

389097

Cas E.1268

389097

SECCION TECNICA
CLASIFICACION I. P. C.
CLASE <u>209</u>
SUBCLASE <u>B</u>



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

por "PROCEDIMIENTO PARA COLOREAR LOS HIDROCARBUROS DERIVADOS DE LA DESTILACION DEL PETRÓLEO" a favor de la firma italiana AZIENDE COLORI NAZIONALI AFFINI ACNA S.p.A., residente en MILAN (Italia).

= . =

MEMORIA DESCRIPTIVA

Este invento se refiere a una clase de colorantes azoicos que son muy solubles en los disolventes orgánicos.

A causa de esta característica particular, se los puede usar en un amplio campo de aplicaciones técnicas, como,

5. por ejemplo, para colorear tintas, materiales plásticos sintéticos, materiales leñosos y en particular derivados del petróleo, como la gasolina, los aceites lubricantes y otros destilados líquidos semejantes del petróleo.

Como se sabe, los productos del petróleo se colorean para diversos fines, pero sobre todos para identificarlos, desnaturalizarlos y otros fines semejantes.

10.

389097



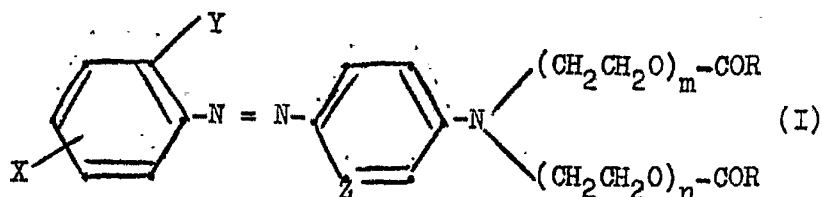
Esta clase de colorantes se emplea de ordinario en estado sólido, en forma de polvos, gránulos, escamas, etc., aunque con una serie de dificultades e inconvenientes.

- En efecto, si están en polvo, los colorantes que
5. contienen disolventes son ingratos y de manipulación incómoda, por cuanto originan polvillo en el ambiente; si se hallan en forma de aglomerados, son más lentos en solubilizarse, lo cual limita el campo de sus aplicaciones posibles. Por otra parte, con los colorantes tradicionales que contienen disolventes (véase, por ejemplo, I.C., 2ª edición, 1956, Números 11020, 12055, 26100 y 26105) no es posible emplear soluciones concentradas preparadas de antemano, por cuanto son poco solubles en los disolventes orgánicos (la solubilidad está generalmente comprendida entre 2% y 5%). Esto
10. irroga una serie de gastos suplementarios por la gran cantidad de disolvente que ha de emplearse, el equipo necesario y los mayores costes de expedición.

- Incluso las pastas fluídas que tienen gran concentración de colorante (colorante sólido dividido finamente
20. en el soporte) presentan el inconveniente de que no es posible obtener con rapidez una distribución homogénea del colorante en el medio que ha de colorearse.

La peticionaria ha descubierto ahora, sorprendentemente, que los colorantes de la fórmula general

389097



5. en la que  
 $X = H, 4-Cl, 4NO_2, 3-NO_2$ , alquilo inferior o 4-fenil-  
 -azo con el radical fenílico eventualmente substituido,  
 de preferencia por alquilos inferiores;  
 $Y = H, Cl, Br, NO_2, CN$ , alquilo inferior o alcoxilo in-  
 10. ferior;  
 $R = CH_3$  o  $C_2H_5$ ;  
 $Z = H, CH_3$  o  $Cl$ ;  
 $m \geq 1$ ;  
 $n \geq 1$ ;
15. y la suma  $m + n$  tiene un valor medio entre 3 y 10, y  
 preferentemente entre 5 y 7,  
 se caracterizan por solubilidad muy alta en los disolventes  
 orgánicos y en particular en los disolventes hidrocarbúricos  
 y permiten por lo tanto preparar verdaderas soluciones de  
 20. concentración elevadísima, en algunos casos hasta el 70%  
 en peso de colorante.

Estas soluciones de alta concentración son flúidas

389097

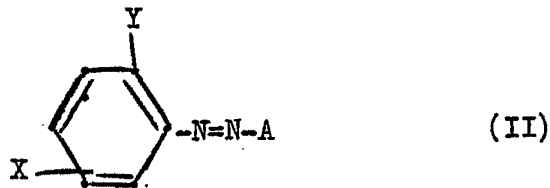


y estables y pueden mezclarse de manera inmediata y completa con los destilados del petróleo, por lo cual se las puede utilizar por simple vertimiento, bombeo, etc., y ofrecen grandes ventajas, incluso respecto a la automatización de las operaciones de mezcla y de las condiciones sanitarias en los locales de trabajo.

5.

Los colorantes según la fórmula general (I) pueden prepararse (y este procedimiento constituye otro objeto del invento) por copulación de un compuesto diazoico de la fórmula general

10.

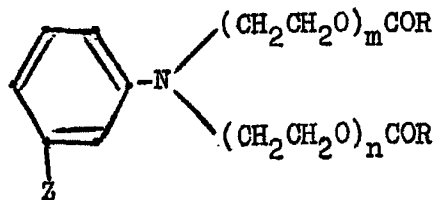


15.

en la que X e Y tienen el mismo significado que se les ha atribuido para la fórmula general (I), mientras que A es un radical aniónico,

20.

con una amina aromática terciaria de la fórmula general:



25.

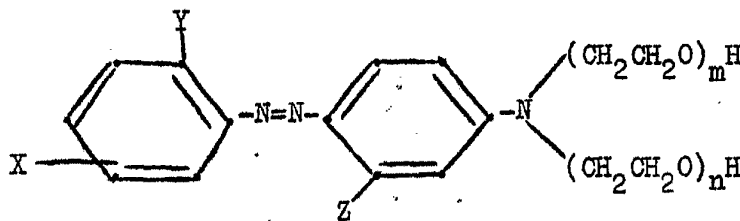
389097



en la que Z, m, n y R tienen el mismo significado que se les ha atribuido para la fórmula general (I).

Un segundo procedimiento para preparar los colorantes conformes a la fórmula general (I) (y este es otro objeto más del invento) consiste en esterificar, en medio anhidro, colorantes azoicos intermediarios de la fórmula general

5.



en la que X, Y, Z y m + n tienen el mismo significado que se les ha atribuido antes,

con ácidos alifáticos (C = 2 ó 3) o con sus anhídridos o haluros. El medio anhidro consiste en disolventes orgánicos tales como, por ejemplo, tolueno o xileno.

15.

Los colorantes de acuerdo con este invento se ponen en el mercado preferentemente en forma de líquido con gran concentración de colorante. Tal estado líquido se obtiene por lo general directamente al separar el colorante de la masa final de reacción, por adición de disolventes orgánicos apropiados tales como el tolueno, el xileno, el nonilfenol, el dodecilfenol, el salicilato de metilo, el ftalato de diisobutilo, el ftalato de diisooctilo, etc.

20.

389097



Las ventajas técnicas de este invento no se limitan a las ya expuestas, que dependen de sus excepcionales propiedades de solubilidad en los disolventes orgánicos, sino que incluyen además la posibilidad de lograr, a causa de la presencia de grupos etéreos (que ejercen una acción colorante profunda), tonalidades más intensas y de rendimiento tintóreo superior, a igualdad de peso molecular, que los colorantes de estructura más próxima que en las cadenas alifáticas ligadas al átomo de nitrógeno contienen solamente grupos de éster.

Los ejemplos que siguen ilustran este invento, pero sin limitarlo, tanto por lo que se refiere a las estructuras químicas de los colorantes preparables, como a los procedimientos de preparación o a la gama de aplicaciones en que pueden emplearse.

EJEMPLO 1

En 30 minutos y a temperatura no superior a 20°C, se añaden 18,3 g de 2,4—dinitroanilina a 50 cc de una solución sulfúrica de ácido nitrosil-sulfúrico (que contiene 0,11 g-moles de ácido nitrosil-sulfúrico).

Se agita el conjunto por una hora y se descarga la

389097



masa de diazoación en 100 g de hielo. Se elimina el exceso de  $\text{HNO}_2$  y se clarifica la solución valiéndose de un filtro de pliegues.

5. Se obtienen 180 cc de una solución diazoica límpida, que se transfiere a un vaso de 1000 cc de capacidad.

10. Se refrigera externamente el vaso a  $-10^\circ\text{C}$  con salmuera y se cuele en una hora aproximadamente la solución de 41 g de N,N-polioxietyl-metatoluidina diacetilada (peso molecular medio, 411;  $m+n = 5$  por término medio; véase la tabla) en 200 cc de agua y 13 cc de ácido clorhídrico de  $20^\circ$  Bé. El colorante se precipita en forma de cristales. Al final de la copulación, se añaden 250 cc de xileno y se ajusta el pH a 8 aproximadamente por vertimiento de 140 cc de NaOH de  $36^\circ$  Bé con un embudo de grifo, en 1 hora aproximadamente.

15. Al mismo tiempo, se eleva la temperatura hasta  $15-20^\circ\text{C}$ . Se mantiene el conjunto en agitación por unas 2 horas y luego se transfiere la masa a un embudo separador y se decanta la fase acuosa. A continuación se lava la masa xilénica por sacudimiento y decantación con  $\text{H}_2\text{O}$  (1000 cc en 4 partes), se clari-

20. fica por medio de un filtro de pliegues, se transfiere a un matraz de destilación y se destila en vacío (30 mm de Hg;  $50^\circ\text{C}$ ) el exceso de disolvente, hasta alcanzar la concentración deseada de colorante (alrededor de 50 a 60% en peso). Se obtiene una masa flúida, que es estable (incluso a  $0^\circ\text{C}$ )

25. y que colorea los productos del petróleo de un rojo azulado.



389097

EJEMPLO 2

Se suspenden 17,25 g de 2-cloro-4-nitroanilina en 50 cc de agua a 60°C y 50 cc de ácido clorhídrico 10-n.

- Se deja enfriar la suspensión hasta la temperatura del ambiente, con agitación, se añaden 100 g de hielo y se procede a la diazoación por vertimiento rápido, bajo nivel, de una solución acuosa de  $\text{NaNO}_2$  al 20%. Se agita la solución por 2 horas a 0-3°C, se elimina el exceso de  $\text{HNO}_2$  y se clarifica la solución por medio de un filtro de pliegues. La
5. solución diazoica límpida (volumen, 280 cc) se transfiere a un vaso de 1000 cc y, a la temperatura de partida de 0-3°C, se la vierte la solución de 40 g de N,N-polioxietyl-anilina diacetilada (peso molecular medio, 397,4;  $m+n = 5$  por término medio) en 200 cc de agua y 15 cc de ácido clorhídrico de
10. 20° Bé, a 15-20°C y en una hora aproximadamente. La temperatura sube hasta 10-15°C y el colorante se precipita en forma de pez semilíquida, que no impide la agitación, Después de agitar por una hora aproximadamente, se eleva el pH hasta 3,5-3,7- por vertimiento de unos 200 cc de una solución
15. al 50% de acetato sódico. Se prosigue la agitación por una hora, se agregan 200 cc de xileno y se sigue agitando por unas horas más. Luego se transfiere la masa a un embudo separador y se decanta la fase acuosa.
- 20.

La masa xilénica se lava por sacudimiento y decan-

389097



- tación con agua (alrededor de 1000 cc, en tres partes), se clarifica por medio de un filtro de pliegues y se transfiere a un matraz de destilación, donde se destila en vacío (20 mm de Hg; 45°C) el exceso de disolvente hasta
5. que se alcanza la concentración deseada de colorante (alrededor de 50% en peso). Se obtiene una masa flúida incluso a 0°C, estable y que colorea de rojo los destilados líquidos del petróleo.

### EJEMPLO 3

10. Se suspenden 13,8 g de 4-nitroanilina en 10 cc de agua y 38 cc de una solución que contiene 20% de  $\text{NaNO}_2$ . Se agita la suspensión por unas horas y la masa obtenida se vierte, en forma de chorro fino y en 3 a 5 minutos, en 140 cc de agua, 30 cc de ácido clorhídrico de 20° Bé y 50 g
15. de hielo, mientras se agita bien. Se prosigue la agitación por una hora a 10-15°C para completar la diazoación, se elimina el exceso de  $\text{HNO}_2$  y se clarifica la masa valiéndose de un filtro de pliegues. Se obtienen 300 cc de solución limpia.
20. Se pasa la solución diazoica a un vaso de 1000 cc, el cual se refrigera externamente hasta 5°C por medio de salmuera, y se añade en una hora aproximadamente y a 15-20°C la solución de 41 g de N,N-polioxietyl-m-toluidina diaceti-

389097



lada (peso molecular medio, 411;  $m+n = 5$  por término medio) en 150 cc de agua y 15 cc de ácido clorhídrico de 20° Bé. La temperatura sube hasta 10-15°C y el colorante se precipita en forma de una pez blanda, que no impide la agitación.

5. Después de agitar por una hora aproximadamente, se eleva el pH hasta alrededor de 3 utilizando 200 cc de una solución que contiene 50% de acetato sódico.

10. Se agita por una hora todavía, se añaden 200 cc de xileno y se mantiene el conjunto en agitación por unas horas más. Se transfiere la masa a un embudo separador y se decanta la fase acuosa. Luego se lava la masa xilénica por sacudimiento y decantación con salmuera que tiene un contenido de sal del 5% (alrededor de 1000 cc en tres partes), se clarifica con un filtro de pliegues, se transfiere a un
15. matraz de destilación y se destila en vacío (20 mm de Hg; 45°C) el exceso de disolvente, hasta alcanzar la concentración deseada de colorante (alrededor de 50% en peso).

Se obtiene una masa fluida incluso a 0°C, estable y que colorea de anaranjado la gasolina.

20. Procediendo del mismo modo, pero reemplazando la 4-nitroanilina por el derivado 3-nitro, se obtiene un colorante amarillo-rojizo, de características análogas.

389097



EJEMPLO 4

- Se suspenden 16,2 g de 2,4-dicloroanilina en 50 cc de agua y 50 cc de ácido clorhídrico de 20° Bé. Se mantiene la suspensión agitada por una noche, se añaden 100 g de hielo
5. y se diazoa la suspensión mediante vertimiento rápido, por debajo del nivel, de una solución acuosa de  $\text{NaNO}_2$  al 20%. Se agita el conjunto por 2 horas a 0-3°C, se elimina el exceso de  $\text{HNO}_2$  y se clarifica la solución en un filtro de pliegues. La solución diazoica límpida (volumen, 300 cc)
10. se transfiere a un vaso de 1000 cc y, empezando a la temperatura de 0-3°. se vierte en una hora aproximadamente y a 15-20°C la solución de 41 g de N,N-polioxietyl-metatoluidina diacetilada (m+n = 5 en promedio; peso molecular medio, 411,5) en 200 cc de agua y 15 cc de ácido clorhídrico de
15. 20° Bé. La temperatura hasta 10°C y el colorante se precipita en forma blanda y fluída, que no impide la agitación. Después de agitar por una hora aproximadamente, se eleva el pH hasta alrededor de 3 por vertimiento de unos 200 cc de una solución al 50% de acetato sódico. Se agita por una
20. hora todavía, se añaden 250 cc de xileno y se prosigue la agitación del conjunto por una hora. Luego se transfiere la masa a un embudo separador y se decanta la fase acuosa. Se lava la masa xilénica por sacudimiento y decantación con agua (1000 cc en tres partes), se la clarifica en un

389097



filtro de pliegues, se la transfiere a un matraz de destilación y se destila en vacío (20 mm de Hg; 40-45°C) el exceso de disolvente hasta que se llega a la concentración deseada de colorante (alrededor de 50% en peso).

5. Se obtiene una masa fluida incluso a 0°C estable y que colorea la gasolina de amarillo-rojizo.

#### EJEMPLO 5

Se suspenden 22,5 g de 3,2'-dimetil-4-aminoazobenceno en 130 cc de agua, 17 cc de ácido clorhídrico 10-n y 0,3 g de aerosol OT.

10.

Se agita la suspensión por una noche, se añaden 130 g de hielo y se procede a la diazoación, a 5°C, por vertimiento en 15 minutos de un exceso de  $\text{NaNO}_2$  en solución al 20%. Se prosigue la agitación por una hora a 10°C, se añaden 50 g de cloruro sódico para completar la precipitación de la sal de diazonio, se filtra el conjunto y se le lava con salmuera de 20% de contenido de sal, para neutralización. Se pasa a un vaso de 1000 cc la solución de 44 g de diéster propiónico de N,N-polioxietyl-metatoluidina

15.

20.

(m+n = 5 por término medio; peso molecular medio, 439,5)

en 400 cc de agua y 15 cc de ácido clorhídrico de 20% Bé y sobre la solución copulante se carga en unos 30 minutos y a 10°C la torta diazoica. El colorante se separa en forma

389097



blanda.

- Al final de la copulación, se añaden 250 cc de xileno y se rebaja el pH hasta 3 aproximadamente con solución de acetato sódico (al 50% peso/volumen). Se agita por varias
5. horas, se transfiere la masa a un embudo separador y se decanta la fase acuosa. Se lava la masa xilénica por sacudimiento y decantación con agua (1000 cc en tres partes), se la clarifica por medio de un filtro de pliegues, se la pasa a un
10. matraz de destilación y se destila en vacío (20 mm de Hg, 40-45°C) el exceso de disolvente, hasta que se llega a la concentración deseada de colorante (alrededor de 50% en peso).

Se obtiene una masa fluida, incluso a 0°C, estable y que colorea de anaranjado-rojizo los destilados de petróleo.

15. EJEMPLO 6

- Se disuelven 9,3 g de anilina en 100 cc de agua y 22,5 cc de ácido clorhídrico 10-n. Se añade hielo y se procede a la diazoación, a 0°C, por vertimiento de una solución de  $\text{NaNO}_2$  al 20%. Solución límpida; volumen, 250 cc. Después
20. de agitar por 30 minutos, se elimina el exceso de  $\text{HNO}_2$ .

Se pasa la solución diazoica a un vaso de 1000 cc y se vierte en unos 30 minutos la solución de 43 g de diéster propiónico de N,N-polioxi-etilanilina ( $m+n = 5$  por término

389097

10



5. medio; peso molecular medio, 425,5) en 200 cc de agua y 15 cc de ácido clorhídrico de 20º Bé. El colorante se separa en forma blanda semifluida. Se agita por una hora aproximadamente y se eleva el pH hasta 3,5 más o menos por vertimien-  
to <sup>en</sup> /30 minutos de una solución al 50% de acetato sódico. La copulación queda terminada durante la noche.

10. A la mañana siguiente, se añaden 250 cc de xileno y se prosigue la agitación por 3 horas. Se pasa la masa a un embudo separador y se decanta la fase acuosa. Luego se lava la masa xilénica por sacudimiento y decantación con salmuera de un contenido de sal al 5% (1000 cc en tres partes), se clarifica con el uso de un filtro de pliegues, se transfiere a un matraz de destilación y se elimina en vacío (20 mm de Hg; 45ºC) el exceso de disolvente hasta que se alcanza la concentración deseada de colorante (hasta el 70% en peso).

15.

Se obtiene una masa fluida incluso a 0ºC, estable y que colorea de amarillo la gasolina.

#### EJEMPLO 7

##### Preparación del copulante

20. En una autoclave de 1 litro de capacidad, se introducen 1,5 moles de meta-toluidina y se expulsa el aire por medio de una corriente de nitrógeno. Se calienta la autoclave a 120-125ºC, y a esta temperatura, se introducen 7,5 moles de



óxido de etileno en el curso de 24 horas. Se mantiene todo a temperatura de 120-125°C por 10 horas y luego se enfría.

5. La masa reaccional se acetila, en un matraz de 2 litros de capacidad, por calentamiento en contracorriente durante 2 horas con una cantidad de anhídrido acético doble que el peso de producto oxietilado obtenido precedentemente (alrededor de 9 moles).

10. Durante la reacción se destilan en vacío (50 mm de Hg) el exceso de anhídrido acético y el ácido acético liberado. Se obtiene un producto que tiene un peso molecular medio de 411 y que está constituido por una mezcla de sustancias con 5 unidades de óxido de etilo por término medio.

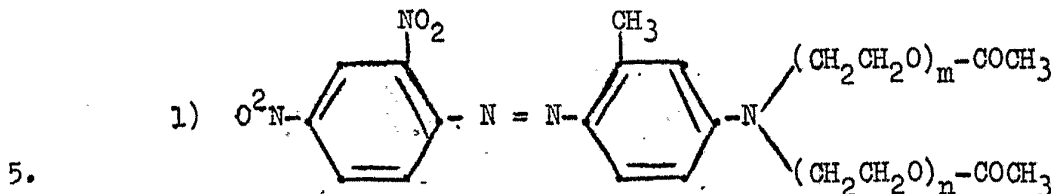
15. Actuando de manera semejante, se preparan copulantes similares derivados de la anilina, del óxido de etileno y del anhídrido acético (o propiónico).

En lugar de anhídrido acético o propiónico, pueden emplearse también el ácido acético o propiónico o los haluros respectivos.

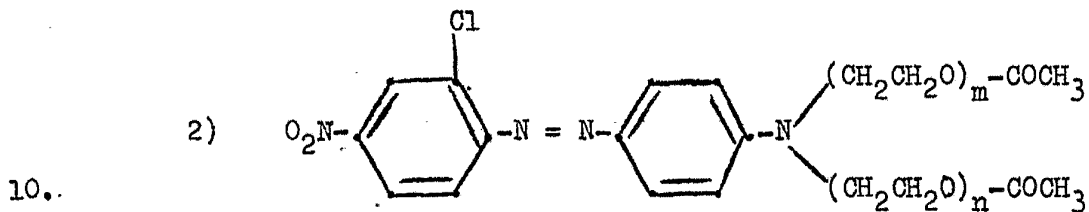
389097



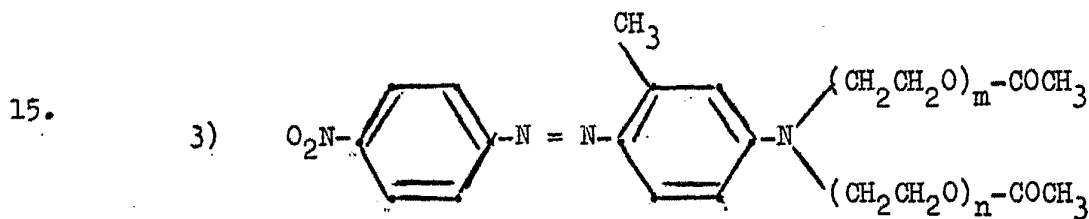
TABLA (Fórmulas de los ejemplos)



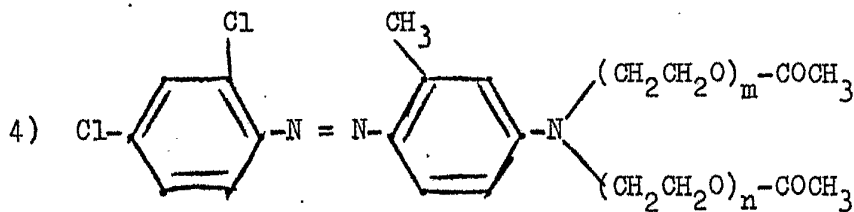
la suma m+n tiene un valor medio de 5



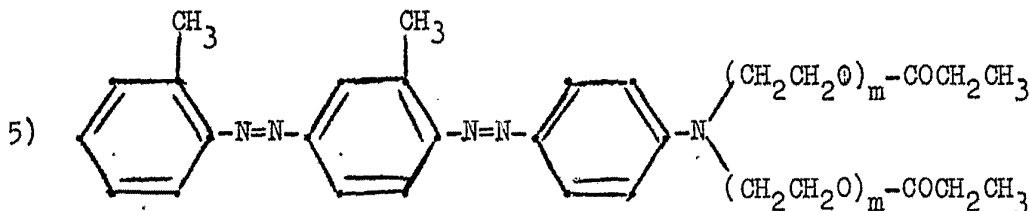
la suma m+n tiene un valor medio de 5



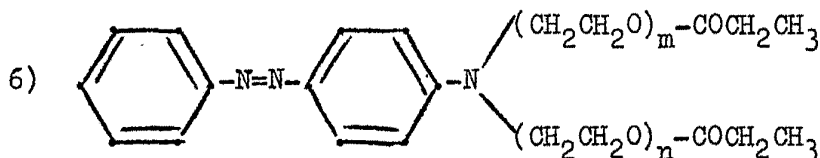
la suma m+n tiene un valor medio de 5



5. la suma  $m+n$  tiene un valor medio de 5



10. la suma  $m+n$  tiene un valor medio de 5



15. la suma  $m+n$  tiene un valor medio de 5

389097 = 18 =

389097



EJEMPLO 8

- De la manera que se ha descrito en el Ejemplo 1, se diazoan 18,3 g de 2,4-dinitroanilina y se transfiere la solución diazoica a un vaso de 1000 cc. Se enfría el vaso hasta -10°C por medio de un baño de salmuera circulante, dispuesto externamente, y se vierte la solución de 33 g de N,N-polioxietyl-meta-toluidina diacetilada (m+n = 3 por término medio; peso molecular medio, 323,4) en 200 cc de agua y 13 cc de ácido clorhídrico de 20° Bé. El colorante se precipita en forma cristalina. Al final de la copulación se añaden 250 cc de xileno y se eleva el pH hasta 8 aproximadamente por vertimiento, mediante un embudo de grifo y en una hora aproximadamente, de 140 cc de NaOH de 36° Bé. Al mismo tiempo se hace ascender la temperatura hasta 15-20°C y se prosigue la agitación por unas 2 horas. Luego se transfiere la masa a un embudo separador y se decanta la fase acuosa. Se lava la masa xilénica, por sacudimiento y decantación con agua (alrededor de 1000 cc en 4 partes), se clarifica con el uso de un filtro de pliegues, se transfiere a un matraz de destilación y se destila en vacío (30 mm de Hg; 50°C) el exceso de disolvente, hasta que se alcanza la concentración deseada de colorante (50 a 60% en peso). Se obtiene una masa flúida (incluso a 0°C), estable y que colorea de rojo azulado los productos del petróleo.

389097



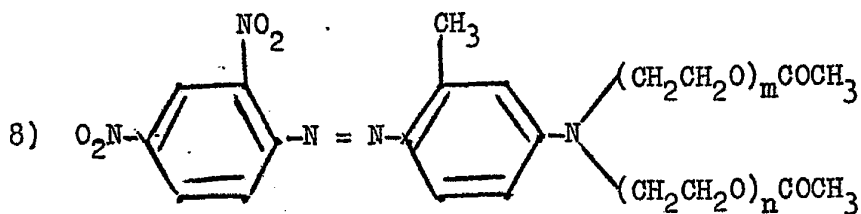
EJEMPLO 9

De la manera que se ha descrito en el Ejemplo 2 se diazoan 17,25 g de 2-cloro-4-nitroanilina.

5. Se transfiere la solución diazoica a un vaso de 1000 cc y se vierte en él, en el curso de una hora aproximadamente, la solución de 57,5 g de N,N-polioxi-etilanilina diacetilada (peso molecular medio, 573,7;  $m+n = 9$  por término medio) en 200 cc de agua y 15 cc de HCl de 20° Bé. La temperatura sube hasta 10-15°C y el colorante se precipita en forma de pez blanda, que no impide la agitación. Después de agitar por una hora aproximadamente, se eleva el pH a 3,5-3,7 por vertimiento de unos 200 cc de solución que contiene 50% e acetato sódico.

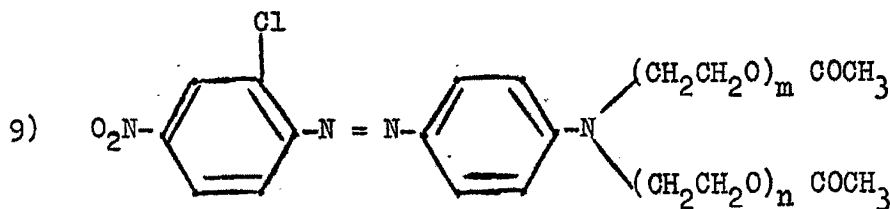
15. Se sigue agitando por una hora, se añaden 200 cc de xileno y se agita todavía por unas horas más. Luego se transfiere la masa a un embudo separador y se decanta la fase acuosa. Se lava la masa xilénica, por sacudimiento y decantación con agua (alrededor de 1000 cc en 3 partes), y se la clarifica con ayuda de un filtro de pliegues. A continuación se transfiere la masa a un matraz de destilación y se destila en vacío (20 mm de Hg; 45°C) el exceso de disolvente, hasta que se alcanza la concentración deseada de colorante (alrededor de 50% en peso). Se obtiene una masa flúida, estable y que colorea de rojo los productos del petróleo.

389097



5.

la suma  $m+n$  tiene un valor medio de 3



10.

la suma  $m+n$  tiene un valor medio de 9.

EJEMPLO 10

De la manera que se ha descrito en el Ejemplo 2 se diazoan 17,25 g de 2-cloro-4-nitro-anilina.

15. Se transfiere la solución diazoica a una vaso de 1000 cc, se enfría hasta  $-10^{\circ}\text{C}$  con ayuda de un baño de circulación de salmuera, dispuesto externamente, y se vierte en cosa de una hora la solución de 41 g de N,N-polioxietyl-meta-toluidina diacetilada (valor medio de  $m+n = 5$ ; peso molecular medio, 411) en 300 cc de agua y 13 cc de ácido clorhídrico de 20° Bé. El colorante se precipita en forma

20.

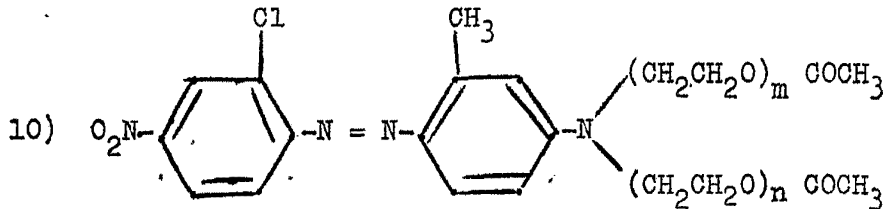
389097

389097



- de pez. Al cabo de unas dos horas de agitación, se añaden 250 cc de xileno y se eleva el pH hasta 7-8 aproximadamente por vertimiento, en 25 a 30 minutos, de 73 cc de NaOH de 36° Bé (temperatura, 10-15°C). Se prosigue la agitación por algunas horas, se transfiere la masa a un embudo separador y se decanta la fase acuosa. Luego se lava la masa xilénica por sacudimiento y decantación con agua (alrededor de 1000 cc en 3 partes), se clarifica con ayuda de un filtro de pliegues, se transfiere a un matraz de destilación y se destila en vacío (20 mm de Hg; 45°C) el exceso de disolvente, hasta que se alcanza la concentración deseada de colorante (alrededor de 50% en peso). Se obtiene una masa fluida, estable y que colorea de rojo los productos de petróleo.

15.



la suma m+n tiene un valor medio de 5.

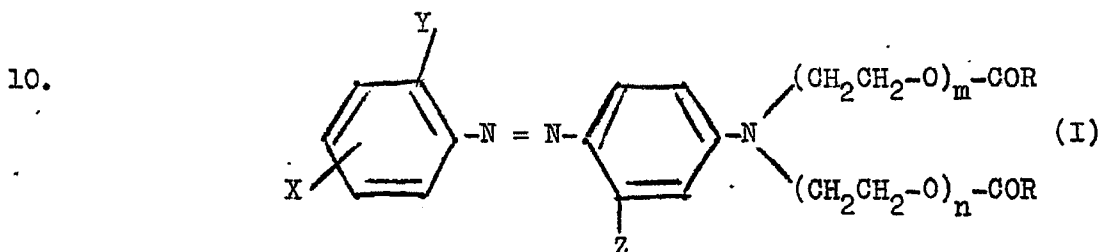
389097



REIVINDICACIONES

Descrito el objeto del presente invento, se declaran nuevas y de propia invención las siguientes reivindicaciones, con prioridad de la solicitud de patente italiana nº 21.749 A/70 del 11 de Marzo de 1970.

5. 1. Procedimiento para colorear los hidrocarburos derivados de la destilación del petróleo, caracterizado por emplearse colorantes insolubles en agua que tienen la fórmula general



en la que

15. X = H, 4-Cl, 4NO<sub>2</sub>, 3-NO<sub>2</sub>, alquilo inferior o 4-fenil-azo optativamente substituido en su radical fenílico, preferentemente por alquilos inferiores;
- Y = H, Cl, Br, NO<sub>2</sub>, CN, alquilo inferior o alcoxilo inferior;
- R = CH<sub>3</sub> o C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>;
- Z = H, CH<sub>3</sub> o Cl;
20. m >> 1; n >> 1; y la suma m+n tiene por término medio un valor que abarca de 3 a 10, y preferentemente de 5 a 7

389097



en forma de soluciones líquidas en disolventes orgánicos de gran contenido de colorante.

2. Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado por elegirse el disolvente orgánico en el grupo
5. constituido por el tolueno, el xileno, el nonilfenol, el dodecilfenol, el salicilato de metilo, el ftalato de diisobutilo y el ftalato de diisooctilo.

3. Procedimiento para colorear los hidrocarburos derivados de la destilación del petróleo.

- 10. Según se describe y reivindica en la presente memoria descriptiva que consta de 23 hojas foliadas y escritas a máquina por una sola cara.

Madrid, a 10 de Marzo de 1971

p.a.

**JAIMÉ ISERN**

**J.P.**

Firmado: JOSÉ RODRIGUEZ