en que el hidrocarburo aromático y el amoniaco son puestos en contacto de esta manera en presencia de un diluyente gaseoso.

10 9.- El procedimiento definido en una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 8 en que el hidrocarburo aromático y el amoniaco son puestos en contacto de esta manera en presencia de vapor de agua.

15 10.- El procedimiento definido en una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 9 en que el hidrocarburo aromático y el amoniaco son puestos en contacto de esta manera en presencia de nitrógeno.

20 11.- El procedimiento definido en una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 10 en que el tiempo de actividad del catalizador es menor de aproximadamente 10 minutos.

25 12.- El procedimiento definido en una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 11 en que el tiempo de contacto es desde aproximadamente 0,1 segundos a aproximadamente 10 segundos.

13.- El procedimiento definido en una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 12 en que la temperatura es desde aproximadamente 450°C hasta aproximadamente 460°C.

30 14.- El procedimiento definido en una cual-



quiera de las reivindicaciones 1 a 13, en que el tolunitrilo es formado juntamente con tereftalonitrilo, es separado del mismo y es reciclado para ser puesto en contacto con amoniaco bajo dichas condiciones de reacción.

5 15.- El procedimiento definido en una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 14 en que de forma continua el catalizador es retirado, es reactivado con oxígeno y es reciclado para mantener dicho tiempo de actividad del catalizador.

10 16.- Un procedimiento para la preparación de un polinitrilo aromático.

Tal y como se ha descrito en la Memoria que antecede, representado en el dibujo que se acompaña y para los fines que se han especificado.

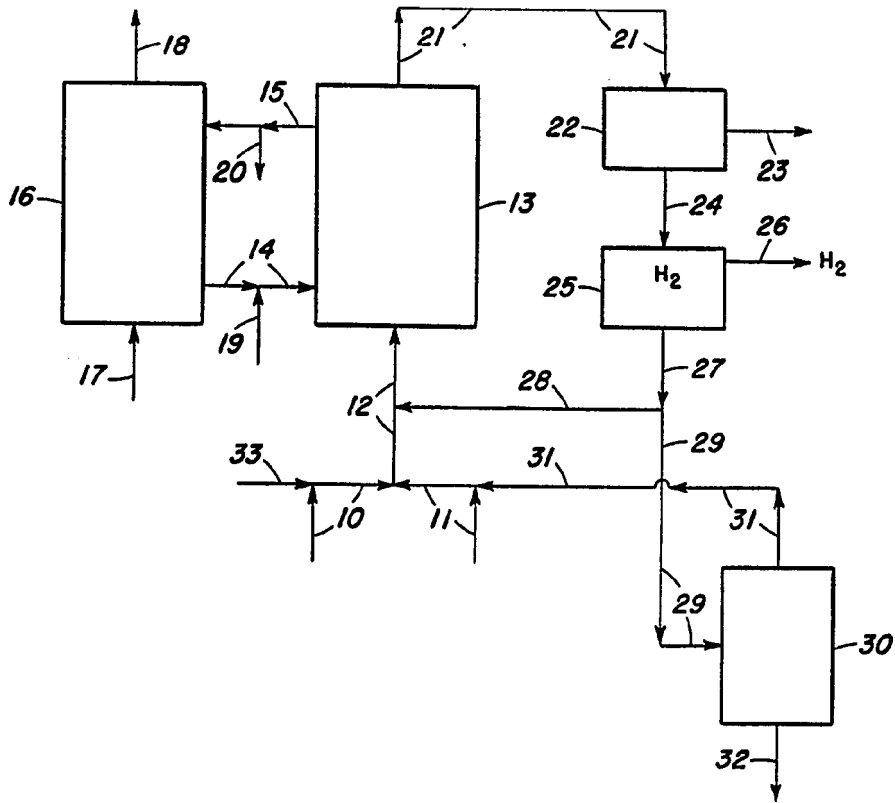
15 Esta Memoria consta de dieciocho hojas escritas a máquina por una sola cara.

1015/60

Madrid,

P. A.

Alberto de Elzaburu
Per. Forner



Carroll