

P. 42.476.-
U.S. Nº 591.703

350314

Memoria descriptiva

SECCION TECNICA
CLASIFICACION I. P. C.
CLASE <u>C01</u>
SUBCLASE <u>C</u>



para solicitar PATENTE DE INVENCION por 20 años

a nombre de ESSO RESEARCH AND ENGINEERING COMPANY

entidad / ~~de nacionalidad~~ norteamericana

con domicilio en Linden, Nueva Jersey, Estados Unidos de América

por: "UN PROCEDIMIENTO PARA FABRICAR UN CATALIZADOR PARA SINTESIS DE AMONIACO" (Clase Internacional C01c)



Un catalizador de síntesis de NH_3 que comprende de 5 a 25% en peso de Fe reducido sobre alúmina o silicato activado con un activador metálico difundido en el mismo.

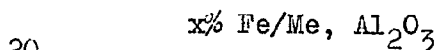
5 En el catalizador de hierro soportado, como en el catalizador activado convencional para síntesis de amoníaco, una superficie de hierro libre en la superficie catalítica activa. En el catalizador activado, los otros elementos u óxidos se incorporan en pequeñas cantidades para provocar la actividad. El uso de un óxido ácido o anfótero, p.ej., 10 Al_2O_3 ó silicatos con uno o más óxidos de metales alcalinos, p. ej., K_2O , Rb_2O , CaO , BeO , MgO , proporciona una mayor actividad. Existe una acción activadora similar de estas sustancias en el catalizador de hierro soportado, pero la sustancia ácida o anfótera, p. ej., alúmina o silicato, es 15 la fase mayor en la que se difunde una menor proporción del metal alcalino y el hierro se distribuye en el soporte. En ambos tipos, el hierro libre activo es generalmente pirofórico, el catalizador se pasiva por contacto con el aire, que forma una película de óxido sobre el hierro, y el catalizador se reactiva por reducción de la película de óxi- 20 do utilizando hidrógeno como gas reductor. El catalizador de hierro soportado tiene un menor contenido de hierro, preferiblemente menor de 25% en peso.

25 La alúmina o el silicato utilizados como soportes catalíticos se considera que son óxidos hidratados y sufren cambios estructurales cuando se calientan, debido a que pierden porciones de agua antes de hacerse anhidros. Así, la alúmina hidratada se considera que está activada para los fines presentes si se transforma térmicamente a temperatu- 30 ras comprendidas en el campo de 600°C a 900°C , de tal mane-



ra que la alúmina llega a identificarse con las formas
de alúmina descritas como eta y gamma, delta y ceta. Esta
nomenclatura se explica en la Enciclopedia de Tecnología
Química de Kirk-Othmer, 2ª edición, Volumen 2, págs. 48 y
5 49, con la indicación de que al calentar las formas eta y
gamma en el intervalo de 600°C a 900°C se transforman pro-
gresivamente en las formas más cristalinas hidratadas del-
ta y ceta. En esta activación térmica con el metal alcali-
no presente, los átomos del metal alcalino se difunden en
10 las fases de alúmina o silicato. Los silicatos hidratados
se activan por un tratamiento térmico similar. Debe evitar-
se calentar apreciablemente por encima de 900°C para impe-
dir la formación de un soporte de baja superficie, sobre
el cual el hierro se sinterizaría fácilmente.

15 La composición del catalizador de síntesis de amonia-
co que tiene hierro soportado sobre el soporte activado
(alúmina o silicato que contiene el activador de metal al-
calino difundido) se indica como sigue:



- donde está depositado $x\%$ en peso de Fe sobre el so-
porte activado que contiene el metal activado Me difundido,
que puede considerarse está presente como un óxido en el
retículo de óxido de aluminio. Los metales activadores se
25 seleccionan del grupo: Cs, K, Rb, Be, Mg, Ca, Ba, Ge y Zr,
y mezclas de los mismos.

Los catalizadores aquí descritos de hierro sobre un
soporte activado que contiene el activador de metal alcali-
no son útiles en la síntesis de amoniaco a partir de gases
30 que contienen H_2 y N_2 en proporciones de $3\text{H}_2:1\text{N}_2$ en las



condiciones convencionales de la reacción de temperaturas (399°C a 538°C), presiones (60 a 450 atm.) y diseños tales como los que se indican en la Enciclopedia de Tecnología Química de Kirk-Othmer, 2ª edición, volumen 2. Son útiles en tales procedimientos con ventajas particulares que dependen de sus características distintivas, de una actividad más uniforme aun con cambios en el tamaño de partícula o en la temperatura. Así, son particularmente útiles en el lecho inicial de un reactor en el que el aumento de temperatura puede ser elevado. Son útiles como catalizador o diluyente para aminorar las variaciones de la reacción. Son útiles como capa soporte para catalizadores de menor tamaño de partícula.

Los catalizadores comerciales convencionales están representados típicamente por composiciones que contienen hierro como componente principal en combinación con alúmina y potasio como activadores y en algunos casos óxidos metálicos adicionales, tales como óxido de calcio. Es difícil describir específicamente la totalidad del gran número de catalizadores comerciales, pero en general se ha descrito que contienen Fe como componente principal, es decir, en proporciones que van desde más de 50% en peso hasta aproximadamente 90% en peso de Fe. La preparación del catalizador convencional se ha descrito como comprendiendo las etapas de fundir óxido de hierro y disolver los activadores en el material fundido, triturar el material resultante cuando se solidifica, y reducir el óxido de hierro en dicho material a hierro por contacto con hidrógeno o una mezcla gaseosa nitrógeno-hidrógeno para obtener, en el material, hierro poroso que contiene el mate-



rial activador. Estos catalizadores son difíciles de ma-
nipular, debido a que tienden a ser pirofóricos. Algunos
son demasiado frágiles; ciertos de entre ellos se inutili-
zan muy fácilmente por contacto con sustancias venenosas,
5 tales como compuestos que contienen fósforo, arsénico, y
azufre. Su actividad tiende a ser reducida notablemente
por el monóxido de carbono y el agua. El catalizador de
alto contenido de hierro pierde rápidamente actividad y
llega a degradarse si se calienta a temperaturas superiores
10 a 510°C, por lo que la reacción de síntesis se ha llevado
a cabo generalmente con tales catalizadores a temperaturas
comprendidas entre aproximadamente 427°C y 510°C, siendo ne-
cesarios equipo y precauciones para evitar desviaciones de
estas temperaturas.

15 Uno de los mejores catalizadores comerciales conoci-
dos actualmente contiene en estado no-reducido 65 a 70% de
Fe con 3 a 5% de metales activadores, p. ej., Al, K, y/o
Ca, considerándose que estos metales activadores están pre-
sentes como óxidos. Después de la reducción, el contenido
20 de Fe es superior al 80%. Otros óxidos activadores que pue-
den estar presentes son CsO, RbO, BeO, MgO, y ZrO.

El nuevo catalizador preferido de la presente inven-
ción se prepara impregnando alúmina hidratada o silicato
de alta superficie con un metal alcalino, preferiblemente
25 cesio o potasio, calentando la alúmina o silicato impreg-
nados con metal alcalino a una temperatura a la que el ma-
terial soporte así formado tiende a sinterizarse y llega a
verse disminuído en superficie, p.ej., a una temperatura
comprendida entre 600°C y 900°C, y depositando luego sobre
30 el soporte tratado en caliente una sal de hierro que se



descompone fácilmente a temperaturas moderadas para impregnar el soporte con hierro en menor proporción que el soporte, esto es, de 5 a 25% en peso de Fe, preferiblemente de 10 a 20% en peso de Fe, sobre base reducida. El soporte
5 impregnado de hierro puede convertirse en píldoras, pre-reducirse y pasivarse por la acción del aire, o bien se pueden reducir en el reactor de síntesis de amoníaco las pastillas del catalizador no-reducido haciendo pasar gas
10 de síntesis de amoníaco a temperaturas de síntesis de 427°C a 566°C.

La impregnación controlada a alta temperatura de los materiales soporte adsorbentes efectúa la difusión del activador de metal alcalino en los poros y retículos de los materiales soporte a medida que se activan. Esta difusión
15 se hace más rápida cuando la temperatura se eleva a temperaturas superiores a 600°C y tiene lugar dentro de un periodo razonable, p.ej., de 2 a 8 horas, a 871°C.

En general, los materiales soporte adecuados se seleccionan de la clase de compuestos conocidos como óxidos hidratados adsorbentes, los cuales incluyen beta-alúmina trihidratada, alfa-alúmina trihidratada, mezclas de gamma o eta
20 -alúmina con tales alúminas, alumino-silicatos y silicatos de magnesio, p. ej., asbesto. Materiales tales como sílice o mezclas que contienen sílice no son satisfactoriamente
25 estables a las altas temperaturas empleadas.

Los compuestos de metales alcalinos, preferiblemente compuestos de cesio y potasio utilizados para la impregnación pueden ser hidróxidos, nitratos, carbonatos o carboxilatos que se descomponen para formar el óxido. Si los mate-
30 riales soporte se impregnan con los compuestos de metales



alcalinos disueltos en solución acuosa, después de la ad-
sorción de la solución, el material soporte impregnado se
seca a una temperatura relativamente baja, p.ej., de apro-
ximadamente 93°C a 149°C, durante varias horas antes del
5 calentamiento para efectuar la difusión. El material so-
porte que contiene el metal alcalino difundido se impregna
entonces con el componente catalítico activo que contiene
hierro, el cual, por calentamiento a una temperatura mode-
radamente alta en corriente de H₂ ó de gas de síntesis,
10 se convierte en la forma de hierro activa.

El compuesto de metal alcalino que se difunde en la
alúmina porosa o en un material silicatado sólido poroso
equivalente, tal como asbesto, puede seleccionarse de com-
puestos de metales alcalinos pertenecientes a los Grupos
15 I y II del Sistema Periódico, pero los metales más efec-
tivos son cesio y potasio. Estos compuestos de metales
alcalinos pueden emplearse en proporciones variables que
dependen del metal alcalino empleado. El cesio altamente efec-
tivo puede utilizarse en proporciones tan bajas como 3 a 10
20 átomos de cesio por cada 100 moléculas de alúmina. El pota-
sio se utiliza en una proporción mayor, de hasta 30 átomos
por cada 100 moléculas de alúmina, para un efecto similar.
Pueden utilizarse mezclas de los compuestos alcalinos,
p.ej., 3 átomos de cesio y 5 átomos de potasio por cada
25 100 moléculas de alúmina para obtener resultados similares
a los obtenidos con 20 átomos de potasio por cada 100 mo-
léculas de alúmina.

La preparación del catalizador preferido se ilustra
en los ejemplos que siguen:

30



EJEMPLO I

Se prepara un excelente catalizador de síntesis de amoníaco tal que contiene 10 átomos de cesio por cada 100 moléculas de alúmina ($10 \text{ Cs}/100 \text{ Al}_2\text{O}_3$) como soporte del hierro. Se utiliza beta-alúmina trihidratada (preparada por hidrólisis de alcoholato de aluminio) para adsorber una solución de Cs_2CO_3 en una proporción tal que se difunden 10 átomos de cesio en 100 moléculas de Al_2O_3 . La alúmina que contiene el compuesto de cesio se seca a 121°C y el material seco se trata térmicamente a 871°C durante 8 horas para formar el soporte alcalinizado activado. El compuesto de hierro se deposita sobre el soporte mezclando $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ con el soporte activado mientras se calienta la mezcla en un horno a 100°C . El punto de fusión del nitrato de hierro es bastante inferior a 100°C , por lo que se dispersa uniformemente sobre los gránulos del soporte. Los gránulos que contienen el compuesto de hierro depositado se moldean entonces en pastillas y quedan dispuestos para su introducción en un reactor en el que pasa una corriente de gases de síntesis de amoníaco que contienen 3 moles de H_2 por mol de N_2 sobre las pastillas a una temperatura de 427°C a 593°C con un intervalo preferible de 427°C a 566°C para reducir el hierro a fin de formar el catalizador activo.

Los catalizadores más efectivos se obtuvieron depositando nitrato férrico nonahidrato fundido sobre el soporte activado: Para obtener mayores niveles de hierro por impregnación con sales acuosas, se requieren impregnaciones múltiples, con secado y reimpregnación cada vez. Por ejemplo, puede dispersarse hierro sobre el soporte por dos



impregnaciones sucesivas de 7,5% de Fe, y para obtener un catalizador de mayor contenido de hierro se pueden emplear impregnaciones adicionales.

5 En una serie de ensayos (síntesis de NH_3), se emplearon condiciones de baja temperatura y baja presión, esto es, 60 atms., 429°C a 466°C, y una velocidad espacial de 15.000 v/hr./v. Utilizando estas condiciones, se efectuaron pruebas para determinar el tratamiento térmico preferido del soporte y las cantidades preferidas de
10 impregnación de hierro sobre el soporte. Los datos que se resumen a continuación en la Tabla I indican la actividad catalítica relativa y la superficie física correspondiente para una serie de los catalizadores:

15

TABLA I

EFFECTOS DEL TRATAMIENTO CON ALCALI Y TRATAMIENTO TÉRMICO SOBRE LA SUPERFICIE Y LA ACTIVIDAD CATALÍTICA

Composición del Catalizador	% de NH_3 (1)	Pretratamiento del soporte	Superficie del soporte ($\text{m}^2/\text{g.}$)
20 15% Fe/ Al_2O_3	1,5	Al_2O_3 se calentó 8 horas a 871°C	90
15% Fe/Cs, Al_2O_3	3,2	10 Cs/100 Al_2O_3 se calentó 8 horas a 600°C	300
25 15% Fe/Cs, Al_2O_3	5,4	10 Cs/100 Al_2O_3 se calentó 8 horas a 871°C	90
15% Fe/Cs, asbesto	5,1	10 Cs/100 asbesto se calentó 8 horas a 871°C	20

30

(1) Condiciones de síntesis de NH_3 : 466°C, 60 atms.,



15.000 v./hr./v. Los datos representativos de la Tabla I indican que el tratamiento térmico a temperaturas elevadas por encima de 593°C hasta 871°C mejora notablemente la actividad catalítica y hace disminuir la superficie del soporte.

Como se indica en la Tabla II siguiente, la cantidad preferida de hierro depositado y dispersado sobre el soporte está comprendida entre 5 y 25% en peso cuando el catalizador está reducido.

TABLA II

EFEECTO DEL NIVEL DE HIERRO SOBRE LA PRODUCCION DE AMONIACO

	<u>Composición del Catalizador</u>	<u>% de NH₃ (1)</u>
15	5% Fe/Cs, Al ₂ O ₃	3,6
	15% Fe/Cs, Al ₂ O ₃	4,3 a 5,4
	25% Fe/Cs, Al ₂ O ₃	3,4

(1) Condiciones de Reacción: 429°C, 60 atms., 15.000 v./hr./v.

Se demuestra que el rendimiento del catalizador caracterizado por un soporte de alúmina o asbesto activado y alcalinizado que tiene una cantidad adecuada de hierro dispersada sobre el mismo y preparado como se describe en el Ejemplo 1, se mantiene a un nivel alto después de exposición a temperaturas elevadas, mientras que se observa que el rendimiento de uno de los mejores catalizadores comerciales disminuye apreciablemente después de exposición a una temperatura elevada. Véase la Tabla III a continuación.

TABLA III
SOPORTE DEL CATALIZADOR Y ESTABILIDAD TERMICA

Composición del Catalizador	% de NH ₃ antes del tratamiento (1)	Tratamiento Térmico		% de NH ₃ después del tratamiento térmico (1)
		Temp. Máx. (°C)	Horas a la temp. máx.	
15% Fe/Cs, Al ₂ O ₃	4,8	566	4	5,4
15% Fe/Cs, Asbesto	4,8	566	4	5,1
15% Fe/Cs, SiO ₂	1,2	621	2	0,8
15% Fe/Cs, Aluminio-silicato	4,0	566	2	3,1
Cat. de Sínt. de NH ₃ comercial	10,0(2)	510	2	5,3(2)

(1) Condiciones de Reacción: 466°C, 60 atms., 15.000 v./hr./v.

(2) Temperatura de reacción: 429°C.





G S

El catalizador que tiene el compuesto de hierro dispersado sobre el soporte alcalinizado y activado del tipo 15% Fe/Cs se reduce rápidamente (p. ej., en menos de 6 horas) a la presión atmosférica, se pasiva por exposición al
5 aire, y se reactiva por contacto con una corriente de gas que contiene hidrógeno, con poca o ninguna pérdida de actividad. Estos catalizadores soportados pueden reducirse mucho más fácilmente que el catalizador comercial típico, y pueden reducirse y pasivarse antes de su conversión en
10 pastillas.

Se encontró que los catalizadores en los que se utilizó potasio para alcalinizar el soporte eran casi tan activos como los catalizadores en los que se utilizó cesio para alcalinizar, pero se encontró deseable el empleo de
15 una mayor proporción de potasio, a no ser que se utilizase el potasio junto con cesio. Se empleó hidróxido potásico para impregnar la alúmina. Pueden utilizarse otros compuestos de potasio descomponibles en K_2O .

EJEMPLO 2

20 Se preparó un catalizador que contenía 15% de Fe sobre una alúmina alcalinizada. Se añadió hidróxido potásico acuoso a beta-alúmina trihidratada de tal manera que resultasen 30 átomos de K por cada 100 moléculas de alúmina
(30 k/100 Al_2O_3). Se secó el soporte a 121°C, después de
25 lo cual se calentó a 871°C durante 8 horas. La impregnación del soporte alcalinizado con Fe se efectuó por adición de $Fe(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$ al soporte, y mezclando a 100°C. Esta temperatura está lo bastante por encima del punto de fusión de la sal de hierro para proporcionar una dispersión
30 uniforme. El catalizador se redujo en gas de síntesis



que contenía 3 moles de H_2 por mol de N_2 a una temperatura de $427^{\circ}C$ a $649^{\circ}C$, con un intervalo preferible de $427^{\circ}C$ a $566^{\circ}C$, para formar el catalizador activo.

5 Para condiciones de reacción en la síntesis de NH_3 de $500^{\circ}C$, 60 atm., VE (Velocidad Espacial) = 15.000 v./Hr./v., el producto contenía 5,5% de NH_3 , aproximándose al valor de equilibrio de 6,0%. El gas de síntesis para la reacción de ensayo estaba compuesto por 3 moles de H_2 por cada mol de N_2 . A presiones mayores, pueden esperarse
10 mayores rendimientos. En reactores comerciales operados con presiones de reacción de 100 a 450 atm., el producto contiene cantidades de NH_3 que se aproximan a los valores de equilibrio en el margen de 10 a 15%.

15 Los catalizadores fabricados de acuerdo con los ejemplos dados aquí fueron capaces de catalizar la reacción en una extensión muy próxima a la de los requisitos de equilibrio para la presión utilizada, particularmente a medida que la temperatura de reacción se aumentaba en el campo de $454^{\circ}C$ a $549^{\circ}C$. El mejor catalizador comercial del
20 tipo activado con alto contenido de hierro presentó la actividad máxima a temperaturas de $427^{\circ}C$ a $454^{\circ}C$, con un descenso acusado de actividad en términos de % de NH_3 en el producto por encima de los $454^{\circ}C$ y hasta los $538^{\circ}C$. Estos hechos indican que los catalizadores fabricados dis-
25 persando hierro sobre la alúmina alcalinizada y tratada en caliente pueden utilizarse ventajosamente cuando es deseable mantener cierto grado elevado de conversión en condiciones de reacción de alta temperatura variable tales como las que tienden a existir en el lecho de catalizador
30 inicial que se pone en contacto con el gas de síntesis.



Existe una ventaja adicional obtenida de los catalizadores de hierro dispersado sobre soportes de alúmina o silicato activados y alcalinizados, consistente en que estos catalizadores mantienen su actividad incluso con cambios en el tamaño de partícula, en tanto que los catalizadores comerciales de alto contenido de hierro con promotores en el hierro sufren una variación importante de actividad dependiendo del tamaño de partícula. Estas características son indicadas por los datos tabulados en la Tabla IV siguiente:

TABLA IV

RELACION DE ACTIVIDAD CON TAMAÑO DE PARTICULA. CON-
DICIONES DE ENSAYO EN LA SINTESIS DE NH_3
449°C, 60 atms., velocidad espacial 22.500

Tamaño de Partícula del Catalizador	% de NH_3 en el Producto	
	Catalizador Comercial	Catalizador de 15% Fe/Cs, Al_2O_3
0,6 - 1,6 mm	6,8	5,4
3,0 - 6,0 mm	5,0	5,4
6,0 - 10,0 mm	4,0	5,4

Los datos acerca del efecto del tamaño de partícula indican que el catalizador activado rico en hierro obtenido comercialmente tiene una actividad variable que depende del tamaño de partícula y estos es atribuible a cambios en la superficie activa de hierro. El catalizador de menor contenido de hierro sobre el soporte alcalinado no parece tener una actividad variable que dependa del tamaño de partícula. Así, aunque un catalizador posee mayor actividad con tamaño de partícula pequeño, existen ventajas prácti-



cas en el uso de un catalizador de tamaño de partícula ma
yor, p. ej., de 3,0 a 6,0 mm, con menor variación en su
actividad.

TABLA V

EFECTOS DEL AUMENTO DE TEMPERATURA SOBRE LA ESTABILIDAD TERMICA
 TAMAÑO DEL CATALIZADOR, 2000/841 MICRAS; CONDICIONES DE REACCION
 BASICAS: 429°C, 60 ATMS.

Catalizador	Velocidad Espacial	Temperatura Aumentada a	% de NH_3 producido/g. Catal.	
			Antes del Aumento de Temperatura	Después del Aumento de Temperatura
Comercial, de Hierro Activado	15.000	510°C durante 7 hr.	1,6	1,0
15% Fe/Cs, Al_2O_3 (1)	22.000	566°C durante 10 hr.	1,3	3,4
5% Fe/Cs, Al_2O_3 (2)	7.000	510°C durante 7 hr.	1,8	2,3

Los catalizadores (1) y (2) se prepararon como se ha descrito en el Ejemplo 1.



10 ABR



Los datos de la Tabla V ilustran como el hierro activo sobre el soporte alcalinizado tiene un mejor mantenimiento de la actividad después de la exposición a temperaturas altas. Esta característica hace que tal catalizador sea adecuado para uso en un lecho de catalizador puesto inicialmente en contacto.

Sobre una base de volumen, el catalizador de hierro soportado (Fe/Cs , Al_2O_3) es menos activo que el catalizador activo de alto contenido de hierro, cuando se comparan ambos en el tamaño de partícula de 0,6 a 1,6 mm, sin embargo, las condiciones industriales excluyen el uso de partículas inferiores a 3 - 6 mm. Cuando la comparación se hace sobre partículas de 6 a 10 mm, tales como las que podrían utilizarse en un reactor comercial, el catalizador de hierro soportado es más activo que el catalizador de alto contenido de hierro.

- INVESTIGACIONES -

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:

1º.- Un procedimiento para fabricar un catalizador para síntesis de amoníaco, que comprende impregnar una alúmina o silicato anhidros con unos 3 a 30 átomos por cada 100 moléculas de dicha alúmina o silicato de un activador de metal alcalino, activar el soporte resultante por calen-



tamiento a una temperatura comprendida entre 600 y 900°C, con lo cual el activador de metal alcalino es difundido en el mismo, y depositar sobre el soporte activado y alcalinizado resultante un compuesto de hierro que es descomponible por calentamiento en corriente de H₂ o gas de síntesis, para depositar sobre, e impregnar el soporte activo con 5 a 25% en peso de hierro en un estado reducido.

5

2º.- Un procedimiento según la reivindicación 1, en el que el activador de metal alcalino es seleccionado del grupo que consiste en potasio y cesio.

10

3º.- Un procedimiento según la reivindicación 1, en el cual el metal activador es seleccionado del grupo que consiste en Cs, K, Rb, Ca, Mg, Ba, Ge, Be, Zr y mezclas de los mismos fundidos en él.

15

4º.- Un procedimiento según la reivindicación 1, en el cual a la alúmina se le da una forma de transición de gama o eta a ceta o delta, con un área superficial de 20 a 100 m²/g con un activador de metal alcalino.

20

5º.- Un procedimiento según la reivindicación 1, en el cual el soporte activado es asbesto que contiene un metal alcalino difundido en él, como metal activador.

25

6º.- Un procedimiento según la reivindicación 1 en el cual el soporte activado es alúmina de forma eta a ceta, que contiene de 3 a 10 átomos de Cs como metal activador difundido por cada 100 moléculas de Al₂O₃.

7º.- Un procedimiento para fabricar un catalizador para síntesis de amoniaco.

30

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

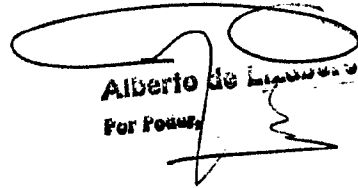
10 ABR



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

Madrid, 10 ABR 1971

P.A.


Alberto de Lencastre
For Power