



MINISTERO DELLO SVILUPPO ECONOMICO
DIREZIONE GENERALE PER LA TUTELA DELLA PROPRIETA' INDUSTRIALE
UFFICIO ITALIANO BREVETTI E MARCHI

UTBM

DOMANDA NUMERO	101989900093212
Data Deposito	06/12/1989
Data Pubblicazione	06/06/1991

Sezione	Classe	Sottoclasse	Gruppo	Sottogruppo
C	09	B		

Titolo

PROCESSO CATALITICO PERFEZIONATO PER LA PRODUZIONE DI FTALOCIANINA DI RAME

Descrizione dell'invenzione industriale dal titolo:

"PROCESSO CATALITICO PERFEZIONATO PER LA PRODUZIONE DI FTALOCIANINA DI RAME"

A nome: ACNA Chimica Organica S.p.A., di nazionalità italiana, con sede legale in Cengio (Savona), Piazza della Vittoria 10.

Inventori designati: Giorgio BORNENGO, Giovanni AGNES, Augusto MENCONI, Giorgio BOTTACCIO, Zefferino BOZZOLASCO, Danilo DOMENIS.

Depositata il: - 5 DIC. 1989

22640A/89

* * * * *

Riassunto

Processo catalitico perfezionato per la produzione di ftalocianina di rame mediante reazione dell'anidride ftalica con l'urea e con un composto del rame, in presenza di un disperdente liquido idrofobo, caratterizzato dalla presenza, accanto al catalizzatore e al disperdente, di un promotore scelto fra particolari classi di ammidi, immidi, uree, tiouree, guanidine, ammine o solfossidi.

* * * * *

L'invenzione riguarda un processo catalitico perfezionato per la produzione di ftalocianina di rame nella forma cristallina beta, mediante reazione dell'anidride ftalica con l'urea e con un composto del rame; detta ftalocianina è un ben noto colorante, impiegato, per esempio, nel campo della fotografia, degli inchiostri e della pigmentazione delle materie plastiche.

Il catalizzatore, come noto, è scelto di solito fra i composti di molibdeno o vanadio e (opzionalmente) di fosforo, per esempio MoO_3 , $(\text{NH}_4)_2\text{MoO}_4$, fosfomolibdato ammonico eccetera. Il processo può essere realizzato a secco, cioè in assenza di liquidi, come descritto nel brevetto USA 4118391, oppure in presenza di un composto organico idrofobo (si vedano il brevetto inglese 1533354 e la pubblicazione brevettuale giapponese 81/43357), che disperde e/o scioglie parzialmente la miscela reagente. Le tecnologie di cui sopra permettono di ottenere alte rese, un elevato grado di purezza e buone caratteristiche pigmentarie, ma presentano non trascurabili inconvenienti; esse richiedono infatti alte temperature di reazione e lunghi tempi di contatto. Questi inconvenienti sono estremamente deleteri, non solo per l'elevato costo energetico ma anche per l'effetto negativo dell'alta temperatura sui prodotti organici; questi ultimi infatti si degradano, seppure in bassa percentuale, a temperature superiori a 200 C, dando luogo, in alcuni casi, a sottoprodotti che alterano il tono cromatico della ftalocianina. Il metodo a secco richiede inoltre particolari apparecchiature delicate e sofisticate, soprattutto quando si attua una produzione in continuo, che richiede un rigido controllo delle temperature e dei tempi.

I processi realizzati a temperature superiori a 180 C sono particolarmente deleteri quando il disperdente è triclorobenzene come avviene comunemente su vasta scala; è noto infatti che

(B-731-09)

a temperature elevate la miscela di reazione (urea + anidride ftalica + rame o composto del rame) causa una degradazione del triclorobenzene, con formazione di policlorobifenili, altamente tossici e difficilmente asportabili dal prodotto finito.

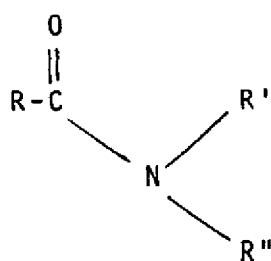
La Richiedente ha ora trovato che esistono alcuni promotori che abbassano notevolmente (e senza inconvenienti) dette temperature aumentando in pari tempo la velocità di reazione. La Richiedente ha notato, in particolare, che la riduzione dei tempi e delle temperature riduce drasticamente la formazione dei prodotti di degradazione. Ciò è particolarmente importante se il mezzo disperdente è triclorobenzene o diclorobenzene; in questo caso, infatti, un abbassamento della temperatura di reazione comporta una drastica riduzione dei policlorobifenili che hanno origine dai suddetti solventi. Anche la pubblicazione brevettuale giapponese 77/052927 insegna a ridurre le temperature (con conseguente risparmio energetico e riduzione dei policlorobenzeni), aggiungendo, oltre al catalizzatore, opportune quantità di soda caustica; questo metodo, tuttavia, è insoddisfacente, a causa dell'elevato rischio ecologico, connesso con il riscaldamento dei triclorobenzeni in presenza di soda, che può innescare una violenta reazione, con conseguente produzione incontrollabile di inquinamento diossinico.

Nel suo aspetto più ampio l'invenzione riguarda un processo catalitico perfezionato per la produzione di ftalocianina di rame, nella forma cristallina beta, mediante reazione dell'ani-

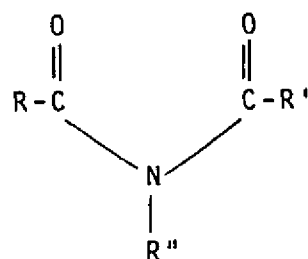
(B-731-09)

dride ftalica con l'urea e con il rame (o con un composto del rame), in presenza di un disperdente liquido idrofobo, caratterizzato dalla presenza, accanto al catalizzatore e al disperdente, di un promotore scelto fra:

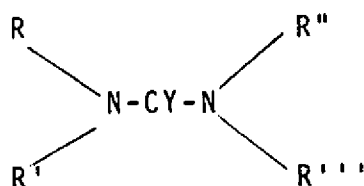
A) Le ammidi, le immidi, le uree, le tiouree e le guanidine, di formula generale (I), (II) o (III):



(I)



(II)



(III)

dove Y è S, NH oppure O e dove R, R' R'' ed R''', uguali o differenti tra loro, sono H oppure gruppi alchilici, alchenilici (in particolare alchilvinilici), arilici, cicloalifatici o eterociclici (in cui l'etero atomo è N oppure O), contenenti da 1 a 15 atomi C, i gruppi delle coppie (R+R') e rispettivamente (R+R'') essendo opzionalmente tra loro legati a formare un ciclo carbociclico o eterociclico (in cui l'etero-atomo è N), almeno uno dei gruppi R, R', R'' ed R''' essendo diverso da H;

B) Le ammine di formula generale (IV):



dove R ed R' hanno il significato sopra specificato;

C) I solfossidi di formula generale (V):



dove R ed R' hanno il significato sopra specificato;

la quantità di promotore essendo tra 5 e 100 moli per 100 moli di rame o di composto del rame.

Le quantità di anidride ftalica, urea, rame, disperdente e catalizzatore sono riportate in dettaglio nel brevetto inglese 1533354 e nelle pubblicazioni brevettuali giapponesi 81/43357 e 77/052927, il cui contenuto è incorporato per referenza, cioè è parte integrante della presente descrizione. In linea di massima si può ricorrere ai seguenti valori:

- rame (o composto del rame): fra 10 e 30% in moli rispetto all'anidride ftalica;
- urea: fra 200 e 600% in moli, rispetto all'anidride ftalica;
- catalizzatore: fra 100 e 5000 ppm, rispetto all'anidride ftalica;
- disperdente: fra 150 e 1000% in peso, rispetto all'anidride ftalica.

Elenchiamo brevemente alcuni dei vantaggi che derivano

dall'invenzione:

- i promotori prescelti permettono di realizzare la sintesi a temperature più basse e/o in tempi ridotti, con conseguente miglioramento del tono di colore della ftalocianina prodotta e con diminuzione dei sottoprodotti indesiderati;
- la sintesi può essere realizzata in presenza di disperdenti basso-bollenti come clorobenzene, trimetil-benzeni (per esempio mesitilene); ter-butyl benzene; terbutyl-toluene; 2-cloro-paraxilene ed altri disperdenti che per il basso punto di ebollizione non possono venir impiegati nei processi ad alta temperatura di tipo tradizionale (o che richiedono costose apparecchiature capaci di operare sotto pressione).

Il composto del rame, che deve reagire con l'anidride ftalica e l'urea, è scelto di solito fra Cu_2O , CuO , fosfato di rame, CuX oppure CuX_2 , dove X è scelto fra Cl, Br, I, OH, HSO_4 , SO_4 , NO_3 , CH_3COO eccetera, a seconda della valenza del rame; naturalmente l'acetato di rame può essere sostituito da altri carbossilati del rame, come ad esempio benzoato, naftenato, 2-etil-esanoato, n-ottanoato, sebacato, ftalato di rame eccetera.

La temperatura di sintesi, grazie all'azione dei promotori, può essere anche molto bassa (110 C); di massima si possono usare temperature fra 110 e 170 C, preferibilmente fra 130 e 170 C (e meglio ancora fra 145 e 170 C), il tempo di reazione essendo di solito uguale o superiore a 2 ore. Il riscaldamento è realizzato preferibilmente sotto agitazione e il promotore

può essere aggiunto sia all'inizio della reazione di sintesi, sia nel corso della reazione, cioè durante il riscaldamento della miscela reagente. L'analisi cromatografica ha dimostrato che i promotori secondo l'invenzione rimangono sostanzialmente inalterati fino al termine della reazione; essi possono quindi essere recuperati e riciclati senza pregiudizio per la loro efficienza, tramite operazioni di filtrazione, distillazione (o estrazione), secondo modalità convenzionali, ben note al tecnico del ramo. Nel caso in cui il promotore sia un'ammina, il prodotto da riciclare è un derivato dell'ammina, in genere una ftalimide.

Promotori particolarmente vantaggiosi si sono dimostrati N,N,N',N'-tetrametil-urea e/o tiourea; N-metil-2-pirrolidone; 1,3-dimetil-2-imidazolidone; N,N-dimetil-acetammide; di-sec-butylammina; 1,1,3,3-tetrametil-guanidina; isobutil-ammina; dimetil-solfossido; di-etil-solfossido. Le sigle dei promotori, riportate negli esempi, hanno il seguente significato:

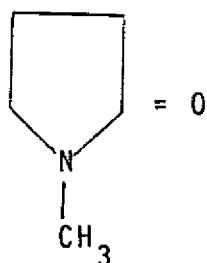
TMU = N,N,N',N'-tetrametil-urea	DSBA = di-sec-butylammina
NMP = N-metil-2-pirrolidone	TMTU = N,N,N',N'-tetrametil-tiourea
DMI = 1,3-dimetil-2-imidazolidone	TMG = 1,1,3,3-tetrametil-guanidina
DMA = N,N-dimetilacetammide	IBA = isobutilammina

Riportiamo per chiarezza le formule di alcuni promotori:

- N-metil-2-pirrolidone (NMP):

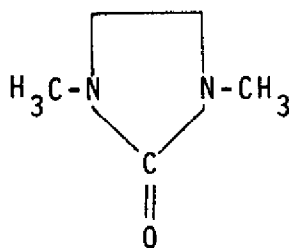
(B-731-09)

(VI)



- 1,3-dimetil-2-imidazolidone (DMI):

(VII)



Il disperdente idrofobo può essere scelto fra triclorobenzene; diclorobenzene; diclorotolueni; 2-cloro-paraxilene; nitrobenzene; alchil-benzeni (per esempio toluene, ter butil-benzene, ter-amil-benzene e ter-esil-benzene), polialchilbenzeni (per esempio mesitilene; 4-ter-butyl-toluene; 1,3-diisopropilbenzene); difenile; difenilettere; policloroalcani, policloroalcheni (per esempio esaclorobutadiene); alfa e/o beta metilnaftalene; tetralina; decalina; chinolina e loro miscele. Il catalizzatore può essere scelto fra un gran numero composti; citiamo in particolare: MoO₃; (NH₄)₂ MoO₄; fosfomolibdato ammonico, isopolimolibdato di ammonio; etero-polimolibdato di ammonio; WO₃; tungstato di ammonio; fosfotungstato di ammonio; isopolitungstato di ammonio ed etero-politungstato di ammonio.

E' possibile inoltre usare, accanto al catalizzatore e al promotore, un agente modificatore, per esempio un'anidride te-

traidro-ftalica (o suoi derivati), una tetraidro-ftalimide (o suoi derivati), un derivato solfonico dell'anidride ftalica (o della ftalimide o della stessa ftalocianina di rame), o uno degli altri agenti descritti nel brevetto europeo 266219, il cui contenuto è parte integrante della presente descrizione. Un agente modificatore di questo tipo comporta, come noto, una migliore macinabilità dei cristalli di ftalocianina, una migliore tonalità cromatica e una migliore stampabilità. Gli esempi che seguono hanno un fine puramente illustrativo e non limitano in alcun modo la portata dell'invenzione.

ESEMPIO 1

In un pallone da 250 cm³, munito di agitatore a pala, termometro, refrigerante e bagno riscaldante esterno, vennero introdotti nell'ordine:

Urea g 40,5	Anidride ftalica g 29,92
N,N,N',N'-tetrametilurea g 1,2	Anidride Molibdica g 0,155
CuCl (tecnico) g 4,72	Triclorobenzene tecnico g 108

La massa agitata venne portata a 170 C in 90 minuti e mantenuta a 170 C per 5 h. Si distillò quindi la parte volatile (a 50 mmHg), mantenendo la temperatura del bagno esterno a 150 C. Il residuo venne digerito (a 90 C per 2 h, sotto agitazione), con 560 g di una soluzione acquosa di H₂SO₄ (al 10 % in peso). Il filtrato, seccato in stufa a 100 C per 24 h, era costituito da 26,4 g di ftalocianina in forma cristallina beta. Resa sul CuCl = 96,1%.

ESEMPIO 2 (COMPARATIVO)

Nell'apparecchiatura dell'esempio 1 venne condotta, con identiche modalità, una prova con uguali quantità di reagenti, ad eccezione della N,N,N',N'-tetrametil-urea, che venne omessa. Dal grezzo di reazione, trattato come nell'esempio 1, si ricavarono solo 2 grammi di ftalocianina di rame. Resa sul CuCl: 8,0%

ESEMPIO 3 (Prova con N-metil-2-pirrolidone)

Nell'apparecchiatura dell'esempio 1 si introdussero:

Urea g 40,5	Anidride ftalica g 29,92
N-Metil-2-pirrolidone g 2	Anidride Molibdica g 0,155
CuCl (tecnico) g 4,72	Triclorobenzene tecnico g 108

Operando come nell'esempio 1 si ottennero g 26,4 di ftalocianina di rame in forma cristallina (beta); la resa era del 96,1% rispetto al CuCl impiegato.

ESEMPIO 4

Venne ripetuto l'esempio 1, omettendo l'aggiunta di N,N,N',N'-tetrametilurea fresca ed utilizzando, in luogo del triclorobenzene tecnico, la miscela di prodotti volatili ottenuti dalla distillazione dell'esempio 1 (contenenti la TMU). Sempre operando come nell'esempio 1, si ottennero 26,4 g di ftalocianina di rame. Questa prova dimostra che la tetrametil-urea può essere riutilizzata in prove successive, in quanto si mantiene essenzialmente inalterata nello svolgimento della prova e viene per la maggior parte distillata in miscela con il disperdente durante il post-trattamento finale. Dati e risultati sono in

Tabella I.

TABELLA I

ES.	T	t	Promotore	Resa sul rame
	(°C)	(h)		
1	170	5	N,N,N',N'-tetrametil-urea	96,1%
2*	170	5	---	8,0%
3	170	5	N-metil-2-pirrolidone	96,1%
4	170	5	TMU (contenuta nel ri-	Sostanzialmente co-
			ciclo dell'esempio 1	me nell'esempio 1

* Comparativo

ESEMPIO 5

27 g di urea

19,95 g di anidride ftalica

0,8 g di TMU

0,105 g di anidride molibdica

2,13 g di rame (metallico, in polvere)

72 g di triclorobenzene tecnico (miscela di isomeri)

vennero introdotti in quest'ordine nel reattore dell'esempio 1; la miscela di reazione venne portata da 20 a 170 C in 90 minuti, sotto agitazione, e mantenuta a 170 C per 5 ore. Si distillò la parte volatile sotto vuoto (50 mmHg) mantenendo la temperatura del bagno attorno a 150 C. Il residuo venne digerito come nell'esempio 1. Il filtrato, seccato in stufa a 100 C per 24 ore, era costituito da 17,3 g di ftalocianina di rame nella forma cristallina beta. La resa sul rame era pari all'89,6%.

ESEMPI DA 6 A 13

L'esempio 5 venne ripetuto, variando la fonte del rame, il promotore, le temperature e i tempi, come indicato nella Tabella II, che riporta anche i risultati ottenuti.

ESEMPIO 14

27 g di urea	19,95 g di anidride ftalica
0,8 g di TMU	0,105 g di anidride molibdica
3,15 g di cloruro rameoso	50 cm ³ di mesitilene

vennero introdotti in quest'ordine nel reattore dell'esempio 1. La miscela di reazione venne portata da 20 a 155 C in 3 ore, sotto agitazione, e mantenuta a 155 C per 8 ore. Si distillò la parte volatile sotto vuoto (50 mmHg) mantenendo la temperatura del bagno attorno a 150 C. Il residuo venne digerito come nell'esempio 1. Il filtrato, seccato in stufa a 100 C per 24 ore, era costituito da 16,2 g di ftalocianina di rame nella forma cristallina beta. La resa sul rame era pari all'88,5%.

ESEMPI DA 15 A 20

L'esempio 14 venne ripetuto, variando il disperdente, il promotore, le temperature e i tempi, come indicato nella Tabella (III), che riporta anche i risultati ottenuti.

ESEMPIO 21

40,5 g di urea	29,92 g di anidride ftalica
2,0 g di NMP	0,155 g di anidride molibdica
4,72 g di cloruro rameoso	
75 cm ³ di una miscela (50/50) di alfa- e beta- metil-naftalene	

vennero introdotti, in quest'ordine, nel reattore dell'esempio

1. La miscela di reazione venne portata da 25 a 170 C in 2 ore, sotto agitazione, e mantenuta a 170 C per 4 ore. Si distillò la parte volatile sotto vuoto (50 mmHg) mantenendo la temperatura del bagno attorno a 150 C. Il residuo venne digerito come nell'esempio 1. Il filtrato, seccato in stufa a 100 C per 24 ore, era costituito da 26,2 g di ftalocianina di rame nella forma cristallina beta. La resa sul rame era pari all'95,4%.

ESEMPI 22 E 23

L'esempio 21 venne ripetuto, variando il disperdente, il promotore, le temperature e i tempi, come indicato nella Tabella (IV), che riporta anche i risultati ottenuti.

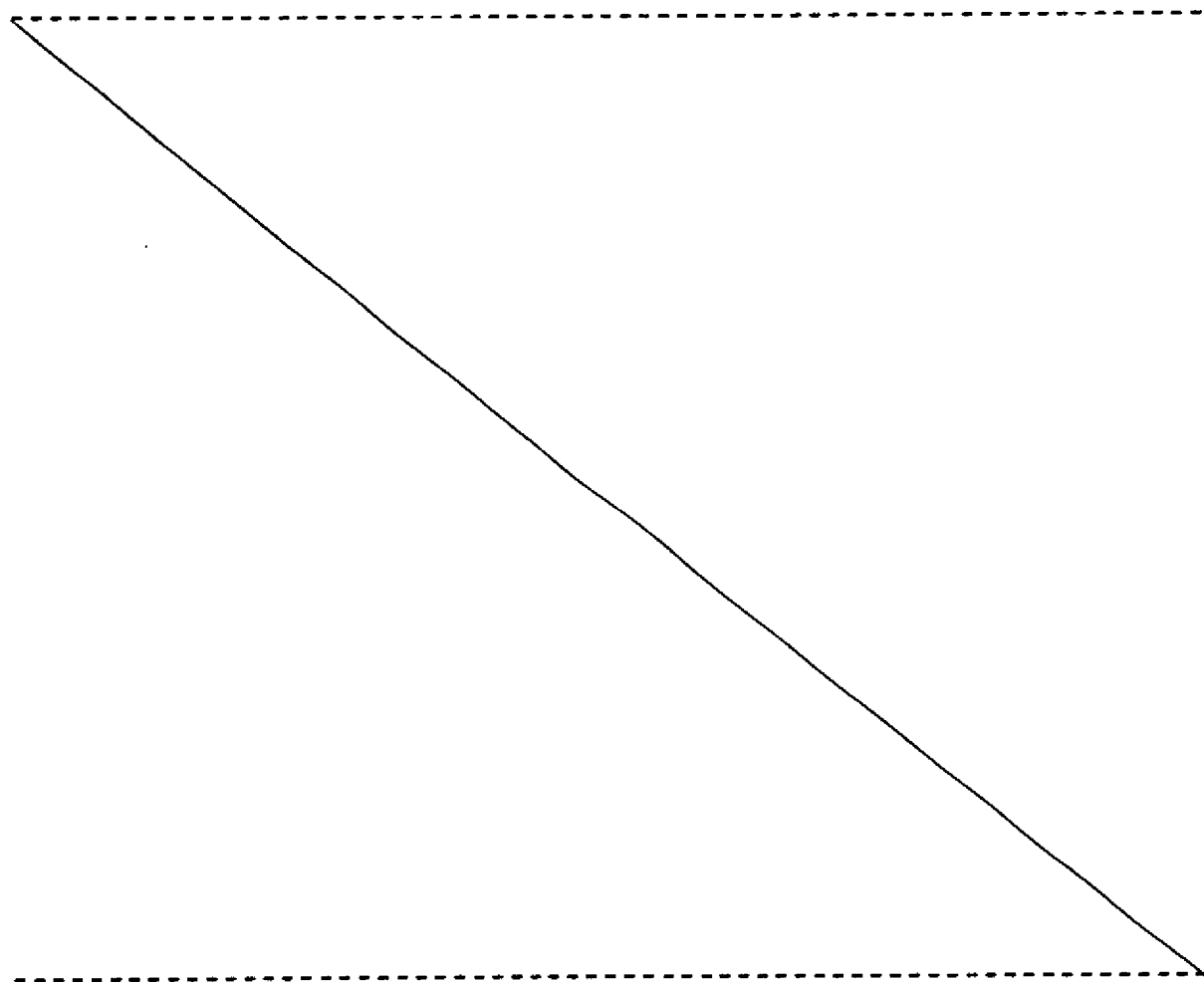


TABELLA (II)

ESEMPIO	FONTE DEL RAME (g)	PROMOTORE (g)	I E TEMPI		FTALOCIA- NINA (g)	RESA SUL RAME (%)
			I STADIO	II STADIO		
5	Cu metallico (2,13)	TMU (0,8)	da 20 a 170 C in 90 minuti	170 C per 5 h	17,3	89,6
6	Cu ₂ O (2,38)	TMU (0,8)	come in es. 5	170 C per 7 h	18,3	95,8
7	CuCl (3,30)	DMI (0,8)	da 20 a 145 C in 2 h	145 C per 8 h	17,4	90,6
8	"	TMU (0,2)	come in es. 7	145 C per 8 h	18,0	93,7
9	"	DSBA (1,5)	da 20 a 130 C in 4 h	145 C per 8 h	16,8	87,5
10 (*)	"	-	come in es. 9	come in es. 9	0	0
11	"	TMTU (0,8)	da 20 a 160 C in 4 h	160 C per 6 h	17,0	88,0
12	"	TMG (0,8)	da 20 a 145 C in 3 h	145 C per 7 h	17,3	90,1
13	"	IBA (0,8)	da 20 a 160 C in 3 h	160 C per 8 h	17,2	90,0

(*) COMPARATIVO

TABELLA (III)

ESEMPIO	DISPERDENTE (cm ³)	PROMOTORE (g)	T E TEMPI		FTALOCIA- NINA (g)	RESA SUL RAME (%)
			I STADIO	II STADIO		
14	Mesitilene (50)	TMU (0,8)	da 20 a 155 C in 3 h	155 C per 8 h	16,2	88,5
15 (*)	Mesitilene (50)	-	come in es. 14	come in es. 14	0	0
16	4-terbutil- toluene (50)	NMP (1,6)	da 20 a 165 C in 2 h	165 C per 5 h	17,35	94,8
17 (*)	4-terbutil- toluene (50)	-	come in es. 16	come in es. 16	0	0
18	1,3-diisopro- pil-benzene (50)	NMP (1,6)	come in es. 16	come in es. 16	17,1	93,4
19 (*)	1,3-diisopro- pil-benzene (50)	-	come in es. 16	come in es. 16	0	0
20	esacoloro-buta- diene (50)	NMP (1,6)	da 20 a 170 C in 2 h	170 C per 5 h	17,2	93,9

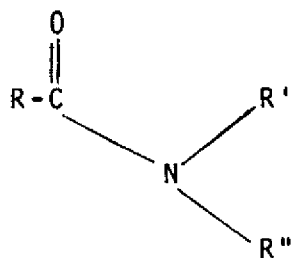
(*) COMPARATIVO

TABELLA (IV)

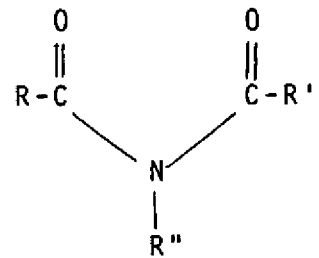
ESEMPIO	DISPERDENTE (cm ³)	PROMOTORE (g)	T E TEMPI		FTALOCIA- NINA (g)	RESA SUL RAME (%)
			I STADIO	II STADIO		
21	Metil-naftale- ni (75)	NMP (2)	da 25 a 170 C in 2 h	170 C per 4 h	26,2	95,4
22	2-cloro-para- xilene (75)	NMP (2)	da 25 a 165 C in 4 h	165 C per 6 h	26,3	95,7
23	2-cloro-para- xilene (75)	TMU (1,2)	come in es. 22	come in es. 22	26,5	96,5

RIVENDICAZIONI

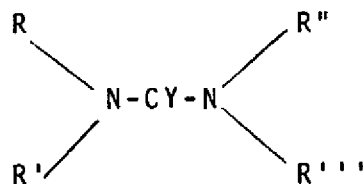
1. Processo catalitico perfezionato per la produzione di ftalocianina di rame, nella forma cristallina beta, mediante reazione dell'anidride ftalica con l'urea e con il rame (o con un composto del rame), in presenza di un disperdente liquido idrofobo, caratterizzato dalla presenza, accanto al catalizzatore e al disperdente, di un promotore scelto fra:
- A) Le ammidi, le immidi, le uree, le tiouree e le guanidine, di formula generale (I), (II) o (III):



(I)



(II)



(III)

dove Y è S, NH oppure O e dove R, R' R'' ed R''', uguali o differenti tra loro, sono H oppure gruppi alchilici, alchenilici (in particolare alchilvinilici), arilici, cicloalifatici o eterociclici (in cui l'etero atomo è N oppure O) contenenti da 1 a 15 atomi C, i gruppi delle coppie (R+R') e rispettivamente (R+R'') essendo opzionalmente tra loro legati a formare un ciclo carbociclico o eterociclico (in cui l'etero-atomo è N), almeno uno dei gruppi R, R', R'' ed R''' essendo diverso da H;

B) Le ammine di formula generale (IV)



dove R ed R' hanno il significato sopra specificato;

C) I solfossidi di formula generale (V):



dove R ed R' hanno il significato sopra specificato;

la quantità di promotore essendo tra 5 e 100 moli per 100 moli di rame o di composto del rame.

2. Processo secondo la rivendicazione 1, in cui il composto del rame, che deve reagire con l'anidride ftalica e l'urea, è scelto fra Cu_2O , CuO , fosfato di rame, CuX oppure CuX_2 , dove X è scelto fra Cl, Br, I, OH, HSO_4 , SO_4 , NO_3 e gli anioni carbossilici (per esempio CH_3COO), a seconda della valenza del rame.
3. Processo secondo una delle rivendicazioni precedenti, in cui la temperatura di reazione è fra 110 e 170 C, preferibilmente fra 130 e 170 C (meglio ancora fra 145 e 170 C).
4. Processo secondo una delle rivendicazioni precedenti, in cui il riscaldamento è realizzato sotto agitazione, il promotore essendo aggiunto all'inizio della reazione oppure nel corso della reazione, cioè durante il riscaldamento

- della miscela reagente.
5. Processo secondo una delle rivendicazioni precedenti, in cui i promotori vengono recuperati e riciclati tramite filtrazione, distillazione o estrazione.
 6. Processo secondo una delle rivendicazioni precedenti, in cui il promotore è scelto fra: N,N,N',N'-tetrametil-urea e/o tiourea; N-metil-2-pirrolidone; 1,3-dimetil-2-imidazolidone; N,N-dimetil-acetammide; di-sec-butilammina; 1,1,3,3-tetrametil-guanidina; isobutil-ammina; dimetil-solfossido, dietil-solfossido e loro miscele.
 7. Processo secondo una delle rivendicazioni precedenti, in cui il disperdente idrofobo è scelto fra alchil-benzeni (per esempio toluene ter-butyl-benzene, ter-esil-benzene); polialchilbenzeni (per esempio mesitilene; 4-ter-butyl-toluene; 1,3-diisopropil-benzene); difenile; difenilettere; alfa e/o beta metil-naftalene; tetralina; decalina; chinolina e loro miscele.
 8. Processo secondo una delle rivendicazioni da 1 a 6, in cui il disperdente idrofobo è scelto fra tricolorobenzene; diclorobenzene; diclorotolueni; 2-cloro-para-xilene; nitrobenzene; policloroalcani e policloroalcheni.
 9. Processo secondo una delle rivendicazioni precedenti, in cui il catalizzatore è scelto fra i composti di molibdeno e/o tungsteno e opzionalmente fosforo.
 10. Processo secondo la rivendicazione 9, in cui il

catalizzatore è scelto fra MoO_3 ; $(\text{NH}_4)_2\text{MoO}_4$; fosfomolibdato ammonico; isopolimolibdato di ammonio; etero-polimolibdato di ammonio; WO_3 ; fosfotungstato di ammonio; tungstato ammonico; isopolitungstato di ammonio ed etero-politungstato di ammonio.

11. Processo secondo una delle rivendicazioni precedenti, caratterizzato dall'uso delle seguenti quantità di reagenti e catalizzatori:

- rame (o composto del rame): fra 10 e 30% in moli rispetto all'anidride ftalica;
- urea: fra 200 e 600% in moli, rispetto all'anidride ftalica;
- catalizzatore: fra 100 e 5000 ppm, rispetto all'anidride ftalica;
- disperdente: fra 150 e 1000% in peso, rispetto all'anidride ftalica.

12. Processo per la produzione di ftalociamina di rame, nella forma cristallina beta, mediante reazione (a 145-170 C) dell'anidride ftalica con l'urea e con cloruro rameoso (CuCl), in presenza di un disperdente liquido idrofobo, in presenza di un composto del molibdeno e/o dal tungsteno, in veste di catalizzatore, e in presenza di un promotore scelto fra N-metil-2-pirrolidone e tetrametil-urea, la quantità di promotore essendo da 5 a 100 moli per 100 moli di CuCl .

13. Processo secondo la rivendicazione 12, in cui il catalizza-

(B-731-09)

tore è scelto fra MoO_3 , molibdato ammonio, fosfomolibdato ammonico, isopolimolibdati di ammonio ed eteropolimolibdati di ammonio.

14. Processo secondo la rivendicazione 12, in cui il catalizzatore è scelto fra WO_3 , tungstato ammonico, fosfo-tungstato ammonico, isopolitungstati di ammonio ed eteropolitungstati di ammonio.

15. Processo secondo una delle rivendicazioni precedenti, caratterizzato dalla presenza (accanto ai reagenti, al catalizzatore e al promotore) di un agente modificatore.

Novara, - 5 DIC. 1989

G. Rinaudo
Cio.pa

p.ACNA CHIMICA ORGANICA S.p.A.

ISTITUTO GUIDO DONEFANI S.p.A.

Dott. Daniele Sama

Procuratore

D. Sama



oo