

31462



Case 5488/A

P A T E N T E
D E
I N V E N C I O N

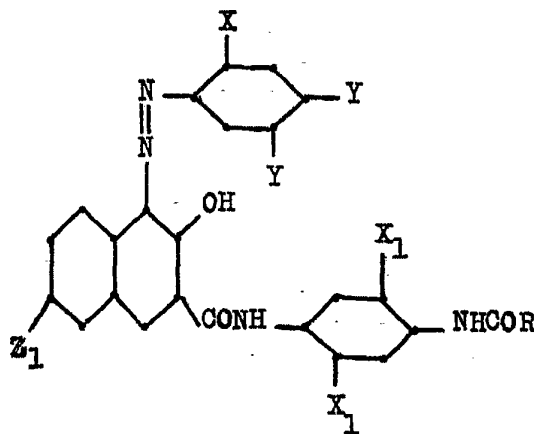
por "PROCEDIMIENTO PARA LA PREPARACION DE PIGMENTOS COLORAN-
TES MONOAZOICOS", a favor de la firma suiza CIBA SOCIETE
ANONYME, residente en BASILEA (Suiza).

= . =

MEMORIA DESCRIPTIVA

Este invento se refiere a pigmentos colorantes
monoazoicos de la fórmula

5.



10.

314629



en que

X significa un átomo de halógeno o un grupo alquilo, alcoxi o nitro; una de las

5.

Y significa un átomo de halógeno o un grupo alquilo, alcoxi o nitro, mientras la otra significa un átomo de hidrógeno o un grupo alquilo;

Z significa un átomo de hidrógeno o de halógeno o un grupo alcoxi;

10.

y en que,

o bien ambas X_1 significan átomo de hidrógeno o de halógeno o grupos alquilo o alcoxi,

o bien una X_1 significa un átomo de hidrógeno, mientras la otra significa un átomo de halógeno o un grupo alcoxi o trifluorometilo;

15.

y

R significa un radical bencénico, que está substituido por un grupo alcoxi, fenoxi, de éster carboxílico o acilamino alifático.

20.

Dado que los colorantes de este invento son pigmentos, quedan excluidos, como es lógico, los grupos acuosolubilizantes, en particular los grupos acuosolubilizantes ácidos, como los grupos de ácido sulfónico y de ácido carboxílico.

25.



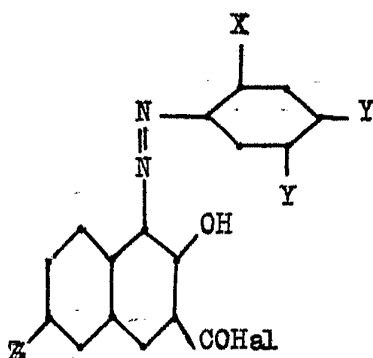
314629

Se llega a los nuevos colorantes si;

a) se condensa un haluro de ácido carboxílico de la fórmula

5.

2)

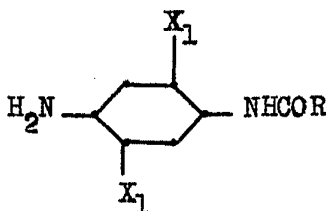


10.

con una amina de la fórmula

15.

3)



20.

donde ambas X_1 y R tienen el significado expuesto antes,

o bien

b) se copula el compuesto de diazoico de una amina de la fórmula

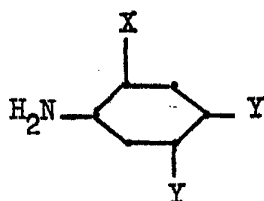
25.

314629

25



4)

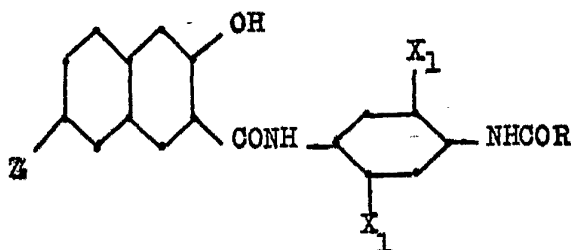


5.

con un naftol de la fórmula

10.

5)



15.

Para la modalidad de realización a) del procedimiento de este invento, se emplean de preferencia los cloruros de ácido carboxílico. Los correspondientes ácidos carboxílicos se obtienen si se copula el compuesto diazoico de una amina de la fórmula 4) con ácido 2,3-hidroxinaftoico, ácido 2-hidroxi-6-bromo-3-naftoico y ácido 2-hidroxi-6-metoxi-3-naftoico.

20.

En concepto de componentes diazoicos cabe citar las aminas siguientes:

25.



314629

- 2-cloro-4-metilanilina
- 2-cloro-4-metoxianilina
- 2-cloro-4-nitroanilina
- 2,4-dicloroanilina
- 5. 2,5-dicloroanilina
- 2,5-dibromoanilina
- 2-cloro-5-metilanilina
- 2-cloro-5-metoxianilina
- 2-cloro-5-nitroanilina
- 10. 2,4-dimetilanilina
- 2-metil-4-cloroanilina
- 2-metil-4-metoxianilina
- 2-metil-4-nitroanilina
- 2-metil-5-cloroanilina
- 15. 2-metil-5-metoxianilina
- 2-metil-5-nitroanilina
- 2-metoxi-4-cloroanilina
- 2-metoxi-4-metilanilina
- 2-metoxi-4-nitroanilina
- 20. 2-metoxi-5-cloroanilina
- 2-metoxi-5-metilanilina
- 2-metoxi-5-nitroanilina
- 2-nitro-4-cloroanilina
- 2-nitro-4-metilanilina
- 25. 2-nitro-4-metoxianilina
- 2,4-dinitroanilina
- 2-nitro-5-cloroanilina

314629



2-nitro-5-metilanilina
2-nitro-5-metoxianilina y
2-metoxi-4-cloro-5-metilanilina.

5. Los ácidos carboxílicos de colorante azoico obtenidos se tratan con agentes aptos para convertir los ácidos carboxílicos en sus haluros, por ejemplo en los cloruros o los bromuros; así, en particular, con haluros de fósforo, como el pentabromuro de fósforo o el tricloruro o pentacloruro de fósforo, con oxihaluros de fósforo y, preferentemente, con
10. cloruro de tionilo.

El tratamiento con tales agentes halogenadores de ácido se efectúa de conveniencia en disolventes orgánicos indiferentes, como dimetilformamida, clorobencenos (por ejemplo, mono- o di-clorobenceno), tolueno, xileno o nitrobenzeno,
15. en el caso de los cinco últimos con adición de dimetilformamida.

Para la preparación de los haluros de ácido carboxílico suele ser conveniente secar primeramente los compuestos azoicos preparados en medio acuoso o bien liberarlos
20. del agua azeotrópicamente por ebullición en un disolvente orgánico. Este secado azeótropo puede, si se quiere, realizarse inmediatamente antes del tratamiento con los agentes halogenadores de ácido.

Los cloruros de ácido carboxílico de colorante
25. azoico obtenidos se condensan con monoaminas de la fórmula

314629²



3). Como ejemplos, cabe citar las aminas siguientes:

- 4'-metoxibenzoilamino-anilina
- 2-cloro-4-(4'-metoxibenzoilamino)-anilina
- 2-metoxi-4-(4'-metoxibenzoilamino)-anilina
- 5. 2,5-dicloro-4-(4'-metoxibenzoilamino)-anilina
- 2,5-dicloro-4-(3'-metoxibenzoilamino)-anilina
- 2,5-dimetil-4-(4'-metoxibenzoilamino)-anilina
- 2,5-dimetil-4-(4'-etoxibenzoilamino)-anilina
- 10. 2-cloro-5-metil-4-(4'-metoxibenzoilamino)-anilina
- 2-metoxi-5-cloro-4-(4'-metoxibenzoilamino)-anilina
- 3-trifluorometil-4-(4'-metoxibenzoilamino)-anilina
- 2,5-dimetil-4-(4'-acetilamino)-benzoilamino-anilina
- 2,5-dimetil-4-(3'-acetilamino)-benzoilaminoanilina
- 4-(3'-acetilamino)-benzoilaminoanilina
- 15. 2-metoxi-5-cloro-4-(4'-acetilamino)-benzoilaminoanilina
- 2,5-dimetil-4-(4'-nitro)-benzoilaminoanilina
- 2,5-dicloro-4-(4'-nitro)-benzoilaminoanilina
- 4-(3'-nitro)-benzoilaminoanilina
- 2,5-dimetil-4-(4'-clorofenoxi)-benzoilaminoanilina
- 20. 2,5-dicloro-4-(4'-fenoxi)-benzoilaminoanilina
- 4-(2',4'-diclorofenoxi)-benzoilaminoanilina
- 4-(2',4',6'-triclorofenoxi)-benzoilaminoanilina
- 2,5-dimetil-4-(4'-carbometoxi)-benzoilaminoanilina
- 2,5-dicloro-4-(4'-carbometoxi)-benzoilaminoanilina
- 25. 4-(4'-carbometoxi)-benzoilaminoanilina



314629

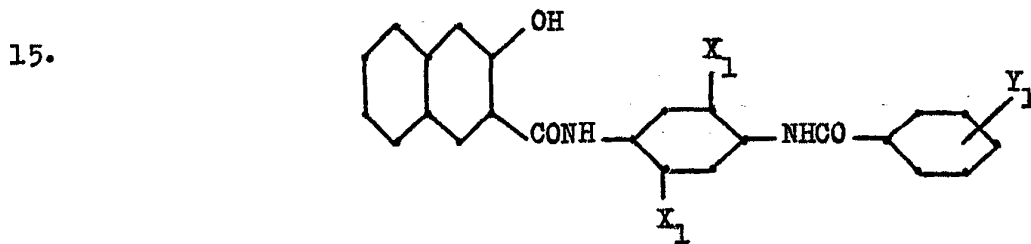
- 2,5-dicloro-4-(4'-carboetoxi)-benzoilaminoanilina
- 4-(4'-carboetoxi)-benzoilaminoanilina
- (2',5'-dimetil-4'-amino)-anilida de ácido 4-(p-clorofenoxi)-benzoico
- 5. (2',5'-dicloro-4'-amino)-anilida de ácido 4-(m-clorofenoxi)-benzoico
- (2'-metil-5'-cloro-4'-amino)-anilida de ácido 4-(p-clorofenoxi)-benzoico
- (2'-cloro-5'-metil-4'-amino)-anilida de ácido 4-fenoxibenzoico
- 10.
- (4'-aminoanilida de ácido 4-(p-clorofenoxi)-benzoico
- 4'-aminoanilida de ácido 4-(p-bromofenoxi)-benzoico
- 4'-aminoanilida de ácido 4-(p-fluorofenoxi)-benzoico.

- La condensación entre los haluros de ácido carboxílico del tipo expuesto al principio y las aminas se realiza convenientemente en medio anhidro. En estas condiciones, la condensación se desarrolla por lo general con sorprendente facilidad, aún a temperaturas que están dentro de la gama de ebullición de los disolventes orgánicos normales, como el tolueno, el monoclorobenceno, el diclorobenceno, el triclorobenceno, el nitrobenzono y análogos. Para acelerar la reacción se recomienda en general el empleo de un agente aceptor de ácido, como acetato sódico anhidro o piridina. Los colorantes obtenidos son en parte cristalinos y en parte amorfos y la mayoría de las veces se obtienen con muy buen rendimiento y en
- 15.
 - 20.
 - 25.



estado puro. Es conveniente segregar ante todo los cloruros de ácido obtenidos a partir de los ácidos carboxílicos. Pero en muchos casos puede, sin detrimento, renunciarse a la segregación de los cloruros de ácido y efectuarse la condensación a continuación inmediata de la preparación de los cloruros de ácido carboxílico.

Según la modalidad de realización b) del procedimiento de este invento, se llega a los nuevos colorantes si se copula el compuesto diazoico de una amina de la fórmula 4) con un naftol de la fórmula 5), en particular con uno de la fórmula



20. donde

X_1 tiene el significado expuesto antes e
 Y_1 significa un grupo alcoxi, fenoxi, de éster carboxílico, carboalcoxi o acilamino alifático.

25. La copulación se produce mediante la adición gra-



- dual de la solución acuosoalcalina del componente de copulación a la solución ácida de la sal de diazonio. La cantidad de hidróxido alcalino utilizada para la solución del componente de copulación se mide de conveniencia de modo que baste para la neutralización del ácido mineral que se libera de la sal de diazonio durante la copulación. Esta se realiza convenientemente con un pH de 4 a 6. El pH se ajusta ventajosamente mediante la adición de un amortiguador o tampón.
5. En concepto de amortiguadores entran en consideración, por ejemplo, las sales, en particular las sales alcalinas, del ácido fórmico, del ácido fosfórico o, sobre todo, del ácido acético. La solución alcalina del componente de copulación contiene de conveniencia un humectante, dispersante o emulgente, por ejemplo un sulfonato de aralquilo, como el sulfonato de dodecilbenceno o la sal sódica del ácido 1,1'-naftilmetansulfónico, productos de condensación de óxido de alquileno, como el producto de la acción del óxido de etileno sobre el p-terciocetilfenol, y asimismo ésteres alquílicos de sulforricinoleatos, por ejemplo sulforricinoleato de n-butilo.
10. La dispersión del componente de copulación puede contener también, ventajosamente, coloides protectores, por ejemplo, metilcelulosa o pequeñas cantidades de disolventes orgánicos inertes, insolubles o difícilmente solubles en agua, por ejemplo hidrocarburos aromáticos, eventualmente halogenados
15. o nitrados, como benceno, tolueno, xileno, clorobenceno, di-
- 20.
- 25.



314629

clorobencenos o nitrobenzeno, y asimismo hidrocarburos halogenados alifáticos, como por ejemplo tetracloruro de carbono o tricloroetileno, lo mismo que disolventes orgánicos miscibles con el agua, como acetonas, metiletilcetona, metanol, etanol o isopropanol.

- 5.
- 10.
- 15.
- 20.

La copulación puede efectuarse también ventajosamente procediendo a combinar continuamente una solución ácida de la sal de diazonio con una solución alcalina del componente de copulación, en una boquilla mezcladora, con lo cual se produce una copulación inmediata de los componentes. Hay que procurar que el componente diazoico y el componente de copulación se hallen en la boquilla mezcladora en cantidades equimoleculares, y en tal caso resulta ventajoso un pequeño exceso del componente de copulación. Esto se logra de la manera más sencilla controlando el pH del líquido en la boquilla mezcladora. También hay que procurar que en la boquilla mezcladora se produzca una intensa turbulencia de las dos soluciones. La dispersión de colorante originada se retira continuamente de la boquilla mezcladora y el colorante se separa por filtración.

- 25.

Los nuevos colorantes constituyen valiosos pigmentos que pueden emplearse para las más diversas aplicaciones pigmentarias; por ejemplo, en forma finamente dividida, para teñir seda artificial y viscosa, o éteres y ésteres de celulosa, o superpoliamidas y superpoliuretanos o poliésteres.



- res en la masa para hilar, y asimismo para la preparación de barnices coloreados o formadores de barnices, soluciones o productos de acetilcelulosa, nitrocelulosa, resinas naturales o artificiales, como resinas de polimerización o resinas de condensación, por ejemplo aminoplastos, resinas alquídicas, fenoplastos, poliolefinas como el poliestireno, el cloruro de polivinilo, el polietileno, el polipropileno y el poliacrilonitrilo, goma, caseína, silicona y resinas de silicona. También se los puede emplear ventajosamente para la elaboración de lápices de colores, preparados cosméticos o placas laminadas.
- 5.
- 10.

En los ejemplos que siguen, las partes significan, en tanto no se indique otra cosa, partes en peso, y los porcentajes, porcentajes en peso; las temperaturas estén señaladas en grados centígrados.

15.

E J E M P L O 1

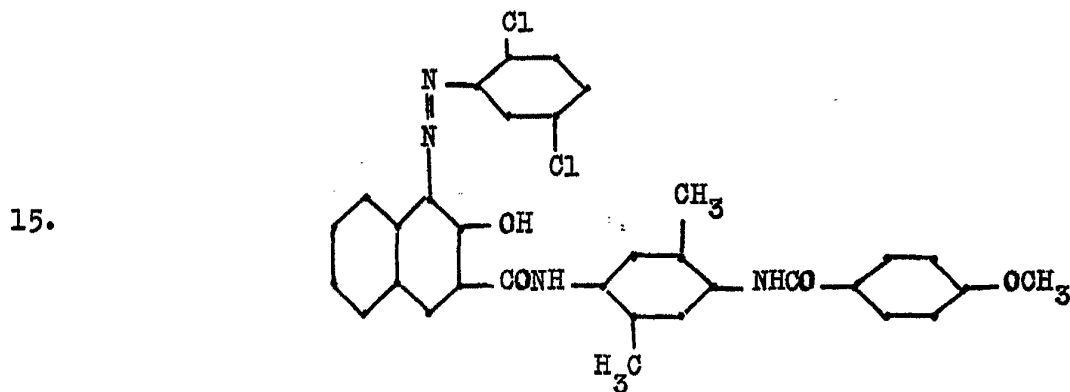
- 54,2 partes del colorante que se obtiene por copulación de 2,5-dicloro-1-aminobenceno, diazoado en ácido clorhídrico acuoso y nitrito sódico, con ácido 2,3-oxinaftoico, se calientan durante una hora a 110-115° y agitando, en mezcla con 500 partes de o-diclorobenceno, 25 partes de cloruro de tionilo y 2,5 partes de dimetilformamida. Después de enfriada la mezcla reaccional, se aísla por filtración el cloruro de ácido monocarboxílico del colorante, homogéneamen-
- 20.
- 25.



314629

te cristalino, se le lava con o-diclorobenceno frío y con benceno y se le seca en vacío a temperatura de 50 a 60°.

5. 6,84 partes de este cloruro se calientan a temperatura de 140 a 145° con 5 partes de 2,5-dimetil-4-(4'-metoxi)-benzoilaminoanilina y 400 partes de o-diclorobenceno, durante 14 horas. A continuación se separa por filtración en caliente el pigmento cristalino, difícilmente soluble, se le lava con o-diclorobenceno caliente, con alcohol hirviendo y con agua caliente y se le seca en vacío a temperatura de 70 a 80°. El colorante obtenido, de la fórmula
- 10.



20. constituye un pigmento rojo, que en los disolventes usuales resulta de solubilidad difícil hasta imposible y que tiñe las láminas de cloruro de polivinilo, así como los barnices, con tonalidades rojo escarlatas, de excelente solidez a la luz, a la migración y al sobrelaqueado.

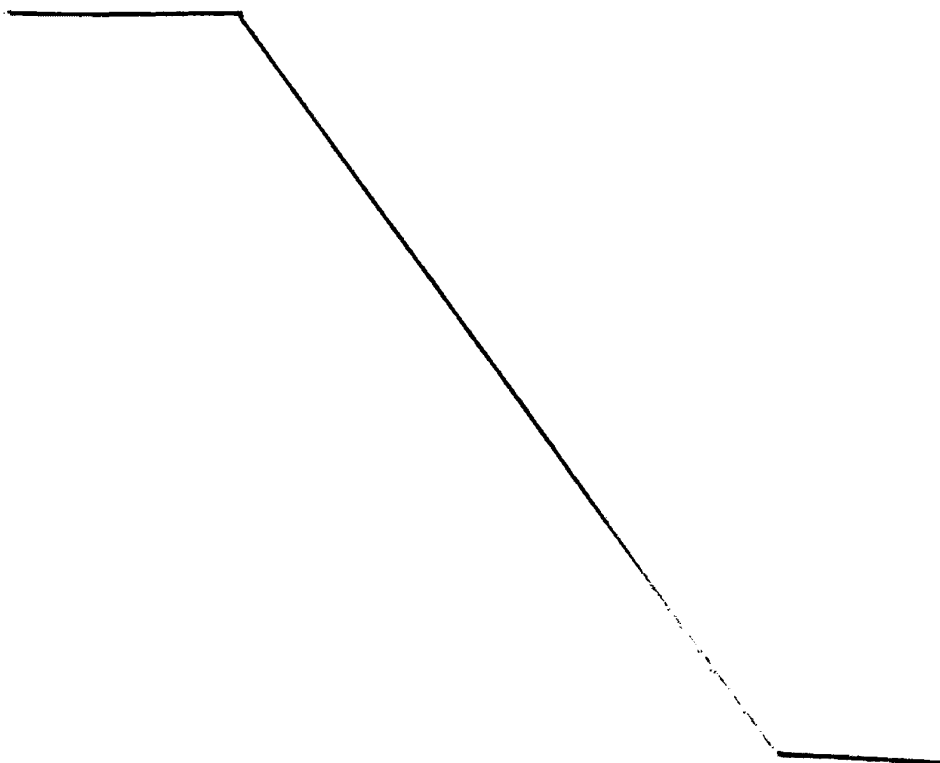
25. De manera correspondiente a como se ha expuesto



314629

en los párrafos 1 y 2, los ácidos monocarboxílicos de colorante azoico obtenibles a partir de los componentes diazoicos mononucleares de la columna I y los componentes de copulación de la columna II de la tabla que sigue, pueden

5. hacerse reaccionar, pasando por los cloruros de ácido monocarboxílico de colorante monoazoico, con 1 mol de las monoaminas aromáticas binucleares indicadas en la columna III. La columna IV indica la tonalidad tintórea de una lámina de cloruro de polivinilo teñida con el pigmento.





314629

	I	II	III	IV
5.	1 2,5-dicloro-anilina	ácido 2,3-hidroxi-naftoico	4-(4'-metoxi)-benzoilaminoanilina	escarlata
	2 "	"	2,5-dicloro-4-(4'-metoxi)-benzoilaminoanilina	"
10.	3 "	"	2-metoxi-5-cloro-4-(4'-metoxi)-benzoilaminoanilina	rojo
	4 "	"	2-metil-5-cloro-4-(4'-metoxi)-benzoilaminoanilina	escarlata
15.	5 "	"	2-cloro-5-metil-4-(4'-metoxi)-benzoilaminoanilina	"
	6 "	"	2,5-dimetil-4-(4'-etoxi)-benzoilaminoanilina	rojo
20.	7 "	"	2,5-dimetil-4-(4'-isopropoxi)-benzoilaminoanilina	"



314629

	I	II	III	IV	
5.	8	2,5-dicloro-anilina	ácido 6-bromo-2,3-hidroxinaftoico	2,5-dimetil-4-(4'-metoxi)-benzoilaminoanilina	rojo azulado
	9	"	ácido 6-metoxi-2,3-hidroxinaftoico	"	burdeos
10.	10	2,5-dibromo-anilina	ácido 2,3-hidroxi-naftoico	"	rojo
	11	2,5-dicloro-anilina	"	2,5-dicloro-4-(4'-acetilamino)-benzoilaminoanilina	"
15.	12	"	"	2,5-dimetil-4-(4'-carbometoxi)-benzoilaminoanilina	"
	13	"	"	2,5-dimetil-4-(4'-carbometoxi)-benzoilaminoanilina	"
20.	14	"	"	4-(4'-carbometoxi)-benzoilaminoanilina	rojo anaranjado



314629

	I	II	III	IV	
5.	15	2,5-dicloro-anilina	ácido 2,3-hidroxi-naftoico	2,5-dimetil-4-(4'-acetilamino)-benzoilaminoanilina	rojo
	16	"	"	2,5-dimetil-4-(3'-acetilamino)-benzoilaminoanilina	"
10.	17	"	"	2-metoxi-5-cloro-4-(4'-carbometoxi)-benzoilaminoanilina	pardo
	18	"	"	2-metil-5-cloro-4-(4'-carbometoxi)-benzoilaminoanilina	rojo
15.	19	"	"	4-(2'-acetilamino)-benzoilaminoanilina	"
	20	5-cloro-2-metoxianilina	"	4-(4'-carbometoxi)-benzoilaminoanilina	"
20.	21	4-nitro-2-metoxianilina	"	2,5-dimetil-4-(4'-acetilamino)-benzoilaminoanilina	"
25.	22	5-nitro-2-metoxianilina	"	2,5-dimetil-4-(4'-metoxi)-benzoilaminoanilina	"



314629

	I	II	III	IV
5.	23 5-nitro-2-metoxianilina	ácido 2,3-hidroxinaftoico	2,5-dimetil-4-(4'-acetilamino)-benzoilaminoanilina	rojo
	24 4-nitro-2-metil-anilina	"	4-(4'-metoxi)-benzoilaminoanilina	"
10.	25 5-nitro-2-metil-anilina	"	"	"
	26 2,5-dicloro-anilina	"	2,5-dicloro-4-(4'-nitro)-benzoilaminoanilina	"
15.	27 "	"	(2',5'-dimetil-4'-amino)-anilida de ácido 4-(p-clorofenoxi)-benzoico	escarlata
	28 "	"	4'-aminoanilida de ácido 4-(p-clorofenoxi)-benzoico	"
20.	29 5-metil-4-cloro-2-metoxianilina	"	4-(4'-metoxi)-benzoilaminoanilina	rojo



314629

EJEMPLO 2

Se diazoan de la manera ordinaria 8,1 partes de 2,5-dicloro-1-aminobenceno con ácido clorhídrico acuoso, hielo y nitrito sódico.

5. Por otra parte, se disuelven 22,2 partes de 1-cloro-2-(2'-hidroxi-3'-naftoilamino)-4-cloro-5-(4^m-metoxi)-benzoilaminobenceno en 50 partes de etanol, 10 partes de lejía de sosa cáustica al 30%, 200 partes de agua y 100 partes de éter monoetílico de etilenglicol. Se añade a la solución
10. 1 parte del producto de condensación de 8 moles de óxido de etileno y 1 mol de p-terciocetilfenol y a continuación se precipita el naftol con 70 partes de ácido acético glacial, agitando bien. Se copula por adición de la solución
15. diazoica que se ha descrito en el párrafo 1, manteniendo un pH de 3 a 4 y una temperatura de 35 a 40°. Al final de la copulación se prosigue agitando durante 2 horas a la misma temperatura, se ajusta a acidez congo, por adición de ácido clorhídrico, la suspensión de pigmento originada y se separa por filtración. Se lava con agua caliente hasta que ya no
20. se aprecian en el filtrado más iones de cloro y, después de secar a temperatura de 80 a 90°, en vacío, se obtiene con buen rendimiento el colorante pigmentario rojo de la fórmula del ejemplo 1, el cual tiñe los plásticos, como el cloruro de polivinilo, y los barnices con tonalidades rojo escarlata, de buena solidez a la migración, al sobrelaqueado
- 25.



314629

y a la luz.

EJEMPLO 3

5. Se diazoan 16,2 partes de 2,5-dicloro-1-amino-benceno de la manera que se ha descrito en el ejemplo 1 y se clarifica por filtración.
10. Por otra parte, se disuelven en frío 48 partes de 1-cloro-2-(2'-hidroxi-3'-naftoilamino)-4-cloro-5-(4"-metoxi)-benzoilaminobenceno en una mezcla de 150 partes de éter monoetílico de etilenglicol y 10 partes de lejía de sosa cáustica al 30%. Ambas soluciones, si es preciso después de diluirlas con agua, se aportan continuamente a una boquilla mezcladora, en la que se produce una copulación inmediata de los componentes. Regulando la aportación de las
15. soluciones, se procura que el pH en la boquilla mezcladora sea de 5 a 6. La temperatura debe hallarse entre 35 y 40°; se la puede regular por adición de agua a las soluciones de los componentes. Se separa por filtración la suspensión de colorante originada y se lava el residuo del filtro; luego
20. se agita éste con una mezcla compuesta por 20 partes de agua, 110 partes de éter monoetílico de etilenglicol y 100 partes de o-diclorobenceno y se filtra el conjunto. El residuo del filtro se lava primeramente con éter monoetílico de etilenglicol y luego con metanol y se le seca en vacío a temperatura
25. de 70 a 80°. El colorante, obtenido con rendimiento casi



314629

cuantitativo, corresponde en matiz, pureza, finura de división y propiedades de solidez al producto obtenido según el ejemplo 1.

5. El colorante obtenido se logra con una finura de división sumamente buena si se agrega a la solución del componente diazótico o del componente de copulación un humectante aniónico o no ionógeno, por ejemplo la sal sódica del ácido N-bencil-mu-heptadecilbenzimidazol disulfónico.

10. E J E M P L O 4

15. Se agitan conjuntamente 65 partes de cloruro de polivinilo estabilizado, 35 partes de ftalato de dioctilo y 0,2 partes del colorante obtenido según el ejemplo 1, párrafo 2, y luego se lamina la mezcla en valvén, a 140° y durante 7 minutos, en una calandria de dos rodillos. Se obtiene una lámina de color rojo escarlata, con muy buena solidez a la luz y a la migración.

- - - - -

314629



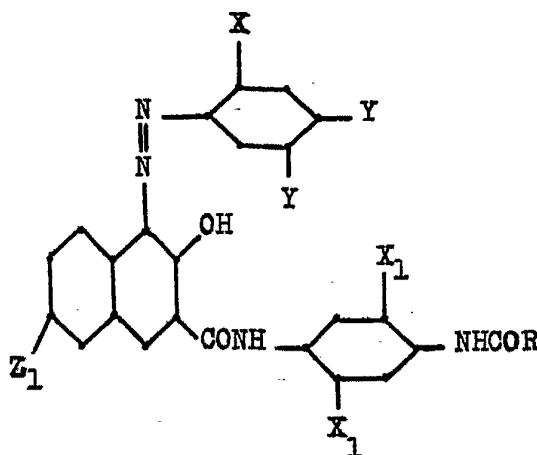
N O T A

5. Descrito el objeto del presente invento, se declaran como nuevas y de propia invención las siguientes reivindicaciones, con prioridad de las solicitudes de patentes suizas nº 8413/64 del 26 de Junio de 1964 y nº del 31 de Mayo de 1.965, existiendo en ambas unidad de invención.

1.- Procedimiento para la preparación de pigmentos colorantes monoazoicos de la fórmula

10.

15.



en que

20. X significa un átomo de halógeno o un grupo alquilo, alcoxi o nitro;

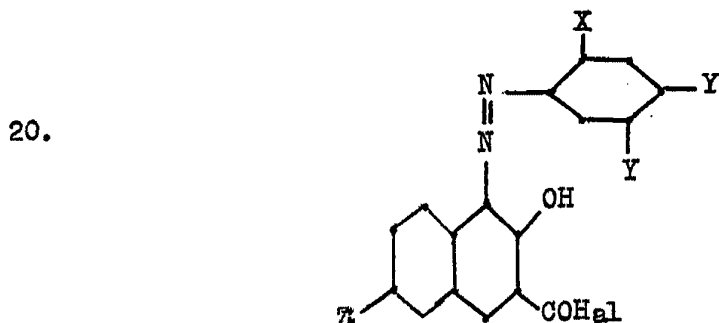


314629

- una Y significa un átomo de halógeno o un grupo alquilo, alcoxi o nitro, mientras la otra significa un átomo de hidrógeno o un grupo alquilo;
- Z significa un átomo de hidrógeno o de halógeno o un grupo alcoxi; y
5. o bien ambas X_1 significan átomos de hidrógeno o de halógeno o grupos alquilo o alcoxi, o bien una X_1 significa un átomo de hidrógeno, mientras la otra significa un átomo de halógeno o un grupo alcoxi o trifluorometilo; y
10. R significa un radical bencénico que está substituido por un grupo alcoxi, fenoxi, de éster carboxílico o acil-amino alifático,

caracterizado por:

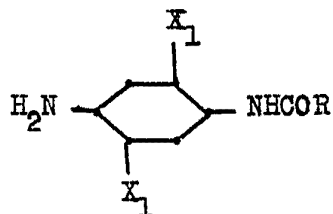
15. a) condensarse un haluro de ácido carboxílico exento de grupos acuosolubilizantes ácidos, de la fórmula



25. con una amina de la fórmula



314629



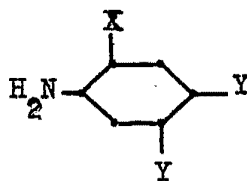
5.

en que las X_1 y R tienen el significado expuesto antes,

o bien

b) copularse el compuesto diazoico de una amina de la fórmula

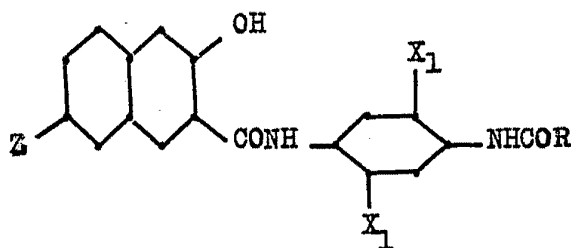
10.



15.

con un naftol de la fórmula

20.



25.

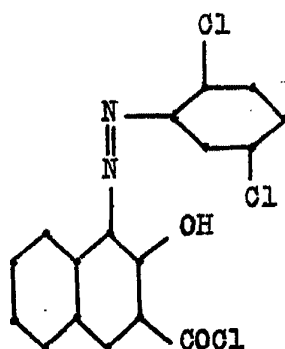
2.- Procedimiento como se define en la reivindicación



314629

ción 1, caracterizado por partirse de un cloruro de ácido carboxílico de la fórmula

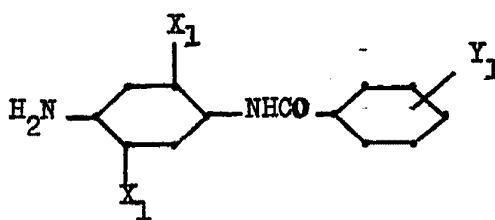
5.



10.

3.- Procedimiento como se define en las reivindicaciones 1 y 2, caracterizado por condensarse el haluro de ácido con una amina de la fórmula

15.



20.

en que

ambas X_1 tienen el significado expuesto antes e

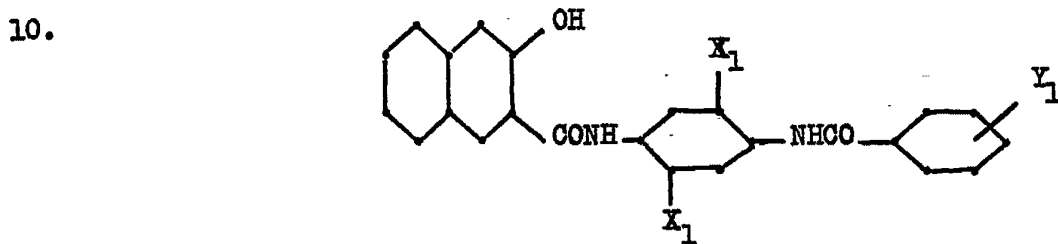
Y_1 significa un grupo alcoxi, fenoxi, carboalcoxi o acil-amino alifático.

25.



4.- Procedimiento como se define en la reivindicación 1, caracterizado por emplearse, como componente diazoico, 2,5-dicloroanilina.

5. 5.- Procedimiento como se define en las reivindicaciones 1 y 4, caracterizado por emplearse, como componente de copulación, un naftol de la fórmula



15. en que las X_1 e Y_1 tienen el significado expuesto antes.

6.- Procedimiento para la preparación de pigmentos colorantes monoazoicos.

20. Según se describe y reivindica en la presente memoria descriptiva que consta de 26 hojas foliadas y escritas a máquina por una sola de sus caras.

Madrid, a 25 de Junio de 1.965.

P. a. JAIME ISERN

p. p.