

⑫

EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

⑲ Anmeldenummer: 78100373.6

⑤① Int. Cl.²: **C 07 D 213/69, C 09 B 55/00,**
C 08 K 5/00, C 08 K 5/34

⑳ Anmeldetag: 12.07.78

③① Priorität: 29.07.77 US 819756

④③ Veröffentlichungstag der Anmeldung:
07.02.79 Bulletin 79/3

④④ Benannte Vertragsstaaten:
BE CH DE FR GB

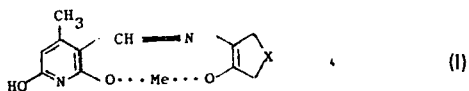
⑦① Anmelder: **CASELIA Aktiengesellschaft**
Hanauer Landstrasse 526
D-6000 Frankfurt am Main 61. (DE)

⑦② Erfinder: **Tappe, Horst, Dr.**
Ringstrasse 9
D-6057 Dietzenbach. (DE)

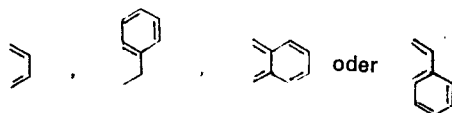
⑦④ Vertreter: **Urbach, Hans-Georg, Dr. et al**
Hanauer Landstrasse 526
D-6000 Frankfurt am Main 61. (DE)

⑤④ Metallkomplexe, Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Pigmente.

⑤⑦ Metallkomplexe der Formel I



worin X für



und anschließende Metallisierung des erhaltenen Kondensa-
tionsprodukt hergestellt. Die Metallkomplexe der Formel I
werden als Pigmente, z.B. zum Pigmentieren von hochmole-
kularen plastischen Massen und Druckpasten und insbeson-
dere von Lacken verwendet.

steht und der durch X mit dem übrigen Teil des Moleküls
gebildete Benzol- oder Naphthalinkern auch durch ein oder
zwei Substituenten aus der Reihe Methyl, Methoxy, Chlor,
Brom, Trifluormethyl, Nitro, Cyan, CONR¹R² oder COOR³,
wobei R¹ und R² für Wasserstoff oder Alkyl mit 1 bis 4
C-Atomen und R³ für Alkyl mit 1 bis 4 C-Atomen stehen,
substituiert sein kann, und Me ein Nickel-, Kupfer-, Zink oder
Kobaltatom bedeutet, werden durch Umsetzung von
3-Formyl-4-methyl-2,6-dihydroxy-pyridin mit einer ortho-
Amino-hydroxy-Verbindung der Formel III

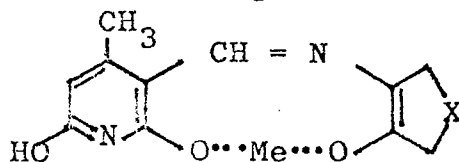


EP 0 000 505 A1

Ref. 3101

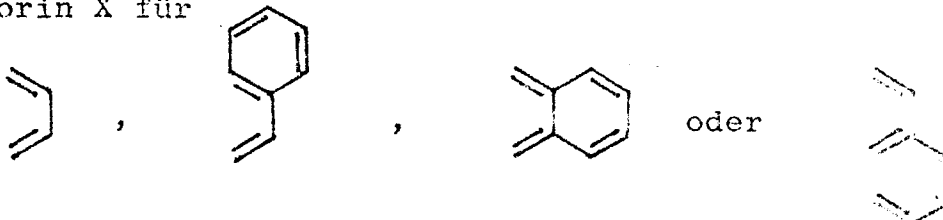
Metallkomplexe, Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre
Verwendung als Pigmente

Die Erfindung betrifft wertvolle Metallkomplexe der Formel I



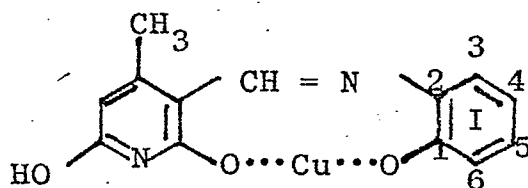
(I)

5 worin X für



- steht und der durch X mit dem übrigen Teil des Moleküls gebildete Benzol- oder Naphthalinkern auch durch ein oder zwei Substituenten aus der Reihe Methyl, Methoxy, Chlor, Brom, Trifluormethyl, Nitro, Cyan, CONR^1R^2 oder COOR^3 , wobei R^1 und R^2 für Wasserstoff oder Alkyl mit 1 bis 4 C-Atomen und R^3 für Alkyl mit 1 bis 4 C-Atomen stehen, substituiert sein kann, und Me ein Nickel-, Kupfer-, Zink- oder Kobaltatom bedeutet. Die Erfindung betrifft ferner die
- 15 Verwendung der Metallkomplexe als Pigmente und zur Pigmentierung von Lacken, hochmolekularen plastischen Massen und Druckpasten.

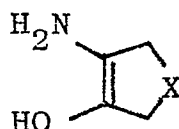
Metallkomplexe der Formel II



(II)

wobei der Benzolkern I auch noch wie vorstehend angegeben, insbesondere einfach in para-Stellung zum Sauerstoff, d.h. in 4-Stellung, substituiert sein kann, sind von besonderem Interesse.

Die neuen Metallkomplexe können dadurch hergestellt werden, daß man 3-Formyl-4-methyl-2,6-dihydroxy-pyridin bzw. ein Alkali- oder Erdalkalisalz davon mit einer ortho-Aminohydroxyverbindung der Formel III



(III)

10

worin X die oben genannte Bedeutung besitzt und ein Benzol- oder Naphthalinkern, wie vorstehend angegeben, substituiert sein kann, nach an sich bekannten Methoden umgesetzt und das entstehende Kondensationsprodukt nach einer an sich bekannten Methode metallisiert.

15

Als Ausgangsprodukte sind z.B. folgende ortho-Aminohydroxyverbindungen geeignet: ortho-Aminophenol, 2-Amino-4-(oder 3- oder 5- oder 6-)nitrophenol, 2-Amino-4-(oder 3- oder 5- oder 6-)chloro-phenol, 2-Amino-4-(oder 3- oder 5- oder 6-)bromo-phenol, 2-Amino-4-(oder 3- oder 5- oder 6-)cyano-phenol, 2-Amino-4-(oder 3- oder 5- oder 6-)methoxycarbonyl-phenol, 2-Amino-4-(oder 3- oder 5- oder 6-)äthoxycarbonyl-phenol, 2-Amino-4-(oder 3-)butoxycarbonyl-phenol, 2-Amino-4-(oder 5-)trifluormethyl-phenol, 2-Amino-4-(oder 5-)carbonamido-phenol, 2-Amino-4-(oder 5-)dimethylcarbonamido-phenol, 2-Amino-4-(oder 5-)äthylcarbonamido-phenol, 2-Amino-1-naphthol, 1-Amino-2-naphthol, 2-Amino-3-naphthol, 2-Amino-4-(oder 5- oder 7-)chloro-1-naphthol, 1-Amino-4-(oder 5-, 6- oder 7-)chloro-2-naphthol, 1-Amino-3-(oder 4- oder 8-)nitro-2-naphthol.

30

0000505

Die Verbindungen der Formel III sind zumelst bekannt bzw. können leicht nach den für die Herstellung von ortho-Amino-hydroxyverbindungen bekannten Methoden synthetisiert werden. Das 3-Formyl-4-methyl-2,6-dihydroxy-pyridin und seine Alkali- oder Erdalkalisalze sind neu. Es kann leicht, wie in den nachfolgenden Beispielen beschrieben, hergestellt werden. Von dem 3-Formyl-4-methyl-2,6-dihydroxy-pyridin sind auch andere tautomere Formen, z.B. das 2-Hydroxy-3-formyl-4-methylpyridon-(6), denkbar. Von seinen Salzen sind besonders das Natrium- und Kaliumsalz geeignet. Auch von den Metallkomplexen der allgemeinen Formel I sind noch andere tautomere Formen denkbar. Selbstverständlich wird von der vorliegenden Erfindung jeder der möglichen tautomeren Formen umfaßt. Die Umsetzung des 3-Formyl-4-methyl-2,6-dihydroxy-pyridins oder des entsprechenden Alkali- oder Erdalkalisalzes mit der ortho-Amino-hydroxy-Verbindung wird in geeigneten organischen Lösungsmitteln, beispielsweise Alkoholen mit 1 bis 5 C-Atomen, Glykoläthern, wie z.B. Äthylenglykoldimethyläther, Eisessig, aprotischen Lösungsmitteln, wie z.B. Toluol, Tetrachlorkohlenstoff, 1,4-Dioxan, Tetrahydrofuran und dergleichen, insbesondere dipolar aprotischen Lösungsmitteln, wie z.B. Dimethylformamid, Dimethylsulfoxid, N-Methylpyrrolidon, Tetramethylensulfon und dergleichen oder Wasser oder Gemischen davon, zweckmäßigerweise unter einer Atmosphäre eines Inertgases, wie Stickstoff, bei erhöhten Temperaturen durchgeführt. Als Reaktionstemperaturen können Temperaturen von 60°C bis zur Rückflußtemperatur des Lösungsmittels in Betracht kommen. Die bevorzugten Reaktionstemperaturen betragen von 80 bis 120°C. Die Umsetzung ist normalerweise innerhalb von 2 bis 8 Stunden beendet. Das bei dieser Umsetzung entstandene Azomethin kann ohne Isolierung metallisiert werden, aber auch eine Isolierung des Azomethins vor der Metallisierung ist möglich. Es genügt jedoch im allgemeinen, das Azomethin ohne Isolierung in einem geeigneten Lösungsmittel zu metallisieren. Zu diesem Zweck wird das metallfreie Azomethin in dem zur Azomethinkondensation benutzten Lösungsmittel oder Lösungsmittelgemisch mit einem Metallsalz, vorzugsweise einem Acetat, z.B. Kupfer-II-acetat, unter den gleichen

Bedingungen wie bei der Azomethinherstellung umgesetzt. Dabei kann es zweckmäßig sein, den pH-Wert der Lösung zwischen 5 und 6 zu halten, was z.B. durch sukzessive Zugabe von Natriumacetatlösung erfolgen kann.

Die metallfreien Azomethine sind gelborgangefarbene bis braune Produkte, während die metallhaltigen neuen Metallkomplexe normalerweise gelbstichig-grün bis olivgrün und in den üblichen Lösungsmitteln nur schwer bis sehr schwer löslich sind. Die neuen Metallkomplexe eignen sich daher als farbstarke lösungs- und temperaturbeständige, besonders aber hervorragend licht- und wetterechte Pigmente zur Herstellung von Druckfarben, zum Färben von Kunststoffen in der Masse und als Spinnfarbstoffe und insbesondere zur Herstellung von Lacken und Anstrichstoffen. Aufgrund der guten Echtheiten sind die Pigmente besonders auch in Form ihrer Metallic-Lacke (Aluminium-Lacke) für hochwertige Außen-(Auto-)lacke interessant.

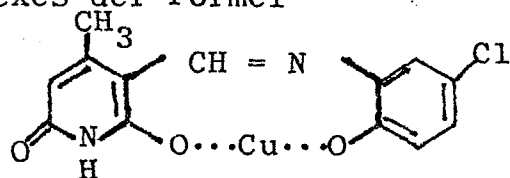
Die metallfreien und metallhaltigen Azomethine weisen im Pyridinkern eine freie Stellung auf, an die noch Diazokomponenten angekuppelt werden können. So ist es möglich, wertvolle metallfreie und metallhaltige Azomethine herzustellen, die noch eine Azogruppe enthalten.

Wenn nichts anderes angegeben ist, sind in den nachfolgenden Beispielen Teile in Gewichtsteilen und Temperaturen in Grad Celcius angegeben.

Beispiel 1

21,1 g 2-Hydroxy-3-formyl-4-methylpyridon-(6) als Kaliumsalz werden zusammen mit 14,9 g 4-Chlor-2-aminophenol in 300 ml Eisessig suspendiert und unter Stickstoffatmosphäre 3 Stunden zum Sieden erhitzt (ca. 118°C). Dann werden 10 g Kupfer-II-acetat, gelöst in 300 ml Dimethylformamid, zugegeben, und es wird eine Stunde bei 140°C gehalten. Nach Abkühlen wird abgesaugt, mit Methanol und Wasser gewaschen

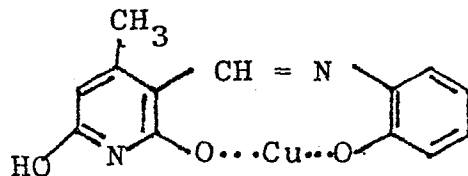
und getrocknet. Man erhält 33,5 g eines gelbstichig-grünen Metallkomplexes der Formel



der bei seiner Verwendung als Pigmente, z.B. in Metallic-
5 (Aluminium)-Autolacken, hervorragende Licht- und Wetter-
echtheiten zeigt.

Beispiel 2

- 1200 Teile Wasser werden unter Einleiten von Stickstoff zum
Sieden erhitzt und unter Stickstoffeinleitung auf 20°C ab-
10 gekühlt. Dann gibt man 57,3 Teile 2-Hydroxy-3-formyl-4-
methylpyridon-(6) und 34,5 Teile o-Aminophenol zu; erhitzt
4 Stunden am Rückfluß, saugt heiß ab und wäscht mit 1000
Teilen 80°C heißem Wasser. Die erhaltene gelbe Paste des
Azomethins gibt man in 6000 Teile Wasser, fügt 60 Teile
15 Kupfer-II-acetat zu und erhitzt 3 1/2 Stunden am Rückfluß,
wobei man durch sukzessive Zugabe von 1100 Teilen 10%iger
Natrium-acetat-Lösung den pH-Wert zwischen 5 und 6 hält.
Am Ende der Reaktion beträgt der pH-Wert 5,4. Das Produkt
wird heiß abgesaugt und mit 1200 Teilen 80°C heißem Wasser
20 gewaschen und bei 40°C im Vakuum getrocknet. Man erhält
44 Teile des Azomethin-Kupfer-Komplexes der Formel

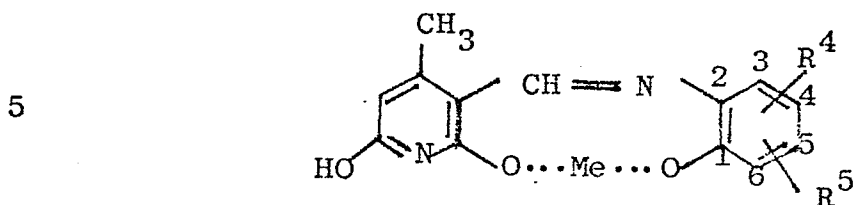


- Das erhaltene olivgrüne Pigment kann in üblicher Weise zu
einer Druckfarbe verarbeitet werden, die farbstarke Drucke
25 von hervorragender Lichtechtheit liefert.

Ein unter Verwendung des erhaltenen Pigments in üblicher Wei-
se hergestellter Autoeinbrennlack zeigte nach dem Einbrennen
sehr gute Lichtechtheit, Wetterechtheit und Überspritzecht-
heit.

Ähnlich wie im vorstehenden Beispiel 2 wurden die in den nachfolgenden Tabellen angegebenen Metallkomplexe hergestellt:

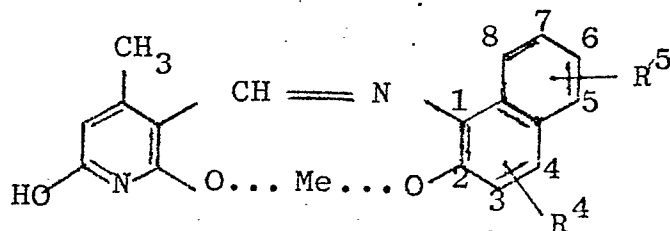
Tabelle 1



R ⁴	R ⁵	Me	R ⁴	R ⁵	Me
4-Cl	H	Cu	3-CF ₃	H	Co
4-Br	H	Cu	3-CF ₃	H	Zn
4-NO ₂	H	Cu	5-CF ₃	H	Cu
10 4-CONH ₂	H	Cu	6-CF ₃	H	Cu
4-CONHCH ₃	H	Cu	5-COOCH ₃	H	Cu
4-CONHC ₂ H ₅	H	Cu	5-COOCH ₃	H	Zn
4-CONHC ₄ H ₉ (n)	H	Cu	5-COOC ₂ H ₅	H	Ni
4-COOCH ₃	H	Cu	3-Cl	5-COOCH ₃	Cu
15 4-COOC ₂ H ₅	H	Cu	6-Br	4-COOC ₂ H ₅	Cu
4-COOC ₃ H ₇ (n)	H	Cu	4-CH ₃	H	Cu
4-COOC ₄ H ₉ (n)	H	Cu	4-OCH ₃	H	Cu
4-CF ₃	H	Cu	4-CN	H	Cu
3-Cl	5-Cl	Cu	H	H	Co
20 3-Br	5-Br	Cu	H	H	Ni
4-Cl	H	Co	H	H	Zn
4-Br	H	Co			
4-Cl	H	Ni			
4-Br	H	Ni			

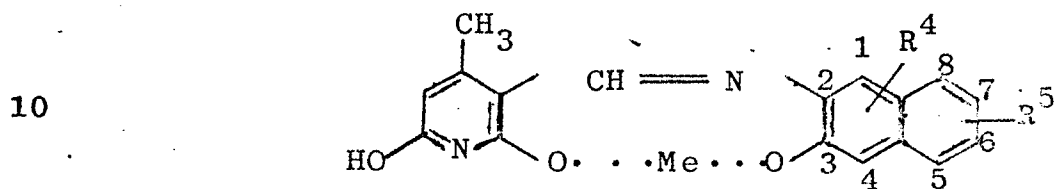
25

Tabelle 2



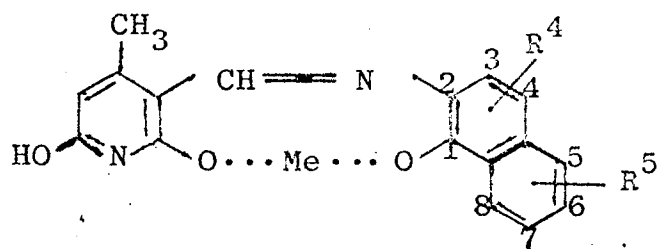
R ⁴	R ⁵	Me	R ⁴	R ⁵	Me
3-Br	H	Cu	4-Br	H	Ni
3-Cl	H	Cu	4-NO ₂	8-Br	Zn
4-Br	H	Cu	4-CH ₃	H	Cu
5 4-Cl	H	Cu	4-OCH ₃	H	Cu
4-NO ₂	H	Cu	H	H	Cu
4-Cl	H	Co	H	H	Co
			H	H	Ni

Tabelle 3



R ⁴	R ⁵	Me	R ⁴	R ⁵	Me
H	H	Cu	8-Br	H	Cu
H	H	Co	8-NO ₂	H	Ni
H	H	Zn	8-Cl	4-Cl	Cu

15 Tabelle 4



R ⁴	R ⁵	Me	R ⁴	R ⁵	Me
H	H	Cu	4-Br	H	Cu
H	H	Co	4-Br	8-Br	Co
20 H	H	Zn	3-NO ₂	H	Cu

Das in den vorstehenden Beispielen als Ausgangsprodukt benutzte 6-Hydroxy-3-formyl-4-methylpyridon- (6) bzw. sein Natriumsalz kann, ausgehend vom 4-Methyl-2,6-dihydroxypyridin, folgendermaßen hergestellt werden:

25 125 Teile 4-Methyl-2,6-dihydroxypyridin in 400 Teilen

Äthanol werden mit 80 Teilen Natriumacetat, gelöst in 100 Teilen Wasser, und 148 Teilen Chloral in 400 Teilen Wasser zusammengegeben und das Gemisch 8 Stunden bei 20°C gerührt, anschließend läßt man weitere 48 Stunden bei Zimmertempera-
5 tur stehen, saugt dann das ausgefallene Produkt ab, wäscht den Rückstand mit Wasser und trocknet bei 30°C im Vakuum. Man erhält so 218 Teile (=80% d.Th.) 3-(β,β,β -Trichlor- α -hydroxy)-äthyl-4-methyl-2,6-dihydroxypyridin, das nach Umkristallisation aus Essigsäureäthylester einen Schmelzpunkt
10 von 195°C besitzt.

Analyse: berechnet:	N 5,4 %	Cl 39,9 %
gefunden:	N 5,1 %	Cl 39,1 %

272,5 Teile 3-(β,β,β -Trichlor- α -hydroxy)äthyl-4-methyl-2,6-dihydroxypyridin werden in 3000 Teile Äthanol eingetragen
15 und mit einer Lösung von 500 Teilen Kaliumhydroxid in 400 Teilen Wasser und 1700 Teilen Äthanol versetzt. Das Reaktionsgemisch wird 30 Minuten am Rückfluß unter Rühren am Sieden gehalten, dann auf 20°C abgekühlt. Das hierbei ausgeschiedene Produkt wird abgesaugt, mit 200 Teilen Äthanol ge-
20 waschen und getrocknet. Das so erhaltene Rohprodukt kann durch Waschen bis zur neutralen Reaktion mit verdünnter Essigsäure von anhaftender überschüssiger Kalilauge befreit werden. Man erhält so 94 Teile des Kalium-3-formyl-4-methyl-2,6-dihydroxypyridins (= 49% d.Th.) , das nach Umkristalli-
25 sation aus Wasser einen Schmelzpunkt von über 350°C besitzt.

Analyse: berechnet:	C 44,0 %	H 3,2 %	N 7,3 %
gefunden:	C 44,2 %	H 3,4 %	N 7,3 %

Verwendet man anstelle von Kaliumhydroxid Natriumhydroxid, so erhält man das entsprechende Natriumsalz.

30 Die Überführung des Kalium- oder Natriumsalzes in die Metallfreie Verbindung geschieht in der Weise, daß 19,1 Teile des erhaltenen Produkts in 200 Teilen eines Gemischs aus 160 Teil-

len Essigsäure und 40 Teilen Wasser suspendiert werden und das Reaktionsgemisch im Vakuum auf 50 Teile eingeeengt wird. Nach Stehenlassen der eingeeengten Lösung kristallisiert die metallfreie Verbindung aus. Durch Umlösen und Umkristallisieren aus einem Gemisch aus 160 Teilen Äthanol und 40 Teilen Wasser erhält man das reine 3-Formyl-4-methyl-2,6-dihydroxypyridin vom Schmelzpunkt 180 bis 182°C.

Analyse:	berechnet:	C 54,9 %	H 4,6 %	N 9,1 %
	gefunden:	C 55,1 %	H 4,7 %	N 9,0 %

10 Beispiel 3

4,5 g des nach Beispiel 1 erhaltenen Metallkomplexes werden mit 25,5 g eines Anreibelacks, bestehend aus einer 20 %igen Lösung von Alkydharzlack in Xylol auf der Vibrationskugelmühle 45 Minuten geschüttelt, mit 60 g Klarlack, bestehend aus 52,5 g einer 70 %igen Alkydharzlösung in Xylol, 35 g einer 55 %igen Melaminharzlösung in Butanol, 2,5 g Butylglyköl, 5 g Butanol und 5 g Lackbenzin versetzt. Man erhält so einen klaren gelbstichig-grünen Volltonlack, der auf ein Aluminiumblech gespritzt und 30 Minuten bei 140°C eingebrannt eine gelbstichig-grüne Färbung von einwandfreier Überlackiererechtheit und ausgezeichneter Licht- und Wetterechtheit ergibt.

Beispiel 4

Eine Mischung von 62,5 ml Glasperlen, 3 mm Durchmesser, 4,5 g des nach Beispiel 2 erhaltenen Metallkomplexes und 25,2 g Acryl-Anreibelack 25%ig wird in einem verschlossenen Plastikbecher von 125 ml Inhalt 30 Minuten auf dem Paintshaker geschüttelt. Anschließend werden 60,3 g eines 48%igen Acryl-Melaminharz-Klarlacks zugemischt und sodann die Glaskugeln durch Sieben entfernt.

Der so hergestellte in bezug auf das organische Pigment 5%ige Volltonlack wird mit einem 3 % Aluminium-Pigment enthaltenden Acryl-Melaminharzlack im Gewichtsverhältnis 3 : 5

vermischt.

Anschließend wird mit Xylol, Butanol und Solvesso 100, ein aus mehreren Aromaten bestehendes Lösemittelgemisch, (1 : 2,3 : 3,3) auf Spritzviskosität 4" (Viskopatel) eingestellt und dieser Metalleffektlack auf ein mit einem Washprimer und einem Einbrennweißlack wie üblich grundiertes Blech mit der Spritzpistole (Düse 1,5 mm Durchmesser, Spritzdruck 4 bar) in 6 waagerechten Gängen aufgebracht.

Nach dem Ablüften wird 30 Minuten bei 140°C im Trockenschrank eingebrannt. Die Echtheiten der Lackierung, insbesondere die Licht- und Wetterechtheiten, sind hervorragend.

Beispiel 5

Eine Mischung von 62,5 ml Glasperlen, 3 mm Durchmesser, 3,8 g Metallkomplexe nach Beispiel 1 und 27,4 g Alkyd-Anreibelack 25%ig wird in einem verschlossenen Plastikbecher von 125 ml Inhalt 60 Minuten auf dem Paintshaker geschüttelt. Anschließend werden 44,8 g eines 56 %igen Alkyd-Melaminharz-Klarlacks zugemischt und sodann die Glaskugeln durch Sieben entfernt. Der so hergestellte 5 Gewichtsprozentige Pigment enthaltende Vollton-Farblack wird mittels eines Handcoaters in einer Naßfilmstärke von 75 µm auf ein weißes Kärtchen mit schwarzem Querstreifen aufgezogen. Nach dem Ablüften wird 30 Minuten bei 140°C im Trockenschrank eingebrannt. Es resultiert ein farbstarker gelbstichig-grüner Überzug mit hervorragenden Echtheiten.

Beispiel 6

2 Gewichtsteile eines 5 Gewichtsprozentigen Pigment enthaltenden, durch 60 Minuten langes Anreiben auf dem Paintshaker gemäß Beispiel 5 hergestellten Alkyd-Melaminharz-Einbrennlacks werden mit 2,5 Gewichtsteilen eines Einbrennweißlacks vermischt, der ebenfalls auf Alkyd-Melaminharz-Basis 20 Gewichtsprozentige TiO₂ enthält.

0000505

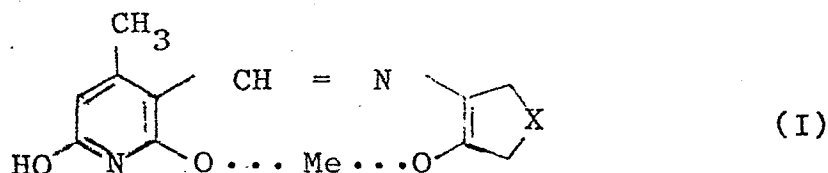
Ref. 3101

- 11 -

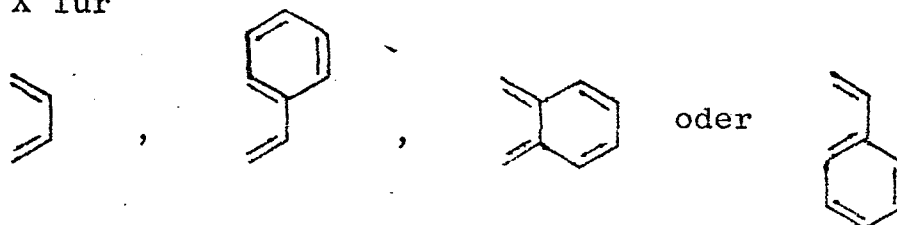
Diese Weißaufhellung wird mit Hilfe eines Handcoaters in einer Naßfilmstärke von 75 μ m auf ein weißes Kärtchen aufgezogen und der Aufstrich nach dem Ablüften 30 Minuten bei 140°C im Trockenschrank eingebrannt.

P a t e n t a n s p r ü c h e

1. Metallkomplexe der Formel I

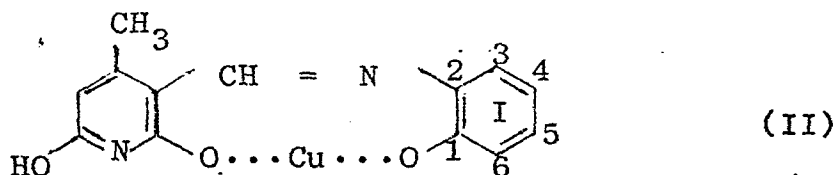


worin X für



steht und der durch X mit dem übrigen Teil des Moleküls gebildete Benzol- oder Naphthalinkern auch durch ein oder zwei Substituenten aus der Reihe Methyl, Methoxy, Chlor, Brom, Trifluormethyl, Nitro, Cyan, CONR^1R^2 oder COOR^3 , wobei R^1 und R^2 für Wasserstoff oder Alkyl mit 1 bis 4 C-Atomen und R^3 für Alkyl mit 1 bis 4 C-Atomen stehen, substituiert sein kann, und Me ein Nickel-, Kupfer-, Zink- oder Kobaltatom bedeutet.

2. Metallkomplexe der Formel II



wobei der Benzolkern I wie in Anspruch 1 angegeben, substituiert sein kann.

3. Metallkomplexe nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß der Benzolkern I unsubstituiert ist.

4. Metallkomplexe nach den Ansprüchen 1 und 2, dadurch gekennzeichnet, daß der Benzolkern I in 4-Stellung substituiert ist.

5. Metallkomplexe nach den Ansprüchen 1 bis 2 und 3, dadurch gekennzeichnet, daß der Benzolkern durch Chlor, Brom, Nitro oder Methoxycarbonyl substituiert ist.
6. Verwendung der Metallkomplexe nach den Ansprüchen 1 bis 5 als Pigmente.
7. Verwendung der Metallkomplexe nach den Ansprüchen 1 bis 5 zum Pigmentieren von Lacken.
8. Verfahren zur Herstellung der Metallkomplexe nach den Ansprüchen 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß 3-Formyl-4-methyl-2,6-dihydroxy-pyridin oder eines seiner Alkali- oder Erdalkalisalze mit einer ortho-Amino-hydroxy-verbindung der Formel
- The diagram shows a five-membered ring with a double bond between the top and right vertices. At the top vertex, an amino group (H₂N) is attached. At the vertex to the left of the double bond, a hydroxyl group (HO) is attached. At the right vertex, which is part of the double bond, a substituent 'X' is attached.
- worin X die in Anspruch 1 genannte Bedeutung besitzt und der durch X mit dem übrigen Teil des Moleküls gebildete Benzol- oder Naphthalinkern auch, wie in den Ansprüchen 1 bis 5 angegeben, substituiert sein kann, umgesetzt und das entstandene Kondensationsprodukt metallisiert wird.
9. Verfahren nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, daß die Umsetzung und/oder Metallisierung in einem organischen Lösungsmittel oder Wasser bei Temperaturen von 60°C bis zur Rückflußtemperatur des Lösungsmittels durchgeführt wird.
10. Verfahren nach den Ansprüchen 8 oder 9, dadurch gekennzeichnet, daß die Umsetzung und/oder Metallisierung unter Inertgasatmosphäre durchgeführt wird.
11. Verfahren nach den Ansprüchen 8 bis 10, dadurch gekennzeichnet, daß bei der Metallisierung ein pH-Wert zwischen 5 und 6 eingehalten wird.



Europäisches
Patentamt

EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

0000505

Nummer der Anmeldung

EP 78 10 0373

EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE			KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int. Cl.)
Kategorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile	betrifft Anspruch	
	DE - A - 2 008 938 (BADISCHE ANILIN & SODA-FABRIK) * Seite 7, Patentansprüche 1-3; Seite 2, letzten 2 Zeilen - Seite 3, erstes und zweites Spalte * -- FR - A - 2 163 519 (CIBA-GEIGY AG) * Seite 15, Patentanspruch 1; Seite 17, Patentanspruch 8; Seite 18, Patentansprüche 9, 18; Seite 4, Zeile 7; Seite 6, Zeile 31 Seite 7, Zeile 7 * -- HOUBEN-WEYL, Band I/2, Seite 325-6 * Seite 325, Spalte 2; Seite 326, Kapitel A * -----	1-11 1-11 10	C 07 D 213/69 C 09 B 55/00 C 08 K 5/00 C 08 K 5/34 RECHERCHIERTE SACHGEBIETE (Int. Cl.) C 07 D 213/69 C 09 B 55/00 C 08 K 5/00 C 08 K 5/34 KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE X: von besonderer Bedeutung A: technologischer Hintergrund O: nichtschriftliche Offenbarung P: Zwischenliteratur T: der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze E: kollidierende Anmeldung D: in der Anmeldung angeführtes Dokument L: aus andern Gründen angeführtes Dokument &: Mitglied der gleichen Patent- familie, übereinstimmendes Dokument
Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt.			
Recherchenort	Abschlußdatum der Recherche	Prüfer	
Den Haag	31-10-1978	SUTER	