

43979

29 JUL. 1975

P.- 60.687

Zl-PA.Dr.
Ha/Sch

MEMORIA DESCRIPTIVA

Int. Cl. B01J; C01B

para solicitar PATENTE DE INVENCION.

A nombre de KALI-CHEMIE AKTIENGESELLSCHAFT

entidad alemana

establecida en Hans-Bücker-Allee 20, 3000 Hannover,
República Federal Alemana.

por: "PROCEDIMIENTO PARA LA RECUPERACION DE PENTACLORURO
DE ANTIMONIO"

19-7-75

- 1 -

La invención se refiere a la recuperación de pentacloruro de antimonio a partir de soluciones agotadas de catalizador.

5 En muchos procedimientos a gran escala técnica para la preparación de hidrocarburos clorofluorados, en especial de clorofluormetanos y clorofluoretanos, los compuestos clorados de partida se hacen reaccionar con fluoruro de hidrógeno en presencia de catalizadores de pentacloruro de antimonio, en los que una parte del cloro es reemplazada por flúor. Los compuestos preparados según estos
10 procedimientos han adquirido gran importancia como disolventes y agentes frigorígenos, pero son también utilizados como gases propulsores en la industria de los aerosoles.

15 Según muestra la experiencia, la duración en servicio útil de las soluciones de catalizador utilizadas es limitada. Esta depende considerablemente de influencias externas, tales como por ejemplo de la pureza de los productos brutos utilizados o del tipo de la reacción a catalizar. Por presencia de impurezas en los participantes en la reacción utilizados se puede llegar a la formación de compuestos orgánicos de alto punto de ebullición, que a causa de su baja presión de vapor en las condiciones de la reacción abandonan el sistema de reacción
20 sólo en cantidades pequeñas, y a consecuencia de su enri

quecimiento, diluyen la solución de catalizador. Además, con participantes en la reacción que no están absolutamente anhidros, se puede introducir agua en el sistema de reacción. Por lo tanto, se puede llegar como consecuencia de ello al enriquecimiento con compuestos complejos de cloruro de antimonio-agua, altamente corrosivos y que se descomponen sólo lentamente. Por corrosión en los aparatos y en partes de la instalación se forman además de ello en el sistema compuestos complejos de hierro-antimonio que ya no son descomponibles. Por las sustancias extrañas al sistema introducidas, de naturaleza orgánica e inorgánica, se llega a la dilución y a la inactivación parcial del pentacloruro de antimonio en la solución de catalizador, de modo que disminuye la velocidad de reacción y, por razones de economía, la solución agotada de catalizador tiene que ser cambiada por pentacloruro de antimonio químicamente puro. El elevado precio de nueva adquisición del pentacloruro de antimonio y la eliminación extraordinariamente costosa de las soluciones de catalizador consumidas hacen apremiantemente necesaria una recuperación del pentacloruro de amonio.

Para poder llevar a cabo económicamente tal procedimiento de transformación, el consumo de energía, tiempo y aparatos necesarios tiene que ser mantenido lo más pequeño posible.

El intento de recuperar por destilación directa pentacloruro de antimonio a partir de soluciones de catalizador consumidas, no es realizable tampoco satisfactoriamente ni siquiera con aparatos costosos, puesto que los compuestos orgánicos de alto punto de ebullición, que perturbaban en las soluciones de catalizador, están en parte en un estrecho intervalo de puntos de ebullición con el pentacloruro de antimonio.

Según los procedimientos conocidos hasta ahora, los cloruros de antimonio pueden ser recuperados de las soluciones de catalizador consumidas transformando los cloruros de antimonio existentes en las soluciones de catalizador en $SbCl_3$ y separando éste de las soluciones orgánicas. Así, por ejemplo, en la DT-OS 2 056 648 se propone calentar la solución de catalizador consumida, con adición del mismo volumen de tricloroetileno, en un autoclave a temperaturas de 100 a 170°C y, después del enfriamiento, separar el cloruro de antimonio cristalino formado, con respecto de las impurezas perturbadoras.

Una realización a gran escala técnica de este procedimiento no parece económica, puesto que este procedimiento de purificación tiene que ser realizado en costosos aparatos de presión a base de níquel, y necesita grandes cantidades de disolvente. Tampoco es posible de este modo una recuperación completa del antimonio utilizado. El

Sb Cl₃ así obtenido tiene aún que ser transformado a con
tinuación en el Sb Cl₅ por cloración.

5 En la DT-OS 2 110 797 se propone desdoblar térmica-
mente el SbCl₅ contenido en la solución de catalizador
en SbCl₃ y cloro, extraer con hidrócarburos halogenados
las impurezas orgánicas, a continuación oxidar el resi-
duo que contiene SbCl₃ con cloro para formar el SbCl₅, y
separar por destilación en vacío el SbCl₅ recuperado,
con respecto de las impurezas inorgánicas. El procedi-
10 miento no puede ser considerado tampoco como económico.
En la descomposición térmica de SbCl₅ en SbCl₃ y cloro
son necesarias, como muestran los ejemplos indicados,
temperaturas relativamente elevadas. En la realización
de esta etapa del procedimiento y de la cloración subsi-
15 guiente del tricloruro de antimonio tienen que ser uti-
lizados aparatos resistentes a la presión a base de alea-
ciones de níquel. Una utilización de acero no es reco-
mendable por razones de seguridad, debido a la carga tér-
mica en presencia de cloro. A las elevadas temperaturas
20 de la descomposición térmica no puede excluirse el hecho
de que, con las grandes cantidades de cloro que salen de
los aparatos sean también arrastradas simultáneamente
una parte del tricloruro de antimonio, que tiene tenden-
cia a la sublimación, así como porciones de compuestos
25 orgánicos de alto punto de fusión, de modo que existe el

5 peligro de una elevación de la presión por obturación de la conducción de salida para el cloro. Además de ello, la separación del SbCl_3 de las impurezas orgánicas requiere un gran consumo de tetracloruro de carbono y de otros disolventes, así como de tiempo y de energía. Esta separación, correspondiente a una recristalización del SbCl_3 , tiene que ser repetida varias veces. Puesto que con los disolventes son separadas también grandes cantidades de SbCl_3 disuelto, el cloruro de antimonio tiene que ser recuperado de nuevo mediante separación por destilación del disolvente y de los extractos orgánicos. Una recuperación por destilación del cloruro de antimonio disuelto a partir de los disolventes reunidos, sólo puede realizarse con un aparato de destilación muy costoso, puesto que, 15 por ejemplo, el hexacloroetano hierve sólo a 34°C menos que el SbCl_3 , y, como este último, tiene tendencia a la sublimación. De la consideración de las cantidades necesarias de disolvente y de la recuperación del SbCl_3 a partir de este agente de extracción, este procedimiento ha 20 de ser considerado como antieconómico.

Según el procedimiento de la DT-OS 2 140 188, los catalizadores de halogenuros de antimonio utilizados son separados de los hidrocarburos halogenados por extracción con agua. Para la purificación, los cloruros de antimonio son reducidos para formar tricloruro de antimo- 25

5 nio, por ejemplo con dióxido de azufre en presencia de un yoduro de metal alcalino. Para la separación de iones de metales pesados presentes y de otros iones extraños al sistema, el tricloruro de antimonio es transformado en trióxido de antimonio con solución concentrada de amoníaco. Después de volver a transformar el óxido de antimonio, separado por filtración, en tricloruro de antimonio, se puede obtener $SbCl_3$ muy puro por destilación fraccionada. Según este procedimiento se efectúa ciertamente la reducción del $SbCl_5$ con un consumo relativamente pequeño y con un agente reductor barato, pero el procedimiento tiene el inconveniente, como los procedimientos mencionados anteriormente, de que después de todo hay que realizar una reducción del $SbCl_5$ en $SbCl_3$.

15 En las soluciones de catalizador agotadas, el antimonio está presente aún en su mayor parte como $SbCl_5$ activo. La inactividad de las soluciones de catalizador se debe en considerable medida a la dilución del $SbCl_5$ por compuestos orgánicos de alto punto de ebullición. Por consiguiente, según los procedimientos conocidos hasta ahora, grandes cantidades de Sb^{5+} son transformadas en Sb^{3+} , que a continuación tienen que ser oxidadas de nuevo.

25 En la presente invención se describe ahora, por lo tanto, un procedimiento según el cual ya no es neces-

ría una reducción del pentacloruro de antimonio para formar tricloruro de antimonio. Como otra ventaja hay que considerar el hecho de que en la transformación no tiene que ser empleada ninguna sustancia extraña a la reacción.

5 El procedimiento para la recuperación de pentacloruro de antimonio a partir de soluciones de catalizador utilizadas para la fluoración de hidrocarburos clorados, está caracterizado porque

- 10 a)) el Sb^{3+} contenido en la solución de catalizador se transforma con cloro en Sb^{5+} ,
- b) los compuestos de Sb^{5+} son hechos reaccionar con fluoruro de hidrógeno a una temperatura entre 20 y 140°C y 1 a 6 atmósferas absolutas para formar $SbCl_xF_y$, significando $x = 4$ a 2 e $y = 1$ a 3 , y los hidrocarburos
- 15 clorados y clorofluorados de más elevado punto de ebullición, existentes en la solución de catalizador, son fluorados para formar compuestos de más bajo punto de ebullición,
- c) los componentes orgánicos que hierven por debajo del
- 20 punto de ebullición del $SbCl_xF_y$ son separados por destilación en vacío a temperaturas de 20 a 100°C y presiones de 20 a 100 torr,
- d) los compuestos $SbCl_xF_y$ son transformados con tetracloruro de carbono, a una temperatura entre 50 y 120°C y
- 25 a presiones entre 1 y 5 atmósferas absolutas, en pen

tacloruro de antimonio, y

e) el pentacloruro de antimonio recuperado es separado por destilación en vacío de los restantes compuestos orgánicos y del residuo inorgánico.

5

El fundamento del procedimiento según la invención consiste en la reacción del pentacloruro de antimonio con fluoruro de hidrógeno para formar compuestos del tipo de $SbCl_xF_y$, significando $x = 4$ a 2 e $y = 1$ a 3 . Estos compuestos son ampliamente estables en el sentido térmico y poseen un punto de ebullición decisivamente superior al del $SbCl_5$.

En la realización del procedimiento según la invención, primero se clora el $SbCl_3$, que según la experiencia está contenido en hasta 10% en peso en la solución de catalizador. Para esta reacción de cloración son suficientes temperaturas entre 20 y 40°C y presiones de 1 a 2,5 atmósferas absolutas. A continuación, todo el $SbCl_5$ existente en la solución de catalizador es fluorado por adición de fluoruro de hidrógeno. La formación de $SbCl_4F$ se realiza ya de modo casi cuantitativo a 20°C y presión normal. Por lo general, la fluoración se lleva a cabo a temperaturas entre 20 y 140°C y presiones de 1 a 6 atmósferas absolutas. Con ello el $SbCl_5$ es transformado en $SbCl_4F$, $SbCl_3F_2$ y en parte en $SbCl_2F_3$.

Estos compuestos se presentan por lo general como mezclas. En este caso es también posible que se formen compuestos de antimonio con un grado de fluoración aún mayor. De preferencia la fluoración se realiza a temperaturas entre 20 y 100°C y presiones de 1 a 4 atmósferas absolutas. En este caso se pretende transformar $SbCl_5$ en $SbCl_4F$ y/o $SbCl_3F_2$.

Un efecto secundario pretendido es en este caso la fluoración de los hidrocarburos clorados, pobres en flúor, de alto punto de ebullición, por ejemplo C_2Cl_6 y C_2FCl_5 , para formar compuestos de punto de ebullición más bajo. Una amplia fluoración de los hidrocarburos clorados pobres en flúor, puede ser favorecida en una forma de realización sencilla del procedimiento elevando lentamente la temperatura, durante el tratamiento con fluoruro de hidrógeno desde la temperatura ambiente hasta 60 a 80°C. El cloruro de hidrógeno que se forma en la fluoración es evacuado, por ejemplo, a través de un refrigerante ascendente y de una válvula de retención de presión, a una instalación de lavado. La reacción de fluoración está terminada cuando, con las condiciones ajustadas, cae la presión del sistema, puesto que ya no se forma nada más de cloruro de hidrógeno, o cuando el contenido de cloruro en el aparato lavador cambia sólo escasamente.

La etapa siguiente del procedimiento según la inven-
ción es la separación parcial de los compuestos orgáni-
cos perturbadores, por una destilación en vacío a tempe-
raturas de 20 a 100°C y presiones de 20 a 100 torr. De
5 preferencia la destilación se lleva a cabo entre 50 y
80°C y a presiones de 60 a 20 torr. La destilación se
continúa hasta que, en las condiciones de destilación,
disminuye claramente la cantidad de productos orgánicos
que pasan por destilación, lo que por lo general puede
10 ser reconocido por una caída de la temperatura de la
parte superior de la columna. De este modo puede ser
separada la parte predominante de los componentes orgá-
nicos. Los productos orgánicos recogidos contienen me-
nos de 2 % de antimonio arrastrado. Este puede ser re-
15 recuperado eventualmente por precipitación con solución
de un hidróxido de metal alcalino, en la forma de anti-
moniato de metal alcalino.

En el caso de la forma preferida de realización, el
residuo de la destilación consiste predominantemente en
20 los compuestos $SbCl_4F$ y $SbCl_3F_2$, así como en compuestos
complejos de hierro-antimonio, compuestos complejos de
antimonio-agua, derivados halogenados de alto punto de
ebullición e hidrocarburos con más de 2 átomos de carbo-
no, así como productos alquitranosos. Para la recupera-
25 ción del $SbCl_5$ a partir de este residuo, éste es trata-

do con tetracloruro de carbono a una temperatura entre 50 y 120°C y una presión de 1 a 5 atmósferas absolutas. De preferencia esta reacción se lleva a cabo a temperaturas de 60 a 80°C y una presión de 2 a 3 atmósferas ab
5 solutas.

En esta reacción, junto al $SbCl_5$, se forman por fluoración a partir del tetracloruro de carbono los com
puestos de bajo punto de ebullición $CFCl_3$ y CF_2Cl_2 , que
son evacuados y recogidos continuamente. Adicionalmen
10 te, en esta reacción, los compuestos complejos de anti
monio-agua contenidos en el residuo son transformados en
 $SbCl_5$. Con ello se aumenta la proporción de $SbCl_5$ recu
perable.

El exceso de tetracloruro de carbono, así como pe
15 queñas cantidades de $CFCl_3$ aún presentes, se obtienen
como fracción de cabezas en la destilación de $SbCl_5$. A
continuación, el pentacloruro de antimonio puede ser se
parado por destilación a un vacío de 30 a 60 torr y a
una temperatura entre 50 y 80°C. Ha resultado ser venta
20 joso añadir, un poco antes del término de la destilación,
algo de tetracloruro de carbono y de cloro, para trans
formar en $SbCl_5$ el $SbCl_3$ formado por procesos de reduc
ción durante la destilación. Después se continúa la
destilación hasta que ya no puede ser separado por des
25 tilación nada de $SbCl_5$.

El pentacloruro de antimonio obtenido de este modo es transparente, translúcido y de color pardo desde claro a medio. La solución contiene 95 a 97% en peso de $SbCl_5$, correspondientes a 85 a 90% del antimonio total contenido originalmente en la solución de catalizador. El resto consiste en pequeñas cantidades de tetracloruro de carbono. La solución así obtenida puede ser utilizada, sin ningún tratamiento adicional, como catalizador activo para la producción.

El residuo alquitranoso de destilación que queda ahora, consiste principalmente en hidrocarburos halogenados con más de 2 átomos de carbono y en los complejos estables de hierro-antimonio. Junto a ellos pueden existir además restos de aceite lubricante y productos alquitranosos de descomposición. Por un tratamiento posterior con solución de un hidróxido de metal alcalino, pueden aislarse de este residuo las porciones de antimonio en forma de antimoniato de metal alcalino. De este modo se puede recuperar casi completamente el antimonio existente originalmente en la solución agotada de catalizador.

La economía del procedimiento según la invención se deduce sobre todo del hecho de que para la realización del mismo pueden ser utilizados los aparatos y partes de instalación de la instalación de producción. La solu

ción de catalizador consumida puede ser tratada en el reactor de producción hasta la destilación en vacío del SbCl_5 puro, y sacada de aquél, puede ser separada a continuación por destilación en un colector existente. Las 5 temperaturas y presiones necesarias para el procedimiento oscilan en el marco de los requisitos normales para la producción.

Una ventaja especial del procedimiento consiste en que la porción de antimonio en la solución de catalizador consumida, se conserva en el grado de oxidación pen- 10 tavalente durante la realización de todo el procedimiento. Con ello se suprime la transformación posterior del Sb^{3+} en SbCl_5 por cloración. Los productos químicos utilizados para la realización del procedimiento según 15 la invención, fluoruro de hidrógeno y tetracloruro de carbono, son sustancias de partida habituales para la preparación de los correspondientes hidrocarburos cloro-fluorados.

Como efecto final, se transforman en el curso de la 20 purificación en clorofluorometanos, y pueden ser recuperados en esta forma. En conjunto el procedimiento se destaca porque puede ser llevado a cabo en condiciones de reacción suaves y necesita un pequeño consumo de ma- 25 terial, energía y tiempo.

Ejemplo

6950 g de una solución consumida de catalizador, con un contenido de 30,3 % de Sb (de ello 2% de Sb^{3+}), 0,4 % de Fe y 28,3 % de compuestos orgánicos, se introdujeron
5 en un reactor de 5 litros con una doble envolvente de acero. El reactor estaba dotado de un agitador, un refrigerante ascendente, un tubo de inmersión para la dosificación de cloro y de fluoruro de hidrógeno, una válvula de evacuación situada en el fondo, un manómetro de
10 presión-vacío y un puesto de medición termométrica.

En la primera etapa del procedimiento, el Sb^{3+} contenido en la solución de catalizador fue clorado por adición de 85 g de Cl_2 y transformado en Sb^{5+} . En tal caso, como
15 también en las siguientes etapas del procedimiento, la solución de catalizador fue agitada intensamente. A continuación, en la segunda etapa se añadieron dosificadamente 480 g de fluoruro de hidrógeno a una presión de 3 atmósferas absolutas. La temperatura de reacción se
20 elevó durante la alimentación del fluoruro de hidrógeno desde 20 a 60°C. De este modo, el SbCl_5 fue transformado en SbCl_4F , y en una pequeña parte, en SbCl_3F_2 . Los compuestos orgánicos de punto de ebullición elevado fueron fluorados para formar compuestos orgánicos de
25 punto de ebullición reducido. La cantidad de cloruro

de hidrógeno recogido en las aguas de lavado fue de 910 g. al término de la reacción. En la tercera etapa del procedimiento, la porción separable de compuestos orgánicos procedente del reactor, fue destilada en un colector de destilación con refrigerante descendente. Con ello, a un vacío de 34 torr y una temperatura máxima en la parte superior de la columna de 67°C, fueron recogidos hasta la caída de la temperatura, en total 1441 g de destilado. Una parte del producto destilado fue condensada en dos recipientes colectores enfriados a -50°C, que se encontraban entre el colector de destilación y la trompa de agua. El producto destilado obtenido constaba de 92% de componentes orgánicos y 8% de componentes inorgánicos. 67,2 % de los componentes orgánicos contenidos originalmente en la solución de catalizador fueron separados en esta etapa, conjuntamente con 2,2 % de Sb.

En la cuarta etapa del procedimiento, el residuo de destilación que quedaba en el alambique de destilación fue tratado con 3,2 kg de CCl_4 , a 75°C y 2,5 atmósferas absolutas durante 3 horas. Con ello, los compuestos clorofluorados de antimonio fueron transformados en SbCl_5 , y se obtuvieron 352 litros de una mezcla gaseosa, consistente en aproximadamente 70% en volumen de CF_2Cl_2 y 30% en volumen de CFCl_3 .

Antes de la destilación del SbCl_5 , se separaron por

destilación a 80°C y 600 torr, 895 g de una mezcla consistente en aproximadamente 55 % de CCl_4 no reaccionado y 45 % de CFCl_3 .

5 En la quinta etapa subsiguiente, se separó por destilación con un vacío de 40 torr y una temperatura máxima en la parte superior de la columna de 70°C, la cantidad principal de SbCl_5 . Para la transformación de las porciones de SbCl_3 formadas durante la destilación, se interrumpió brevemente la destilación y, después de adición de 100 g de CCl_4 como favorecedor de la disolución, se hizo reaccionar el SbCl_3 con 45 g de cloro para formar SbCl_5 . A continuación se prosiguió la destilación en las condiciones antes citadas hasta que ya no pasó por destilación más SbCl_5 . En el colector de destilación se recogieron 4630 g de solución de SbCl_5 . Esta solución contenía 4525 g de SbCl_5 , correspondientes a 97,7% de SbCl_5 , y 2,3 % de una mezcla de tetracloruro de carbono y compuestos orgánicos de la solución de catalizador. Por consiguiente pudo ser recuperado un 87,5 % de SbCl_5 , referido a la cantidad de antimonio existente en la solución consumida de catalizador.

25 El residuo en el reactor fue 847 g. Contenía aún 217,8 g de Sb, correspondientes a 10,3 % del antimonio total, en forma de complejos de hierro y de compuestos orgánicos. Este 10,3 % de Sb fue precipitado con lejía

de potasa como un compuesto cristalino, y separado del resto de los componentes.

5 Por consiguiente, en el caso de la recuperación realizada según la invención se obtuvo 87,5 % en peso del antimonio original como SbCl_5 , con una pureza de 97,7 %. Incluyendo las cantidades de antimonio recuperables del residuo, el rendimiento de SbCl_5 fue de 96,3 %, con una separación casi completa de las impurezas orgánicas y de los compuestos de hierro.

10 Esta solicitud que corresponde a la presentada en República Federal Alemana, el día 17 de Agosto de 1974, bajo el nº P 24 39 540.2, se acoge a los beneficios del artículo 51 del vigente Estatuto sobre Propiedad Industrial.

15

20

REIVINDICACIONES

25 Los puntos de invención propia y nueva que se presentan para que sean objeto de esta solicitud de Paten-

te de Invención en España, por VEINTE años, son los que se recogen en las reivindicaciones siguientes:

5 1ª.- Procedimiento para la recuperación de pentaclo
ruro de antimonio a partir de las soluciones de cataliza
dor utilizadas para la fluoración de hidrocarburos clora
dos, caracterizado porque a) el Sb^{3+} contenido en la so
lución de catalizador es transformado con cloro en Sb^{5+} ;
b)) los compuestos de Sb^{5+} son hechos reaccionar con fluo
ruro de hidrógeno a una temperatura entre 20 y 140°C y 1
10 a 6 atmósferas absolutas, para formar $SbCl_xF_y$, significan
do $x = 4$ a 2 e $y = 1$ a 3 , y los hidrocarburos clorados y
clorofluorados de alto punto de ebullición, existentes en
la solución de catalizador, son fluorados para formar
15 compuestos de más bajo punto de ebullición, c) los com
ponentes orgánicos que hierven por debajo del punto de
ebullición del $SbCl_xF_y$ son separados por destilación en
vacío a temperaturas de 20 a 100°C y presiones de 20 a
100 torr, d) los compuestos $SbCl_xF_y$ son transformados
20 con tetracloruro de carbono a una temperatura entre 50
y 120°C y presiones entre 1 y 5 atmósferas absolutas en
pentacloruro de antimonio, y e) el pentacloruro de anti
monio recuperado es separado por destilación en vacío
de los restantes compuestos orgánicos y del residuo inor
gánico.

25 2ª.- Procedimiento según la reivindicación 1ª, ca-

racterizado porque la cloración de Sb^{3+} para formar Sb^{5+} se realiza a una temperatura entre 20 y 40°C y una presión de 1,0 a 2,5 atmósferas absolutas.

5 3ª.- Procedimiento según la reivindicación 1ª, caracterizado porque la fluoración se lleva a cabo a una temperatura entre 20 y 100°C y presiones entre 1 y 4 atmósferas absolutas.

10 4ª.- Procedimiento según la reivindicación 3ª, caracterizado porque en el tratamiento con fluoruro de hidrógeno, la temperatura se eleva durante la reacción desde 20 a 60-80°C.

15 5ª.- Procedimiento según la reivindicación 1ª, caracterizado porque los componentes orgánicos son separados por destilación a temperaturas de 50 a 80°C y presiones de 60 a 20 torr.

6ª.- Procedimiento según la reivindicación 5ª, caracterizado porque los compuestos de antimonio separados por destilación con los compuestos orgánicos, se precipitan con lejía de metal alcalino y se separa el precipitado.

20 7ª.- Procedimiento según la reivindicación 1ª, caracterizado porque la transformación de $SbCl_xF_y$ en pentacloruro de antimonio se lleva a cabo a una temperatura entre 60 y 80°C y una presión entre 2 y 3 atmósferas absolutas.

25 8ª.- Procedimiento según la reivindicación 1ª, ca-

5 racterizado porque después de la separación por destila-
ción del $SbCl_5$ formado de retorno, el residuo se trata
de nuevo con tetracloruro de carbono y adicionalmente con
cloro, y a continuación se completa la separación del
 $SbCl_5$.

9ª.- Procedimiento según las reivindicaciones 1ª a
8ª, caracterizado porque después de la recuperación del
 $SbCl_5$ a partir del residuo de destilación alquitranoso,
el antimonio aún presente se transforma por tratamiento
10 con solución de un hidróxido de metal alcalino en anti-
moniato de metal alcalino, y se separa éste.

10ª.- "PROCEDIMIENTO PARA LA RECUPERACION DE PENTA-
CLORURO DE ANTIMONIO".

15 Tal y como se ha descrito en la Memoria que antece-
de, y para los fines que se han especificado.

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

Madrid,

P.A.

29 JUL. 1975

20

Fernando de Elizaburu
Por Poder.

25

19-7-75

- 21 -

MPB.-