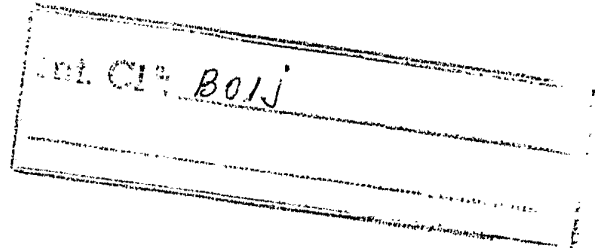


0.10518



PATENTE DE INVENCION

412312



MEMORIA DESCRIPTIVA

sobre:

"PERFECCIONAMIENTOS EN CATALIZADORES APTOS PARA LA OXIDACION
Y LA AMOXIDACION DE HIDROCARBUROS OLEFINICOS"

Solicitante: SNAM PROGETTI S.p.A.
entidad italiana, establecida en
MILAN (Italia), Corso Venezia, 16.

Prioridad: Solicitud de Patente N° 21248 A/72,
depositada en Italia en
1 de Marzo de 1972.

412312



La presente invención se refiere a perfeccionamientos en catalizadores aptos para la oxidación y la amoxidación de hidrocarburos olefínicos. Estos catalizadores se emplean para la síntesis de nitrilos insaturados, aldehidos insaturados y dienos conjugados a partir de olefinas.

En la técnica se conocen ya catalizadores para la oxidación y la amoxidación de olefinas; los más importantes de entre ellos son los que comprenden oxicompuestos formados por al menos dos elementos tales como Mo-Bi, Sb-U, Sb-Sn, Sb-Fe.

Además es conocido por la Patente norteamericana Nº 3.164.627 que el telurio en forma oxidada ha sido propuesto para la producción de nitrilos insaturados haciendo reaccionar olefinas, oxígeno o un gas que contenga oxígeno y amoníaco.

En la Patente norteamericana Nº3.164.626 se describe también el empleo de telurio, en mezcla con óxidos de otros metales, como catalizador para la reacción de amoxidación. Estos catalizadores no proporcionan siempre valores satisfactorios de conversión, selectividad y productividad, con respecto al producto deseado, y ello se traduce, además, en onerosos procesos para la separación y extracción de los subproductos.

Ahora se han descubierto, y ello constituye el objeto de la presente invención, ciertos perfeccionamientos en catalizadores aptos para la oxidación y la amoxidación de hidrocarburos olefínicos, que permiten realizar la síntesis de nitrilos insaturados, particularmente de acrilonitrilo,

412312



con elevada selectividad y conversión.

Los catalizadores perfeccionados según la invención pueden emplearse para la amoxidación de olefinas con el fin de obtener nitrilos insaturados.

5 Los mismos catalizadores pueden también emplearse para la oxidación parcial de olefinas a fin de obtener aldehidos insaturados.

Otra aplicación de los catalizadores perfeccionados según la invención consiste en la deshidrogenación oxidativa
10 de olefinas con el fin de obtener dienos conjugados.

Los perfeccionamientos según la invención se caracterizan porque dichos catalizadores se constituyen esencialmente por telurio, titanio y molibdeno, pudiéndose representar esquemáticamente por la fórmula



donde X es un elemento seleccionado entre los pertenecientes a los grupos IB, IIB, IIIA, IIIB, IVB, VIIB y VIII del sistema periódico de los elementos. Con particular preferencia se emplean plata, zinc, cadmio, aluminio, cerio, lantano,
20 circonio, manganeso, hierro, cobalto y níquel.

En la fórmula arriba indicada, los índices están comprendidos entre los siguientes límites:

m entre 0 y 0,3
n " 1 " 15
25 p " 0,05 " 0,4
q " 0 " 0,3

mientras que r representa el valor necesario para satisfacer las respectivas valencias de los distintos elementos presen-

412312



tes en la fórmula.

El análisis de rayos X revela que el catalizador resulta estar formado por oxicompuestos complejos de los elementos que forman parte de la composición. No existe evidencia de la existencia de molibdatos, óxidos de molibdeno y óxidos de telurio libres.

El catalizador perfeccionado según la presente invención puede prepararse a partir de las materias primas normalmente disponibles.

10 Ventajosamente se emplean, como materias primas para la introducción del telurio, el ácido telúrico, el óxido de telurio, el telurio metálico.

Según cual sea el compuesto seleccionado, será suficiente disolverlo en agua (ello es el caso del ácido telúrico) o bien tratarlo con ácidos minerales, por ejemplo con ácido nítrico, y/o agentes oxidantes, por ejemplo peróxido de hidrógeno, como en el caso del dióxido de telurio o del telurio metálico.

Como materia prima que contenga titanio se recurre al dióxido de titanio en forma rutilo o anatasa, al tricloruro y al tetracloruro. Los cloruros son transformados en óxidos por precipitación con amoníaco.

El molibdeno se emplea en las formas preferentes de molibdato o paramolibdato amónico, que son solubles en agua.

25 Con respecto al fósforo se emplean soluciones concentradas de ácido fosfórico, mientras que con respecto a los demás elementos que pueden formar parte del catalizador se emplean sales solubles de los mismos, tales como nitratos,

412312



acetatos, carbonatos y bicarbonatos.

El proceso de preparación depende del tipo seleccionado de materias primas y comprende, en todo caso, una serie de operaciones bien conocidas para las personas entendidas en la materia, tales como precipitación, coprecipitación, filtra-
5 ción, secado, atomización, calcinación, extrusión y tableteado.

La forma de realización preferente de dicho proceso comprende las operaciones de disolver en agua ácido telúrico, eventualmente añadir ácido fosfórico, preparar una solución
10 de paramolibdato amónico, mezclar las dos soluciones entre sí y con dióxido de titanio en polvo, secar la mezcla por calentamiento a $80 \pm 100^{\circ}\text{C}$ bajo agitación, extrudir o tabletear el producto resultante después de la adición de un lu-
15 bricante y eventualmente de un producto (por ejemplo bicarbonato amónico) capaz de proporcionar la porosidad deseada.

Alternativamente, la suspensión formada por dióxido de titanio y por los compuestos disueltos de telurio, molibdeno y fósforo, puede atomizarse para la obtención del cataliza-
20 dor en forma apropiada para su empleo en lecho fluido.

En todos los casos, el catalizador es activado por calcinación en aire a una temperatura comprendida entre 450 y 550°C durante un tiempo que varía entre media hora y 20 horas, y preferentemente a una temperatura comprendida
25 entre 480°C y 530°C y durante un tiempo comprendido entre 1 y 4 horas.

El catalizador así obtenido se emplea para la producción de nitrilos, oxiderivados, dienos conjugados operando

412312



en lecho fijo o lecho fluido según procesos en los que se emplea una olefina, oxígeno o un gas que contenga oxígeno y, en el caso de nitrilos, también de amoníaco a una temperatura comprendida entre 350°C y 550°C, preferiblemente entre
5 400°C y 500°C.

La reacción mediante empleo de los catalizadores perfeccionados según la invención es particularmente útil cuando el compuesto olefínico de partida se selecciona entre propileno e isobutileno con un grado de pureza más o menos
10 elevado.

El oxígeno se introduce generalmente como aire, a fin de aprovechar la ventaja de la presencia de nitrógeno para la disipación del calor producido en la reacción de oxidación.

15 La relación molar en la que se hacen reaccionar la olefina y el aire está comprendida entre 1 : 5 y 1 : 15, y preferiblemente entre 1 : 10 y 1 : 13.

El amoníaco, cuando está previsto, se alimenta en una relación molar con respecto a la olefina comprendida entre
20 1,5 : 1 y 0,9 : 1.

Generalmente, las reacciones de amoxidación y oxidación se realizan en presencia de vapor de agua. La relación molar respecto a la olefina, en la cual se alimenta el vapor, está comprendida entre 20 : 1 y 2 : 1, según las condiciones de
25 reacción y la particular reacción considerada.

La presión bajo la cual se verifican las reacciones está comprendida entre la presión atmosférica y 5 atmósferas, mientras que la velocidad espacial de la olefina alimentada

412312



está comprendida entre 10 y 500 h⁻¹, preferiblemente entre 50 y 200 h⁻¹, debiéndose entender por velocidad espacial los volúmenes de olefina enviados al reactor por volumen de catalizador y por hora, calculados a temperatura ambiente y presión atmosférica.

La invención se describe más claramente y en detalle a continuación, mediante los siguientes ejemplos. Es evidente, sin embargo, que pueden efectuarse múltiples modificaciones por los entendidos en la materia sin apartarse del ámbito y el espíritu de la invención.

En los ejemplos, los términos de conversión y selectividad deben interpretarse del modo siguiente:

$$\text{conversión} = \frac{\text{moles olefina que entran en el reactor} - \text{moles olefina que salen del reactor}}{\text{moles olefina que entran en el reactor}} \cdot 100$$

$$\text{selectividad} = \frac{\text{moles producto final obtenido}}{\text{moles olefina que entran en el reactor} - \text{moles olefina que salen del reactor}} \cdot 100$$

EJEMPLO 1

Se disolvieron 57 gramos de ácido telúrico (H₆TeO₆) en 200 cc de agua y a esta mezcla se añadieron 4 gramos de ácido fosfórico en una solución al 85 %.

Por separado se disolvieron 4,4 gramos de paramolibdato amónico en 30 cc de agua.

Las dos soluciones se mezclaron entre sí y luego se adicionaron 80 gramos de dióxido de titanio.

Todo ello se secó por calentamiento y bajo agitación discontinua.

412312



La masa se activó por calcinación a 520°C en aire durante 3 horas en una mufla.

La masa resultante se molió y se utilizó la fracción con una granulometría comprendida entre 45 y 150 mallas
5 ASTM.

En un microreactor calentado por un horno eléctrico se introdujeron 6 cc de catalizador. Se previó la posibilidad de extraer muestras de los gases que entraban en el reactor y que salían del mismo a fin de analizarlos en una unidad
10 cromatográfica.

Alimentando propileno, aire, amoníaco y agua en las relaciones molares de 1/12/1,3/10 con las velocidades espaciales de propileno y las temperaturas que se indican a continuación, se obtuvieron los siguientes resultados:

15	Temperatura de reacción	Velocidad espacial de propileno (h ⁻¹)	Conversión de propileno (moles %)	Selectividad respecto a acrilonitrilo (moles %)
	465	50	99	81
	475	75	96	80

20 EJEMPLO 2

Se pesaron 42 gramos de ácido telúrico (H₆TeO₆) y se disolvieron en 200 cc de agua. Separadamente se disolvieron 3,2 g de paramolibdato amónico en 20 cc de agua.

Las dos soluciones se mezclaron y luego se añadieron a
25 la mezcla 60 g de dióxido de titanio. El conjunto se secó por calentamiento bajo lenta agitación continua. La masa

412312



se calcinó en una mufla a 500°C durante 5 horas en corriente de aire. Luego se molió la masa y, por tamizado, se separó la fracción con una granulometría comprendida entre 45 y 150 mallas ASTM.

5 6 cc de catalizador se introdujeron en un microrreactor, al cual se alimentaron propileno, amoníaco, aire y agua en las relaciones molares de 1/1,3/12/10, siendo las condiciones de ensayo las que se indican en la siguiente tabla, en la que se indican también los resultados obtenidos.

10	Temperatura de reacción (°C)	Velocidad espacial de propileno (h ⁻¹)	Conversión de C ₃ H ₆ (moles %)	Selectividad respecto a ACN (moles %)
	475	25	91	80
	465	25	83,4	83

15 EJEMPLO 3

Se pesaron 9 gramos de paramolibdato amónico y se disolvieron en 100 cc de agua. Se añadieron 32 g de telurio metálico, manteniéndose el mismo en suspensión mediante fuerte agitación. La mezcla se calentó a 60°C y luego se
20 adicionaron lentamente 200 cc de peróxido de hidrógeno de 120 volúmenes, manteniéndose la temperatura siempre por debajo de 95°C.

Finalmente se obtuvo una solución, a la cual se adicionaron 4 gramos de ácido fosfórico al 85 %.

25 La solución se mezcló con 80 g de dióxido de titanio y se secó por calentamiento bajo agitación intermitente.

412312



El catalizador se calcinó a 530°C durante 3 horas en una mufla en corriente de aire.

6 cc de catalizador con una granulometría comprendida entre 45 y 150 mallas ASTM se introdujeron en un microrreactor, al cual se alimentaron propileno, amoníaco, aire y agua en las relaciones molares de 1/1,3/11,5/10. Las condiciones de ensayo y los resultados se indican en la siguiente tabla.

10	Temperatura de reacción (°C)	Velocidad espacial de propileno (h ⁻¹)	Conversión de propileno (moles %)	Selectividad respecto a ACN (moles %)
	475	50	79	88
	460	25	97	82

15 EJEMPLO 4

Se pesaron 280 gramos de una solución de TiCl₃ al 15 % y se precipitó titanio por adición de 150 cc de hidróxido amónico al 32 % y 10 cc de peróxido de hidrógeno al 35 %.

El precipitado se filtró y se lavó tres veces con 100 cc de agua amoniacal (1 % de NH₃).

Separadamente se disolvieron 100 g de ácido telúrico (H₆TeO₆) en 10 cc de agua. A esta mezcla se añadieron 1,9 gramos de paramolibdato amónico y 0,3 gramos de ácido fosfórico al 85 %.

25 La solución resultante se adicionó al precipitado preparado anteriormente y se homogeneizó mediante agitación.

Todo ello se secó por calentamiento y luego se calcinó

412312

2



durante 2 horas a 520°C en corriente de aire en una mufla.

La fracción con una granulometría comprendida entre 45 y 150 mallas ASTM se recogió, y 6 cc de dicha fracción se introdujeron en un microrreactor. A este microrreactor se alimentaron propileno, amoníaco, aire y agua en las relaciones molares de 1/1,3/12/10 en las condiciones de ensayo que se indican en la siguiente tabla, en la cual se indican también los resultados obtenidos.

10	Temperatura de reacción (°C)	Velocidad espacial de C_3H_6 (h^{-1})	Conversión de propileno (moles %)	Selectividad respecto a acrilonitrilo (moles %)
	475	50	81	80
	470	25	99	82

15 EJEMPLO 5

Se preparó un catalizador de acuerdo con el procedimiento descrito en el Ejemplo 4. Sin embargo, se emplearon 490 gramos de una solución de $TiCl_3$ al 15 %, 300 cc de hidróxido amónico al 32 % y 10 cc de peróxido de hidrógeno de 120 volúmenes. Todas las otras cantidades de reactivos fueron las mismas. En la reacción de amoxidación de propileno, efectuada en las condiciones experimentales que se indican en la siguiente tabla y con una relación molar de alimentación entre propileno, amoníaco, aire y agua igual a 1/1,3/11/10, se obtuvieron los resultados que se indican en la siguiente tabla.

412312



Temperatura de reacción (°C)	Velocidad espacial de propileno (h ⁻¹)	Conversión de C ₃ H ₆ (moles %)	Selectividad respecto a ACN (moles %)
475	50	66	75
5 465	25	97	77

EJEMPLO 6

Se disolvieron 38 gramos de ácido telúrico en 150 cc de agua y se añadieron a una solución preparada a partir de 3 gramos de paramolibdato amónico, 4 gramos de ácido fosfórico en solución al 85 % y 50 cc de agua. La solución resultante se vertió en 200 cc de sol de sílice "LudoxA.S." con un contenido de SiO₂ de un 30 %.

Todo ello se secó por calentamiento bajo agitación y después se calcinó en una mufla a 520°C durante 3 horas en corriente de aire.

6 cc de catalizador con una granulometría comprendida entre 45 y 50 mallas se extrajeron e introdujeron en un microrreactor, al cual se alimentaron propileno, amoníaco, aire y agua en relaciones molares equivalentes a 1/1,3/12/10.

En las condiciones experimentales arriba citadas se obtuvieron los resultados que se indican en la siguiente tabla.



412312



	Temperatura de reacción (°C)	Velocidad espacial de C_3H_6 (h^{-1})	Conversión de C_3H_6 (moles %)	Selectividad respecto a ACN (moles %)
	465	50	98	60
5	470	75	96	56

Este ejemplo demuestra que las composiciones catalíticas desprovistas de titanio proporcionan resultados considerablemente inferiores en cuanto a la selectividad respecto a acrilonitrilo.

La introducción del soporte de sílice se debe al hecho de que la composición catalítica no se halla en estado sólido a la temperatura de reacción y se forma una masa vítrea que obtura el reactor.

15 EJEMPLO 7

Se preparó un catalizador de acuerdo con el procedimiento descrito en el Ejemplo 6. Se emplearon las mismas cantidades de reactivos pero, en lugar de sol de sílice "Ludox", se emplearon 60 gramos de α -alúmina.

20 En la reacción de amoxidación de propileno, con las mismas condiciones experimentales citadas en el Ejemplo 6, se obtuvieron los resultados que se indican en la siguiente tabla.

412312



Temperatura de reacción (°C)	Velocidad espacial de C_3H_6 (h^{-1})	Conversión de C_3H_6 (moles %)	Selectividad respecto a ACN (moles %)
460	25	56	58
5 475	12,5	80	58

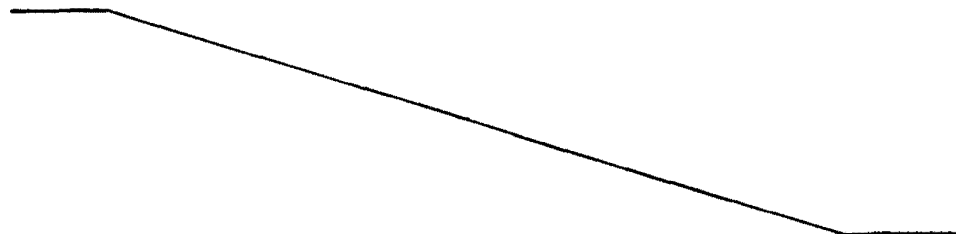
Este ejemplo demuestra, al igual que el precedente, que el rendimiento del catalizador está vinculado a la presencia de titanio. La sustitución del mismo por óxido de aluminio se traduce en una drástica reducción de la selectividad.

EJEMPLO 8

Los catalizadores preparados de acuerdo con los Ejemplos 2, 4 y 7 se emplearon en la reacción de oxidación de propileno a acroleína. 6 cc de catalizador se introdujeron en un microrreactor.

La temperatura se aumentó al valor deseado mediante envío de únicamente aire a través del reactor, a una velocidad espacial de 600 cc por cc de catalizador por hora. Después se alimentaron también propileno y vapor de agua.

Las condiciones de la reacción y los resultados obtenidos se indican esquemáticamente en la siguiente tabla.



412312²⁴

Catalizador	Relaciones molares C ₃ H ₆ /aire/agua	Temperatura de reacción (°C)	Velocidad espacial de propileno (h ⁻¹)
según Ej. 2	1/12/7	450	50
5	según Ej. 4	1/12/8	445
		1/13,5/8	465
según Ej. 7	1/12/7	450	25

10	Catalizador	Relaciones molares C ₃ H ₆ /aire/agua	Conversión de C ₃ H ₆ (moles %)	Selectividad respecto a acroleína (moles %)
	según Ej. 2	1/12/7	73	81
15	según Ej. 4	1/12/8	80	95
		1/13,5/8	92	85
	según Ej. 7	1/12/7	63	70

EJEMPLOS 9 a 18

Se disolvieron 32 gramos de ácido telúrico (H₆TeO₆) en 150 cc de agua y a dicha mezcla se añadieron 2,3 gramos de ácido fosfórico en soluciones al 85 %. Separadamente se disolvieron 2 gramos de paramolibdato amónico en 30 cc de agua.

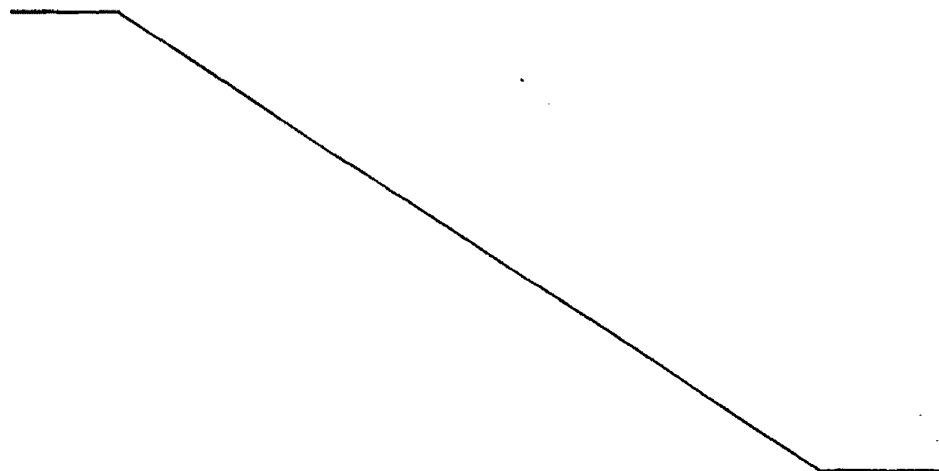
Una tercera solución se preparó disolviendo en 100 cc



de agua, en el caso del Ejemplo 9 2,4 g de nitrato de plata,
en el caso del Ejemplo 10 4,2 g de nitrato de zinc, en el
caso del Ejemplo 11 3,8 g de acetato de cadmio, en el caso
del Ejemplo 12 5,3 g de nitrato de aluminio, en el caso
5 del Ejemplo 13 6,1 g de nitrato de cerio, en el caso del
Ejemplo 14 6 g de nitrato de circonio, en el caso del
Ejemplo 15 5 g de una solución al 50 % de nitrato de manga-
neso, en el caso del Ejemplo 16 5,6 g de nitrato de hierro,
en el caso del Ejemplo 17 4,1 g de nitrato de cobalto, en
10 el caso del Ejemplo 18 4,1 g de nitrato de níquel.

Se mezclaron las tres soluciones y luego se añadieron
50 g de dióxido de titanio. Todo ello se secó por calenta-
miento bajo agitación continua. El producto obtenido se
calcínó a 500°C en aire durante 4 horas en una mufla. La
15 masa se molió, y la fracción con una granulometría del orden
de 45 a 150 mallas ASTM se puso a prueba en la reacción de
amoxidación de propileno, operando tal como se ha descrito
en el Ejemplo 1.

Los resultados se indican en la siguiente tabla.



412312



Ejemplo	Elementos que constituyen el catalizador	Velocidad espacial de propileno (h^{-1})	Temperatura de reacción ($^{\circ}C$)	
	9	Ag-Te-Ti-Mo-P-O	50	467
	10	Zn-Te-Ti-Mo-P-O	25	460
5	11	Cd-Te-Ti-Mo-P-O	50	470
	12	Al-Te-Ti-Mo-P-O	50	465
	13	Ce-Te-Ti-Mo-P-O	50	460
	14	Zr-Te-Ti-Mo-P-O	50	470
	15	Mn-Te-Ti-Mo-P-O	40	465
10	16	Fe-Te-Ti-Mo-P-O	25	465
	17	Co-Te-Ti-Mo-P-O	25	475
	18	Ni-Te-Ti-Mo-P-O	25	465

15	Ejemplo	Conversión de C_3H_6 (moles%)	Selectividad respecto a ACN (moles %)
	9	92,2	77,4
	10	91,5	83,8
	11	89,8	78,1
20	12	95,5	78,4
	13	96	76
	14	84	83,2
	15	89,4	80
	16	94	78
25	17	94,7	78,3
	18	71,4	81,4

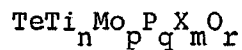
412312



NOTA

Descrita suficientemente la naturaleza del invento, así como la manera de ponerlo en práctica, se hace constar que todo cuanto no altere, cambie o modifique, su principio
5 fundamental, puede quedar sometido a variaciones de detalle. También se hace constar que esta invención corresponde a la descrita en la Solicitud de Patente No 21248 A/72, depositada en Italia en 1 de Marzo de 1972, cuya prioridad se reivindica de acuerdo con los Convenios Internacionales
10 en vigor, siendo lo esencial y por lo que se solicita Patente de Invención, por veinte años, lo que queda resumido en las siguientes reivindicaciones:

1ª.- Perfeccionamientos en catalizadores aptos para la oxidación y la amoxidación de hidrocarburos olefínicos,
15 caracterizados porque dichos catalizadores se constituyen por compuestos de la fórmula



donde X es un elemento seleccionado entre los pertenecientes a los grupos IB, IIB, IIIA, IIIB, IVB, VIIB y VIII del
20 sistema periódico de los elementos, y los índices son números enteros o fraccionarios que cumplen las siguientes condiciones:

$$\begin{aligned} 0 &\leq m \leq 0,3 \\ 1 &\leq n \leq 15 \\ 25 \quad 0,05 &\leq p \leq 0,4 \\ 0 &\leq q \leq 0,3 \end{aligned}$$

mientras que r tiene el valor necesario para satisfacer las respectivas valencias de los distintos elementos presentes

412312

2



en la fórmula.

2^a.- Perfeccionamientos en catalizadores según la reivindicación 1^a, caracterizados porque el elemento X se selecciona particularmente entre plata, zinc, cadmio, aluminio, cerio, lantano, circonio, manganeso, hierro, cobalto y níquel.

3^a.- Perfeccionamientos en catalizadores según las reivindicaciones 1^a y 2^a, caracterizados porque para preparar dichos catalizadores se hace reaccionar telurio, ácido telúrico u óxido de telurio con derivados de los otros elementos en cantidades que corresponden a las proporciones en las que dichos elementos forman parte del catalizador.

4^a.- Perfeccionamientos en catalizadores según la reivindicación 3^a, caracterizados porque el compuesto de partida utilizado para la aportación de titanio se selecciona entre dióxido de titanio, tricloruro de titanio y tetracloruro de titanio.

5^a.- Perfeccionamientos en catalizadores según la reivindicación 3^a, caracterizados porque el molibdeno se aporta en forma de molibdato amónico o de paramolibdato amónico.

6^a.- Perfeccionamientos en catalizadores según la reivindicación 3^a, caracterizados porque la materia prima empleada en la reacción para aportar el fósforo se constituye por soluciones concentradas de ácido fosfórico.

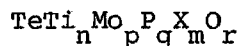
7^a.- Perfeccionamientos en catalizadores según la reivindicación 3^a, caracterizados porque la reacción se

412312



realiza utilizando, como compuesto de partida de los
elementos seleccionados entre los de los grupos IB, IIB,
IIIA, IIIB, IVB, VIIB y VIII del sistema periódico de los
elementos, una sal soluble de los mismos elementos selec-
5 cionada entre nitratos, acetatos, carbonatos y bicarbonatos.

8^a.- Perfeccionamientos en catalizadores según la
reivindicación 1^a, caracterizados porque para la oxidación y la
amoxidación de hidrocarburos olefínicos, esta reacción se
lleva a cabo en presencia de un catalizador constituido
10 por un compuesto de la fórmula



donde X es un elemento seleccionado entre los pertenecien-
tes a los grupos IB, IIB, IIIA, IIIB, IVB, VIIB y VIII
del sistema periódico de los elementos, y los índices son
15 números enteros o fraccionarios que cumplen las siguientes
condiciones:

$$0 \leq m \leq 0,3$$

$$1 \leq n \leq 15$$

$$0,05 \leq p \leq 0,4$$

20 $0 \leq q \leq 0,3$

mientras que r tiene el valor necesario para satisfacer
las respectivas valencias de los distintos elementos pre-
sentes en la fórmula.

9^a.- Perfeccionamientos en catalizadores según la
25 reivindicación 8^a, caracterizados porque el elemento X se
selecciona particularmente entre plata, zinc, cadmio,
aluminio, cerio, lantano, circonio, manganeso, hierro,
cobalto y níquel.



412312

10^a.- Perfeccionamientos en catalizadores según las reivindicaciones 8^a y 9^a, caracterizados porque la reacción se efectúa a una temperatura comprendida entre 350°C y 550°C.

5 11^a.- Perfeccionamientos en catalizadores según la reivindicación 10^a, caracterizados porque la reacción se efectúa a una temperatura preferiblemente comprendida entre 400°C y 500°C.

10 12^a.- Perfeccionamientos en catalizadores según una o varias de las reivindicaciones 8^a a 11^a, caracterizados porque la reacción se realiza alimentando una olefina y aire en una relación molar comprendida entre 1 : 5 y 1 : 15, y preferiblemente entre 1 : 10 y 1 : 13.

15 13^a.- Perfeccionamientos en catalizadores según una o varias de las reivindicaciones 8^a a 11^a, caracterizados porque la reacción se realiza alimentando una olefina, aire y amoníaco, estando comprendida la relación olefina/aire entre 1 : 5 y 1 : 15, y la relación olefina/NH₃ entre 1 : 1,5 y 1 : 0,9.

20 14^a.- Perfeccionamientos en catalizadores según una o varias de las reivindicaciones 8^a a 13^a, caracterizados porque la reacción se efectúa en presencia de vapor de agua en una relación molar con respecto a la olefina comprendida entre 20 : 1 y 2 : 1.

25 15^a.- Perfeccionamientos en catalizadores según una o varias de las reivindicaciones 8^a a 14^a, caracterizados porque la reacción se efectúa a una presión comprendida entre la presión atmosférica y 5 atmósferas.

bg

412312



16^a.- PERFECCIONAMIENTOS EN CATALIZADORES APTOS PARA
LA OXIDACION Y LA AMOXIDACION DE HIDROCARBUROS OLEFINICOS,
tal y como queda descrito y reivindicado en la presente
memoria que consta que veintidos hojas mecanografiadas
5 por una sola cara.

BARCELONA, 24 de Febrero de 1973.

SNAM PROGETTI S.p.A.
P.P.

J. GOMEZ ACEBO Y MODET
p. p. Fac. E. Fernandez Colón

A handwritten signature in black ink, appearing to be 'J. Gomez Acebo y Modet'. The signature is written in a cursive style and is positioned below the typed name.

A large, stylized handwritten mark or signature in black ink, located in the lower-left quadrant of the page. It consists of several loops and a long vertical stroke.