

441832

22 DIC. 1976

CONCEDIDA

PATENTE
DE
INVENCION

por "PROCEDIMIENTO PARA LA PREPARACION DE COMPLEJOS MIX-
TOS DE COLORANTES METINICOS" a favor de la firma suiza
CIBA-GEIGY AG., residente en BASILEA (Suiza)

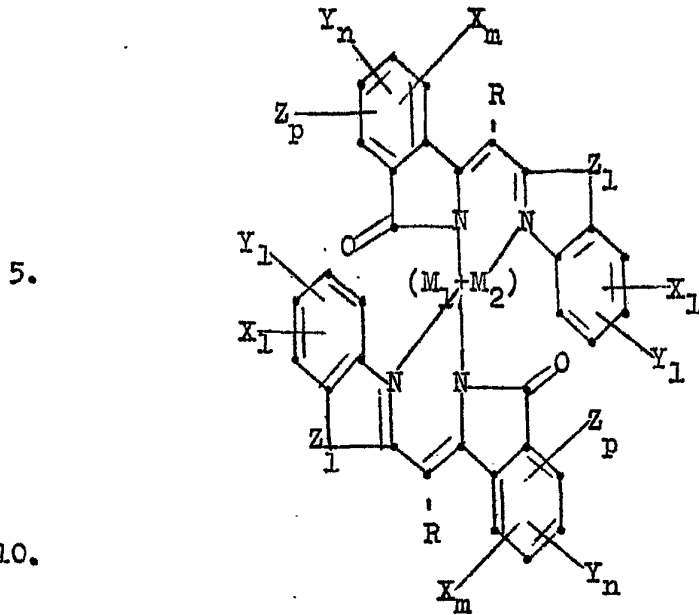
Int. Cl. C09B // C08K

MEMORIA DESCRIPTIVA

En la DT-OS 2.359.791 se describen complejos metálicos homogéneos de 3-bencimidazolilmetilen-isoindolinonas. Los complejos de cobalto allí mencionados se distinguen realmente por extraordinarias propiedades de resistencia a la luz y a la intemperie, pero dan en los plásticos y los barnices tinturas amarillorojizas algo opacas. Por otra parte, los complejos de zinc muestran ciertamente un matiz amarilloverdoso brillante, pero son inferiores a los complejos de cobalto en la resistencia a la luz y a la intemperie.

El invento que aquí se expone se refiere a

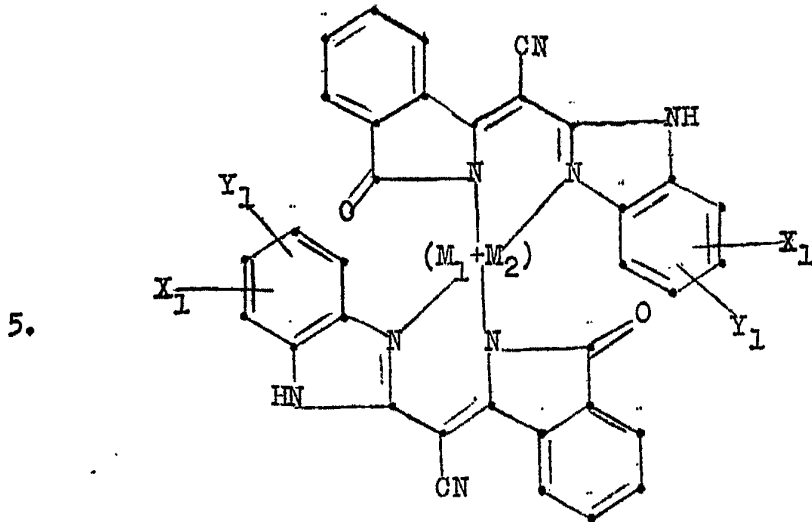
complejos mixtos de colorantes metínicos de la fórmula



en la que

- 15.
- M_1 significa zinc, cadmio, plomo o manganeso,
 M_2 significa cobalto, cobre o níquel,
R significa un radical orgánico,
 Z_1 significa un átomo de O o de S o un grupo imínico,
- 20.
- X_1 e Y_1 significan átomos de H o de halógeno, grupos de alquilo, alcoxilo, alcoxicarbonilo, alquil-sulfonilo o alquilcarbamoilo con 1 a 6 átomos de C o grupos de nitro, carbamoilo o arilcarbamoilo
- o bien los radicales
- 25.
- X_1 e Y_1 forman un anillo bencénico yuxtacondensado,
X significa un átomo de H,
Y significa un átomo de halógeno,

5. Z significa un grupo de nitro o un grupo de la fórmula R_1V_2 (donde R_1 denota un átomo de H, un grupo de alquilo o cicloalquilo con 1 a 6 átomos de C o un grupo de aralquilo o arilo, mientras que V_2 denota un átomo de O o de S),
- $m = 0$ a 4 ,
- $n = 0$ a 4 ,
- $p = 0$ a 3
10. la suma de $m + n + p$ debe ser igual a 4 y la relación cuantitativa atómica de $M_1 : M_2$ se halla entre $5 : 95$ y $95 : 5$.
15. El concepto de "arilo" en la definición anterior significa, por ejemplo, un radical de naftilo, pero preferentemente un radical de fenilo, substituído eventualmente por átomos de halógeno o por grupos de alquilo o alcoxilo con 1 a 4 átomos de C.
20. Por la formación de complejos mixtos con complejos M_2 se mejoran de manera sinérgica las propiedades de resistencia a la luz y a la intemperie de los complejos M_1 . Los complejos M_1 , que por lo demás son brillantes y de colorido intenso, aunque carecen de solidez a la luz, se vuelven así interesantes para la
25. técnica.
- Se prefieren los complejos mixtos de la fórmula I en que R significa un grupo de ciano y Z_1 significa un grupo de imino; y en particular los de la fórmula



10.

en la que

M_1, M_2, X_1 e Y_1

tienen el mismo significado que se les ha asignado antes.

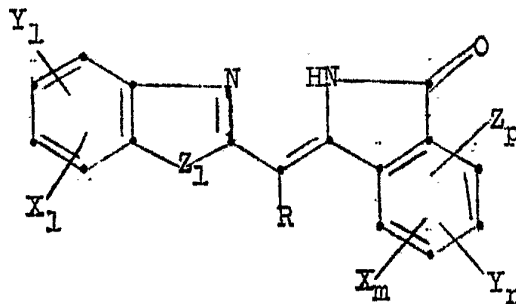
15.

Merecen especial preferencia los complejos mixtos de las fórmulas antes expuestas en que X_1 e Y_1 significan átomos de H y en los que la relación cuantitativa atómica de $M_1 : M_2$ se halla entre 10 - 90 y 90 - 10, además de que M_1 significa zinc y M_2 significa cobalto.

20.

Se llega a los complejos mixtos de este invento si se metaliza una isoindolinona de la fórmula

25.



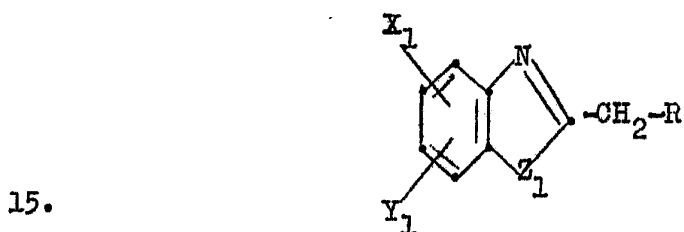
en la que

R, X, Y, Z, X₁, Y₁, Z₁, m, n y p

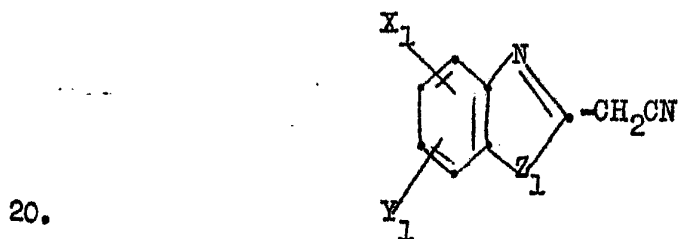
tienen el mismo significado que se les ha atribuido antes,

5. con una mezcla constituida en 5 a 95 moles % por una sal del zinc, del cadmio, del plomo o del manganeso y en 95 a 5 moles % por una sal del cobalto, del cobre o del níquel.

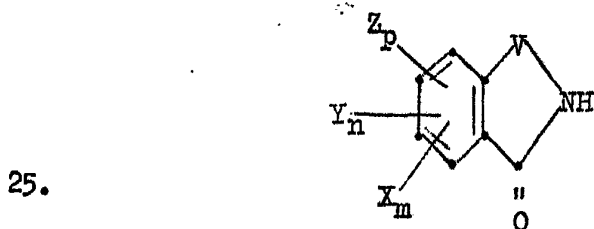
10. Las isoindolinonas que sirven de materias de partida constituyen compuestos conocidos. Se las obtiene por condensación de un azol de la fórmula



y en particular uno de la fórmula



con una isoindolinona de la fórmula

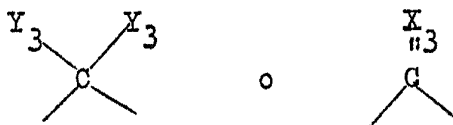


En estas fórmulas,

R, X₁, Y₁, Z₁, X, Y, Z, m, n y p

tienen el mismo significado que antes,
mientras que

5. V significa un grupo de la fórmula



donde

10. X₃ significa un grupo de imino o tio

e

Y₃ significa un átomo de halógeno, un grupo
de alcoxilo interior o un grupo amínico
secundario.

15. En calidad de azoles cabe mencionar los oxa-
zoles, los tiazoles o en particular los imidazoles; por
ejemplo:

el 2-cianometil-bencimidazol

el 2-cianometil-4-cloro-bencimidazol

20. el 2-cianometil-5-cloro-bencimidazol

el 2-cianometil-5-cloro-bencimidazol

el 2-cianometil-5,6-dicloro-bencimidazol

el 2-cianometil-4-cloro-6-metil-bencimidazol

el 2-cianometil-5-metoxi-bencimidazol

25. el 2-cianometil-6-etoxi-bencimidazol

el 2-cianometil-6-nitro-bencimidazol

el 2-cianometil-6-ciano-bencimidazol

el 2-cianometil-5-metilsulfonil-bencimidazol

- la amida de ácido bencimidazolil-2-acético
la metilamida de ácido bencimidazolil-2-acético
la fenilamida de ácido bencimidazolil-2-acético
el éster metílico del ácido bencimidazolil-2-acético
5. el éster etílico del ácido bencimidazolil-2-acético
el éster fenílico del ácido bencimidazolil-2-acético
el bis-(2-bencimidazolil)-metano
el 2-cianometil-benzotiazol
el 2-cianometil-5-cloro-benzotiazol
10. el 2-cianometil-6-cloro-benzotiazol
el 2-cianometil-7-cloro-benzotiazol
el 2-cianometil-5-metil-benzotiazol
el 2-cianometil-6-metil-benzotiazol
el 2-cianometil-5-metoxi-benzotiazol
15. el 2-cianometil-6-metoxi-benzotiazol
la amida de ácido benzotiazolil-2-acético
la metilamida de ácido benzotiazolil-2-acético
la fenilamida de ácido benzotiazolil-2-acético
el 2-etil-bencimidazol
20. el 2-bencil-bencimidazol
el 2-cianometil-6-trifluorometil-bencimidazol
el 2-etil-benzotiazol
el 2-bencil-benzotiazol
el 2-etil-benzoxazol
25. el 2-bencil-benzoxazol
el bis-(2-benzotiazolil)-metano
el 2-cianometil-benzoxazol
la amida de ácido benzoxazolil-2-acético
el bis-(2-benzoxazolil)-metano y

el (2-benzoxazolil)-(2'-bencimidazolil)-metano.

En calidad de isoindolinonas entran en cuenta preferentemente las 3-imino-isoindolinonas o las 3,3-dimetoxiisoindolinonas, o bien las sales alcalinas de las 3,3-dimetoxiisoindolinonas. A título de ejemplos merecen mención:

- 5. la 3,3-dimetoxi-4,5,6,7-tetracloro-isoindolinona-1
- la 3-imino-5,6-dicloro-isoindolinona-1
- la 3,3,6-trimetoxi-4,5,7-tricloro-isoindolinona-1
- 10. la 3-imino-4,5,7-tricloro-6-fenoxi-isoindolinona-1
- la 3-imino-4,5,7-tricloro-6-metilmercapto-isoindolinona-1
- la 3,3-dimetoxi-6-butoxi-4,5,7-tricloro-isoindolinona-1
- 15. la 3-imino-7-cloro-4-fenilmercapto-isoindolinona-1
- la 3,3,6-trimetoxi-4,5,7-tribromo-isoindolinona-1
- la 3,3,4,6-tetrametoxi-5,7-dicloro-isoindolinona-1
- la 3-imino-isoindolinona (imino-ftalimida)
- la 3,3-dimetoxi-4-nitro-isoindolinona-1
- 20. la 3,3-dimetoxi-6-nitro-isoindolinona-1
- la 3,3-dimetoxi-4,6-dicloro-isoindolinona-1
- la 3-imino-6-(fenilcarbamoil)-isoindolinona-1
- la 3,3-dimetoxi-4,5,6,7-tetrabromo-isoindolinona-1
- la 3,3-dimetoxi-5,7-dicloro-4,6-difenoxi-isoindolinona-1
- 25. la 3,3-dimetoxi-4,5,7-tricloro-6-(4'-clorofenoxi)-isoindolinona-1
- la 3-imino-4,5,6,7-tetracloro-isoindolinona-1
- la 3,3-dimetoxi-4,7-dicloro-isoindolinona-1

- la 3,3-dimetoxi-4-cloro-isoindolinona-1
- la 3,3-dimetoxi-6-yodo-isoindolinona-1
- la 3-imino-5- o 6-fenil-isoindolinona
- la 3,3-dimetoxi-5,7-dicloro-4,6-dimetilmercapto-iso-
- 5. indolinona-1
- la 3,3-dimetoxi-4,5,7-tricloro-6-etoxi-isoindolinona-
- 1
- la 3,3-bis-morfolino-4,5,6,7-tetracloro-isoindoli-
- nona-1.

10. Para la metalización se emplean convenientemente los formiatos, acetatos o estearatos de los metales que se han mencionado.

Se actúa convenientemente a temperatura elevada, en un disolvente orgánico; por ejemplo, en un alcohol, como el metanol, el etanol o el isopropanol, 15. en ácido acético glacial o, de preferencia, éter monoalquílico de etilenglicol, éter monoalquílico de dietilenglicol o dimetilformamida. También se puede usar una mezcla de dichos disolventes o agua.

20. Los nuevos colorantes constituyen valiosos pigmentos que en forma finamente dividida pueden utilizarse para la pigmentación de material orgánico macromolecular; por ejemplo, éteres y ésteres de celulosa, como la etilcelulosa, la nitrocelulosa, el acetato de 25. celulosa y el butirato de celulosa, resinas naturales o artificiales, como las resinas de polimerización o las de condensación (por ejemplo, aminoplastos), en particular resinas de urca-formaldehído y melamina-formaldehído, resinas alquídicas, fenoplastos, policarbo-

5. natos, poliolefinas (como el poliestireno, el cloruro de polivinilo, el polietileno, el polipropileno, el poliacrilonitrilo y los ésteres de ácido poliacrílico), poliamidas, poliuretanos o poliésteres, goma, caseína, silicona y resinas de silicona, solos o en mezclas.

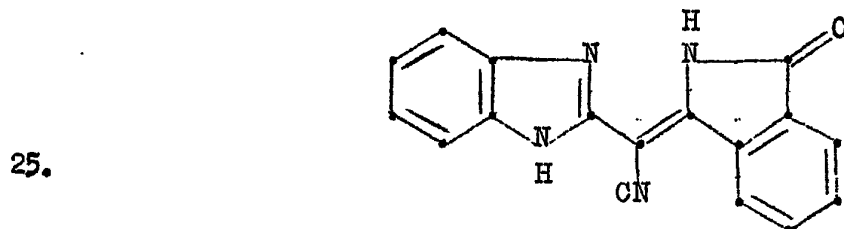
10. Para ello es indiferente que dichos compuestos macromoleculares se hallen en forma de masas plásticas, de fusiones o de soluciones para hilar, barnices, materiales para pinturas o tintas de imprimir. Según la finalidad de empleo, resulta ventajoso emplear los nuevos pigmentos como matizadores o en forma de preparados.

15. Para lograr pigmentos finamente divididos, suele ser ventajoso someterlos a un proceso de molienda.

En los ejemplos que siguen, mientras no se haga constar otra cosa, las partes significan partes en peso, y los porcentajes, porcentajes en peso; las temperaturas están expresadas en grados centígrados.

20. Ejemplo 1

A 120 - 150°, se disuelven en 100 partes de dimetilformamida 12,02 partes del colorante de la fórmula



Luego se hace afluir una solución de 4,14 partes de ace-

tato de zinc . $2H_2O$ y 0,524 partes de acetato de cobalto . $4H_2O$ en 100 partes de dimetilformamida, se calienta todavía con agitación a 140 - 145° y se mantiene esta temperatura durante 5 a 6 horas. Se filtra, se lava
5. (por ejemplo, con o-diclorobenceno caliente, con metanol y con agua) y se seca a 100°, en vacío, el complejo mixto obtenido.

Como medio para la reacción, en lugar de la dimetilformamida, puede servir también el agua, en cuyo
10. caso se mantiene la temperatura durante 10 a 15 horas a unos 95°.

El complejo muestra una relación de mezcla de zinc respecto a cobalto de 90 a 10.

Puesto en división fina (por ejemplo, mediante
15. molturación en isopropanol con ayuda de cuerpos molturadores) e introducido en la laminación en el cloruro de polivinilo, este complejo da una hoja amarilla que, con igual matiz, tiene solidez a la luz mucho mejor que la que se logra mezclando en la relación correspondiente,
20. por molturación, los complejos de Zn y de Co puros.

El colorante inicial de la fórmula expuesta
antes puede prepararse, por ejemplo, según la DT-OS
2.359.791, mediante condensación de clorhidrato de
iminofthalimida con 2-cianometilbencimidazol en éter
25. monoetilico de etilenglicol.

Si en este Ejemplo 1 se reemplazan las 4,14 partes de acetato de zinc . $2H_2O$ por la cantidad indicada en la columna I de la tabla que sigue y las 0,524 partes de acetato de cobalto . $4H_2O$ por la cantidad indicada en

la columna II, se obtienen por el mismo procedimiento pigmentos con las relaciones en porcentajes atómicos de zinc a cobalto indicadas en las columnas III y IV, los cuales presentan mejor resistencia a la luz y a la intemperie que las mezclas hechas a partir de los complejos puros y constituidas por las mismas proporciones de metal.

Tabla 1

Ejemplo	Partes de acetato de Zn. 2H ₂ O	Partes de acetato de Co. 4H ₂ O	% de Zn aprox.	% de Co. aprox.
10. 2	3,68	1,04	80	20
3	3,22	1,56	70	30
4	2,76	2,08	60	40
5	2,30	2,6	50	50
6	1,84	3,12	40	60
15. 7	1,38	3,64	30	70
8	0,92	4,16	20	80
9	0,46	4,68	10	90

Ejemplo 10

20. Si en los Ejemplos 1 a 9 se reemplaza el acetato de zinc por cantidades equivalentes de acetato de cadmio, acetato de plomo o acetato de manganeso y el acetato de cobalto por acetato de cobre o acetato de níquel, se obtienen complejos mixtos con matices semejantes, los cuales presentan mejor resistencia a la luz y a la intemperie que si se mezclan en igual relación los complejos puros.

25.

Ejemplo 11

5. Se agitan a 90° durante 2 horas 11,44 partes del colorante del Ejemplo 1 en 100 partes de agua, 5,32 partes de lejía sódica al 30 % y 0,5 partes de un humectante (Tamol NNOK-SA). Luego se añade una solución de 3,940 partes de acetato de zinc. $2H_2O$ y 0,498 partes de acetato de cobalto . $4H_2O$ en 50 partes de agua y se mantiene en agitación a unos 95° durante 6 a 15 horas todavía. Se filtra aún en caliente, se lava bien con agua
10. caliente, a continuación con metanol y una vez más con agua y se seca en vacío a unos 100°.

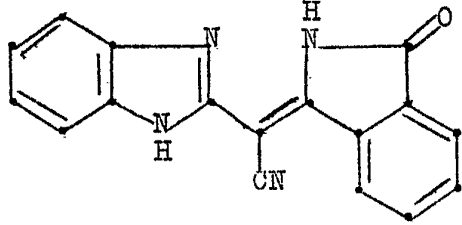
Se obtiene un complejo mixto que corresponde al obtenido según el Ejemplo 1.

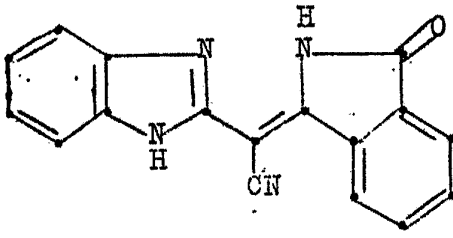
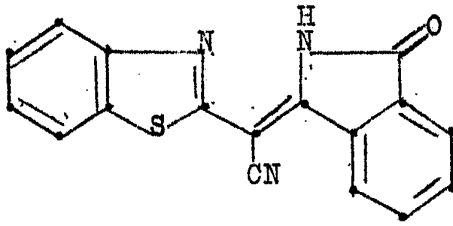
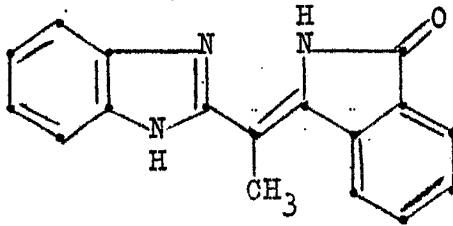
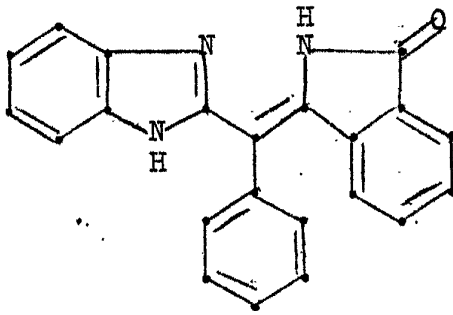
15. Por el mismo método, pero con otra relación de acetato de zinc a acetato de cobalto, se obtienen complejos mixtos con un contenido correspondiente de zinc y cobalto.

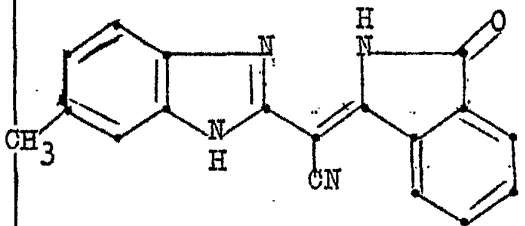
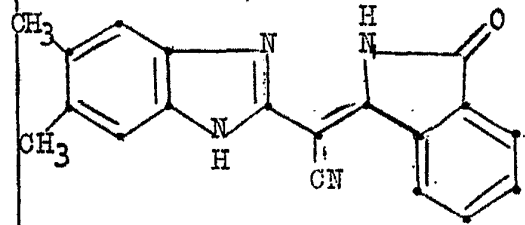
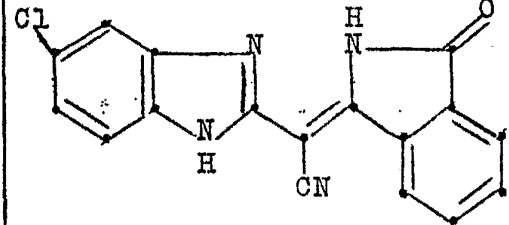
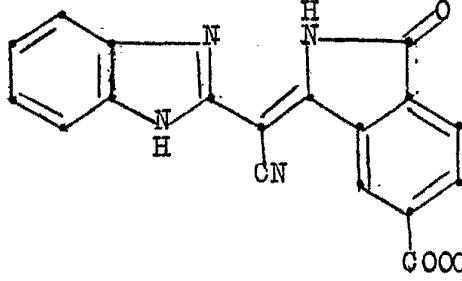
Ejemplos 12 a 52

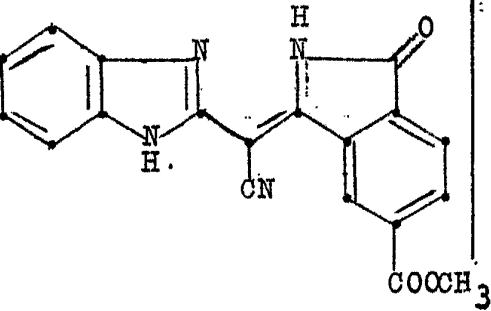
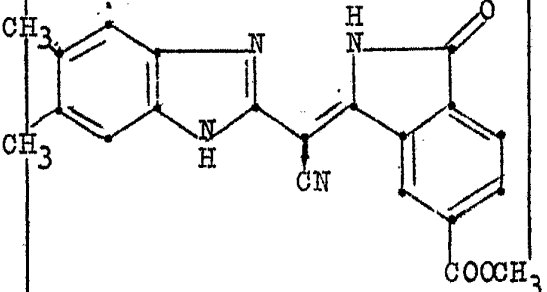
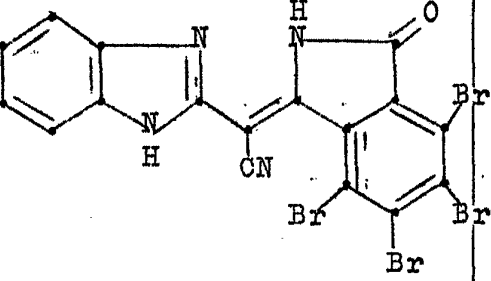
20. Si se reemplaza el colorante del Ejemplo 1 por un colorante de la columna I de la Tabla 2 que sigue y se metaliza como en los Ejemplos 1 y 11 con una mezcla de una sal metálica de la columna II y una sal metálica de la columna III en la relación porcentual atómica indicada en la columna IV, se obtienen pigmentos de complejo mixto con el matiz que indica la columna V.
- 25.

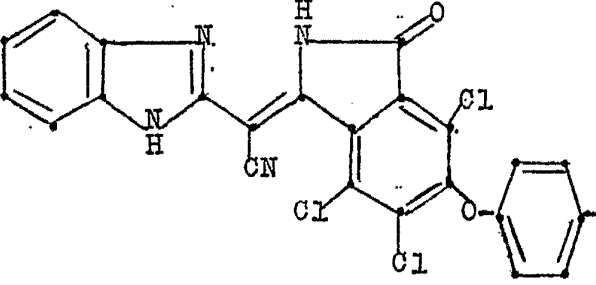
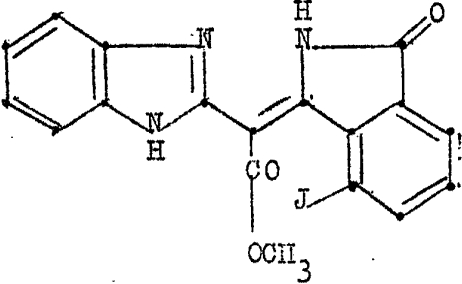
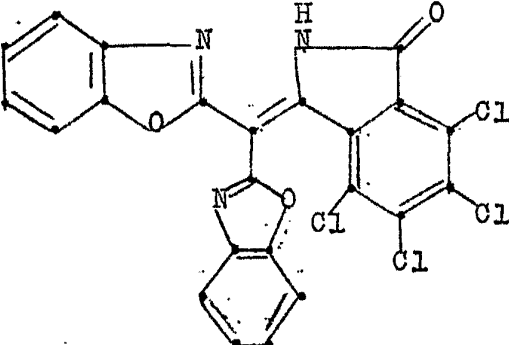
La resistencia de estos complejos mixtos a la luz y a la intemperie es mejor que la resistencia de las mezclas hechas a base de los complejos puros y constituidas por las mismas proporciones de metal.

Ejemplo	Colorante	Sal metálica (acetato)	Sal metálica (acetato)	Relación	Matiz
12		Zn	Ni	60/40	amarillo
13	"	Zn	Ni	80/20	"
14	"	Zn	Ni	90/10	"
15	"	Zn	Cu	60/40	amarillo verdoso
16	"	Zn	Cu	80/20	amarillo verdoso
17	"	Zn	Cu	90/10	amarillo
18	"	Cd	Ni	60/40	amarillo
19	"	Cd	Ni	80/20	amarillo
20	"	Cd	Ni	90/10	amarillo
21	"	Cd	Cu	60/40	amarillo verdoso
22	"	Cd	Cu	80/20	amarillo verdoso
23	"	Cd	Cu	90/10	amarillo verdoso
24	"	Cd	Co	60/40	amarillo
25	"	Cd	Co	80/20	amarillo
26	"	Cd	Co	90/10	amarillo
27	"	Pb	Co	60/40	amarillo
28	"	Pb	Co	80/20	amarillo
29	"	Pb	Co	90/10	amarillo verdoso
30	"	Mn	Co	20/80	amarillo

Ejemplo	Colorante	Sal metálica (acetato)	Sal metálica (acetato)	Relación	Matiz
31		Ca	Co	80/20	amarillo
32	"	Mn	Co	25/75	amarillo
33		Zn	Co	70/30	amarillo
34		Zn	Co	60/40	amarillo verdoso
35		Zn	Cu	50/50	amarillo verdoso

Ejemplo	Colorante	Sal metálica (acetato)	Sal metálica (acetato)	Relación	Matiz
36		Zn	Co	80/20	amarillo
37		Zn	Co	70/30	amarillo
38		Zn	Ni	80/20	amarillo verdoso
39	"	Zn	Co	80/20	amarillo verdoso
40		Zn	Co	60/40	amarillo
41	"	Zn	Co	80/20	amarillo

Ejemplo	Colorante	Sal metálica (acetato)	Sal metálica (acetato)	Relación	Matiz
42.		Zn	Ni	80/20	amarillo
43.	"	Zn	Ni	60/40	amarillo
44		Zn	Co	70/30	amarillo
45	"	Cd	Co	70/30	amarillo
46		Zn	Ni	80/20	amarillo verdoso
47	"	Zn	Co	80/20	amarillo verdoso

Ejemplo	Colorante	Sal metálica (acetato)	Sal metálica (acetato)	Relación	Tamiz
48		Zn	Co	50/50	amarillo
49		Zn	Co	80/20	amarillo verdoso
50	"	Zn	Co	50/50	amarillo verdoso
51		Zn	Co	60/40	amarillo verdoso
52	"	Zn	Co	80/20	amarillo verdoso

Ejemplo 53

5. Se remueven conjuntamente 65 partes de cloruro de polivinilo estabilizado, 35 partes de ftalato de dioctilo y 0,2 partes del pigmento obtenido según el Ejemplo 1 y luego se lamina la mezcla en vaivén en una calandria de dos rodillos, a 140° y durante 7 minutos. Se obtiene una hoja teñida de un amarillo brillante, con muy buena resistencia a la luz y a la migración.

Ejemplo 54

10. Se muelen en un molino de bolas durante 48 horas 10 g de dióxido de titanio y 2 g del pigmento preparado según el Ejemplo 1, junto con 88 g de una mezcla de 26,4 g de resina alquídica de coco, 24,0 g de resina de melamina-formaldehído (50 % de contenido de materia seca), 8,8 g de éter monometílico de etilenglicol y 28,8 g de xileno.
- 15.

20. Si se rocía esta laca sobre una hoja de aluminio, se la somete a secado previo durante 30 minutos a la temperatura del ambiente y luego se la cuece a 120° durante 30 minutos, se obtiene un laqueado amarillo brillante, que además de tener buena intensidad de colorido se distingue por muy buena resistencia al sobrolaqueado, a la luz y a la intemperie.

Ejemplo 55

25. (Laca al fuego de resina acrílica)
- Se deslían
- 4 partes del pigmento finamente dividido del Ejemplo 1 en 20 partes de disolvente de la composición siguiente:

- 50 partes de Solvesso 150 (mezcla de hidrocarburos aromáticos)
- 15 partes de acetato de butilo
- 5 partes de Exkin II (regulador de la textura a base de cetoxima)
- 5. 25 partes de metil-isobutilcetona
- 5 partes de aceite de silicona (al 1 %).

Una vez alcanzada la división completamente fina (según el tipo del agitador, al cabo de unos 15 a 10. 60 minutos), se añaden los aglomerantes, o sea

48,3 partes de Baycryn L 530 (resina acrílica)
(al 51 % en xileno/butanol 3:1) y

23,7 partes de Maprenal TTX (resina melamínica)
(al 55 % en butanol).

- 15. Después de breve homogeneización, se aplica la laca por los métodos usuales (como rociadura e inmersión) o, especialmente para el revestimiento continuo de chapas metálicas, por el método "Coil-Coating" y se la cuece (cochura durante 30 minutos a 130°). Los 20. laqueados amarillos que se obtienen se distinguen por muy buena textura, gran brillo y excelente división fina del pigmento, así como por excelentes propiedades de solidez a la intemperie.

Ejemplo 56

- 25. En una máquina sacudidora se sacude en recipiente cerrado un granulado de tereftalato de polietileno no mateado, apto para la fabricación de fibras, junto con 1 % del colorante del Ejemplo 1. Los granos del granulado, teñidos uniformemente, se hilan en un

- equipo de hilatura en fusión ($285^{\circ} \pm 3^{\circ}$; tiempo de permanencia en la máquina hiladora; alrededor de 5 minutos), formando hilos que se estiran y devanan en una instalación estiradora-torcedora. Se obtienen tinturas amarillas vivas, que se distinguen por extraordinaria solidez a la luz, excelente solidez al lavado, a la limpieza en seco, a la sobretinción y a la sublimación, gran resistencia al blanqueo con clorito y muy buena resistencia al frote después de la termofijación del material teñido.
- 5.
- 10.

Ejemplo 57

- De la misma manera que en el Ejemplo 56, se junta, extruye e hila con 1 % del colorante del Ejemplo 1 un granulado de polipropileno apto para la fabricación de fibras. Se obtienen fibras de colorido amarillo con extraordinarias propiedades de solidez.
- 15.

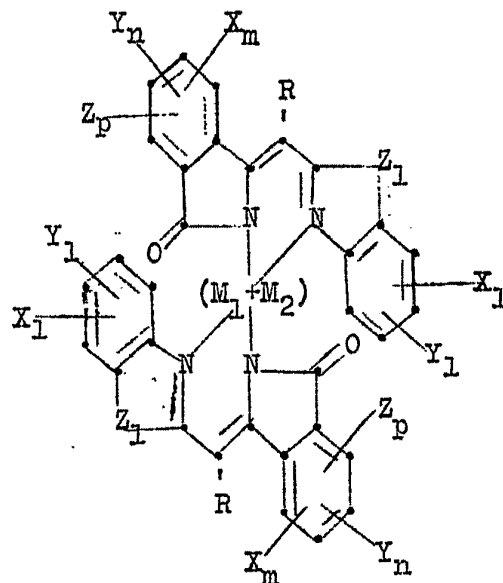
= . =

REIVINDICACIONES

- Descrito el objeto del presente invento se declaran nuevas y de propia invención las siguientes reivindicaciones con prioridad de la solicitud de patente suiza nº 13920/74 de 17 de Octubre de 1974.
- 20.

1. Procedimiento para la preparación de complejos mixtos de colorantes metínicos aptos para la tinción de material orgánico macromolecular cuyos complejos responden a la fórmula
- 25.
-

5.



10.

en la que

M_1 significa zinc, cadmio, plomo o manganeso,

M_2 significa cobalto, cobre o níquel,

R significa un radical orgánico,

Z_1 significa un átomo de O o de S o un grupo

15.

imínico,

X_1 e Y_1

significan átomos de H o de halógeno, grupos de alquilo, alcoxilo, alcoxicarbonilo alquil-sulfonilo o alquilcarbamoilo con 1 a 6 átomos de C o grupos de nitro, carbamoilo o arilcarbamoilo

20.

o bien los radicales

X_1 e Y_1

forman un anillo bencénico yuxtacondensado,

X significa un átomo de H,

Y significa un átomo de halógeno,

25.

Z significa un grupo de nitro o un grupo de la fórmula R_1Y_2 (donde R_1 denota un átomo

de H, un grupo de alquilo o cicloalquilo con 1 a 6 átomos de C o un grupo de aralquilo o arilo, mientras que Y_2 denota un átomo de O o de S),

5. \underline{m} = 0 a 4,
 \underline{n} = 0 a 4,
 \underline{p} = 0 a 3,

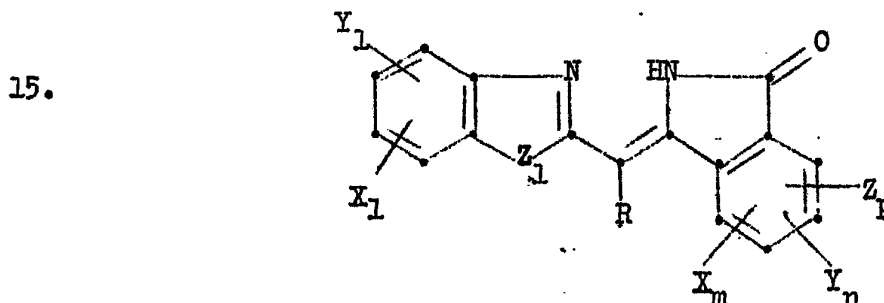
la suma de

$\underline{m} + \underline{n} + \underline{p}$ debe ser igual a 4

10. y la relación atómica cuantitativa de

$M_1 : M_2$ se halla entre 5 : 95 y 95 : 5,

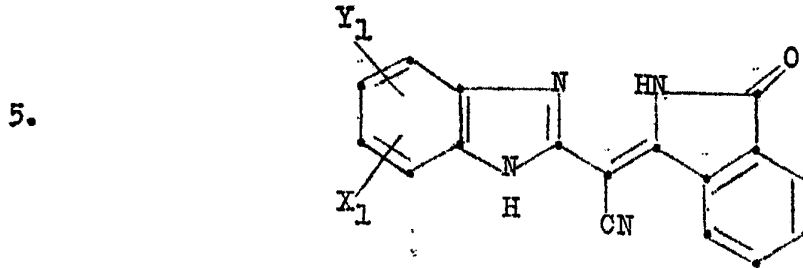
caracterizado por metalizarse una isoindolinona de la fórmula



20. con una composición constituida en 5 a 95 moles % por una sal del zinc, del cadmio, del plomo o del manganeso y en 95 a 5 moles % por una sal del cobalto, del cobre o del níquel.

25. 2. Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado por partirse en una forma de realización selectiva, de una isoindolinona de la fórmula que se ha expuesto en la que R significa un grupo de ciano y Z_1 significa un grupo de imino.

3. Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado por partirse también selectivamente de una isoindolinona de la fórmula



en la que

10. X_1 e Y_1 tienen el significado que se indica en la reivindicación 1.

4. Procedimiento según las reivindicación 1 a 3, caracterizado por partirse así mismo selectivamente de una isoindolinona de la fórmula que se ha expuesto en la que X_1 e Y_1 significan átomos de H.

15.

5. Procedimiento según las reivindicaciones 1 a 4, caracterizado por seleccionarse para su realización una composición de sales metálicas en la que la relación molar de las sales metálicas se halla entre 10 - 90 % y 90 - 10 %.

20.

6. Procedimiento según las reivindicaciones 1 a 5, caracterizado por emplearse preferentemente una composición de sales del zinc y del cobalto.

7. Procedimiento para la preparación de complejos mixtos de colorantes metínicos.

25.

Según se describe y reivindica en la presente memoria descriptiva que consta de 25 páginas foliadas y escritas a máquina por una sola de sus caras.

441832

- 25 -

Madrid, a 16 de Octubre de 1975.

p. a.

JAI ME BERN

p. p.

Firmado: JOSE L. MORR