

16



402472

P.-50.916

2491 S/HB

SECCION TECNICA
CLASIFICACION I. P. C.
CLASE _____
SUBCLASE _____

MEMORIA DESCRIPTIVA

para solicitar PATENTE DE INVENCION por 20 años

A nombre de STAMICARBON N.V.

Int. Cl.: C07D

entidad holandesa

establecida en van der Maassenstraat. 2, Heerlen, Holanda

por "PROCEDIMIENTO PARA LA PREPARACION DE LACTAMAS"

(Clase Internacional C07d)

18 MAR 1972



402472

La invención se refiere a la preparación de lac
tamas, en particular ξ -caprolactama, a partir de las
cetoximas correspondientes, combinada con la recuperación
de estas lactamas del medio de reacción.

5 Es sabido que las lactamas pueden obtenerse a
partir de cetonas alicíclicas mediante reagrupación intra
molecular - conocida con el nombre de transposición de
Beckmann - cuya transposición tiene lugar en un medio -
fuertemente ácido y es catalizada por éste.

10 Además del ácido sulfúrico como medio fuertemen-
te ácido adecuado, se hace mención también de otros medios
ácidos, tales como ácido fosfórico, o mezclas de ácido -
acético y anhídrido acético o una masa fundida de bisul-
furo amónico pero, en la práctica, para la transposición
15 de la oxima de la ciclohexanona a ξ -caprolactama - que
es en la actualidad la lactama más producida a escala in
dustrial - se utiliza generalmente oleum de 6% en peso,
en una proporción de 1 mol de oxima anhidra a 1,5 moles
de ácido sulfúrico. Las cantidades muy pequeñas de hume-
20 dad presentes en la oxima que ha de ser sometida a trans
posición se eliminan mediante el SO_3 libre del oleum. La
transposición en este medio tiene lugar a aproximadamente
125 °C.

25 De esta forma puede obtenerse ξ -carolactama
a partir de la oxima de ciclohexanona, de una forma rá-



402472

pida, continúa y con un rendimiento muy elevado.

Actualmente, hay una desventaja unida a este procedimiento, a saber, la producción del sulfato amónico como subproducto.

5 No obstante con objeto de poder separar la lactama del medio de reacción de ácido sulfúrico, es habitual neutralizar el medio reaccionante con agua amoniacal hasta un valor del pH de aproximadamente 4,5, como resultado de lo cual llega a flotar una capa que consis-
10 te fundamentalmente en lactama, sobre la solución de sulfato amónico formada que contiene aproximadamente 40% en peso de sulfato amónico y solamente poca lactama, de forma tal, que la separación de las capas puede efectuarse de una forma sencilla. La lactama puede recuperarse
15 de cada una de las capas por extracción.

En un procedimiento de este tipo el ácido sulfúrico o el oleum empleado para la transposición se convierte completamente en sulfato amónico, dando como resultado aproximadamente 1,7-1,9 toneladas de sulfato amónico que es obtenido como subproducto, por cada tonelada de ϵ -caprolactama producida.
20

Además, debe considerarse el hecho de que, en la preparación de lactamas, se usan normalmente cetoximas como material de partida, las cuales, a su vez, se han
25 obtenido haciendo reaccionar las cetonas en cuestión con

18 MAR 1972



402472

sulfato hidroxilamonio.

5 En escala industrial, el sulfato de hidroxila-
monio se obtiene por lo general mediante la aplicación
de la llamada síntesis de Raschig, la cual se basa en
la reducción de nitrito amónico con dióxido de azufre
en una solución que contiene bisulfito amónico, formán-
dose como producto intermedio la sal amónica del ácido
hidroxilamino-disulfónico. Mediante hidrólisis de esta
sal seguida de neutralización con amoníaco se obtiene
10 una solución de sulfato de hidroxilamonio y sulfato amó-
nico.

15 La reacción de esta solución con una cetona,
por ejemplo, con ciclohexanona, produce de nuevo, ade-
más de la oxima de la ciclohexanona deseada, una solu-
ción de sulfato amónico de aproximadamente 40% en peso,
la cual, después de concentrarse por evaporación pro-
porciona 2,5-2,7 toneladas de sulfato amónico como sub-
producto, por cada tonelada de ϵ -caprolactama produ-
cida.

20 Esto significa que, junto con la producción
conjunta de 1,7-1,9 toneladas de sulfato amónico corres-
pondiente a la transposición de la oxima, se produce un
total de 4,2-4,6 toneladas de sulfato amónico como sub-
producto, por cada tonelada de ϵ -caprolactama produci-
da.
25

18 MAR 1972



402472

Aunque este sulfato amónico se emplea como fertilizante en regiones tropicales y en países subtropicales, las perspectivas en relación con ventas productivas, están bastante lejos de ser atractivas, como resultado de la baja de los precios de venta, en particular como consecuencia de los costos elevados de transporte a dichos países tropicales o subtropicales.

La invención proporciona un procedimiento, exento de sulfato amónico, ya que las soluciones de sulfato amónico obtenidas como sub-productos en las diversas etapas del procedimiento se queman finalmente, con recuperación de SO_2 .

El SO_2 recuperado, a su vez, satisface el requerimiento de SO_2 del procedimiento Raschig para la preparación de sulfato de hidroxilamonio, así como el requerimiento de SO_2 para la preparación de la cantidad de oleum necesaria para la transposición de Beckmann.

La mediada esencial en el procedimiento de acuerdo con la presente invención consiste en la solución de sulfato amónico, que se obtiene como subproducto en la síntesis de hidroxilamina de acuerdo con Raschig y en la síntesis de oxima, siendo utilizada en la neutralización de la mezcla de lactama y ácido sulfúrico obtenida después de la transposición de Beckmann.

Mediante extracción con un disolvente orgánico

18 MAR 1972



402472

5 para la lactama inmisible en agua, la lactama puede ahora recuperarse de la mezcla neutralizada en dicha forma, cuya mezcla es esencialmente una solución de lactama y bisulfato de amonio en agua, que puede contener además algo de sulfato amónico, mientras que la solución desprovista de lactama tiene una concentración suficientemente elevada para permitir la recuperación de dióxido de azufre de ella, en una forma conocida mediante combustión.

10 Debe hacerse constar que previamente se ha propuesto la separación de lactama mediante extracción de la mezcla de reacción que contiene ácido sulfúrico y lactama, después que esta mezcla había sido dispuesta en condiciones que favorecen la extracción con un disolvente orgánico, por dilución y posiblemente neutralización. -
15 Dependiendo del valor del pH de la mezcla a extraer, se han citado como disolventes de extracción el benceno y el tolueno para mezclas de reacción de menor acidez, mientras que en el caso de mezclas de reacción que son todavía fuertemente ácidas deben preferirse cloroformo y -
20 otros hidrocarburos clorados, tales como 1,2-dicloroetano y 1,1,2,2-tetracloroetano.

25 Se ha propuesto por último para la lactama que ha de extraerse de una mezcla de lactama y ácido sulfúrico, disminuir el valor del pH de la mezcla antes de la extracción mediante la adición de una cantidad tal de -

18 MAYO



402472

sulfato amónico y agua de modo que la relación molar de $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ a H_2SO_4 en la solución a extraer tenga un valor de 0,75:1. En estas descripciones conocidas nunca se ha sugerido que las soluciones de sulfato amónico que proceden de la síntesis de hidroxilamina y de la oximación se emplean para neutralizar la mezcla de transposición de lactama y ácido sulfúrico a extraer. Esta solución de sulfato amónico es particularmente adecuada, entre otras razones, debido a que contiene agua suficiente para continuar formando una solución después de haber sido mezclada con la mezcla de transposición de lactama y ácido sulfúrico. No es necesario la adición de agua adicional para mantener el conjunto en solución.

Mediante la aplicación del procedimiento de acuerdo con la invención se lleva a cabo un procedimiento más económico, que es el caso del procedimiento de acuerdo con el cual todas las soluciones de sulfato amónico obtenidas como subproductos en las diversas etapas del procedimiento-preparación de hidroxilamina, oximación, transposición a lactama y recuperación de lactama- se quemarán directamente, con recuperación de dióxido de azufre.

En el procedimiento de acuerdo con la invención se emplean un máximo de 4,4 moles de NH_3 por cada

9-5-72

18 MAR 1972



402472

mo de ξ -caprolactama, cuyo NH_3 llega a estar disponible en forma de solución de sulfato amónico y bisulfato amónico al 50-60% en peso, y de cuya solución se recupera SO_2 por combustión.

5

En un procedimiento comparable con éste, sin aplicación de la medida de acuerdo con la invención pueden usarse 7,4 moles de NH_3 por mol de ξ -caprolactama, cuyo NH_3 se libera en forma de solución de sulfato amónico al 40% en peso, y de la cual puede recuperarse o bien SO_2 , también mediante combustión, o bien sulfato amónico mediante evaporación y cristalización.

10

En la Figura 1 adjunta se presenta esquemáticamente un modo de llevar a cabo el procedimiento, en la cual A representa una zona de síntesis de hidroxilamina, B una zona de oximación, C una zona de síntesis de oleum, D una zona en la que tiene lugar la trasposición de Beckmann, E una zona de mezcla, F una zona de extracción y G una zona de combustión para la descomposición térmica de las soluciones conteniendo sulfatos.

15

20

A través de las tuberías 1, 2 y 3a se alimenta la zona de síntesis de hidroxilamina con los reactivos requeridos, principalmente amoníaco, una solución de nitrato amónico y dióxido de azufre.

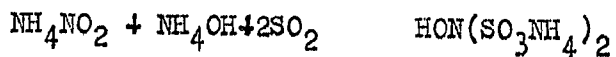
25

De acuerdo con la ecuación de reacción:

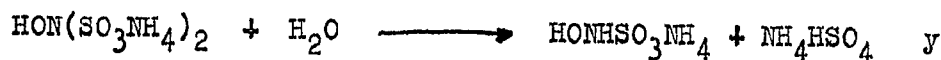


CLC. CMN 81

402472



5 se obtiene una solución de la sal amónica del ácido hidroxilamino-disulfónico solamente a baja temperatura, -
 por ejemplo 0°C, cuya solución se calienta posteriormente, como resultado de lo cual la sal amónica del ácido
 hidroxilamino-disulfónico se hidroliza y eventualmente se
 10 transforma en una solución que contiene sulfato de hidroxilamonió y amonio y bisulfato de amonio de acuerdo
 con las ecuaciones de reacción:



15 después de haber sido neutralizada con amoníaco, la solución que contiene sulfato de hidroxilamonió fluye desde
 de la zona A a través de la tubería 4 a la zona de oxidación B, en donde la sal de hidroxilamonió reacciona con
 20 una cetona alimentada por la tubería 5, con formación de una oxima. Las condiciones de pH adecuadas para esta
 reacción pueden lograrse suministrando agua amoniacal a través de la tubería 14. La oxima formada se envía a
 25 través de la tubería 6 a la zona de reacción D, en cuya zona se admite a través de la tubería 7, la cantidad de

18 MAYO



402472

oleum requerida para la transposición de Beckmann y que se origina en la zona de síntesis de oleum C. Una mezcla de reacción de lactama y ácido sulfúrico fluye desde la zona de transposición D a través de la tubería 8 hasta -
5 la zona de mezcla E, donde esta mezcla de lactama y ácido sulfúrico se mezcla de acuerdo con las medidas de la invención con una solución de sulfato amónico alimentada a través de la tubería 9, cuya solución se obtiene después de que la oxima formada en la zona de oximación B,
10 ha sido separada. La solución resultante de lactama, sulfato amónico y ácido sulfúrico en agua se conduce desde la zona de mezcla E a través de la tubería 10 a la zona de extracción F, donde tiene lugar la extracción en contracorriente con un disolvente de extracción de lactama,
15 cuyo disolvente ha sido suministrado a través de la tubería 11 y no es miscible con agua. Una solución de lactama en el disolvente orgánico de extracción se descarga desde la zona de extracción F a través de la tubería - 12 en una zona de separación no representada en la figura. En esta zona la lactama disuelta y el disolvente de
20 extracción se separan mediante evaporación del disolvente de extracción y/o mediante lavado con agua, con lo cual el disolvente de extracción retorna a la zona de extracción F a través de la tubería 11.

25 La solución de sulfato amónico y ácido sulfú-

402472

rico en agua que ha sido desprovista de lactama se conduce a través de la tubería 13 a la zona de combustión G, donde tiene lugar la descomposición térmica a elevada temperatura, y el azufre, previamente combinado como radical sulfato, se libera en la forma de dióxido de azufre. Este gas de dióxido de azufre se recircula a través de las tuberías 3, 3a y 3b respectivamente, a la zona A de síntesis de hidroxilamina y a la zona C de síntesis de oleum, respectivamente.

La descomposición térmica en la zona de combustión G de la solución conteniendo sulfato amónico y ácido sulfúrico puede efectuarse, por ejemplo mediante pulverización de la solución en una llama de gas natural, en la cual se obtiene un gas que contiene principalmente N_2 , SO_2 y H_2O y que tiene una temperatura de aproximadamente $1.000^{\circ}C$.

Por enfriamiento de este gas, primero en un intercambiador de calor, con producción de vapor de agua, y a continuación en un refrigerante mediante agua de refrigeración, se condensa la mayor parte del vapor de agua originalmente presente en el gas, mientras que a una temperatura de aproximadamente $30^{\circ}C$, se obtiene un gas que contiene SO_2 , el cual, al lado del nitrógeno, contiene todavía vapor de agua. Puesto que, para llevar a cabo un procedimiento cíclico en el cual no se necesite suminis-

18 MAR 1970



402472

5 trar o descargar ácido sulfúrico del ciclo, la posibilidad de preparar oleum es esencial con respecto a la transposición de Beckmann, será necesario con respecto a la zona de preparación de oleum, C, partir de un gas portador de SO_2 , en el cual la relación molar de SO_2 a H_2O sea mayor que 1:1, con preferencia mayor que 1,5:1.

10 Un gas que contiene SO_2 , que tenga un contenido tan bajo de agua puede obtenerse de una manera sencilla lavando el SO_2 , que se suministra a través de la tubería 3b a la zona de preparación de oleum $\{$, en una zona de lavado H, con la solución de la sal amónica del ácido hidroxilamino-disulfónico formado primeramente como producto intermedio en la zona de síntesis de hidroxilamina A, cuya solución tiene una temperatura de aproximadamente 0°C y que se suministra a la zona de lavado H, a través de la tubería 4a y vuelve a la zona de síntesis de hidroxilamina A, a través de la tubería 4b.

15 En este contacto con el gas que contiene SO_2 para ser lavado, esta solución será calentada hasta aproximadamente 25°C , mientras que el vapor de agua condensa del gas a lavar, como resultado de lo cual la relación SO_2 a H_2O aumenta hasta el valor requerido para la preparación de oleum en la zona C.

20 Es también posible preparar un gas que contiene SO_2 con un contenido tan bajo de agua, mediante el en-



402472

5 friamiento directo de la corriente de gas que contiene SO_2 con otra corriente adecuada del proceso, por ejemplo, la solución concentrada que contiene sulfato amónico y ácido sulfúrico que permanece después que se ha separado la lactama, como resultado de la extracción en un disolvente orgánico inmiscible en agua.

10 En la solución que contiene sulfato amónico y ácido sulfúrico la relación molar entre sulfato amónico y la suma de sulfato amónico y ácido sulfúrico libre estará cerca de la correspondiente al bisulfato de amonio, esto es, aproximadamente 0,5; son posibles desviaciones relativamente pequeñas de esta relación y, en la práctica, la lactama por ejemplo podrá extraer
15 se de soluciones en las cuales la relación molar entre sulfato amónico y la suma de sulfato amónico y ácido sulfúrico varíe desde 0,45 a 0,63. Asimismo si la relación molar en la solución no asciende a 0,5 exactamente, la solución se denominará, tanto más adelante como en las Reivindicaciones, fundamentalmente como una solución "que contiene bisulfato de amonio".
20

En la figura II se presenta un modo de realización de este procedimiento; en lo esencial corresponde con la forma de realización ilustrada mediante la figura 1.

25 La diferencia es que ahora el SO_2 suminis-



402472

trado a la zona C de preparación de oleum a través de la tubería 3b se lava en la zona de lavado H con la solución a descargar de la zona de extracción F, cuya solución fundamentalmente contiene bisulfato de amonio y tiene una temperatura de aproximadamente 20°C y que se suministra a la zona de lavado H, a través de una tubería 13a y se conduce a la zona de combustión G, a través de una tubería 13b, el evaporador K y una tubería 13c.

En su contacto con el gas que contiene SO_2 para lavar, esta solución se calentará a aproximadamente 30°C, mientras el vapor de agua condensa del gas a lavar, como resultado de lo cual la relación SO_2 a H_2O se aumenta hasta el valor requerido para preparar oleum en la zona C.

Cuando el procedimiento descrito anteriormente se aplica a una instalación de caprolactama que tiene una producción anual de 100.000 toneladas será posible, por ejemplo, que un gas que contiene SO_2 obtenido por combustión en una llama de gas natural de una solución previamente concentrada hasta aproximadamente 80% en peso y que consta fundamentalmente de bisulfato de amonio, cuyo gas contiene aproximadamente 5,5% en volumen de H_2O además de 6,8% en volumen de SO_2 , sea lavado en la columna de lavado H con 99.000 kg de solución

18 MAY 1972



402472

exenta de lactama producida en la zona de extracción F,
 durante lo cual la solución se calienta desde 20 a 30°C.
 En una cantidad de 57.000 m³ N por hora y a una tempera-
 tura de 35°C, la corriente de gas que contiene SO₂ se en-
 5 fría entonces a 30°C, con la condensación de aproximada-
 mente 690 Kg de vapor de agua, con lo que la composición
 del gas será la siguiente:

	SO ₂	6,9% en volumen
	H ₂ O	4,1% en volumen
10	O ₂	6,8% en volumen
	CO ₂	5,3% en volumen
	N ₂	76,9% en volumen

Este gas es adecuado para ser convertido a -
 oleum que contenga hasta más del 20% de SO₃ libre. Cuan-
 15 do se emplea un oleum de esa concentración, la oxima de
 ciclohexanona que no ha sido previamente secada y que
 tiene un contenido en humedad de 5-6%, puede ser conver-
 tida todavía fácilmente en caprolactama.

Los siguientes ejemplos numéricos pueden ser-
 20 vir para ilustrar la invención en la que se obtiene -

ε-caprolactama partiendo de ciclohexanona. En el pri-
 mer ejemplo la oximación final ha tenido lugar a un va-
 lor del pH de 4,5, de forma tal que el valor del pH de
 la solución que contiene sulfato amónico y pasa a través
 25 de la tubería 9 asciende a 4,5, es decir, la relación -

9-5-72

18 MAYO



402472

molar

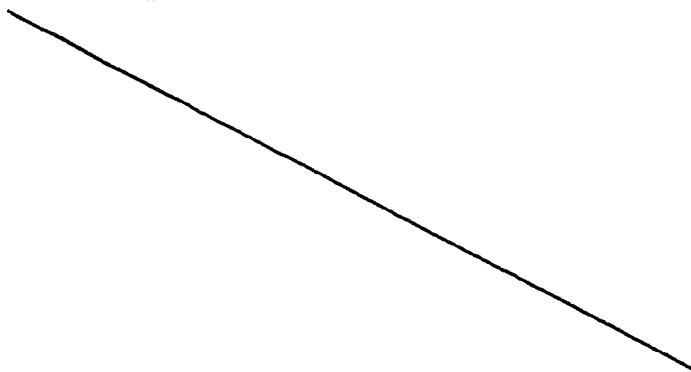
5 $\frac{(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4}{(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4 + \text{H}_2\text{SO}_4}$ 1:1, mientras que en el segundo

ejemplo, la oximación se ha llevado a cabo en contraco-
rriente a un valor del pH de 1,5 como resultado de lo
cual la relación molar

10 $\frac{(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4}{(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4 + \text{H}_2\text{SO}_4}$ en la so-

lución de sulfato amónico que sale fuera asciende a -
0,84:1.

15 Las composiciones de las corrientes principa-
les del procedimiento de los ejemplos están dadas en for-
ma de tablas; la numeración de las corrientes del proce-
dimiento corresponde con los números de las tuberías por
las que pasan las corrientes, de acuerdo con la descrip-
ción de la figura.



18 MAYO 1972



402472

EJEMPLO I

Composiciones de las corrientes en moles

Corriente del procedimiento n°	H ₂ SO ₄	(NH ₂ OH) ₂	(NH ₄) ₂ SO ₄	NH ₄ NO ₃	H ₂ O	NH ₃	ciclohexanona	oxima	caprolactama	cloroforno
4	60	50	110	15	1200					
14					1140	220				
5						100				
6					20			100		
8	150								100	
9			220	15	2420					
10	150		220	15	2420				100	
11										220
12									100	220
13	150		220	15	2420					

1 17 1

EJEMPLO II

Composiciones de las corrientes en moles

Corriente del procedimiento nº	H ₂ SO ₄	(NH ₂ OH) ₂	(NH ₄) ₂ SO ₄	NH ₄ NO ₃	H ₂ O	NH ₃	ciclohexanona	oxima	caproilato	cloroforno
4	60	50	110	15	1200					
14					560	150				
5							100			
6					20			100		
8	150								100	
9	35		185	15	1840					
10	185		185	15	1840				100	
11										850
12									100	850
13	185		185	15	1840					

402472

18 MAYO 1972



18 MAYO



402472

5 En el procedimiento de acuerdo con el ejemplo I una solución (corriente 10) que contiene aproximadamente 11,3% en peso de lactama se extrae con cloroformo, resultando, de una parte, una solución de 30% en peso de lactama en cloroformo y, de la otra, una solución de 51% en peso de ácido sulfúrico y sulfato amónico.

10 En el procedimiento de acuerdo con el ejemplo II, la solución de lactama (corriente 10) a extraer contiene menos agua como resultado de condiciones diferentes en la oximación, pero se requiere una cantidad mayor de cloroformo debido al contenido de ácido más elevado, que tiene una influencia desfavorable sobre el coeficiente de distribución de la lactama en la extracción. Se extrae una solución que contiene 13% en peso de lactama, produciendo, por una parte, una solución al 10% en peso de lactama en cloroformo y de otra una solución al 56% en peso de ácido sulfúrico y sulfato amónico.

20 Desde un punto de vista económico, se prefiere el procedimiento de acuerdo con el ejemplo II con respecto al del ejemplo I, en vista de la cantidad menor de NH_3 empleada y de la cantidad menor de combustible empleada en la descomposición térmica de la solución mas concentrada de sulfato amónico y ácido sulfúrico.

25 La presente solicitud, que corresponde a la presentada en Holanda, el 7 de Mayo de 1971, bajo el

18 MAYO



402472

Nº 7106341 y el 3 de Noviembre de 1971, bajo el Nº 7115110, se acoge a los beneficios del Artículo 51 del vigente Estatuto sobre Propiedad Industrial.

5

REIVINDICACIONES

10

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:

15

1.- Procedimiento para la preparación de lactamas por transposición intramolecular de las cetoximas correspondientes en un medio de ácido sulfúrico y recuperación de las lactamas de este medio de ácido sulfúrico, mediante extracción con un disolvente orgánico para lactamas inmisible en agua, estando caracterizado este procedimiento porque el medio de ácido sulfúrico que contiene lactama se mezcla primero con soluciones acuosas que contienen sulfato amónico y se obtienen como subproductos en la síntesis --conocida en sí misma-- de sulfato de hidroxilamonio sobre la base de una

20

25

9-5-72

ME

18 MAY 1950



402472

5 reducción de nitrito amónico con dióxido de azufre, se
guida por el tratamiento de la solución resultante que
contiene sulfato de hidroxilamonio durante la oxima-
ción de cetonas a cetoximas, y porque, después de la
extracción de la lactama la solución ácida restante
que contiene bisulfato de amonio en agua se descompo-
ne térmicamente -posiblemente después de una concen-
tración posterior- con recuperación de gas que contie-
ne dióxido de azufre.

10 2.- Procedimiento de acuerdo con la reivindi-
cación, 1 caracterizado porque el gas recuperado que
contiene dióxido de azufre se recircula de nuevo a la
síntesis de sulfato de hidroxilamonio, o a una sínte-
sis de ácido sulfúrico/oleum para la preparación de -
15 las cantidades de sulfato de hidroxilamonio u oleum
requeridas en el procedimiento.

20 3.- Procedimiento de acuerdo con las reivin-
dicaciones 1 y 2, caracterizado porque -después de en-
friamiento y condensación del vapor de agua, parte del
gas que contiene dióxido de azufre y se obtiene duran-
te la descomposición térmica es secado posteriormente
de nuevo con condensación de vapor de agua- es lavado
con una solución del ácido hidroxilamino-disulfónico,
cuya solución puede aún hidrolizarse y se obtiene co-
25 mo producto intermedio en la síntesis de sulfato de -

9-5-72

MCE

18 MAYO 1972



402472

hidroxilamonio, con lo que el gas que contiene dióxido de azufre, que ha sido secado posteriormente por este medio, se emplea para la preparación de ácido sulfúrico y oleum.

5 4.- Procedimiento de acuerdo con las reivindicaciones 1 y 2, caracterizado porque -después de enfriamiento y condensación del vapor de agua- parte del gas que contiene dióxido de azufre y agua, y obtenido durante la descomposición térmica es secado posteriormente- de nuevo con condensación de vapor de agua- mediante lavado de la corriente de gas con la solución que contiene fundamentalmente hidrógeno-sulfato de amonio, con separación de una corriente de gas que tiene una relación molar $SO_2:H_2O$ mayor que 1:1, preferiblemente mayor que 1-5:1, después de lo cual el gas que contiene dióxido de azufre secado de esta forma se emplea para la preparación de ácido sulfúrico u oleum.

10

15

20 5.- Procedimiento para la preparación de lactamas.

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

mce



18 MAYO 1972

402472

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

Madrid, 18 MAYO 1972

P.A.

Alberto de Elzaburu
Por Poder

ME

9-5-72
JAR.



402472

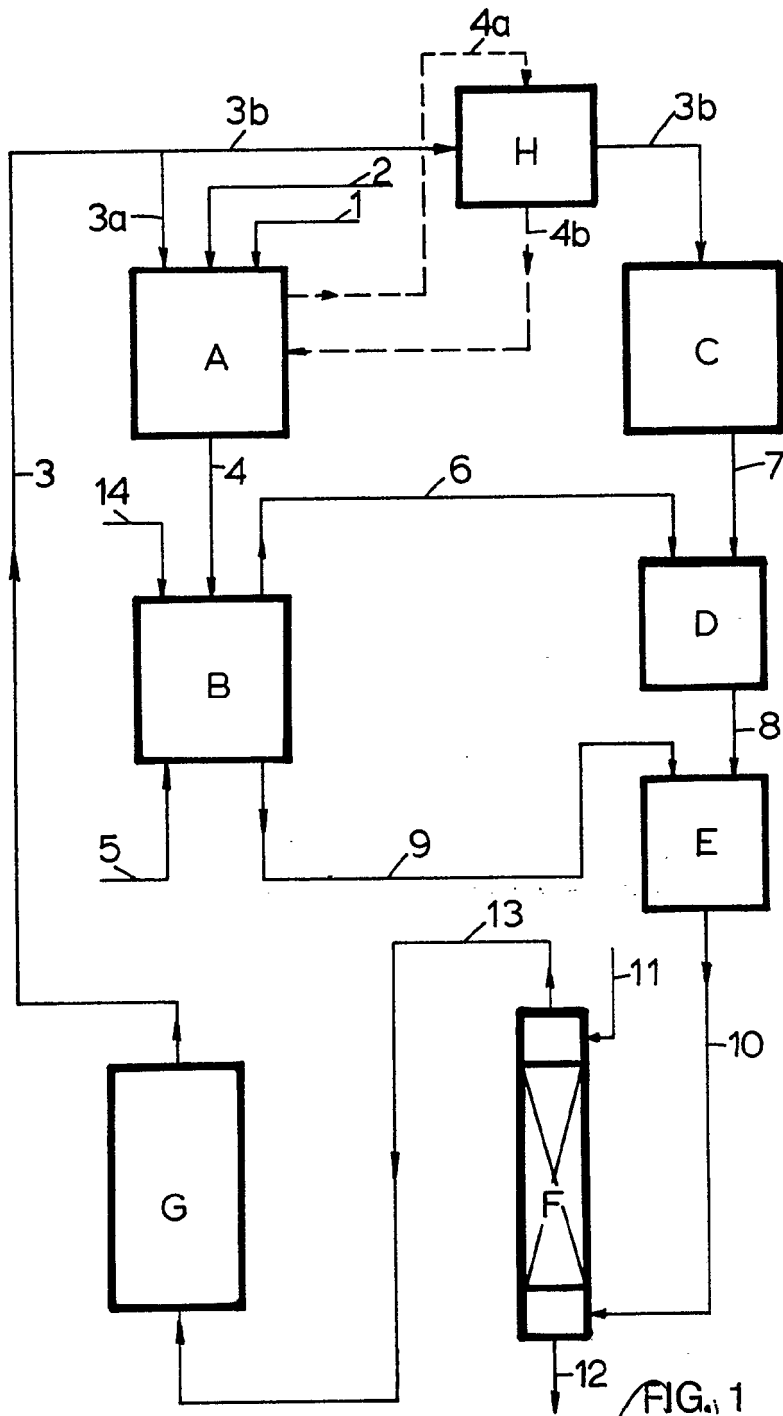


FIG. 1

Alberio de Elzaburu
For Poder.

98 MAR 1968



402472

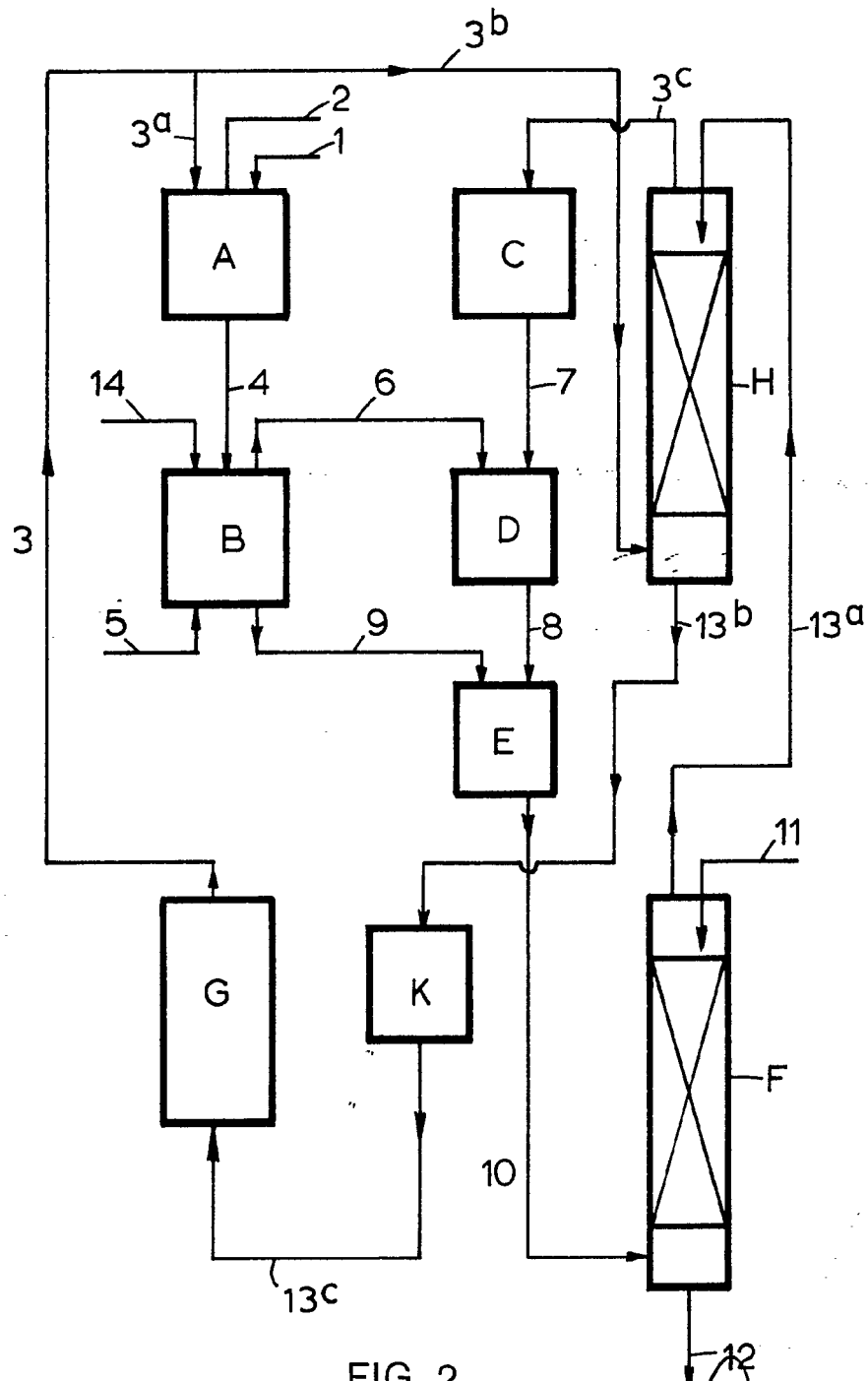


FIG. 2

Alberio de Elzaburu
Por Poderes