3600

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

Ø Hauptlaboratorium

11.Feb. 1942

Patentanwaltsbureau
E. B l u m & C o. ,
Z ü r i c h (Schweiz).
Bahnhofstr.31.

Dr. Trieschmann

Techn.Büro Pr:St/Kn. 23.1.1942 Patentabt.Pr/Va. den 11. Februar 1942.

Anmeldung Schweiz 58 574 - O.Z.11721 -
"Verfahren zur Herstellung von 1,4-Dichlorbutan und 4.4'-Dichlordibutyläther".

Die in Ihrem Schreiben vom 23.Januar 1942 zur Erledigung des Bescheids vom 21. Januar 1942 vorgeschlagenen Änderungen bedeuten keine Einschränkung der Erfindung, sodass wir nichts dagegen einzuwenden haben, wenn die Beschreibung in dieser Weise geändert wird.

Hochachtungsvoll

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT
gez. Holdermann ppa. Kleber

Durchschlag

12.Feb.1942

3601

Patentanwalts-Bureau E. BLUM & Co, ZÜRICH, Bahnhofstraße 31
Gegründet 1878
Eingang St. Peterstraße 1)

Telegramm-Adresse: PATENT ZÜRICH
Patent Code 2. Edition

Postcheck-Konto VIII/15
Telephon 51.633

Patentanwalts-Bureau E. BLUM & Co, ZÜRICH, Bahnhofstraße 31
Gegründet 1878
Eingang St. Peterstraße 11

Telegramm-Adresse: PATENT ZÜRICH
Patent Code 2. Edition

Postcheck-Konto VIII/15
Telephon 51.633

Abt. Techn. Büro Dr. St/Kn.
In der Antwort gef. wiederholen!

Man bittet, für technische Erörterungen nur ein Objekt per Brief zu behandeln unter beeg. Textüberschrift.

Zürich, den 23. Jan. 1942.

I.G. Farbenindustrie Aktiengesellschaft,
Patentabteilung,
Ludwigshafen.

Betr. Anmeldung Schweiz 58 574.- O.Z. 11 721.
"Verfahren zur Herstellung von 1,4- Dichlorbutan und 4,4'-Dichlordibutyläther."

In dieser Sache ist die beiliegende weitere Beanstandung herausgekommen, gemäss welcher in der Beschreibung im Hinblick auf den abgeänderten Patentanspruch noch einige Berichtigungen vorzunehmen sind. Da der Patentanspruch das Arbeiten in Gegenwart von Katalysatoren als positives Erfindungsmerkmal hinstellt, was sicher auch zutreffend ist, muss der erste Absatz auf Seite 2 (Stelle X) in seinen ersten zwei Zeilen wie folgt abgeändert werden: "Als Katalysatoren verwendet man zweckmässig solche Stoffe, die die".

In der zweitletzten Zeile des gleichen Absatzes ist nach "Kohle" ein Komma zu setzen und das Wort "oder" zu streichen. Ferner das Komma nach "Kieselgel" und das Wort "in" sind ebenfalls zu streichen. In der letzten Zeile fallen dann noch die Worte "Gegenwart von" weg.

Im zweiten Absatz auf Seite 2 wird in der ersten Zeile "Mitverwendung" abgeändert in "Verwendung". In Zeile 2 wird nach "Herstellung" eingefügt "des Gemisches", und in Zeile 4 nach "dabei" "vorteilhaft". Die Zeilen 8 und 9 lauten nach Vornahme der vorgeschlagenen Korrektur wie folgt:

"110°. Die nach der Abtrennung des 1,4-Dichlorbutans-4,4'-Dichlordibutyläther-gemisches zurückbleiben-".

Auf Seite 3, Zeile 2 wird "der Umsetzungserzeugnisse" abgeändert in "das Reaktionsgemisch". Auf der gleichen Seite

12. Feb. 1942

Form. 20 — 1. 37 — 100 000

Telephongespräche haben, solange nicht schriftlich bestätigt, keine rechtsverbindliche Gültigkeit.

E. BLUM & Co

Blatt 2 zum Brief vom 23. Jan. 1942.

an I.G. Farbenindustrie A.G.,
Ludwigshafen.

E. BLUM & Co

Blatt 2 zum Brief vom 23. Jan. 1942.

an I.G.Farbenindustrie A.G.,
Ludwigshafen.

wird in Zeile 6 "unter" abgeändert in "bei" und nach "Schwefelsäure" eingefügt "als Katalysator".

Wir glauben, dass diese Aenderungen ohne weiteres annehmbar sind und bitten Sie, uns Ihre Zustimmung dazu bis zum 21. April a.c., an welchem Tage die Frist abläuft, zukommen zu lassen.

Hochachtungsvoll

Sig. E.Blum & Co.

1 Verfügung i.D.
1 Briefdoppel

EINSCHREIBEN.

Form. 81. - I. 37. - 15 000

Bern, den [illegible] Januar 194[illegible]

Eidg. Amt für geistig-

Bern, den 21. Januar 1941.

Eidg. Amt für geistige
Eigentum

Patente

Herren [illegible] & Co.

Zürich.

III. Beanstandung.

Gesuch No. 58 574.- I.G. Farbenindustrie Aktiengesellschaft, Frankfurt a.M., 3. Juli 1940, 16 Uhr.

Frist: 3 Monate.

Nach dem vorliegenden Patentanspruch soll in allen Fällen in Gegenwart von Katalysatoren gearbeitet werden. Im Gegensatz dazu wird jedoch im Passus X der Beschreibung die Verwendung von Katalysatoren als ein fakultatives Merkmal der Erfindung hingestellt. Dieser Widerspruch ist zu beseitigen. Dabei muss im Passus X auch noch klargestellt werden, ob alle dort genannten Stoffe als Katalysatoren, welche die Bildung von Chlorkohlenwasserstoffen aus Olefinen und Chlorwasserstoff begünstigen, gelten sollen oder nicht. Unser Korrekturvorschlag im Passus X bezieht sich auf den Fall, dass der Patentanspruch unverändert beibehalten werden soll und alle dort genannten Stoffe tatsächlich die Bildung von Chlorkohlenwasserstoffen aus Olefinen und Chlorwasserstoff begünstigen.

Hochachtend

Eidg. Amt für geistiges
Eigentum
i.A. der Adjunkt:
Sig. Graf

Beilage:
1 Beschreibung

TITLE PAGE

11726
June 1939 - Feb. 1940 Verfahren zum Beschriften und Bezeichnen von Folien.
Process for marking tracing cloth.

Frame Nos. 3604 - 3610

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

3604

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Patentabteilung.

13. Juni 1939 11 30

Je/Ri. 10. Juni 1939

Neuanmeldung.

Beifolgend erhalten Sie den Entwurf einer Patentanmeldung betr.

"Verfahren zur Herstellung von Schreib- und Zeichenfolien"

zur weiteren Bearbeitung.

Wir bitten Sie, die Anmeldung in Verbindung mit einem Eventual-Gebrauchsmusterschutz einzureichen, sodass wir während des Prüfungsverfahrens der Anmeldung in der Lage sind, für diese je nach der wirtschaftlichen oder patentrechtlichen Entwicklung die Art des Schutzes zu wählen.

gez. Wulff [signature]
" Reppe)

Anlage.

Durchschlag

3605

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Entwurf.

Ludwigshafen a. Rh., den 10. Juni 1939

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Entwurf.

Ludwigshafen a.Rh., den 10. Juni 1939

Neuanmeldung.

"Verfahren zur Herstellung von Schreib- und Zeichenfolien".

Zahlreiche organische, filmbildende Stoffe zeigen in Form von Folien bei starker Streckung eine milchig weise Verfärbung, besonders wenn diesen Stoffen während oder nach ihrer Herstellung Beimischungen zugegeben wurden, die sich mit den filmbildenden Stoffen nicht völlig mischen. Diese Verfärbung zeigt eine Reihe von hochmolekularen organischen Stoffen, vorzugsweise die Polymerisate und Mischpolymerisate der Vinylverbindungen, wie Styrol, Polyvinylchlorid und dgl., besonders unter Anwendung verschiedenster Beimischungen, wie Wachse, hochmolekulare Alkohole, Kalkbäume, ~~Talg~~, Kieselgur usw..

Die Erfindung besteht nun darin, dass man Schreib- oder Zeichenfolien aus Stoffen genannter Art herstellt, die man durch einfaches Führen eines Stiftes unter Druck über die Folie oder durch Aufdrücken von Buchstaben unter Anwendung einer weichen oder elastischen Unterlage beschriften kann.

- 2 -

Durchschlag

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

- 2 -

Die Beschriftung entsteht hierbei dadurch, dass beim Aufdrücken des Stiftes oder der Buchstaben an dieser Stelle der Folie eine starke Streckung und damit eine milchig weisse Verfärbung erzeugt wird.

Die Beschriftung gelingt besonders leicht mittels einer abgestumpften Metallspitze unter Anwendung einer etwa 1 mm starken Gummiunterlage. Die Beschriftung kann auch mit allen sonstigen spitzen Gegenständen, wie Nadeln, Nägeln, Bleistifte oder dgl., bei Anwendung nachgiebiger Unterlagen, wie Holz, Leder, Textilstoffe, Karton und dgl., vorgenommen werden. Das Bedrucken der Folien erfolgt vorteilhaft mittels keil- oder kegelförmigen Aufdruckstellen der Buchstaben oder Lettern, wobei grössere Flächen zweckmässig in Form von Punkten oder Strichen dargestelltewerden. Als besonders vorteilhaft haben sich Schreibfolien aus Polyvinylchlorid-Verbindungen, wie Styrol oder Polyvinylchlorid erwiesen, die neben ihren z.T. hervorragenden mechanischen Eigenschaften eine hohe Wetterfestigkeit besitzen und daher zur Herstellung wetterfester Schilder jeglicher Art geeignet sind. Ferner sind

Durchschlag

die Folien infolge ihrer hohen Widerstandsfähigkeit gegen chemische Einflüsse zur Herstellung von Verpackungen für Chemikalien und dgl. geeignet, des weiteren auch zur Herstellung von Schildern, Bekanntmachungen, Urkunden, Personalausweisen und dgl., die klimatischen oder chemischen Einflüssen widerstehen müssen.

Die Herstellung der Folien kann in bekannter Weise durch Giessen, Walzen, Pressen aus einer Düse und dgl. erfolgen. Die Folien können ferner durch Streichen oder Giessen aus Lösungen auf mechanischen widerstandsfähigen Unterlagen, wie z.B. Holz, Papier, Textilstoffen u. dgl., die zweckmässigerweise dunkel gefärbt sind, festhaftend hergestellt werden. Bei der Anwendung farbloser, klarer Folien ohne Unterlagen kann diesen zur besseren Sichtbarmachung der Schrift eine dunkle Färbung erteilt werden.

Beispiel 1:

Ein Gemisch von 95 Tl. Polyvinylchlorid und 5 Tl. I.G.Wachs O wird zu einer etwa 0,1 mm starken Folie verwalzt. Die Folie ergibt auf einer dünnen Gummiunterlage durch Beschriften mit einem Metallstift, der in einer kugelförmigen Spitze endigt, eine gut

Durchschlag

sichtbare und völlig wetterfeste Schrift. Eine solche Schrift kann auch mittels jedem anderen, nicht zu spitzen Gegenstand und bei Anwendung einer beliebig nachgiebigen Unterlage leicht erzeugt werden. Ebenso leicht gelingt es, auf dieser Folie unter Anwendung einer weichen oder elastischen Unterlage mittels Buchstaben oder Lettern, die keil- oder kegelförmige Aufdruckstellen besitzen, eine gut leserliche Druckschrift zu erzielen. Dies gelingt auch leicht mittels Schreibmaschinen bekannter Art, wenn eine weiche Gummiwalze bzw. Gummiunterlage Anwendung findet und die Folie eine geringere Stärke als 0,1 mm besitzt.

Die erfolgte Beschriftung kann in einfacher Weise durch kurzes Erwärmen der Folie auf etwa 150° wieder vollständig ausgelöscht werden, worauf die Folie wieder in gleicher Weise beschriftet werden kann.

Die Folien sind infolge der hohen Wetterbeständigkeit der Beschriftung zur Herstellung von Pflanzenschildern besonders geeignet und können in Form von Anhängeschildern oder als Bänder ringförmig an den Pflanzen befestigt werden. Durch kurzes Erhitzen der gewalzten Folien auf 280° kann diesen eine hohe Bruchdehnung

Durchschlag

und Knitterfestigkeit erteilt werden, wodurch die Folien z.B.

und Knitterfestigkeit erteilt werden, wodurch die Folien z.B. als Pflanzenschilder einer Knitterung durch den Wind oder sonstigen mechanischen Einflüssen besonders weitgehend widerstehen.

Beispiel 2:

Eine bei über 130° durch Auspressen aus einer Düse erhaltene Folie aus Polystyrol wird bei etwa 100° beiderseits einer starken Streckung unterworfen. Eine solche Folie ist weit biegsamer, als eine nicht nachgestreckte und kann gemäss Beispiel 1 Anwendung finden.

Beispiel 3:

Ein Mischpolymerisat von 80 Tl. Vinylchlorid und 20 Tl. Acrylsäuremethylester wird in einem Gemisch von Aceton und Toluol in dem etwa 5 Tl.Wachs enthalten sind, gelöst und zu einer Folie ausgegossen, worauf sie nach dem Trocknen gemäss Beispiel 1 Anwendung finden kann.

Ansprüche:

1.) Verfahren zur Herstellung von Schreib- und Zeichenfolien, dadurch gekennzeichnet, dass man diese aus organischen, filmbildenden Stoffen herstellt, die sich bei einer starken Dehnung milchig verfärben und die man mittels eines Stiftes sowie durch Aufdrücken von

Durchschlag

Buchstaben, vorzugsweise unter Anwendung einer nachgiebigen u. elastischen Unterlage beschriftet ~~werden kann~~.

2.) Verfahren gemäss Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass den filmbildenden Stoffen zur Erhöhung der Sichtbarkeit der Beschriftung Zusätze beigemischt werden, die sich mit den filmbildenden Stoffen nur unvollständig verbinden oder mischen.

3.) Verfahren gemäss Anspruch 1 u. 2, dadurch gekennzeichnet, dass die Folien auf der Rückseite dunkel gefärbt sind oder auf einer dunklen Unterlage befestigt werden.

4.) Verfahren gemäss Anspruch 1 bis 2, dadurch gekennzeichnet, dass die Folien mittels einer Lösung durch Streichen oder Giessen, vorzugsweise auf nachgiebigen und dunkel gefärbten Unterlagen, festhaftend hergestellt werden.

gez. Becker
gez. Kreutzer
(Rapp)

Durchschlag

TITLE PAGE

11727
Aug. 1939 - May 1940 Herstellung von Netzmitteln.
Preparation of wetting agents.

Frame Nos. 3611 - 3625

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

Patentabteilung
- 7. MAI 1940

3611

3611

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

Patentabteilung
- 7. MAI 1940

11727.

Dr. Haussmann

Hauptlaboratorium - 4.5.40

An das
Reichspatentamt
Berlin.

Patentabt.Lu/O. 3. Mai ~~April~~ 1940.

I.65 419 IVd/12o.
Herstellung von Netzmitteln.

Wir ziehen hiermit unsere Anmeldung zurück.

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT
gez.: Holdermann ppa. Schönberg

- 4.Mai 1940

Durchschlag

11727 HL 17.4.40

Erledigung der Verfügung ist 3612 mehr nötig, da die Anmeldung zurückgezogen wird

Reichspatentamt

Berlin SW61, den 3.April 1940
Gitschiner Straße 97-103
Fernsprecher: 17 48 21

Aktenzeichen: J 65 419 IVd/12o

Anmelder: -.-

An
I.G.Farbenindustrie Akt.-Ges.

11727 HL 2x 17.4.40

Erledigung der Verfügung ist 3612 mehr nötig, da die Anmeldung zurückgezogen wird

Reichspatentamt

Berlin SW 61, den 3. April 1940
Gitschiner Straße 97-103
Fernsprecher: 17 48 21

Aktenzeichen: J 65 419 IVd/12o

Anmelder: -.-

Die Äußerung ist spätestens 16.5.

Reichsbank-Girokonto
Postscheckkonto: Vkt. 2 Berlin
Bankkonto: Deutsche Bank, Berlin
und Girogenossenschaft, Berlin

Wir bitten um eine schriftliche Aeusserung
in Regelmässigkeit die Verantwortung
für eine rechtzeitige und gründliche Erledigung
Ihr Zeichen übernehmen

An
I.G.Farbenindustrie Akt.-Ges.
Patentabteilung
in Ludwigshafen
a. Rh.

Dr. Haussmann

Patentabteilung

In Sachen der Patentanmeldung, betreffend "Herstellung von Netzmitteln", eingegangen am 11. August 1939.

Nachstehend wird das Ergebnis der in Klasse 12o durchgeführten Prüfung mit der Aufforderung mitgeteilt, binnen

z w e i Monaten

sich zu äußern und die Mängel zu beseitigen.

Als Anmeldetag wird der 1. März 1937, d.i. der Eingangstag der Anmeldung J 57 262/12o festgesetzt. Zur Klarstellung der Unterlagen wird vorab bemerkt, daß in Anspruch (und entsprechend in der Einleitung der Beschreibung) für den Rest R im Hinblick auf den Absatz 2 auf Seite 2 der Beschreibung darauf hinzuweisen ist, daß R eine Doppelbindung oder Oxygruppen, Iminogruppen oder umsetzungsfähige Halogenatome enthalten muß. Der Schlußsatz des Absatzes 2 auf Seite 2 der Beschreibung ist im Hinblick auf den derzeitigen Anspruch zu streichen

Im übrigen ist es aus der britischen Patentschrift 378 383 und der amerikanischen Patentschrift 2 008 649

An Referent
Herrn Dr. Lieber
z. Kenntnis u. Prüfung.
Unterschr. d. Ref.:

Hauptlaboratorium 18.4.40

G.D.S.

Einschreiben

Frist 15. Juni

Die sachliche Äußerung auf diesen Bescheid ist nur in einfacher Ausfertigung einzureichen; für neue Unterlagen (Beschreibung, Ansprüche, Zeichnungen) sind dagegen 2 Ausfertigungen erforderlich.
Die in diesem Bescheide gesetzte Frist beginnt mit der Zustellung.
~~Anträge auf Verlängerung dieser Frist können nur bei ausreichender~~, möglichst durch die Beibringung von Belegen gestützter Begründung bewilligt werden (s. Bekanntmachung, betr. Gewährung von Fristen im Patenterteilungsverfahren vom 18. Januar 1935, abgedruckt im Blatt für Patent-, Muster- und Zeichenwesen 1935, Seite 6).

Kzl. Pat. 45 m. Fr.-Zus.
6.1939.50000

3618

- 2 -

2 008 649 bereits bekannt, mehrbasische Carbonsäuren in N-substituierte Amide zu überführen und in diese dann Sulfonsäuregruppen einzuführen bzw. mit Schwefelsäure zu verestern. Sollte demgegenüber eine Abgrenzung des Anmeldungsgegenstandes noch möglich sein

2 008 649 bereits bekannt, mehrbasische Carbonsäuren in N-substituierte Amide zu überführen und in diese dann Sulfonsäuregruppen einzuführen bzw. mit Schwefelsäure zu verestern. Sollte demgegenüber eine Abgrenzung des Anmeldungsgegenstandes noch möglich sein, so ist neben einem auch im Oberbegriff klargestellten Anspruch der Nachweis zu führen, daß und welche ein besonderer technischer Fortschritt dem Bekannten gegenüber durch den Anmeldungsgegenstand erzielt ist.

Prüfungsstelle für Klasse 12o.

Dr.Möllering. Kre.

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

3614

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Patent-Abteilung.

15. März 1940

P. 7.2.40 Dr.Hau/S. 13. März 1940

O.Z.11 727 abgezw.aus O.Z.9831; O.Z.11 762/3 abgezw.aus O.Z.6046.

Die Erfinder von O.Z. 6046 sind Dr. GÜNTHER und Dr. HAUSSMANN. Von ersterem stammt der allgemeine Auftrag, über Waschmittel zu arbeiten, von Herrn Dr. HAUSSMANN der Gedanke, mehrwertige Alkohole mit Fettsäuren einerseits zu verestern und andererseits zu sulfieren, sowie die experimentelle Bearbeitung der Anmeldung.

gez. Haussmann
(Schwalla)

Durchschlag

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

3615

Patentabteilung.

Patentabteilung.

Lu/O. 5. 1. 40 Dr.Sp/Ri. 11. März 1940

O.Z. 9831 u. O.Z. 11 727 (Abzweigung aus O.Z.9831).
Verfügung des Reichspatentamtes vom 27. Okt.1939.

Der Gegenstand der beiden Anmeldungen wird in den wichtigsten Teilen von dem DRP. 640 501 (O.Z.5523) umfasst. Auch die Sulfierungsprodukte der Amide von Dikarbonsäuren (O.Z.11 727), wie Maleinsäure und Weinsäure, sind dort erwähnt. Als Amine für die Herstellung der Amide sind neben primären auch die bei vorliegenden Anmeldungen in Frage kommenden sekundären Amine genannt. Die sulfonierten Monokarbonsäureamide (O.Z.9831) mussten wir in Amerika wegen des A.P. 1 931 540 (J.G.) bereits fallen lassen. Diese Patentschrift wurde neuerdings auch von der Zweigstelle Österreich des Reichspatentamtes entgegengehalten, neben unserem Österreich. Patent 141 864 (O.Z.5523). Vom Reichspatentamt wurde das DRP. 640 581 (O.Z.5523) als patenthindernd angeführt und ausserdem wurden zeitraubende Vergleichsversuche gegenüber dem DRP 633 334 (O.Z. 6966) verlangt. Das holländische Patentamt hat derart schwerwiegende Patentliteratur als entgegenstehend ermittelt, dass die beiden Anmeldungen in Holland bereits zurückgezogen werden mussten. Zu erwähnen sind hiervon besonders das E.P. 382 718 (O.Z.7074), in welchem Malein-, Fumar- und Crotonsäure als Säurekomponenten angeführt sind, sowie das E.P.341 053 (O.Z.5523), das die sulfierten Monokarbonsäureamide, jedenfalls soweit es sich um Schwefelsäureester handelt, vorwegnimmt. Die echten Sulfosäuren aus Monokarbonsäureamiden mussten auf Grund des entgegengehaltenen Materials schon aus der Compl.Spec. in England gestrichen werden, so dass nur ein unwichtiger Teil übrig bleibt, der die Gruppe SO_3X (X= Kation) über Schwefel oder Stickstoff gebunden enthält. Der Anmeldung betreffend Sulfierungsprodukte aus Amiden von Di- und Trikarbonsäuren (O.Z.11 727) steht das E.P. 382 718 entgegen.

- 2 -

Durchschlag

An Patentabteilung. 11.3.40 2
Dr.Sp./Ri.

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH. 3616
Hauptlaboratorium

An Patentabteilung. 11.3.40 2
Dr.Sp./Ri.

In Anbetracht des von verschiedenen Stellen entgegengehaltenen Materials, unter dessen allgemeinen Schutz auch die vorliegenden Produkte fallen (z.B. DRP.640 581), halten wir es daher für angebracht die beiden Anmeldungen in In- und Ausland zurückzuziehen bzw. die erteilten Schutzrechte fallen zu lassen, soweit Abhängigkeit von anderen älteren Schutzrechten der I.G. besteht.

gez. Hauptmann
(Keppe)

Durchschlag

I. G. Ludwigshafen 3617
Patentabteilung

An

Hauptlaboratorium

I. G. Ludwigshafen
Patentabteilung

An

Hauptlaboratorium

Ihre Zeichen	Ihre Nachricht v.	Unsere Zeichen	Tgb.
			7.2.1940.

Betreff: O.Z.11727 abgezw.aus O.Z.9[illegible]
O.Z.11762 & 11763 abgezw. aus O.Z.6046.

Beifolgend senden wir Ihnen die Erfinderfragebogen zu den drei oben angeführten Anmeldungen, die während der Abwesenheit von Herrn Dr.Haußmann ausgefüllt wurden, nochmals zu mit der Bitte, sie von Herrn Dr.Haußmann überprüfen, ergänzen und unterschreiben zu lassen.

Die Erfinder der Anmeldung O.Z.9831 sind die Herren Dr.Haußmann und Dr.Stadler.

Die Erfinderfrage zu O.Z.6046 ist bis heute noch ungeklärt, und wir bitten Sie, uns die Erfinder zu dieser Anmeldung nun auch anzugeben. Die Prüfung der Anmeldung war mehrere Jahre ausgesetzt gewesen und nun ist die Bekanntmachung der Anmeldung in Aussicht gestellt worden.

3 Anlagen.

3853-8258-SM-5100

Dr. Haussmann

31.8.1939. Lu/Di.

3618

Dr. Haussmann

31.8.1939. Lu/Di.

Krzikalla

Aktenvermerk.

Betr.: O.Z. 11727 - "Herstellung von Netzmitteln".
Abgezweigt aus I 57 262 IVd/12 o (O.Z.9831).
Auslandspatentierung.

Der Gegenstand der obigen Anmeldung ist bereits durch die der Stammanmeldung O.Z. 9831 entsprechenden Auslandsschutzrechte druckschriftlich veröffentlicht, sodass die Entnahme von Auslandsanmeldungen für die abgezweigte Anmeldung O.Z. 11727 nicht mehr erforderlich ist.

Hauptlaboratorium.

gez. Luber.

3619

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

Unser Zeichen: O.Z.1172 Dr.

Ludwigshafen/Rhein, 10. August 193

Herstellung von Netzmitteln

Es wurde gefunden, dass man Netzmittel erhält, wenn man in den Rest R von Säureamiden des Aufbaus

CO.

(CO.R

worin R einen aliphatischen Rest mit höchstens 8 Kohlenstoffatomen, R_1, R_2, R_3 und R_4 Wasserstoff oder aliphatische Reste bedeuten, wobei mindestens zwei aliphatische Reste mehr als je 2 und zusammen mehr als 11 Kohlenstoffatome enthalten und worin n die Zahl 1 oder 2 bedeutet, mindestens einen Rest $-X-SO_2Y$ einführt (X bedeutet Kohlenstoff, Sauerstoff, Schwefel oder Stickstoff und Y Wasserstoff, ein Alkalimetall, einen Ammoniumrest oder den Rest einer organischen Base).

Die neuen Erzeugnisse kann man in an sich bekannter Weise aufbauen. Besonders gut verwendbar sind Verbindungen, die verzweigte aliphatische Ketten enthalten. Zum Aufbau der Verbindungen können beispielsweise die Amine benutzt werden, die aus den Alkoholen aus den Nachläufen der Methanol- oder Isobu-

1172

tylalkoholsynthese erhalten werden. Ferner aus Paraffinoxydationsalkoholen oder aus den Alkoholen, die man durch Kondensation von Aldehyden und Ketonen und anschliessende Hydrierung erhält. Weiterhin seien die Amingemische genannt, die man aus Isohexyl- oder Isoheptylalkoholgemischen oder aus Isodecylcarbonsäuren oder anderen Carbonsäuren aus der Mineralöloxydation und den entsprechenden Alkoholen erhält. Im allgemeinen sind diejenigen Erzeugnisse besonders brauchbar, deren aliphatische Reste nicht mehr als 16 miteinander verbundene Kohlenstoffatome enthalten.

Diese Amine setzt man dann mit Di- oder Tricarbonsäuren um, die nicht mehr als die nach der vorstehenden Erfindungskennzeichnung zulässige Anzahl Kohlenstoffatome und ausserdem Doppelbindungen, Oxygruppen, Iminogruppen oder umsetzungsfähige Halogenatome enthalten. Beispielsweise seien Maleinsäure, Weinsäure, Malonsäure, Bernsteinsäure und Zitronensäure genannt. In die so erhaltenen Amide führt man dann in bekannter Weise Sulfonsäuregruppen ein. Man kann aber auch bei der Herstellung der Amide von sulfogruppenhaltigen Di- oder Tricarbonsäuren ausgehen und auf diese Weise gleichzeitig Sulfonsäuregruppen einbauen.

Die Sulfonsäuregruppe kann an Kohlenstoff, Sauerstoff, Stickstoff oder Schwefel gebunden sein und kann in die Amide in folgender Weise eingeführt werden. An Schwefel gebundene Sulfonsäuregruppen kann man einführen, indem man halogenhaltige Carbonsäureamide mit Thiosulfaten umsetzt. Zur Einführung von Sulfonsäureestergruppen veresternt man Säureamide der genannten Art,

die entweder im Säurerest Oxygruppen enthalten, mit Schwefelsäure

die entweder im Säureteil Oxygruppen enthalten, mit Schwefelsäure o.ä., oder indem man entsprechende Verbindungen, die im Säureteil Doppelbindungen enthalten, mit Schwefelsäure oder Chlorsulfonsäure oder ähnlichen Mitteln behandelt. An Stickstoff gebundene Sulfonsäuregruppen kann man einführen, wenn das Säureamid im Säureteil mindestens ein an Stickstoff gebundenes ersetzbares Wasserstoffatom enthält, indem man Chlorsulfonsäure, Fluorsulfonsäure oder Schwefeltrioxyd einwirken lässt.

Die als Ausgangsstoffe dienenden Carbonsäureamide kann man durch Umsetzung der Di- oder Tricarbonsäuren der genannten Art oder ihrer Anhydride, Halogenide oder Ester mit den Aminen erzeugen. Die Amine benutzt man dabei im allgemeinen in Form der freien Basen. Es ist aber auch möglich, ihre Salze anzuwenden, doch ist es dabei angezeigt, säurebindende Mittel zuzusetzen.

Die neuen Verbindungen sind vorzügliche Textilhilfsmittel. Sie zeichnen sich insbesondere durch ihr vorzügliches Netzvermögen aus. Sie sind allein oder zusammen mit anderen Netz- und Reinigungsmitteln verwendbar; oftmals wird ihr Netzvermögen durch darin enthaltene, beschränkt wasserlösliche Anteile noch verbessert. Sie eignen sich dank ihrer Beständigkeit für alle Zwecke der Faserveredelung sowie für ähnliche Verwendungszwecke, bei denen kapillarwirksame Stoffe angewandt werden.

Die in den folgenden Beispielen angegebenen Teile sind Gewichtsteile.

Beispiel

In eine Lösung von 100 Teilen Malonsäurediisooctylamid und 400 Teilen Tetrachlorkohlenstoff werden bei 10-15° 70 Teile gasförmiges Schwefeltrioxyd eingeleitet; dann wird die Lösung langsam auf 70° erwärmt. Das erhaltene Erzeugnis wird auf Eis gegossen, mit Natronlauge neutralisiert, bis fast zur Trockne eingeengt, mit Alkohol aufgekocht, von den ungelöst gebliebenen Anteilen, die insbesondere aus anorganischen Salzen bestehen, abgetrennt und zur Trockne eingedampft. Das erhaltene Sulfomalonsäure-diisooctylamid besitzt ein vorzügliches Netzvermögen.

Verwendet man anstelle von Malonsäure-diisooctylamid das entsprechende, am Amidstickstoff noch methylierte Amid, so erhält man ebenfalls ein Erzeugnis von ausgezeichneten Eigenschaften.

Beispiel

Man erhitzt ein Gemisch aus 80 Teilen Diisooctylamin und 22,5 Teilen Weinsäure ungefähr 15 Stunden lang auf 145-150°. Dabei destillieren 5 Teile Wasser ab. Das so gebildete Weinsäure-bis-diisooctylamid wird von anhaftender unveränderter Weinsäure durch Behandeln mit Wasser und von nicht umgesetztem Diisooctylamin durch Erhitzen unter vermindertem Druck befreit.

Dann läßt man unter Kühlung auf 0-5° eine Mischung von 29 Teilen Chlorsulfonsäure und 18 Teilen Äther langsam in eine Lösung von 68 Teilen des obengenannten Amids in Äther unter Rühren einlaufen. Man rührt die Mischung bei der genannten Temperatur solange, bis sich eine Probe leicht in Wasser löst, gießt sie auf Eis und neutralisiert mit Natronlauge. Nun ver-

dünnt man das Gemisch [illegible]

dünnt man das Gemisch mit der gleichen Raummenge Alkohol und entfernt die nichtsulfonierten Teile durch Ausschütteln mit Ligroin. Die Ligroinschicht trennt man ab und fügt 5 Teile Dinatriumphosphat zu der alkoholisch-wässrigen Schicht; diese wird auf dem Wasserbad verdampft und der Rückstand unter vermindertem Druck bei 100° getrocknet. Das so erhaltene Natriumsalz des Disulfonsäureesters des Weinsäure-bis-diisooctylamids besitzt ein ausgezeichnetes Netzvermögen.

Beispiel

Eine Mischung von 96 Teilen Zitronensäure und 23[illegible] Teilen Mono-isooctylamin erhitzt man sorgfältig, bis das Amin zu sieden beginnt. Nach fünfstündigem Erhitzen auf den Siedepunkt fügt man weitere 80 Teile Mono-isooctylamin zu, um das abdestillierte Amin zu ersetzen. Die unveränderten Ausgangsstoffe werden dann entfernt.

Nun gibt man unter Rühren bei 70° zu 5[illegible] Teilen des entstandenen Zitronensäure-tri(monoisooctyl)-amids 35 Teile Chlorsulfonsäure. Nach dem Abkühlen vermischt man die Umsetzungsmasse mit Eis, neutralisiert mit Natronlauge und schüttelt sie mit einer Mischung von Butylalkohol und Äther aus. Nach der Abtrennen der Ätherbutylalkohol-Lösung und dem Eindampfen erhält man das Sulfonierungserzeugnis frei von anorganischen Salzen. Man löst es in 70-prozentigem Alkohol und schüttelt es mit Ligroin, wobei die unsulfonierten Teile entfernt werden. Nach Hinzufügen von 5 Teilen sekundärem Natriumphosphat verdampft man die alkoholische Lösung auf dem Wasserbad und trocknet sie unter vermindertem Druck bei 100°. Man erhält so das reine Natriumsalz

des Schwefelsäureesters des Zitronensäure-tri-(monooctyl-amids; es besitzt ein gutes Netzvermögen.

Beispiel 4

300 Teile eines Gemischs primärer Alkylamine, worin der Alkylrest 7-9 Kohlenstoffatome enthält und das durch Überführen von Fettsäuren, die 7-9 Kohlenstoffatome enthalten und durch Oxydation von Paraffin gewonnen sind, in die entsprechenden Nitrile und Hydrierung mit Wasserstoff in Gegenwart eines Kobaltkatalysators erhalten wurden, erhitzt man einige Stunden lang mit 146 Teilen Adipinsäure bei 160-180° unter Abdestillieren des gebildeten Wassers. Das noch anhaftende Wasser und überschüssiges Amingemisch werden unter vermindertem Druck abgedampft.

Zu 192 Teilen des erhaltenen Adipinsäurediamidgemischs fügt man 550 Teile Tetrachlorkohlenstoff und leitet unter Rühren bei 70-75° solange gasförmiges Schwefeltrioxyd in die Mischung, bis die Sulfonierung beendet ist. Das Gemisch wird sorgfältig mit Eis und Wasser versetzt und mit Ammoniak schwach alkalisch gemacht. Man verdünnt die Masse mit der gleichen Raummenge Alkohol und trennt die unsulfonierten Teile durch Ausschütteln mit Ligroin ab. Die Ligroinschicht wird entfernt und die alkoholisch-wässrige Schicht zur Trockne eingedampft. Man erhält so das Ammoniumsalz der Sulfonsäuren des Adipinsäurediamidgemischs.

Beispiel 5.

Das in Beispiel 4 beschriebene Sulfonierungserzeugnis wird sorgfältig mit Eis und Wasser gemischt. Dann gibt man Diäthylamin hinzu, bis die Mischung deutlich alkalisch gegen Brillantgelb ist. Man verdünnt die Masse mit Alkohol auf die doppelte

Raummenge und trennt die unsulfonierten Teile durch Ausschütteln

Raummenge und trennt die unsulfonierten Teile durch Ausschütteln mit Ligroin ab. Die Ligroinschicht wird entfernt und die alkoholisch-wässrige Schicht zur Trockne eingedampft; man erhält so das Diäthyl- aminsalz des Adipinsäurediamidgemisch.

Patentanspruch.

Herstellung von Netzmitteln, dadurch gekennzeichnet, dass man in den Rest R von Säureamiden des Aufbaus

CO.N

(CO.N

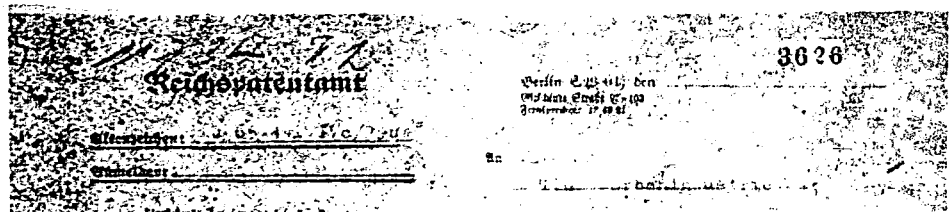
worin R einen aliphatischen Rest mit höchstens 8 Kohlenstoffatomen, R_1, R_2, R_3 und R_4 Wasserstoff oder aliphatische Reste bedeuten, wobei mindestens zwei aliphatische Reste mit mehr als je 3 und zusammen mehr als 11 Kohlenstoffatomen enthalten sein sollen und worin n die Zahl 1 oder 2 bedeutet, mindestens einen Rest $-X-SO_3Y$ einführt (X bedeutet Kohlenstoff, Sauerstoff, Schwefel oder Stickstoff und Y Wasserstoff, ein Alkalimetall, einen Ammoniumrest oder den Rest einer organischen Base.

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

TITLE PAGE

11734
July 1939 - Nov. 1943 Verfahren zum Loesen von Cellulose.
Process for dissolving cellulose.

Frame Nos. 3626 - 3669



3626

Reichspatentamt

Berlin SW 61, den

Aktenzeichen:

Ihr Zeichen:

13. 11. 43.

Beschluss

1941.

744414

Prüfungsstelle für Klasse

---

17. 1943

3627

Betr. 02.11734

Interne Aktennotiz! 17. Mai 1943

Betr. O.Z. 11734 **3627**

I. 65441/IVc/29b

Laut Mitteilung von Herrn [illegible] vom gleichen Tage ist obige Anmeldung am 5. Febr. 1942 ausgelegt worden. Einspruch wurde nicht erhoben.

Am 10. Juni 1942 ging ein Mitteilung des Reichspatentamts ein, wonach – ohne Angabe von Gründen! – der Erteilungsbeschluss um mind. 1 Jahr, d.h. bis zum 6. Juni 1943 verzögert wird. Von unserer Seite ist kein derartiger Antrag gestellt worden.

Das Hauptsekretariat ist hiervon nicht benachrichtigt worden. Bei einer gelegentlichen Überprüfung der fälligen Termine wurde die Lage geklärt.

HA.

12.4.12 V.II 11/2

I. G. Dormagen
Abteilung Kunstseide

Patentabteilung 3628
13 APR 1942

12.4.12 V.II 11/2

Patentabteilung 3628
13. APR. 1942

I. G. Dormagen
Abteilung Kunstseide

an I.G. Ludwigshafen

Ihre Zeichen	Ihre Nachricht vom	Unsere Zeichen	Tag
		Dr.Fst/Sch.	9.4.1942

Betreff: Patent-Anmeldung I 65441, Verfahren zum Lösen von Cellulose. = 11734
Dr.Otto Hecht, Ludwigshafen u.Dr.Ernst Gassenmeier, Mannheim.

Hauptlabor

Wir haben mit Interesse von vorerwähnter Patent-Anmeldung, die das Lösen von Cellulose in quartärem Pyrrolidiniumhydroxyd betrifft, Kenntnis genommen. Da wir uns gern über die Fadeneigenschaften der aus solchen Lösungen gefällten Cellulose unterrichten möchten, beabsichtigen wir, im Versuchsmaßstab derartige Lösungen herzustellen und wenn möglich zu verspinnen. Für die Herstellung der Spinnlösung ist es bekanntlich erforderlich, daß der Zellstoff restlos aufgelöst wird, also auch keine mikroskopisch erkennbaren Faserreste hinterläßt. Wir wären Ihnen daher dankbar, wenn Sie uns mitteilen würden, ob die in der Anmeldung erwähnten Vorschriften zu derartigen Lösungen führen und möchten Sie außerdem bitten, uns 5 - 10 kg des für unsere Zwecke am besten geeigneten Pyrrolidiniumhydroxyds zu übersenden.

Für Ihre Mühe danken wir Ihnen im Voraus bestens.

Dr. Hecht Gassenmeier

ABT. KUPFERKUNSTSEIDE

14. April 1942

Hauptlaboratorium
Zur gefl. ungehenden Äußerung an Patentabteilung Lu.
14.4.42

Aktenexemplar 3629

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

I.G.Farbenindustrie A.G.,
Pe-Ce-Betrieb,
Kunstseidefabrik,
Wolfen / Krs.Bitterfeld.

3620

Aktenexemplar

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.

Hauptlaboratorium

I.G.Farbenindustrie A.G.,
Pe-Ce-Betrieb,
Kunstseidefabrik,
Wolfen / Krs.Bitterfeld.

Dr.R/W. 24.4.42. - - Dr.Ht/b 15. Mai 1942.

Patentanmeldung I. 65441 IVc/29b - (O.Z.11734).
Verwendung von quartären Pyrrolidiniumhydroxyden zum Lösen von Cellulose.

Wir erhielten Ihr obiges Schreiben und werden Ihnen sobald wie möglich die gewünschten Produkte übersenden.

Wegen starker Überlastung mit anderen dringenden Arbeiten sowie wegen zahlreicher Einberufungen bitten wir Sie jedoch, sich noch etwas gedulden zu wollen.

Wir werden auf die Angelegenheit zurückkommen.

I.G.LUDWIGSHAFEN A/RH.
HAUPTLABORATORIUM.

Durchschlag

3630

Reichspatentamt

Berlin, den 12. Mai 1941

3630

Reichspatentamt

Aktenzeichen: J 65 441 IVc/29b

Berlin SW 61, den 12. Mai 1941

An
I.G. Farbenindustrie
Akt.-Ges., Pat.-Abtlg.
in Ludwigshafen a. Rh.

Hauptlaboratorium

Dr. Hecht

Ihr Zeichen: 11 734

Beschluß.

Die Patentanmeldung der Firma I.G. Farbenindustrie Aktiengesellschaft in Frankfurt a. Main ist bekanntzumachen, und zwar in der Klasse 29 b, Gruppe 3/01 mit der Bezeichnung:

"Verfahren zum Lösen von Cellulose".

Anmeldetag ist der 17. August 1939.

Gemäß § 2 Absatz 1 der Verordnung vom 20. Juli 1940 ist die Erklärung abgegeben worden, daß sich der Schutz auf das Protektorat Böhmen und Mähren erstrecken soll.

Die Bekanntmachung erfolgt nach Ablauf der beantragten, mit der Zustellung dieses Beschlusses beginnenden Aussetzungsfrist von d r e i Monaten. Wegen Zahlung der Bekanntmachungsgebühr siehe Anlage. Für die Aussetzung auf länger als 3 Monate bedarf es einer Begründung.

Zur Auslegung sind bestimmt:

Erfindernennung, eingegangen am 18. September 1940,
Nachtrag zur Beschreibung (Blatt 2 der Beschreibung), eingegangen am 13. Februar 1941,
Beschreibung (Blatt 1) und 1 Patentanspruch, zuletzt eingegangen am 13. Februar 1941,
Schutzerstreckungserklärung Böhmen und Mähren, eingegangen am 30. Juli 1940.

Prüfungsstelle für Klasse 29 b.

Dr. Barlet

6. Juni 1941

Frist 3. August

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

Dr. Braun

Frist: 18.Februar 1941

Ø Hauptlaboratorium

12.Feb. 1941

Dr. Hecht HA

O.Z.11734
An das
Reichspatentamt,
Berlin.

Patentabt.Fr/Ve. den 11.Februar 1941.

I. 85 441 IVc/29 b.
"Verfahren zum Lösen von Cellulose".
Auf den Amtsbescheid vom 11.Oktober 1940.

Mit der von der Prüfungsstelle vorgeschlagenen Fassung der auszulegenden Unterlagen erklären wir uns einverstanden. In der Anlage senden wir das uns zugesandte Stück der Beschreibung unverändert zurück. Zur Auslegung bitten wir, die gleichfalls beiliegende Reinschrift der Seite 2 zu benutzen.

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

gez. ppa. Braun ppa. Kleber

Anlagen:
F.A.623105
neue Seite 2 (doppelt).

13.Feb.1941

Durchschlag

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

in eine solche Lösung eingetragen; man kann auch zur Erhöhung der Löslichkeit erhöhten Druck, z.B. durch Einpressen eines inerten Gases von 100 Atmosphären Druck, anwenden und schütteln oder rühren. Durch Zusatz von Säure, z.B. Schwefelsäure, lässt sich die Cellulose wieder ausscheiden.

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN/RH.
Patentabteilung

in eine solche Lösung eingetragen; man kann auch zur Erhöhung der Löslichkeit erhöhten Druck, z.B. durch Einpressen eines inerten Gases von 100 Atmosphären Druck, anwenden und schütteln oder rühren. Durch Zusatz von Säure, z.B. Schwefelsäure, lässt sich die Cellulose wieder ausscheiden.

Die quartären Pyrrolidiniumhydroxyde lösen Cellulose besser als die bereits für den gleichen Zweck vorgeschlagenen quartären Ammoniumsalze. Man kann daher Cellulose nach der Erfindung bereits bei Zimmertemperatur lösen, während die quartären Salze bei erhöhter Temperatur angewandt werden müssen. Auch lässt sich nach der Erfindung in Gegenwart von Wasser arbeiten. Bei den bekannten Lösungsmitteln kann hingegen nur wenig Wasser zugesetzt werden, durch Zugeben von mehr Wasser scheidet sich die Cellulose dort wieder aus.

Die nach der Erfindung erhaltenen Celluloselösungen können zur Herstellung von Fäden, Filmen, Schlauchen und anderen Gebilden aus Cellulose verwendet werden.

Die in den nachstehenden Beispielen angegebenen Teile sind Gewichtsteile.

Beispiel 1:

In 100 Teile einer wässerigen 3n-Lösung von N,N-Dimethyl-pyrrolidiniumhydroxyd trägt man 9 Teile Baumwollcellulose ein und lässt bei etwa 0° unter zeitweiligem Umschütteln einige Zeit lang stehen, bis eine klare gelbliche Lösung entstanden ist. Behandelt man mit dieser Lösung Zellstoff unter 100 Atmosphären Stickstoffdruck, so lassen sich weitere 1,5 Teile davon lösen.

Beispiel 2:

Man behandelt 6 Teile Zellstoff in der in Beispiel 1 beschriebenen Weise mit 100 Teilen einer 3n-Lösung von N-Propyl-N-Äthylpyrrolidiniumhydroxyd und erhält so eine klare Lösung. Arbeitet man unter 100 Atmosphären Druck, so kann man 7 Teile Zellstoff lösen.

Unter sonst gleichen Bedingungen lassen sich in 100 Teilen einer wässerigen 3n-Lösung von N-Butyl-N-Äthylpyrrolidiniumhydroxyd bei gewöhnlichem Druck 6 Teile, bei 100 Atmosphären Druck 10 Teile Cellulose lösen.

Patentanspruch:

Durchschlag

Reichspatentamt

Aktenzeichen: J 65 441 IV o/ 29 b

3636

Berlin C 2 61, den 11. Oktober 1940
Gitschiner Straße 97-103
Fernsprecher 17 40 01

An
Fa. I.G. Farbenindustrie

3630

Reichspatentamt

Berlin SW 61, den 11. Oktober 1940
Gitschiner Straße 97-103
Fernsprecher: 17 44 81

Aktenzeichen: J 65 441 IV c/ 29 b

Anmelder:

An
Fa. I.G.Farbenindustrie
Aktiengesellschaft
in Ludwigshafen a.Rh.

Hauptlaboratorium

Dr. Hecht

Ihr Zeichen: Fr./Va

Auf die Eingabe vom 17. September 1940.

Auf Grund der weiteren Prüfung kann die Bekanntmachung der Anmeldung nach § 30 des Patentgesetzes in Aussicht gestellt werden.

Für die auszulegenden Unterlagen wird die aus den Anlagen ersichtliche Fassung vorgeschlagen. Mit den Änderungen wolle sich die Anmelderin binnen

d r e i Monaten

einverstanden erklären und entweder die Anlagen unverändert zurückgeben oder zwei Reinschriften der hier alsdann entbehrlichen Anlagen einreichen.- Falls Reinschriften nicht eingereicht werden, wird zur öffentlichen Auslegung das die Änderungen als solche enthaltende Stück benutzt werden, wodurch auch die geänderten Stellen für jedermann erkennbar werden.

Kann das Einverständnis nicht ausgesprochen werden, so ist der Widerspruch eingehend zu begründen.

Die Frist beginnt mit der Zustellung.

Prüfungsstelle für Klasse 29 b

Dr. Barlet

(Dr. Barlet)

1 Beschreibung und 1 Anspruch P.A. 623 105/39
1 Nachtrag P.A. 627 678/40

25. Nov. 1940

bis 18. Februar

25.11.40

Einschreiben

Msf.Pat.45
D.1940:50000

P.A. 623

Hilfpat.45
D.1940:50000

Teil 18. Februar

25.Nov.

P.A 623

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

Unser Zeichen: O.Z.117.

Ludwigshafen a.Rhein, den 16.August 193-
Pr/Vi

Verfahren zum Lösen von Cellulose.

Es ist bereits vorgeschlagen worden, Cellulose in wässrigen Lösungen von quartären Ammoniumhydroxyden, z.B. von quartären Benzylammoniumhydroxyden, zu lösen.

Es wurde nun gefunden, dass sich als Lösungsmittel für Cellulose quartäre Pyrrolidiniumbasen besonders gut eignen. Sie können leicht durch Umsetzen von N-substituierten Pyrrolidinen mit Mineralsäureestern von aliphatischen, cycloaliphatischen oder araliphatischen Alkoholen, z.B. Alkyl- oder Aralkylhalogeniden, Dialkylsulfaten oder p-Toluolsulfonsäurealkylestern, und Verseifen der entstandenen quartären Salze in Gegenwart von Metalloxyden oder -hydroxyden, wie Bariumhydroxyd oder Silberoxyd, hergestellt werden.

Zum Lösen von Cellulose, sei es von natürlich vorkommender oder umgefällter Cellulose, benutzt man zweckmäßig etwa n- bis 4n-Lösungen der quartären Base in Wasser oder Alkohol oder in Mischungen von Wasser und Alkoholen. Die Cellulose wird, zweckmäßig bei gewöhnlicher oder noch tieferen Temperaturen,

in

25.Nov.1940

1173.

in eine solche Lösung eingetragen; man kann auch zur Erhöhung der Löslichkeit erhöhten Druck, z.B. durch Einpressen eines inerten Gases von 100 Atmosphären Druck, anwenden und schütteln oder rühren. Durch Zusatz von Säure, z.B. Schwefelsäure, lässt sich die Cellulose wieder ausscheiden.

<-> PA 627627

~~Die nach der Erfindung erhaltenen Celluloselösungen können verwendet werden, um darin die Cellulose weiter umzusetzen.~~

Die in den nachstehenden Beispielen angegebenen Teile sind Gewichtsteile.

Beispiel 1.

In 100 Teile einer wässrigen 3n-Lösung von N,N-Diäthylpyrrolidiniumhydroxyd trägt man 5 Teile Baumwollzellstoff ein und lässt bei etwa 0° unter zeitweiligem Umschütteln einige Zeit lang stehen, bis eine klare gelbliche Lösung entstanden ist. Behandelt man mit dieser Lösung Zellstoff unter 100 Atmosphären Stickstoffdruck, so lassen sich weitere 1,5 Teile davon lösen.

Beispiel 2.

Man behandelt 6 Teile Zellstoff in der in Beispiel 1 beschriebenen Weise mit 100 Teilen einer 3n-Lösung von N-Propyl-N-äthylpyrrolidiniumhydroxyd und erhält so eine klare Lösung. Arbeitet man unter 100 Atmosphären Druck, so kann man 7 Teile Zellstoff lösen.

Unter sonst gleichen Bedingungen lassen sich in 100 Teilen einer wässrigen 3n-Lösung von N-Butyl-N-äthylpyrrolidiniumhydroxyd bei gewöhnlichem Druck 8 Teile, bei 100 Atmosphären Druck 10 Teile Cellulose lösen.

Patentanspruch:

117%.

Patentanspruch

Verfahren zum Lösen von Cellulose mit Hilfe quartärer Ammoniumbasen, dadurch gekennzeichnet, dass man quartäre Pyrrolidiniumhydroxyde verwendet.

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

3638

25 Nov 1940

3638

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

Priat: 2.Oktober 1940

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

Frist: 2.Oktober 1940

Dr. Hecht / Hauptlaboratorium

O.Z. 11734

An das

Reichspatentamt,

Berlin.

Patentabt.Fr/Va. den 17.Sept. 1940.

Z.65 441 IVc/39 v.

"Verfahren zum Lösen von Cellulose".

Auf den Amtsbescheid vom 25.Juni 1940.

Wir bitten, den zweiten Absatz auf Seite 2 der Anmeldungsbeschreibung durch folgende Absätze zu ersetzen:

"Die quartären Pyrrolidiniumhydroxyde lösen Cellulose besser als die bereits für den gleichen Zweck vorgeschlagenen quartären Ammoniumbase. Man kann daher Cellulose nach der Erfindung bereits bei Zimmertemperatur lösen, während die quartären Salze bei erhöhter Temperatur angewandt werden müssen. Auch läßt sich nach der Erfindung in Gegenwart von Wasser arbeiten. Bei den bekannten Lösungsmitteln kann hingegen nur wenig Wasser zugesetzt werden, durch Zugeben von mehr Wasser scheidet sich die Cellulose dort wieder aus.

Die nach der Erfindung erhaltenen Celluloselösungen können zur Herstellung von Fäden, Filmen, Schlauchen und anderen Gebilden aus Cellulose verwendet werden."

Die zur Anmeldung gehörende Erfindererklärung übersenden wir in der Anlage.

Erfindererklärung. I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT
gez. ppa. Schönberg ppa. Kleber

Anlage: Durchschlag

17. Sept. 1940

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

Frist: 2.Oktober 1940

Ø Hauptlaboratorium

O.Z.11734
An das
Reichspatentamt,
Berlin.

Patentabt.Fr/Ve. den 17.Sept. 1940.

I.65 441 IVa/29 b.
"Verfahren zum Lösen von Cellulose".
Auf den Amtsbescheid vom 25.Juni 1940.

Wir bitten, den zweiten Absatz auf Seite 2 der Anmeldungsbeschreibung durch folgende Absätze zu ersetzen:

"Die quartären Pyrrolidiniumhydroxyde lösen Cellulose besser als die bereits für den gleichen Zweck vorgeschlagenen quartären Ammoniumsalze. Man kann daher Cellulose nach der Erfindung bereits bei Zimmertemperatur lösen, während die quartären Salze bei erhöhter Temperatur angewandt werden müssen. Auch lässt sich nach der Erfindung in Gegenwart von Wasser arbeiten. Bei den bekannten Lösungsmitteln kann hingegen nur wenig Wasser zugesetzt werden, durch Zugeben von mehr Wasser scheidet sich die Cellulose dort wieder aus.

Die nach der Erfindung erhaltenen Celluloselösungen können zur Herstellung von Fäden, Filmen, Schläuchen und anderen Gebilden aus Cellulose verwendet werden."

Die zur Anmeldung gehörende Erfindererklärung übersenden wir in der Anlage.

Anlage:
1 Erfindererklärung

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT
gez. ppa. Schönberg ppa. Kleber

[illegible]

Durchschlag

3640

Reichspatentamt

Berlin SW 61, den 25. Juni 1940.
Gitschiner Straße 97-103
Fernsprecher: 17 65 21

I 65 441 IVa/29 b

An

3640 Dr. Wiedmann

Reichspatentamt

Berlin SW 61, den 25. Juni 1940.

[illegible] I 65 441 IVd/ 29 b

An
I.G.Farbenindustrie
Aktiengesellschaft
Ludwigshafen a/Rh

Dr. Hecht

[illegible]: O.Z. 11734

Auf die Eingabe vom 30. April 1940.

Nachstehend wird das Ergebnis der weiteren Prüfung mit der Aufforderung mitgeteilt, binnen d r e i Monaten sich zu äußern.

Die Frist beginnt mit der Zustellung.

Auf Grund der Ausführungen in der obigen Eingabe werden die Bedenken bezüglich der deutschen Patentschrift 576 214 fallen gelassen.

In einem Nachtrag zur Beschreibung ist noch der Stand der Technik, wie er sich aus der Entgegenhaltung ergibt, zu berücksichtigen und der Anmeldungsgegenstand demgegenüber als patentfähige Erfindung klarzustellen.

Außerdem ist der Verwendungszweck der anmeldungsgemäß hergestellten Celluloselösungen in der Beschreibung anzugeben.

Prüfungsstelle für Klasse 29 b.

Dr. Barlet

Zur Äußerung bis spätestens 15.8

Falls bis dahin eine schriftliche Äusserung nicht vorliegt, können wir die Verantwortung für eine rechtzeitige und gründliche Erledigung nicht übernehmen.

Patentabteilung

3641 Dr. Wiedmann

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.

3641

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

O.Z.11734

Frist: 2.Mai 1940.

Ø Hauptlaboratorium

An das
Reichspatentamt,
Berlin.

Dr. Hecht

Patentabt.Fr/Va. 30. April 1940.

I. 65 441 IVc/29 b.
"Verfahren zum Lösen von Cellulose".
Auf den Amtsbescheid vom 22.Januar 1940.

Über die gewerbliche Verwertbarkeit der anmeldungsgemäß hergestellten Celluloselösungen haben wir bereits im zweiten Absatz der Seite 2 der ursprünglichen Unterlagen angegeben, dass man die Lösungen verwenden kann, um darin die Cellulose weiter umzusetzen. Dies ist zweifellos eine gewerbliche Verwertung solcher Lösungen. Darüber hinaus können die Lösungen auch zur Herstellung von Filmen und Folien aus Cellulose verwendet werden, indem man beispielsweise die Lösungen auf eine Platte gießt und das Lösungsmittel verdunsten lässt, sodass dann ein aus Cellulose bestehender Film zurückbleibt. Wenn die Prüfungsstelle dies für nötig hält, sind wir bereit, diesen Verwendungszweck auch noch in der Beschreibung anzugeben.

In der deutschen Patentschrift 576 214, auf die die Prüfungsstelle verweist, ist die Verwendung quaternärer Ammoniumsalze, beispielsweise die von quaternären Pyridiniumsalzen, zum Lösen von Cellulose beschrieben. Die vorliegende Erfindung

Durchschlag

Patentgebiete verweist, ist die Verwendung quaternärer Ammoniumsalze, beispielsweise die von quaternären Pyridiniumsalzen, zur Lösung von Cellulose beschrieben. Die vorliegende

Erfindung

Durchschlag

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A/RH.
Patentabteilung

Erfindung unterscheidet sich von diesem bekannten Verfahren dadurch, dass nicht quaternäre Salze sondern quaternäre Basen bestimmter ringförmiger Amine verwendet werden, die im übrigen auch in Form ihrer Salze nicht in der deutschen Patentschrift 576 214 erwähnt sind. Diese quaternären Ammoniumhydroxyde haben ein wesentlich besseres Lösungsvermögen für Cellulose als die bereits vorgeschlagenen quaternären Salze, sodass man die Cellulose nach der Erfindung bereits bei Zimmertemperatur vollständig lösen kann. Die quaternären Salze müssen, wie dies aus den Beispielen der deutschen Patentschrift 576 214 hervorgeht, bei erhöhter Temperatur angewandt werden. Weiterhin ist es nach der Erfindung möglich, in Gegenwart von Wasser zu arbeiten, ja sogar verhältnismässig verdünnte Lösungen der quartären Basen in Wasser zu verwenden. Bei den bekannten Lösungsmitteln für Cellulose können nur geringe Mengen von Wasser zugesetzt werden. Durch Zugeben von grösseren Mengen Wasser scheidet sich die Cellulose dort schon wieder aus.

Es kann im Hinblick auf diese Vorteile kein Zweifel bestehen, dass es sich bei dem Anmeldungsgegenstand um eine wertvolle und patentfähige Bereicherung der Technik des Lösens von Cellulose handelt.

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

ppa. ppa. Braun ppa. Schönberg

Durchschlag

wertvolle und patentfähige Bereicherung der Technik des Lösens von Cellulose handelt.

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

gez. ppa. Braun ppa. Schönberg

Durchschlag

3648

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.

Hauptlaboratorium

Patent-Abteilung!

25. April 1940

— — Dr.Ht/b 23. April 1940.

Anmeldung I. 65 441 IVc/29b – O.Z. 11734.
Amtsbescheid des Reichspatentamts vom 22.1.40.

Zu dem Amtsbescheid des Reichspatentamts haben wir folgendes zu bemerken:

Die nach dem Verfahren der Anmeldung hergestellten Cellulose-Lösungen können ohne weiteres als Ausgangsstoffe zur Herstellung von Spinnstoffen verwendet werden. Dieser Effekt ist u.E. so bedeutsam, dass er allein schon die Patentfähigkeit der Anmeldung begründet. (Zur Zeit werden solche Lösungs- und Spinn-Versuche in Wolfen/Filmfabrik durchgeführt).

Zu der vom Patentamt zitierten Stelle aus dem Schrifttum (D.R.P. 576 214) ist zu bemerken, dass nach dem Verfahren der CIBA bei Zimmertemperatur keine Lösungen von Cellulose hergestellt werden können, ferner dass nach dieser Arbeitsweise nicht in Gegenwart von Wasser, das ja das billigste Lösungs- und Verdünnungsmittel ist, gearbeitet werden kann. Demgegenüber weist unser Verfahren die beiden Vorteile der bereits für Cellulose vorhandenen Lösungsfähigkeit bei Zimmertemperatur sowie die Möglichkeit der Benutzung wässriger Lösungen der Pyrrolidinium-hydroxyde auf. Dementsprechend ist das von uns beanspruchte Verfahren grundsätzlich von dem Verfahren der CIBA verschieden. Ausserdem werden von der CIBA nur Pyridiniumsalze und nicht etwa die freien Basen verwendet. Ferner sind Pyrrolidinium-verbindungen überhaupt nicht erwähnt. Damit dürften die Entgegenhaltungen des Prüfers entkräftet sein und der Auslegung der Anmeldung nichts mehr im Wege stehen.

gez. Hecht
" Niemann
" Kleppe)

Durchschlag

[illegible]
Verfahren grundsätzlich von dem Verfahren der CIBA verschieden. Ausserdem wurden von der CIBA nur Pyridiniumsalze und nicht etwa die freien Basen verwendet. Ferner sind Pyrrolidiniumverbindungen überhaupt nicht erwähnt. Damit dürften die Entgegenhaltungen des Prüfers entkräftet sein und der Auslegung der Anmeldung nichts mehr im Wege stehen.

gez. Hecht
" Neumann
" Kleppe)

Durchschlag

3644

Dr. Neumann

Reichspatentamt

Berlin SW 61, den 22. Januar 1940
Gitschiner Straße 97-103
Fernsprecher: 17 48 21

Aktenzeichen: J 65 441 IVc/29b.

Anmelder:

Vorstehende Angaben sind bei allen Eingaben und Zahlungen erforderlich.

Reichsbank-Girokonto.
Postscheckkonto: Nr. 2 Berlin.
Bankkonto: 20973 bei der Brandenburgischen Provinzialbank und Girozentrale, Berlin.

Firma I.G.Farbenindustrie
A.- G.
in Ludwigshafen a / Rh.

Ihr Zeichen D.Z. 11734

Jn Sachen der Patentanmeldung, betreffend: „Verfahren zum Lösen von Cellulose", eingegangen am 17. August 1939.

Nachstehend wird das Ergebnis der in Klasse 29b durchgeführten Prüfung mit der Aufforderung mitgeteilt, binnen d r e i Monaten sich zu äußern.

Zunächst wird die Anmelderin aufgefordert, die gewerbliche Verwertbarkeit der anmeldungsgemäß hergestellten Celluloselösungen anzugeben (vgl. § 1, Ziffer 1 des Patentgesetzes).

Schon jetzt wird darauf hingewiesen, daß es bekannt ist, Cellulose in quaternären Ammoniumsalzen, z.B. Benzylpyridiniumchlorid, zu lösen, vgl. die deutsche Patentschrift 576 214 der Klasse 29b, Gruppe 3/01.

Demgegenüber ist der durch das angemeldete Verfahren erzielte technische Effekt klarzustellen.

Prüfungsstelle für Klasse 29b.

Probst

Dr. Probst.

Ba.

20.3.

7.2.40

7.Feb.1940

[illegible] Äußerung auf diesen Bescheid ist nur in einfacher [illegible] einzureichen; für neue Unterlagen (Beschreibung, Ansprüche, Zeichnungen) sind dagegen 2 Ausfertigungen erforderlich.
[illegible] in diesem Bescheide gesetzte Frist beginnt mit der Zustellung.
[illegible] auf Verlängerung dieser Frist können nur bei ausreichender, [illegible] durch die Beibringung von Belegen gestützter Begründung berücksichtigt werden (s. Bekanntmachung, betr. Gewährung von Fristen im Patenterteilungsverfahren vom 18. Januar 1935, abgedruckt im Blatt für Patent-, Muster- und Zeichenwesen 1935, Seite 6).

RPA Pat 45 m. Fr. - Zul.
6.1939.50000

3645

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.

Hauptlaboratorium

Patentabteilung.

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium.

Patentabteilung.

20. Juli 1939
11^{15} h

Dr.Ht/Gm/Ri. 19. Juli 1939

Neuanmeldung / Celluloselösungen.

In der Anlage erhalten Sie eine Neuanmeldung
"Verfahren zur Herstellung von Celluloselösungen"
mit der Bitte um Weiterbearbeitung und baldige Einreichung.

gez. Hessenmüller
Herold
(Klippe)

Anlage.

Durchschlag

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium Ludwigshafen a/Rh., den 19. Juli 1939
Dr.Ht/Dr.Gm/Ri.

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium Ludwigshafen a/Rh., den 19. Juli 1939
Dr.Ht/Dr.Gm/Ri.

"Verfahren zur Herstellung von Celluloselösungen".

Es ist bekannt, Cellulose in Lösungsmitteln, wie Tetrammin-kuprihydroxyd (Schweitzers Reagens), Kalziumrhodanid usw., zu lösen. Ferner wurde durch Lieser (A. 522, 60; A 532, 94 - 103) festgestellt, dass sich quarternäre Ammoniumbasen ebenfalls als Lösungsmittel für Cellulose eignen. Bei einer Nachprüfung der Angaben von Lieser zeigte sich, dass wenn man versucht, die Cellulose direkt in den quartären Ammoniumbasen, die Lieser nur als Quellungsmittel zur weiteren Veresterung mit Schwefelkohlenstoff, wobei sich Ammoxanthogenate bilden, verwandt hat, zu lösen, in allen bisher bekannten Ammoniumbasen sich nur sehr wenig Cellulose auflösen lässt.

Es wurde deshalb versucht, neue Körper aufzubauen, die als Lösungsmittel für Cellulose dienen können. Als solche eignen sich nach unseren Erfahrungen quarternäre Pyrrolidiniumbasen. Diese können durch Umsetzung von substituierten Pyrrolidinen, mit Halogenen, Alkylen oder Dialkylsulfaten und Verseifung der entstandenen quartären Salze mit Metallhydroxyden, wie Barium-

Durchschlag

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

hydroxyd, Quecksilberoxyd, dargestellt werden.

Die so erhaltenen Lösungen können zu weiteren Reaktionen der Cellulose verwandt werden. Die Löslichkeit der Cellulose, in den genannten Basen, fällt mit zunehmender Temperatur und steigt mit zunehmendem Druck.

Beim Ansäuern bzw. Verspinnen der Lösungen in saure Fällbäder können Fäden, Flocken oder erhalten werden.

Das Verfahren der Anmeldung wird zweckmässig in der Weise ausgeführt, dass die Cellulose bei Zimmertemperatur oder Temperaturen unterhalb 20° in die 1 bis 4 n Lösung des betreffenden N,N-Dialkylpyrrolidiniumhydroxyds eingetragen wird. Nunmehr kann zur Erhöhung der Löslichkeit der Druck durch Einpressen von Stickstoff bis auf 100 Atm. erhöht werden, wobei zweckmässig geschüttelt oder gerührt wird. Kohlensäure ist streng zu vermeiden, da die wässrigen oder alkoholischen Lösungen des N-Dialkylpyrrolidiniumhydroxyds stark Kohlendioxyd absorbieren.

Das Verfahren ist aus den beigefügten Beispielen ersichtlich, wobei unter Teilen stets Gewichtsteile verstanden werden:

Durchschlag

Beispiel 1:

Beispiel 1:

Zu 99 Tl. N-Äthylpyrrolidin wurden unter Rühren 156 Tl. Äthyljodid zugetropft und nach dem Eintragen ca. 4-5 Stunden auf dem Wasserbad erwärmt. Die entstandene Anlagerungsverbindung wurde in 500 Tl. Wasser gelöst und 116 Tl. Silberoxyd langsam eingetragen und weitere 6 Stunden unter Rückfluss auf dem Wasserbad gerührt, wobei man einen schwachen Stickstoffstrom einleitet.

Nachdem vom gebildeten Silberjodid abfiltriert war, wurde wenn nötig die Lösung der Base, ~~wenn nötig~~ im Vakuum unter Einleiten von Stickstoff, eingeengt. In 100 Tl. einer so dargestellten 3 n Lösung wurden denn 5 Tl. Watte eingetragen und bei ca. 0° unter zeitweisem Umschütteln stehen gelassen, wobei sich die Cellulose zu einer klaren, gelblichen Flüssigkeit in der Base auflöste. In derselben Lösung konnten weitere 1,5 Tl. zur Lösung gebracht werden bei 100 Atm. Druck.

Durch Ansäuern mit verdünnter Schwefelsäure oder durch Verspinnen in eine wässerige Natriumsulfat enthaltende 12%ige Schwefelsäure wird die Cellulose in Flocken- bzw. Fädenform erhalten.

Durchschlag

Beispiel 2:

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Beispiel 2:

Wie in Beispiel 1 wurden hier 113 Tl. N-Propylpyrrolidin mit 156 Tl. Äthyljodid 4 bis 5 Stunden auf dem Wasserbad gerührt, dann in 500 Tl. Wasser gelöst und wie oben mit 116 Tl. Silberoxyd verseift. In 100 Tl. 3 n. Lösung der Base wurden bei 0° unter Schütteln 6 Tl. der Cellulose und bei Druckerhöhung auf 100 Atm. 7 Tl. der Cellulose gelöst. Auch hier lässt sich die Lösung fällen bzw. verspinnen wie oben angegeben.

Beispiel 3:

Die aus 127 Tl. N-Butylpyrrolidin mit 156 Tl. Äthyljodid, 500 Tl. Wasser und 116 Tl. Silberoxyd oder in entsprechender Weise aus N-Butyl-N-Äthylpyrrolidiniumsulfat, das durch Umsetzung von N-Butylpyrrolidinimit Diäthylsulfat erhältlich ist, und Umsetzung mit Bariumhydroxyd hergestellte Base, löst in 100 Tl. (3 n) ihrer wässrigen Lösung bei 0° 8 Tl. Cellulose und bei Druckerhöhung auf 100 Atm. 2 weitere Teile.

Patentanspruch:

Verfahren zur Herstellung von Celluloselösungen, gekennzeichnet durch die Verwendung der 1 bis 4 n wässrigen oder alkoholischen Lösungen der N,N-Dialkylpyrrodiniumhydroxyde.

Durchschlag

365

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH

Patentabt.

Patentabteilung Photo u. Kunstseide
Wolfen/Kreis Bitterfeld

D. an
Hauptlaboratorium

Fr/v. September 1939.

Anmeldung I. 63 441 IVc/29 b (O.Z.11734).

Wir übersenden Ihnen in der Anlage einen Abdruck unserer obenbezeichneten Neuanmeldung, die das Lösen von Cellulose in quartären Pyrrolidiniumhydroxyden betrifft. Wir bitten Sie um Mitteilung, ob Sie noch eine besondere Anmeldung für die Verwendung solcher Lösungen zur Herstellung geformter Gebilde aus Cellulose für notwendig halten.

PATENTABTEILUNG LU

gez. Kleber

Anl.

1836

2647-8848-60M-300

Durchschlag

365

I. G. Wolfen

Patent-Abteilung Photo und Kunstseide

Patentabt. ...
11. SEP 19..

3652

I. G. Wolfen

Patent-Abteilung Photo und Kunstseide

Patentabt. Eingang: 11. SEP 1939

Dr. Hecht

An die I. G. Farbenindustrie Aktiengesellschaft, Patentabteilung Ludwigshafen.

Ihre Zeichen	Ihre Nachricht vom	Unsere Zeichen	Tag
Fr/Va.	[illegible]. 9. 39.	[illegible]	[illegible]. 9. 39

Betreff: Anmeldung I. 65 [illegible] (O.Z. 11734).

Ihre Anfrage haben wir an unsere Kunstseidenfabrik weitergeleitet. Wir nehmen an, dass dort zunächst einige Versuche gemacht werden müssen und bitten daher, sich mit der Antwort noch etwas zu gedulden.

Patentabteilung Photo und Kunstseide.

Hauptlabor

15.9.39

V13a

15. Sep. 1939

P. 852

18.9.39

3653

I. G. Wolfen

Patent-Abteilung Photo und Kunstseide

Patentabt. Eingang: 25. OKT. 1939

Patent-Abteilung

Dr. Hecht

26.10.39

3658

Patentabt. Eingang: 25. OKT. 1939

I.G. Wolfen
Patent-Abteilung Photo und Kunstseide

Patent-Abteilung

26.10.39

An die I.G. Farbenindustrie Aktiengesellschaft, Ludwigshafen.

Ihre Zeichen	Ihre Nachricht vom	Unsere Zeichen	
Pr/Vo	5.9.39	Pr/	23.10.39

Betr.: Anmeldung I 65 441 IVa/29b (O.Z. 11 734).

Wir interessieren uns für die Eigenschaften der quartären Pyrrolidiniumhydroxyde als Lösungsmittel für Cellulose, können aber Ihre Frage, ob eine besondere Anmeldung für die Verwendung solcher Lösungen für die Herstellung geformter Gebilde aus Cellulose notwendig ist, vorläufig nicht beantworten, weil wir die Wirkungsweise der quartären Pyrrolidiniumhydroxyde und die Eigenschaften der Lösungen nicht kennen und vorerst Versuche anstellen müssen.

Wir müssen uns die quartären Pyrrolidiniumhydroxyde erst beschaffen oder selbst herstellen, was wohl einige Zeit in Anspruch nehmen wird. Wenn der Preis der Produkte der angeregten Verwendung nicht im Wege steht, so wäre eine solche Anmeldung wohl zweckmässig.

Kann uns Ludwigshafen quartäre Pyrrolidiniumhydroxyde zu Versuchszwecken zur Verfügung stellen?

Patent-Abteilung Photo und Kunstseide.

Hauptlaboratorium 28.10.39

28. OKT. 1939

36.

Patentabteilung Ludwigshafen a/Rh. ... 19

Patentabteilung Ludwigshafen a/Rh., den 19

Betr.:

Wir haben Ihnen vorstehendes Schreiben [illegible] zur umgehenden Stellungnahme abschriftlich übersandt.

Wir bitten Sie nunmehr umgehend Stellung zu nehmen oder uns mitzuteilen, welche Hinderungsgründe einer sofortigen Erledigung im Wege stehen und bis wann wir Ihre Äusserung erwarten.

Patentabteilung

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlabora-
Abschrif-
Aktenzeichen:
3050

Aktenexemplar 3659

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. Rh.
Hauptlabora-

Abschrif-

I.G. Farbenindustri- A.-
Patent-Abteilun. Photo u. Kunst.
Wolfe n /Kr.Bitt.-

Dr.S.- 6. Dezember 19-

Anmeldung I. 6- 44. IVc/29- (...
Ihr Schreiben an Patentabteilung ... vom 23.10.

Auf Ihr vorstehendes Schreiben an unsere Patentabteilung teilen wir Ihnen mit, dass eine grössere Menge des von uns als Lösungsmittel für Cellulose geprüften N-Butyl-N-äthylpyrrolidiniumhydroxyds bei uns zur Zeit hergestellt wird. Wir rechnen damit, Ihnen das Produkt bis ca. Ende des Monats zur Verfügung stellen zu können.

I.G.LUDWIGSHAFEN A/Rh.
HAUPTLABORATORIUM.
gez. Reppe

11. Dez. 1939
11. Dez. 1939

Durchschlag

Aktenexemplar 3659

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. Rh.
Hauptlaborator-

Aktenexemplar 3657

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. Rh
Hauptlaboratorium

I.G.Farbenindustrie A.-G.
Patent-Abt.Photo u.Kunstseide
Wolfen (Kr.Bitterfeld)

Dr. Hoe

Dr. Nieman

23.10.39 a.
Pat-Abtlg.b. Dr.Gm/b 13. Februar 1940

Patentanmeldung J 65 441 IVc/29 b (O.Z. 11 734.

Bezugnehmend auf unser Schreiben vom 8. 12. 1939 übersenden wir Ihnen gleichzeitig per Post franko 6 kg einer ca. 2 n N-Butyl-n-Äthylpyrrolidiniumhydroxyd-Lösung in Wasser.

Das Produkt ist durch Darstellung und Einwirkung von Luftsauerstoff etwas nachgedunkelt.

I.G. LUDWIGSHAFEN A.RH.
HAUPTLABORATORIUM
ppa. Reppe

Sendung
No.9860.

Durchschlag

24

I. G. Wolfen
Patent-Abteilung Photo und Kunstseide

3657
Patentabteilung Eingang
29 APR 1940

3657

Patentabt. Eingang 29 APR 1940

I. G. Wolfen

Patent-Abteilung Photo und Kunstseide

Patent-Abteilung Herrn Hecht

Ø Herrn Dr. [illegible]

An die I. G. Farbenindustrie Aktiengesellschaft,

Ihre Zeichen	Ihre Nachricht vom	Unsere Zeichen	Tag
Pr/Va.	[illegible]	[illegible]	26.4.40.

-4.5.40

Hauptlaboratorium

Betr.: Anmeldung I 65 441 IVc/29b [illegible]

Einem unserer Forschungslaboratorien ist die Lösung von Cellulose in dem uns zur Verfügung gestellten N-Butyl-N-äthyl-pyrrolidiniumhydroxyd gelungen und es [illegible], dass daraus Filme und Fäden in derselben Weise wie aus anderen Celluloselösungen hergestellt werden können.

Solange wir bei der Verarbeitung der Lösung zu Fäden und Filmen die für andere Celluloselösungen üblichen Arbeitsweisen benutzen, sehen wir keine Möglichkeit, auf die Verarbeitung der Lösungen ein Patent zu erhalten. Dies umso weniger, als wir bisher von den nur in sehr geringen Mengen hergestellten Produkten (Filmen) keine überlegenen Eigenschaften feststellen konnten.

Wir [illegible], dass eine Anmeldung für die Verarbeitung der Lösungen in diesem Stadium der Erkenntnis verfrüht wäre. Der Aufwand von weiterer Forschungsarbeit auf diesem Gebiet hätte unseres Erachtens aber erst dann Wert, wenn Aussicht besteht, dass Lu. die Lösungsmittel zu einem Preis und in Mengen herstellen kann, die eine praktische Verwertung im grösseren Umfang zulässt. Ob dies schon heute oder in absehbarer Zeit der Fall ist, entzieht sich unserer Beurteilung.

Für Ihre diesbezügliche Stellungnahme wären wir Ihnen dankbar.

Bei der Herstellung von Celluloselösungen in N-Butyl-N-äthyl-pyrrolidiniumhydroxyd ist bei uns so vorgegangen worden, dass 100 g einer 2n-Lösung des Pyrrolidiniumhydroxyds einige Stunden bei -2 – 0° auf 5 g Cellulose zur Einwirkung gebracht und dann die Lösung auf 45° erwärmt wurde. Dabei ist die Cellulose zuerst beim Erwärmen restlos in Lösung gegangen. Vielleicht sollte ein derartiges Lösebeispiel zu Ihrer Anmeldung I 65 441 IVc/29b nachgereicht werden.

Patent-Abteilung Photo und Kunstseide.

V13a

3658

Patent-Abteilung

Patent-Abteilung

Dr.Gm/b. 2. Juli 1940

O.Z. 11 734 – J 65 441 IVo/29 b.
Schr.I.G.Wolfen, Patent-Abt.Photo u.Kunstseide v.26.4.40 Pf/Sr.

Zu der Frage der Patentfähigkeit der Verarbeitung der Celluloselösungen die nach unserer Patentanmeldung J 65 441 IVo/29 b hergestellt werden können, bitten wir die Patentabteilung Stellung zu nehmen.

Zur Frage des Preises unserer Celluloselösungsmittel fügen wir eine vorläufige Kalkulation bei; der Preis von RM. 345,91 bezieht sich auf 100 kg feste Substanz, 100 l einer 2 n-Diäthylpyrrolidiniumhydroxydlösung, wie sie für die Versuche angewandt wird, würden demnach ca. RM. 100.-- kosten.

Die Lösung von N-Butyl-N-äthylpyrrolidiniumhydroxyd würde sich auf ungefähr denselben Preis stellen.

Über die Möglichkeit der Fabrikation obengenannter Hydroxyde in grösseren Mengen können wir uns vorläufig nicht äussern, fügen jedoch hinzu, dass die Darstellung äusserst einfach ist, und, falls Interesse besteht, leicht durchgeführt werden könnte.

Zum letzten Absatz des Schreibens müssen wir bemerken, dass die Cellulose in den von uns dargestellten Lösungen sich auch ohne Erwärmen vollständig löste; es ist uns jedoch bekannt, dass dies schneller erreicht werden kann, wenn die Lösung erwärmt wird, was jedoch im allgemeinen nachteilig auf die gelöste Cellulose wirkt. Die brauchbarsten Lösungen erhält man durch Lösen bei 0 – 10° unter längerem Schütteln.

Anlage!

Hauptlabor

Provisorische Kalkulation zur Darstellung von ...

36:

. G. Ludwig...
Hauptlabor...

den ...

Provisorische Kalkulation zur Darstellung von N-Diät... pyrrolidiniumhy...

			Betr.		Betr.		Betrag
		N-Äthylpyrrolidin	...				
	...	Diäthylsulf...	2...				
	...	Bariumhydrox...	...				
	100	N-Diäthylp... diniumhydr...					
	100	N-Diäthylp... diniumhydr...					

Fb.-Spes. für 100 k...

Einst.-Sp...

Me...

somit Preis für 100 k. ... 29...

Unter...

3660

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

Patentabteilung Photo u.Kunstseide,
Wolfen/Kreis Bitterfeld.

D.an:
Hauptlaboratorium

11. Juli 1940

3660

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

Patentabteilung Photo u.Kunstseide,
Wolfen/Kreis Bitterfeld.

D.an:
Hauptlaboratorium

11.Juli 1940

Dr. Hecht

Pf/Sr. 26.4.40 Fz/Va. 11. Juli 1940.

"Anmeldung I.65 441 IVc/29 b (O.Z.11734).

Wir kommen zurück auf Ihr Schreiben vom 26.4.1940. Unsere technischen Stellen teilen uns mit, dass nach vorläufigen Schätzungen 100 kg Diäthylpyrrolidiniumhydroxyd RM 345,91 kosten werden, eine 2 n-Lösung, wie sie zum Lösen von Cellulose angewandt wird, kostet dann etwa RM 100.--. Für das Ihrem Kunstseidenlaboratorium seinerzeit bemusterte N-Butyl-N-äthylpyrrolidiniumhydroxyd errechnet sich etwa der gleiche Preis. Über die Fabrikationsmöglichkeit lässt sich zur Zeit noch nichts sagen. Die Herstellung der Verbindungen ist an sich sehr einfach und böte, falls Interesse besteht, keine Schwierigkeiten.

Übrigens konnten unsere technischen Stellen die im letzten Absatz Ihres Schreibens erwähnte Beobachtung nicht bestätigen. Bei den hier ausgeführten Versuchen löste sich die Cellulose auch in der Kälte vollständig. Man kann zwar das Lösen durch Erwärmen beschleunigen, jedoch wirkt sich dies nachteilig auf die gelöste Cellulose aus. Die brauchbarsten Lösungen erhält man durch Lösen bei 0 - 10° unter längerem Schütteln.

Wir haben uns bemerkt, dass Sie eine Patentanmeldung für das Verarbeiten der nach O.Z.11734 hergestellten Lösungen nicht empfehlen. Wir glauben, dass sich besondere Schutzrechte für diesen Zweck erübrigen und dass die vorliegende Anmeldung auch zum Schutz der Verarbeitung genügen wird. Da uns der deutsche Prüfer jetzt aufgefordert hat, in der Anmeldungsbeschreibung Verwendungszwecke für die Celluloselösungen anzugeben, werden wir diese Gelegenheit benutzen, um auf die Herstellung von Fäden und Folien hinzuweisen. Die Bekanntmachung der Anmeldung ist in Bälde zu erwarten.

PATENTABTEILUNG LU

gez. Schönberg

11.Juli 1940

Durchschlag

3661

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

[illegible] u.Kunstseide,
[illegible]

D.an:
Hauptlaboratorium

11.Juli 1940

3664

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.

Patentabteilung

11. Juli 1940

11. Juli 1940.

gez. Schönberg

Durchschlag

36..

I. G. ...

Patent-Abteilung Photo und K...

Patent-Abt...

An I. G. Farbenindustrie Aktiengesellschaft ...

Pr./... 11.7....

I 65 441 IVc/29b ...

364

I. G. W.
Patent-Abteilung Photo und K...

Patent-Abt.

An I. G. Farbenindustrie Aktiengesellschaft, Ludwigshafen

Fr./...   11.7. ...   S 179. ...   15. ...

I 65 441 IVc/29b   10.2.117-

Wir danken Ihnen für die Mitteilung des derzeitigen Preises der als Lösungsmittel für Cellulose verwendbaren Diäthylpyrrolidiniumhydr...

Wir sind damit einverstanden, dass die Faser- und die Filmherstellung aus den Pyrrolidiniumhydroxydlösungen in ihrer obigen Anmeldung beispielsweise erwähnt ...

Patent-Abteilung Photo und Kunststo...

Ø Hauptlabor...

gez. Ma...

3668

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Patentabteilung.

12. Mai 1941
... Anlagen

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Patentabteilung.

12 Mai 1941

Dr.Gn/Ri. 9. Mai 1941

O.Z. 11 734 - Ser.Nr. 353 386, Amerika.
Verfügung des amerikanischen Patentamtes vom 3. März 1941.

Zu A.P. 1 943 176.

Es ist hier zu bemerken, dass nach dem Verfahren des genannten Patents keine Lösungen von Cellulose bei Zimmertemperatur hergestellt werden können; ferner, dass nach diesem Verfahren nicht in Gegenwart von Wasser, das ja das billigste Lösungs- und Verdünnungsmittel ist, gearbeitet werden kann.

Demgegenüber ist es bei unserem Verfahren möglich, bei Zimmertemperatur und Wasser als Lösungsmittel zu arbeiten. Ausserdem werden in dem genannten Verfahren nur Pyridiniumsalze und nicht wie bei uns die freien Basen verwendet, während die von uns angewandten Pyrrolidiniumverbindungen überhaupt nicht erwähnt werden.

Zu A.P. 2 145 855.

Wie aus der Beschreibung des obigen Patents hervorgeht, handelt es sich hier ausschliesslich um Benzylsubstituierte Ammoniumhydroxyde, die zwar Cellulose usw. in ähnlicher Weise wie bei unserem Verfahren lösen, wobei unser Verfahren jedoch folgende Vorzüge aufweist:

Nach diesem A.P. ist es nicht möglich, bei Zimmertemperatur völlig klare Lösungen zu erhalten, was bei unserem Verfahren ohne weiteres gelingt. Ebenso kann nach dem A.P. eine beliebige Verdünnung mit Wasser nicht vorgenommen werden, bei stärkerer Verdünnung fallen die gelösten Substanzen wieder aus, während bei unserem Verfahren die Lösung beliebig mit Wasser verdünnt werden kann, ohne dass Ausfällung eintritt.

Im übrigen ist die Strukturformel der Ammoniumbasen im Unterschied zu unseren Basen wie folgt definiert:

- / -

Durchschlag

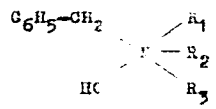
I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Patentabteilung. Dr.Gn/Ri. 9.5.41 2.

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Patentabteilung. Dr.Gm/Ki. 9.5.41 2.

O.Z. 11 734 - Amerika.



wobei R_1 - R_3 alle möglichen Alkyl-Aryl- oder Aralkylreste sein können, der Fall jedoch, dass das Stickstoffatom in einen Heterocyklus eingebaut sein kann, wie das bei unserem Verfahren der Fall ist, wird nicht in Erwägung gezogen, während es gerade dieser Umstand ist, der eine wesentliche Verbesserung der Lösungseigenschaften der Ammoniumbasen herbeiführt.

gez. Gassenmeier
" Ht(echt)
" R(eppe)

Durchschlag

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

3665

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.

Patentabteilung

Dr. Hecht

Hauptlaboratorium

[illegible]

[illegible] 4. Juni 1941.

[illegible]

[illegible]

Durchschlag

3666

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.

Patentabteilung

[illegible] Pz/Va. 2

3666

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.

Patentabteilung

[illegible]

Pz/Va. 2

[illegible]

Durchschlag

3667

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.

Patentabteilung

Pz/Va. 3

[illegible]

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

Herren
[illegible] and Joslin,
[illegible]

Pr/Va. 3

Einfluss des quaternären Stickstoffatoms eine besondere Lösungsfähigkeit für Cellulose haben. Im Gegensatz zu den in der amerikanischen Patentschrift ~~[illegible]~~ 2.125.855 genannten quaternären Verbindungen vermögen nämlich quaternäre Pyrrolidiniumhydroxyde Cellulose auch in der Kälte klar zu lösen. Auch kann man die nach der Erfindung hergestellten Lösungen mit Wasser verdünnen, während die in den bekannten quaternären Ammoniumhydroxyden gelöste Cellulose beim stärkeren Verdünnen mit Wasser wieder ausfällt.

Zusammenfassend ergibt sich also, dass die entgegengehaltenen Patentschriften das angemeldete Verfahren nicht vorwegnehmen, und dass durch die Wahl besonderer Verbindungen für das Lösen von Cellulose ein überraschender technischer Fortschritt erzielt wird. Die vorliegende Erfindung erfüllt also alle Anforderungen, die an eine patentfähige Erfindung zu stellen sind.

Der im letzten Absatz des amtlichen Bescheids geforderte neue Eid geht Ihnen in der Anlage zu.

Für die Election schlagen wir claim 5 und 12 vor.

Hochachtungsvoll

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

gez. ppa. Kleber ppa. Schönberg

1 Anlage.

Durchschlag

Paper No. 2

DEPARTMENT OF COMMERCE
UNITED STATES PATENT OFFICE
WASHINGTON

COPY VIA AIR MAIL

[illegible]

Applicant: Otto Hecht et al

Ser. No. 333,386
Filed [illegible] 20, 1940
For Cellulose Solutions and a Process of Preparing such Solutions

[illegible]
[illegible] Ave.
New York, New York

MAILED MAR - 3 194[illegible]

References made of record:

[illegible]	1,943,176	Jan. 9, 1934	106-40 Al.
[illegible]	2,143,859	Feb. 7, 1939	106-40 H

Claims 1 to 4, and [illegible] to 11 are rejected as unpatentable [illegible] each of the above cited references which disclose [illegible] ammonium heterocyclic compounds as solvents for [illegible] invention is found in selecting the particular [illegible] compound of this application in view of the general [illegible] of the references.

Since no allowable generic claim is found herein [illegible] of one species of the invention for further prosecution [illegible] required. The species presented are drawn to [illegible] pyrrolidinium hydroxides. In the [illegible] election, claims 5 to 7 and 12 to 14 are [illegible] advised that his response to be complete [illegible] must include an election of [illegible] statement that in his opinion all claims are in [illegible] designated species, which applicant must identify [illegible] will be construed as an election under the [illegible]

[illegible] to be in accordance with Rule [illegible] [illegible] public use, which allows but one year [illegible] the oath. A new oath is required.

DUE FOR REPLY SEP 3 - 1941

Examiner.

HUTZ & JOSLIN
521 Fifth Avenue
New York

896

Aug. 28, 1941.

Dr. Hecht

Hecht et al
Ser. No. 353,386
LU OZ 11734
I. 14,704

I. G. Farbenindustrie A.G.,
LUDWIGSHAFEN.

Gentlemen:

We thank you for the new Oath forwarded with, and the detailed comments contained in, your letter No. 473 dated June 4, 1941. The Oath has been filed with an argumentative response refuting the Examiner's rejection along the lines suggested in your letter.

Very truly yours,

HHK:TL

12 DEC 1941

D A K 42

TITLE PAGE

11739
Aug. 1939 - Dec. 1942

Verfahren zur Herstellung von Amino-alkyl- und Aminoaryl-N-pyrrolidonen.
Preparation of amino-alkyl and aminoaryl-N-pyrrholidones.

Frame Nos. 3670 - 3708

11739 II

Reichspatentamt

28 NOV 1942

Berlin SW 61, den 4. November 1942

3670

3670

11739 HL

Reichspatentamt

2 8 NOV 1942
Berlin SW 61, den 19. November 1942
Gitschiner Straße 97-103
Fernsprecher: 17 43 21

Aktenzeichen: J. 65 483 IVc/12 p

Geschäftsnummer D.A.: 779 624

Vorstehende Angaben sind bei allen Eingaben und Zahlungen erforderlich.

Reichsbank-Girokonto 1/158
Postscheckkonto: Nr. 2 Berlin
Bankkonto: 2073 bei der Brandenburgischen Provinzialbank und Girozentrale, Berlin

An
die I.G.Farbenindustrie
Akt.-Ges., Pat.-Abt.
in Ludwigshafen-a.Rhein

Hauptlaboratorium
4.12.42

Ihr Zeichen: O.Z. 11 739

Z.D. Fr...

K.

Beschluß

Auf die Anmeldung der I.G.Farbenindustrie Aktiengesellschaft in Frankfurt a.Main

wird ein vom 22. August 1939 an laufendes Patent unter der

Bezeichnung: " Verfahren zur Herstellung von N-(Aminoalkyl)-pyrrolidonen "

auf Grund der ausgelegten Unterlagen erteilt.

Das Patent führt die Nummer **730182**

~~Die Patentschrift ... Anmeldung ...~~

Gemäß § 2 Abs.1 der Verordnung vom 20. Juli 1940 ist die Erklärung abgegeben worden, daß sich der Schutz auf das Protektorat Böhmen und Mähren erstrecken soll.

Prüfungsstelle für Klasse 12 p

G.D.S.

Pat.-Urk. [redacted]

Lg.

mit Zahlungsbelehrung
~~Vordr. Pat. 19 a~~
~~" Pat.-Verm. 52~~

Pat. 16 a (2)
3.1942.10000

3671

11739 HL

Reichspatentamt

Berlin SW 61, den 28. Januar 1942
Gitschiner Straße 97-103
Fernsprecher 17 43 21

14 FEB 1942

Aktenzeichen: J. 65 483 IVc/12 p

3071

Reichspatentamt

Berlin SW 61, den 28. Januar 1942

Geschäftszeichen: I 65 483 IVc/12 p

14. FEB. 1942

An
I.G. Farbenindustrie
Akt.-Ges. Pat.-Abt.
Ludwigshafen a.Rh.

Dr. Schuster

B e s c h l u ß

Die Patentanmeldung der I.G. Farbenindustrie Aktiengesellschaft in Frankfurt am Main ist bekanntzumachen, und zwar in der Klasse 12 p, Gruppe 2 mit der Bezeichnung:

"Verfahren zur Herstellung von N-(Aminoalkyl)-pyrrolidonen."

Anmeldetag ist der 21. August 1939.

Gemäß § 2 Absatz 1 der Verordnung vom 20. Juli 1940 ist die Erklärung abgegeben worden, daß sich der Schutz auf das Protektorat Böhmen und Mähren erstrecken soll.

Die Bekanntmachung erfolgt nach Ablauf der beantragten, mit der Zustellung dieses Beschlusses beginnenden Aussetzungsfrist von d r e i [illegible]. Wegen Zahlung der Bekanntmachungsgebühr, siehe Anlage. Für die Aussetzung auf länger als d r e i Monate bedarf es einer Begründung.

Zur Auslegung sind bestimmt:
Erfindernennung, eingegangen am 18. Oktober 1941,
Beschreibung und 1 Patentanspruch, eingegangen am 18. Oktober 1941,
Erstreckungserklärung für Böhmen und Mähren, eingegangen am 30. Juli 1940.

Prüfungsstelle für Klasse 12 p.

Donle.

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH. 3672 Dr. Krzikalla

Patentabteilung

Ø Hauptlaboratorium

O.Z.11739 3. Nov. 1941

An das

Reichspatentamt, Dr.Schuster

Berlin.

Patentabt.Va. den 3. Nov.1941.

I. 65 483 IVc/12 p.

"Verfahren zur Herstellung von N-Aminoalkylpyrrolidonen".

Im Nachgang zu unserer Eingabe vom 17.Oktober ds.Js. übersenden wir mit gleicher Post die Endstoffproben nach den Beispielen 1, 2, 3 und 4 unserer oben genannten Anmeldung.

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

gez. ppa. Kleber

gez. ppa. Wiess

4 Endstoffproben (gesondert)

1 Endstoffprobenverzeichnis.

4. Nov. 1941

Durchschlag

I. G. Ludwigshafen 3673 Krzikalla

Patentabteilung

An Hauptlaboratorium.

Dr.Schuster

Ihre Zeichen	Ihre Nachricht vom	Unsere Nachricht vom	Unser Hausruf	Unsere Zeichen	Ludwigshafen a. Rh.
Dr.Schu/Ri.	16.10.1941			Pr/Vs.	den 20.10.1941.

Betreff O.Z. 11 739 - I.65 483 IVc/12 ...

3673

I. G. Ludwigshafen
Patentabteilung

An Hauptlaboratorium.

Dr. Schuster

Ihre Zeichen	Ihre Nachricht vom	Unsere Nachricht vom	Unser Hausruf	Unsere Zeichen	Ludwigshafen a. Rh.
Dr.Schu/Ri.	16.10.1941			Fr/Vs.	den 20.10.1941.

Betreff: O.Z. 11 739 - I.65 483 IVc/12 p.
Verfügung des Reichspatentamtes vom 12.Sept.1941.

Mit Ihrem Memo vom 16.Oktober ds.Js. teilen Sie uns mit, dass Sie uns die Substanzproben zu O.Z.11739, Beispiel 1, 2 und 4 übergeben. Tatsächlich sind aber nur 2 Proben an uns gelangt. Auf einem Fläschchen steht "Probe nach Beispiel 1", auf dem anderen "Probe nach Beispiel 2". Auf unsere Rückfrage wurde uns mitgeteilt, dass die Probe im ersten Fläschchen nach den Beispielen 1 und 2 hergestellt sei, während es sich bei dem zweiten Fläschchen um eine Probe nach Beispiel 3 handle. Dies kann nicht stimmen. Nach den Beispielen 1 und 2 erhält man verschiedene Substanzen. Wir nehmen nicht an, dass Sie ein Gemisch zweier Substanzen uns als Probe für das Patentamt übersandt haben. Wir bitten um umgehende Richtigstellung und Lieferung der noch fehlenden Probe.

K. 21.10

21. Okt. 1941

3674

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

Frist: 18.Oktober 1941

17. Okt. 1941 Ø Hauptlaboratorium

3674

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.

Patentabteilung

Frist: 18.Oktober 1941

17.Okt.1941 Ø Hauptlaboratorium

O.Z.11739

An das

Reichspatentamt,

Berlin.

Dr. Schuster

Patentabt.Fr/Va. den 17.Okt. 1941.

I. 65 483 IVc/12 p.

"Verfahren zur Herstellung von N-Aminoalkylpyrrolidonen".

Auf den Amtsbescheid vom 12.September 1941.

Mit den von der Prüfungsstelle vorgeschlagenen Änderungen der auszulegenden Unterlagen erklären wir uns einverstanden. In der Anlage übersenden wir zwei Reinschriften der geänderten Beschreibung. Die nach § 26 Absatz 6 des Patentgesetzes erforderliche Erklärung liegt gleichfalls bei.

Die geforderten Substanzproben gehen dem Reichspatentamt gesondert zu.

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

gez. Holdermann ppa. Kaber

Anlagen:

1 Neubeschreibung (doppelt)

1 Erfindererklärung,

Endstoffproben (gesondert),

1 Endstoffprobenverzeichnis.

17.OKT.1941

Durchschlag

3675

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.

Patentabteilung

O.Z.11739

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

O.Z.11739

I. 65 483 IVe/12 p.

19.August 1939.
17.Oktober 1941.Fr/Va.

Verfahren zur Herstellung von N-Aminoalkylpyrrolidonen.

Es wurde gefunden, dass man N-Aminoalkylpyrrolidone erhält, wenn man aliphatische γ-Oxycarbonsäurelaktone mit mindestens der äquimolekularen Menge eines aliphatischen Diamins, das mindestens eine primäre Aminogruppe enthält, bis zur Bildung von Wasser erhitzt. Dabei setzt sich hauptsächlich nur eine primäre Aminogruppe des Diamins mit einem Molekül des Laktons unter Bildung des Pyrrolidonringes um, während die zweite Aminogruppe fast unangegriffen bleibt, sodass nur wenig N,N'-Dipyrrolidone entstehen.

Als γ-Oxycarbonsäurelaktone kommen beispielsweise in Betracht γ-Oxybuttersäurelakton (γ-Butyrolakton) oder γ-Oxyvaleriansäurelakton. Geeignete aliphatische Diamine mit mindestens einer primären Aminogruppe sind beispielsweise Äthylendiamin oder Hexamethylendiamin.

Man kann die Ausgangsstoffe, gegebenenfalls in Anwesenheit von Lösungsmitteln, drucklos unter Rückflusskühlung oder auch im geschlossenen Gefäß unter Druck erhitzen. Das Mengenverhältnis der beiden Ausgangsstoffe wird dabei zweckmäßig so gewählt, dass das Diamin im Überschuss vorhanden ist, weil

Durchschlag

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

11739

weil dann die Ausbeuten an Aminoalkylpyrrolidon, bezogen auf γ-Lakton, besonders gut sind. Die günstigsten Umsetzungstemperaturen liegen im allgemeinen zwischen 200 und 300°, doch

weil dann die Ausbeuten an Aminoalkylpyrrolidinen, bezogen auf γ-Lakton, besonders gut sind. Die günstigsten Reaktionstemperaturen liegen im allgemeinen zwischen 220 und 300°, doch lassen sich vielfach auch bei unterhalb dieses Bereiches liegenden Temperaturen noch befriedigende Ausbeuten erzielen. Die Mitverwendung von wasserabspaltenden Katalysatoren ist möglich, aber nicht erforderlich. Die entstandenen Aminoverbindungen lassen sich leicht durch Destillieren oder durch Ausziehen mit Lösungsmitteln abtrennen.

γ-Aminoalkylpyrrolidinone, insbesondere die eine primäre oder sekundäre Aminogruppe enthalten, können zur Einführung des Pyrrolidonrestes in organische Verbindungen, z.B. in Farbstoffe, Textilhilfsmittel oder Weichmittel, benutzt werden.

Es ist bereits bekannt, α- oder β-Angelikalakton mit Äthylendiamin umzusetzen, jedoch bildet sich dabei kein Pyrrolidon, sondern ein Oxyharnstoffderivat, obwohl auch dort ein Mol des Laktons mit einem Mol des Diamins reagiert. Aus diesem Umsetzungsverlauf konnte nicht entnommen werden, dass die Umsetzung aliphatischer γ-Laktone mit aliphatischen Diaminen unter Ringbildung zu γ-Aminoalkylpyrrolidonen führt, wenn man die Ausgangsstoffe bis zur Bildung von Wasserabspaltung erhitzt. Es ist ferner bekannt, γ-Laktone mit aromatischen Diaminen, die die Aminogruppen in ortho- oder peri-Stellung zueinander enthalten, oder mit o-Aminobenzylamin umzusetzen. Bei diesen Umsetzungen erhält man heterocyclische Verbindungen mit 2 Stickstoffatomen in ringförmiger Bindung, die keine Aminogruppe mehr enthalten. So führt die Einwirkung von ortho- auf peri-Diaminen auf Butyrolakton oder Valerolakton zu Benzimidazolen, und

Durchschlag

die Einwirkung von Butyrolakton auf o-Aminobenzylamin zu einem Zwischenprodukt unbekannter Zusammensetzung, das durch Behandeln

die Einwirkung von Butyrolakton auf o-Aminobenzylamin zu einem Zwischenprodukt unbekannter Zusammensetzung, das durch Behandeln mit Phosphoroxychlorid in Pegen-9 übergeht. Im Gegensatz zu diesen Umsetzungen erhält man nach der Erfindung Pyrrolidone, also heterocyclische Verbindungen mit nur einem Stickstoffatom in ringförmiger Bindung, die ausserdem noch eine Aminogruppe enthalten.

Beispiel 1.

Eine Mischung aus 540 g Äthylendiamin und 258 g γ-Butyrolakton erhitzt man 8 Stunden lang in einem Druckgefäß unter Rühren auf 250°. Das dunkelbraun gefärbte Umsetzungserzeugnis wird zunächst unter gewöhnlichem Druck destilliert, um Wasser und nicht umgesetztes Äthylendiamin zu vertreiben. Durch Vakuumdestillation erhält man dann das schwach gelb gefärbte N-(2-Aminoäthyl)-pyrrolidon (Kp.$_1$ = 120-125°) in guter Ausbeute.

Als höher siedende Fraktion erhält man noch das in geringer Menge entstandene N,N'-Äthylendipyrrolidon.

Beispiel 2.

454 g Hexamethylendiamin und 172 g γ-Butyrolakton erhitzt man im Druckgefäß 8 Stunden lang auf 270°. Das erhaltene dunkelbraune Umsetzungserzeugnis wird unter vermindertem Druck destilliert, wobei man zunächst Wasser und nicht umgesetztes Hexamethylendiamin und dann bei 1 mm Druck und 135 - 145° das N-(6-Aminohexyl)-pyrrolidon erhält.

Beispiel 3.

200 g γ-Valerolakton erhitzt man mit 300 g Äthylendiamin im Druckgefäß 8 Stunden lang auf 250°. Das dunkelgelb gefärbte

Durchschlag

gefärbte Erzeugnis liefert bei der in Beispiel 1 beschriebenen Aufarbeitung in guter Ausbeute das bei 109-111° unter 1 mm Druck

gefärbte Erzeugnis liefert bei der in Beispiel 1 beschriebenen Aufarbeitung in guter Ausbeute das bei 109-111° unter 1 mm Druck siedende N-(2-Aminoäthyl)-2-methylpyrrolidon.

Beispiel 4.

172 g γ-Butyrolakton und 580 g Hexamethylendiamin werden mit 1000 g Tetrahydronaphthalin 48 Stunden lang auf 180-190° unter Rühren erhitzt. Aus dem Gemisch treibt man zunächst durch Destillation Tetrahydronaphthalin, überschüssiges Hexamethylendiamin und γ-Butyrolakton ab. Unter 0,4 mm Druck und bei 140-145° siedet dann das in befriedigender Ausbeute entstandene N-(6-Aminohexyl)-pyrrolidon.

Patentanspruch.

Verfahren zur Herstellung von N-Aminoalkylpyrrolidonen, dadurch gekennzeichnet, dass man aliphatische γ-Oxycarbonsäurelactone mit mindestens der äquimolekularen Menge eines aliphatischen Diamins, das mindestens eine freie primäre Aminogruppe enthält, bis zur Bildung von Wasser erhitzt.

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT
ppa. Klaber
ppa. Haldermann

Durchschlag

Durchschlag

3679

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

Frist: 6.August 1941

Hauptlaboratorium 5. Aug. 1941

Herrn Direktor Dr. Reppe

H. Dr. Schuster

O.Z.11739

An das

Reichspatentamt,

Berlin.

Patentabt.Fr/Va. den 5.August 1941.

I. 65 483 IVc/12 p.

"Verfahren zur Herstellung von Aminoalkyl- und Aminoaryl-N-pyrrolidonen".

Auf den Amtsbescheid vom 28.Februar 1941.

In der Anlage senden wir einen Nachtrag zur Beschreibung, der den Stand der Technik würdigt und den Anmeldungsgegenstand demgegenüber als Erfindung klarstellt. Den Hinweis auf die Verwendung von Phthalid haben wir gestrichen; die Definition der Ausgangsstoffe wurde auf aliphatische Laktone gerichtet.

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

gez. ppa. Kleber ppa. Schönberg

Anlage:

1 Nachtrag (doppelt).

6. Aug. 1941

Durchschlag

3680

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

O.Z.11739

3680

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

O.Z.11739

I.65 483 IVc/12 p.

5.August 1941.Fr/Vs.

Nachtrag.

In der Neubeschreibung vom 7.November 1940 bitten wir folgende Änderungen vorzunehmen:

Auf Seite 1, in Zeile 2 und im Patentanspruch in Zeile 2 bitten wir, vor "γ-Oxycarbonsäurelaktone" einzufügen "aliphatische". In Zeile 2 des 2.Absatzes bitten wir, vor dem letzten "γ-Oxy-" einzufügen "oder" und in Zeile 3 dieses Absatzes zu streichen "oder Phthalid".

Auf Seite 2 bitten wir vor den Beispielen folgenden Absatz einzufügen:

"Es ist bereits bekannt, α- oder β-Angelikalakton mit Äthylendiamin umzusetzen, jedoch bildet sich dabei kein Pyrrolidon, sondern ein Oxycarbonsäureamid, trotzdem auch dort ein Mol des Laktons mit einem Mol des Diamins reagiert. Aus diesem Umsetzungsverlauf konnte nicht entnommen werden, dass die Umsetzung aliphatischer γ-Laktone mit aliphatischen Diaminen unter Ringbildung zu Aminoalkyl-N-pyrrolidonen führt, wenn man die Ausgangsstoffe bis zur Bildung von Wasser miteinander erhitzt. Es ist ferner bekannt, γ-Laktone mit aromatischen Diaminen, die die Aminogruppen in ortho- oder peri-Stellung zueinander enthalten, oder mit o-Aminobenzylamin umzusetzen. Bei diesen Umsetzungen erhält man heterocyclische Verbindungen mit 2 Stickstoffatomen in ringförmiger Bindung, die keine

Aminogruppe

Durchschlag

3681

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

Aminogruppe mehr enthalten. So führt die Einwirkung von ortho- und peri-Diaminen auf Phthalid oder Valerolakton zu Benzimidazolen

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

Aminogruppe mehr enthalten. So führt die Einwirkung von ortho- und peri-Diaminen auf Phthalid oder Valerolakton zu Benzimidazolen, und die Einwirkung von Butyrolakton auf o-Aminobenzylamin zu einem Zwischenprodukt unbekannter Zusammensetzung, das durch Behandeln mit Phosphoroxychlorid in Pyren-9 übergeht. Im Gegensatz zu diesen Umsetzungen erhält man nach der Erfindung Pyrrolidone, also heterocyclische Verbindungen mit nur einem Stickstoffatom in ringförmiger Bindung, die ausserdem noch eine Aminogruppe enthalten."

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

gez. ppa. Kleber ppa. Schönberg

Durchschlag

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Durchschlag

3682

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Patent-Abteilung!

6. Juni 1941

- - - - Dr.Sohn/b 5.Juni 1941.

O.Z. 11 739 - I. 65 483 IVc/12 p.
Verfügung des Reichspatentamts vom 28.2.41.

Da die weitere Bearbeitung gezeigt hat, dass die erhaltenen Umsetzungsprodukte von Phthalid mit Äthylendiamin nicht die erwarteten Aminoalkylkörper sind, bitten wir Sie, die Erwähnung von Phthalid aus der Anmeldung zu streichen.

Die Anmeldung beschränkt sich damit auf aliphatische γ-Laktone.

Der Stand der Technik ist schon ausführlich dargelegt in dem Schreiben vom 20.2.40 und dem Schreiben an das Reichspatentamt vom 3.4.40. Es wäre vielleicht noch anzufügen, dass in C. 1918, II, 360 aus α- und β-Angelikalakton mit Äthylendiamin keine definierten Produkte erhalten werden konnten.

gez. C.Schuster
" R(eppe)

Durchschlag

3683

Berlin SW 61, den 28. Februar 1941

3688

Berlin SW 61, den 28. Februar 1941

I 15 103 IVa/ 12 p

1/159

An

I.G. Farbenindustrie

Aktiengesellschaft

in Ludwigshafen a/Rh

Hauptlaboratorium

Dr. Schuster

Zeichen: O.Z. 11739

Auf die Eingabe vom 7. November 1940.

Nachstehend wird das Ergebnis der weiteren Prüfung mit der Aufforderung mitgeteilt, binnen d r e i M o n a t e n sich zu äußern und die Mängel zu beseitigen.

Die Frist beginnt mit der Zustellung.

In der Beschreibung ist der Stand der Technik (Berichte 69, 255 – 57; Chemisches Zentralblatt 1918 II 359 f.) zu schildern und das beanspruchte Verfahren ihm gegenüber als patentfähige Erfindung klarzustellen.

Das die Umsetzung von Phthalid mit Äthylendiamin erläuternde Beispiel (vgl. hierzu besonders C 1918 II 359!) ist nunmehr einzureichen.

Prüfungsstelle für Klasse 12 p

Donle

Dr. Donle

Ze

13. März 1941

12.3.41

5000

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

Frist: 8.November 1940

Ø Hauptlaboratorium
7 Nov. 1940

O.Z.11739
An das
Reichspatentamt,
Berlin.

Dr. Schuster

Patentabt.Fr/Va. den 7. November 1940

I. 65 483 IVc/12 p.

"Verfahren zur Herstellung von Aminoalkyl- und Aminoaryl-N-pyrrolidonen".

Auf den Amtsbescheid vom 4.Juni 1940.

Wir richten den Gegenstand der vorliegenden Anmeldung auf ein Verfahren zur Herstellung von Aminoalkyl-N-pyrrolidonen. Eine dem geänderten Schutzbegehren angepasste Neubeschreibung übersenden wir in der Anlage. Die Neubeschreibung enthält auch ein Beispiel, das ohne Anwendung von Druck durchgeführt wurde. Ein Ausführungsbeispiel, das Phthalid als Lakton verwendet, ist noch in der Ausarbeitung; wir hoffen, es möglichst bald nachreichen zu können.

Es sei hierzu bemerkt, dass unserer Ansicht nach die mit Hilfe von Phthalid hergestellten Aminoalkylverbindungen als Benzpyrrolidone angesprochen werden können und daher unter den Oberbegriff des Patentanspruchs fallen.

Die nunmehr nicht mehr zum Gegenstand des Schutzbegehrens gehörende Umsetzung der γ-Laktone mit aromatischen Diaminen haben wir zum Gegenstand einer besonderen Anmeldung gemacht, die mit gleicher Post dem Reichspatentamt zugeht. Als Anmeldetag beanspruchen wir für diese Anmeldung den Eingangstag der vorliegenden Anmeldung, d.i. der 21.August 1939.

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

ppa. Braun ppa. Kleber

Anlage:
1 Neubeschreibung (doppelt).

Durchschlag

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Patent-Abteilung.

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Patent-Abteilung.

Dr.Schu/E.   12.Oktober 1940

O.Z. 11 739 - J 65 483 IVc/12p - Deutschland.
Amtsbescheid des Reichspatentamts vom 4.6. 1940.

Wir bitten Sie, die Anmeldung, wie mit Herrn Dr. FREIENSEHNER besprochen, zu teilen und den Anspruch der einen Anmeldung zu richten auf aliphatische Diamine, den der anderen auf Diamine, die nicht ortho-oder peri-Diamine, oder ortho-Aminobenzylamine und seine Derivate sind.

Ein Beispiel für das Arbeiten ohne Druck fügen wir bei:

Beispiel.

540 Gew.-Teile m-Phenylendiamin (5 Mol), 172 Gew.-Teile Butyrolakton (2 Mol) und 1000 Gew.-Teile Tetralin werden miteinander vermischt und in einem Rührkolben unter Rückfluss 48 Stunden lang auf 200 - 210° erhitzt. Man erhält eine dunkelbraune Lösung, die durch Destillation aufgearbeitet wird. Nach einem Vorlauf von Tetralin, m-Phenylendiamin und Butyrolakton geht bei 190 - 200°/0,8 mm das N-[3'-Aminophenyl]-pyrrolidon über, das durch nochmalige Destillation rein erhalten werden kann.

Ein weiteres Beispiel für die Arbeitsweise ohne Druck mit einem aliphatischen Diamin folgt noch.

ppa. [signature]

Durchschlag

3686

Reichspatentamt

Berlin SW 61, den 4. Juni 1940

3688

Reichspatentamt

Aktenzeichen: J 65 483 IVa/ 12 p

Berlin SW 61, den 4. Juni 1940

Patentbüro L... 8. JUN 1940

An
I.G. Farbenindustrie
Aktiengesellschaft
in Ludwigshafen a/Rh

Dr. Schuster

Ihr Zeichen: O.Z. 11739

Auf die Eingabe vom 3. April 1940.

Nachstehend wird das Ergebnis der weiteren Prüfung mit der Aufforderung mitgeteilt, binnen d r e i M o n a t e n sich zu äußern und die Mängel zu beseitigen.

Die Frist beginnt mit der Zustellung.

Das nach Späth und Platzer aus molaren Mengen von Aminobenzylamin und Butyrolacton zunächst durch Erhitzung auf 200° und unter Wasserabspaltung erhältliche Zwischenprodukt der Synthese von Pegen-9 dürfte wohl N-(o-Aminobenzyl)-pyrrolidon sein. Hierfür spricht neben der bei der Umsetzung erfolgenden Wasserabspaltung die Überführbarkeit des Produkts in Pegen. Ein Ringschluß erfolgt offenbar bei der ersten Verfahrensstufe nicht (sonst hätte ja die anschließende Ringkondensation mit $POCl_3$ keinen Sinn!). Es trifft demnach auch nicht zu, daß die Umsetzung des Aminobenzylamins in ihrem Ergebnis dem der Umsetzung eines o-Phenylendiamins, z.B. des o-Diaminobenzols, mit Butyrolacton entspricht; in diesem Falle wird nämlich durch einfaches Erhitzen der Ausgangsstoffe ein Ringschluß zum Benzimidazolsystem (Fünfring!) bewirkt (vgl. C 1918 II 361), während nach Späth und Platzer erst die Behandlung mit $POCl_3$, also eine im Vorliegenden völlig außerhalb der Erörterung stehende Maßnahme, zur Bildung eines Chinazolinsystems (Sechsring!) führt.

Das in den neuen Anspruch aufgenommene Definitionselement "oder ein sich wie derartige aromatische Diamine verhaltendes Diamin" trifft sonach auf Amine von der Art des o-Aminobenzylamins nicht zu und kann daher auch nicht zur Abgrenzung gegenüber der bekannten Umsetzung, die auch im Übrigen unter den Bedingungen des beanspruchten Verfahrens (äquimolare Mengen, Erhitzen auf 200°, Wasserabspaltung) arbeitet, dienen. Es ergeht

Frist 8. Sept. ... 14. Juni 1940

geht die Aufforderung, nunmehr für die erforderliche klare Abgrenzung zu sorgen, z.B. durch Beschränkung des Schutzbegehrens auf die Umsetzung aliphatischer Diamine und gegebenenfalls Ausscheidung darüber hinausgehender Teile. Es wird bemerkt, daß auch im Hinblick auf § 26, Satz 2 des Patentgesetzes und die dort geforderte Einheitlichkeit des Anmeldungsgegenstandes ein Anspruch der vorliegenden Fassung nicht gewährbar ist.

In weiteren Beispielen ist die Umsetzung von Phthalid zu erläutern. Die hierbei entstehenden Produkte können übrigens keinen perhydrierten Pyrrolring aufweisen und daher auch nicht als Pyrrolidone bezeichnet werden.

Neue Beispiele sind schließlich noch für die Umsetzung bei normalem Druck, z.B. am Rückflußkühler, einzureichen.

Prüfungsstelle für Klasse 12 p

Dr.Donle.

Ze

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

Frist: 22.April 1940

O.Z.11739

Dr.Schuster

ø Hauptlaboratorium 4.4.40

An das
Reichspatentamt,
Berlin.

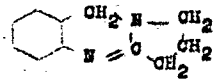
Patentabt.Pr/Va. 3.April 1940.

I. 65 483 IVc/12 p.

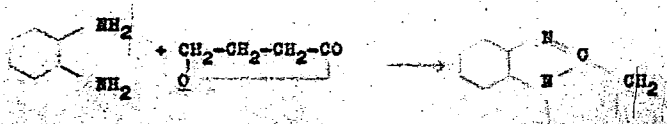
"Verfahren zur Herstellung von Aminoalkyl- und Aminoaryl-N-pyrrolidonen".

Auf den Amtsbescheid vom 17.November 1939.

Bei der von Späth und Platzer beschriebenen Umsetzung von Aminobenzylamin mit Butyrolakton entsteht kein Amino-aralkyl-N-pyrrolidon, sondern ein harzartiges Zwischenprodukt, das bei der Behandlung mit Phosphoroxychlorid in eine heterocyclische Stickstoffverbindung, das Pegen-(9)



übergeht. Das Ergebnis der bekannten Umsetzung ist also durchaus verschieden von dem des hier beanspruchten Verfahrens. Die Umsetzung des Aminobenzylamins entspricht in ihrem Ergebnis vielmehr dem der Umsetzung eines o-Phenylendiamins, z.B. des o-Diaminobenzols, mit Butyrolakton, wobei ebenfalls eine heterocyclische Stickstoffverbindung entsteht:



Derartige

Durchschlag

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

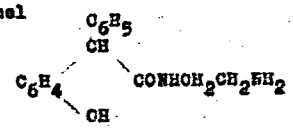
Derartige ortho-Diamine sind im Patentanspruch der Anmeldung ausdrücklich ausgenommen, weil sie andersartig reagieren.

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

Derartige ortho-Diamine sind im Patentanspruch der Anmeldung ausdrücklich ausgenommen, weil sie andersartig reagieren. Diese Ausnahme soll sich auch auf o-Aminobenzylamin erstrecken, das sich je auch sonst dem o-Diaminobenzol entsprechend verhält. Beide liefern beispielsweise mit Formaldehyd heterocyclische Stickstoffverbindungen, nämlich Chinazolin oder Benzimidazol.

In der Anlage übersenden wir einen neuen Patentanspruch der ausdrücklich auch die sich wie aromatische ortho-Diamine verhaltenden Diamine vom Schutzbegehren ausschließt.

Die zweite von der Prüfungsstelle angeführte Literaturstelle (Centralblatt 1918, II, 359) beschreibt zwar die Einwirkung eines Laktons auf Äthylendiamin, jedoch ist auch dort das Ergebnis von dem der hier beanspruchten Umsetzung verschieden. Für die Umsetzungserzeugnisse aus 1 Mol Äthylendiamin und 1 Mol des Laktons wird auf Seite 360 unter XVIII die Formel



angegeben. Ganz eindeutig ist diese Verbindung kein Pyrrolidon. Der Grund für das verschiedene Ergebnis bei dem Verfahren der Erfindung ist, dass hier die Umsetzung bei solchen Temperaturen durchgeführt wird, dass Wasser gebildet wird. (Vgl. die Beispiele der Anmeldung, aus denen die Entstehung des Wassers klar hervorgeht). Dieses kennzeichnende Merkmal ist auch in dem neuen Patentanspruch berücksichtigt worden.

Es ergibt sich, dass das angemeldete Verfahren in der entgegengehaltenen Literatur nicht beschrieben und auch nicht nahegelegt war, dass also ein neues und auch patentfähiges Verfahren vorliegt.

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

gez. ppa. Schönberg ppa. Kleber

Anlage:
1 neuer Patentanspruch
(doppelt).

Durchschlag

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

O.Z.11739

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

O.Z.11739

I. 65 483 IVe/12 p.

3.April 1940. Fr/Ve.

N a c h t r a g :

Neuer Patentanspruch:

"Verfahren zur Herstellung von Aminoalkyl- und Aminoaryl-N-pyrrolidonen, dadurch gekennzeichnet, dass man γ-Oxycarbonsäurelaktone bis zur Bildung von Wasser mit mindestens der Aequimolekularen Menge eines solchen aliphatischen oder aromatischen Diamins erhitzt, das mindestens eine freie primäre Aminogruppe enthält und kein aromatisches ortho- oder peri-Diamin mit zwei primären Aminogruppen oder ein sich wie derartige aromatische Diamine verhaltendes Diamin ist."

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT
gez. ppa. Schönberg ppa. Kleber

Doppelt.

Durchschlag

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Patentabteilung FEB.1940

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

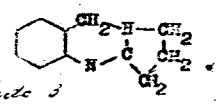
Patentabteilung
26. Feb. 1940

Dr. Schu/Ri. 20. Februar 1940

O.Z. 11 739 - J.65 483 IVc/12 p.
Verfügung des Reichspatentamtes vom 17. November 1939.

Zu der obigen Verfügung bemerken wir folgendes:

In Ber. 69 255 wird von Späth u. Platzer beschrieben, wie o-Aminobenzylamin mit Butyrolakton durch Erhitzen zu einem harzigen Zwischenprodukt umgesetzt wurde, das mit Phosphoroxychlorid behandelt in Pegen-(9) übergeht



* siehe Seite 3

Ein Aminoalkyl- oder Aminoaryl-N-pyrrolidon wurde dort nur erhalten, wenn o-Nitrobenzylchlorid mit Pyrrolidon kondensiert und reduziert wurde, also nach einer von unserer gänzlich verschiedenen Arbeitsweise. Demgegenüber werden nach Beispiel 3 und 5 unserer Anmeldung Amino-aryl-pyrrolidone in einem Arbeitsgang in guter Ausbeute erhalten.

In der C. 1918 II, 559, wiedergegebenen Arbeit von Bistrzycky und Schmitz ist zwar in einem Fall beim Umsatz von 1 Mol Äthylendiamin mit 1 Mol eines Laktons eine Verbindung mit einer freien Aminogruppe des Diamins erhalten worden;

- 2 -

Durchschlag

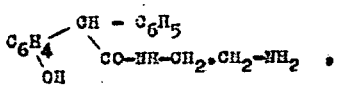
I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

An Patentabteilung. 20.2.40. 2
Dr. Schu/Ri.

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

An Patentabteilung. 20.2.40. 2
Dr.Schu/Ri.

das N-(2-Oxy-diphenylacetyl) ~~naphtylen~~-diamin



Diese Verbindung liess sich aber nicht durch Wasserabspaltung in das Pyrrolidon überführen, vielmehr spaltete sie beim Erhitzen wieder Äthylendiamin ab. Aus dieser Angabe konnte also keineswegs der Schluss gezogen werden, dass die Herstellung der Amino-alkyl und Aminoaryl-N-pyrrolidone unter den von uns beschriebenen Bedingungen leicht und in guter Ausbeute gelingt.

ges. Schuster
Ri.

Durchschlag

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

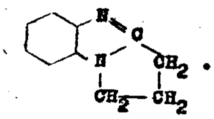
Einfügung für Seite 1 / Memo an Patentabtlg. 24.2.40
Dr.Schu/Ri.

3693

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Einfügung für Seite 1 / Memo an Patentabtlg. 24.2.40
Dr. Schu/Ri.

Das o-Aminobenzylamin verhält sich hier ganz entsprechend dem o-Phenylendiamin, es bildet mit Butyrolakton ein Derivat des Benzopyrimidins oder des Chinazolins, während das o-Phenylendiamin unter den gleichen Bedingungen mit Butyrolakton unter Bildung des entsprechenden Derivates des Benzimidazols reagiert:



Das o-Aminobenzylamin verhält sich auch sonst ganz ähnlich dem o-Phenylendiamin, z.B. bildet es mit Formaldehyd ~~xxxxxxBildung~~ dem Chinazolinringes ganz ähnlich wie das o-Phenylendiamin mit Formaldehyd unter Ringschluss zum Benzimidazolderivat reagiert.

Das o-Aminobenzylamin zählt also zu den Aminen, die in unserem Anspruch ausgenommen sind, und wäre durch entsprechende Fassung einzubeziehen.

Durchschlag

3694

Reichspatentamt

Berlin SW 61, den 17. November 1939
Gitschiner Straße 97-103

Aktenzeichen: J 65 483 IVc/ 12 p

An

[illegible] 22 NOV 1939 3694

Reichspatentamt

Berlin SW 61, den 17. November 1939
Gitschiner Straße 97-103
Fernsprecher: 17 48 21

Aktenzeichen: J 65 483 IVc/ 12 p

Anmelder:

Vorstehende Angaben sind bei allen Eingaben und Zahlungen erforderlich.

Reichsbank-Girokonto, Postscheckkonto: Nr. 2 Berlin, Bankkonto: 20073 bei der Brandenburgischen Provinzialbank und Girozentrale, Berlin.

Ihr Zeichen: O.Z. 11739

An
I.G. Farbenindustrie
Aktiengesellschaft
in Ludwigshafen a/Rh

Dr. Schuster

Referent: Herr Dr. [illegible]

Kanzlei u. Prüfung: [illegible]

[illegible] 24.11.39

In Sachen der Patentanmeldung, betreffend "Verfahren zur Herstellung von Aminoalkyl- und Aminoaryl-N-pyrrolidonen", eingegangen am 21. August 1939.

Nachstehend wird das Ergebnis der in Klasse 12 p durchgeführten Prüfung mit der Aufforderung mitgeteilt, binnen d r e i M o n a t e n sich zu äußern.

Die Umsetzung eines γ-Oxycarbonsäurelactons, nämlich des γ-Butyrolactons, mit der äquimolekularen Menge eines Diamins, das freie primäre Aminogruppen enthält und kein aromatisches ortho- oder peri-Diamin mit zwei primären Aminogruppen ist, nämlich das o-Aminobenzylamins, ist aus den Berichten der Deutschen Chemischen Gesellschaft 69, 255 - 257, die Umsetzung von γ-Lactonen mit u.a. Äthylendiamin aus dem Chemischen Zentralblatt 1918 II 359 ff. bekannt.

Demgegenüber scheint keine patentfähige Erfindung vorzuliegen.

Äußerung bis spätestens 22.2.40

Prüfungsstelle für Klasse 12 p.

Dr. Donle

Ze

[illegible] kannte und sachliche Äußerung [illegible] können wir die Verantwortung [illegible] und gründliche Erledigung [illegible] übernehmen.

[illegible]

Patentabteilung

[illegible] Die sachliche Äußerung auf diesen Bescheid ist nur in einfacher Ausfertigung einzureichen; für neue Unterlagen (Beschreibung, Ansprüche, Zeichnungen) sind dagegen 2 Ausfertigungen erforderlich.
[illegible] Die in diesem Bescheide gesetzte Frist beginnt mit der Zustellung.
[illegible] Anträge auf Verlängerung dieser Frist können nur bei ausreichender [illegible] möglichst durch die Beibringung von Belegen gestützter Begründung bewilligt werden (s. Bekanntmachung, betr. Gewährung von Fristen im Patenterteilungsverfahren vom 19. Januar 1935, abgedruckt im Blatt für Patent-, Muster- und Zeichenwesen 1935, Seite 6).

[illegible] 1939. 5000

22. Febr. 40

...möglich durch die Beibringung von Belegen geeigneter Begründung ... werden (s. Bekanntmachung, betr. Gewährung von Fristen im ...erteilungsverfahren vom 18. Januar 1938, abgedruckt im Blatt ... Zeichenwesen 1938, Seite 6).

22. Febr. 40

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

Unser Zeichen: O.Z. ...

Ludwigshafen a. Rhein, den 15. August 19..
Pr...

Verfahren zur Herstellung
Aminoalkyl- und Aminoaryl-N-pyrrolidone.

Es wurde gefunden, dass man Aminoalkyl- und Aminoaryl-N-pyrrolidone erhält, wenn man γ-Oxycarbonsäurelakton mit mindestens der äquimolekularen Menge eines aliphatischen oder aromatischen Diamins, das mindestens eine primäre Aminogruppe enthält, erhitzt. Dabei setzt sich hauptsächlich nur eine primäre Aminogruppe des Diamins mit einem Molekül des Laktons unter Bildung des Pyrrolidonrings um, während die zweite Aminogruppe fast unangegriffen bleibt, sodass nur wenig N,N'-Di-pyrrolidone entsteht.

Als γ-Oxycarbonsäurelaktone kommen beispielsweise in Betracht γ-Oxybuttersäurelakton (γ-Butyrolakton), γ-Oxyvaleriansäurelakton oder Phthalid. Während man aliphatische Diamine mit mindestens einer primären Aminogruppe, z.B. Äthylendiamin oder Hexamethylendiamin, ohne Einschränkung benutzen kann, eignen sich von den aromatischen Diaminen mit zwei primären Aminogruppen nur solche, in denen, wie im 1,3- oder 1,4-Diaminobenzol oder 1,5-Diaminonaphthalin, die beiden Aminogruppen nicht in ortho-

461 oder

369

oder peri-Stellung zueinander ste..

Man kann die Ausgangsstoffe, gegebenenfalls in A.. wesenheit von Losungsmitteln, drucklos unter Ruckflusskuhlun. oder auch im geschlossenen Gefaß unter Druck erhitzen. Da Mengenverhaltnis der beiden Ausgangsstoffe wird dabei zweck.. mäßig so gewahlt, dass das Diamin im Uberschuss vorhanden ist, weil dann die Ausbeuten an Aminoalkyl- oder Arylpyrrolido. bezogen auf γ-Lakton, besonders gut sind. Die gunstigsten Um.. setzungstemperaturen liegen im allgemeinen zwischen 200 und 300° doch lassen sich vielfach auch bei ausserhalb dieses Bereich. liegenden Temperaturen noch befriedigende Ausbeuten erziele.. Die Mitverwendung von wasserabspaltenden Katalysatoren ist möglich, aber nicht erforderlich. Die entstandenen Aminove.. bindungen lassen sich leicht durch Destillieren oder durch Ausziehen mit Losungsmitteln abtrenne.

Aminoalkyl- oder -aryl-N-pyrrolidone, insbesondere die eine primäre oder sekundare Aminogruppe enthaltenden, konne zur Einführung des Pyrrolidonrestes in organische Verbindunge.. z.B. in Farbstoffe, Textilhilfsmittel oder Heilmittel benutzt werden.

Beispiel.

Eine Mischung aus 540 g Athylendiamin und 200 γ-Butyrolakton erhitzt man 8 Stunden lang in einem Druckgefa. unter Rühren auf 250°. Das dunkelbraun gefärbte Umsetzungs.. erzeugnis wird zunächst unter gewöhnlichem Druck destilliert um Wasser und nicht umgesetztes Athylendiamin zu vertreiben.

Durch

Durch Vakuumdestillation erhalt man dann das schwach gelb ge..

Durch Vakuumdestillation erhält man dann das schwach gelb gefärbte N-(ß-Aminoäthyl)-pyrrolidon [illegible] = 120-12[illegible] guter Ausbe[illegible]

Als höher siedende Fraktion erhält man noch da[illegible] in geringer Menge entstandene N,N'-Äthylendipyrrolid[illegible]

Beis[illegible]

464 g Hexamethylendiamin und 17[illegible] g γ-Butyrolakto[illegible] erhitzt man im Druckgefäß 8 Stunden lang auf 270°. Das erhaltene dunkelbraune Umsetzungserzeugnis wird unter verminderten Druc[illegible] destilliert, wobei man zunächst Wasser und nicht umgesetzte Hexamethylendiamin und dann bei [illegible] mm Druck und 135-14[illegible] da[illegible] N-(ß-Aminohexyl)-pyrrolidon erh[illegible]

Beispi[illegible]

490 g 1,3-Diaminobenzol erhitzt man mit 258 g γ-Butyrolakton 8 Stunden lang im Druckgefäß auf 300°. Man erhält ei[illegible] bei Zimmertemperatur festes braunes Erzeugnis. Bei der Reinigung durch Vakuumdestillation erhält man das N-(3')-Aminophenyl-pyrrolidon in guter Ausbeute. Es siedet bei [illegible] mm Druck be[illegible] 200 - 215° und schmilzt bei 10[illegible] - 1[illegible]

Beispie[illegible]

200 g γ-Valerolakton erhitzt man mit 300 g Äthylendiamin im Druckgefäß 8 Stunden lang auf 250°. Das dunkelgelb gefärbte Erzeugnis liefert bei der in Beispiel 1 beschriebenen Aufarbeitung in guter Ausbeute das bei 109-111° unter [illegible] mm Druck siedende N-(ß-Aminoäthyl)-2-methylpyrrolidon.

Beispiel 5

369

Beis[illegible]

Eine Mischung von 48[illegible] g 1,3-Diaminobenzol, 25[illegible] γ-Butyrolakton und 220 g Xylol erhitzt man im Druckgefä[illegible] 8 Stunden lang auf 270°. Das flüssige dunkelbraune Umsetzungserzeugnis wird destilliert, wobei man nach dem Entfernen des Wassers, Xylols und 1,3-Diaminobenzols das im Beispiel [illegible] beschriebene N-(3'-Aminophenyl)-pyrrolidon in guter Ausbeute erhält.

Patentanspru[illegible]

Verfahren zur Herstellung von Aminoalkyl- und Aminoaryl-N-pyrrolidonen, dadurch gekennzeichnet, dass man γ-Oxycarbonsäurelaktone mit mindestens der aequimolekularen Menge eines aliphatischen oder aromatischen Diamins erhitzt, die mindestens eine freie primäre Aminogruppe enthält und bei aromatisches ortho- oder peri-Diamin mit zwei primären Aminogruppen [illegible].

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

3699

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Patent-Abteilung.

3699

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Patent-Abteilung.

Fr/Va. 8.8.39. Dr. Schu/fr. 10. August 1939.

Neuanmeldung Nr. 461.
"V.z.H. von Aminoalkyl- bzw. Aminoaryl-N-pyrrolidonen".

Die nach der Neuanmeldung zugänglichen Amino-alkyl- und Amino-arylpyrrolidone sind wertvoll, weil sie es möglich machen, durch Umsetzung mit Halogenverbindungen den Alkyl- oder Arylpyrrolidonrest in Farbstoffkomponenten oder andere Stoffe einzuführen. Auf diese Weise ist es möglich, die für die Löslichkeit günstige Wirkung des Pyrrolidons in Farbstoffen auszunutzen. Während z.B. α-Anthrachinonyl-N-pyrrolidonekein Ziehvermögen auf Acetatseide hat, ist dies bei dem aus α-Halogenanthrachinon und Amino-äthyl-pyrrolidon erhaltenen Produkt der Fall.

Wegen der in dem zweiten Absatz Ihres Schreibens angeschnittenen Frage, bitten wir, in O.Z. 10921 in der deutschen und soweit möglich in den Auslandsanmeldungen die Diamine zu streichen.

Durchschlag

1057-20M-339

3700

I. G. Ludwigshafe
Patentabteil

An Hauptlaboratorium

3700

I. G. Ludwigshafen
Patentabteilung

An Hauptlaboratorium

Ihre Zeichen	Ihre Nachricht vom	Unsere Zeichen	Tag
Dr.Schu/E.	2.8.39	Fr.	3. August 1939.

Betreff Ihre Neuanmeldung Nr. ...
"Verfahren zur Herstellung von Aminoalkyl- bzw. Aminoaryl-N-pyrrolidone.

Die Umsetzung von Aminen mit Butyrolakton durch Erhitzen unter Druck ist grundsätzlich aus den Berichten der Deutschen Chemischen Gesellschaft, Band 69, Seite 2727, bekannt geworden. Die Anwendung dieser bekannten Umsetzung auf primäre Amine einer bestimmten Klasse muss daher als Analogieverfahren betrachtet werden und kann nur patentfähig sein, wenn sich für die aminosubstituierten Alkyl- oder Aryl-N-pyrrolidone nachweisen lässt, dass sie für irgendeinen Zweck besser geeignet sind als bisher für diesen Zweck verwendete Stoffe. Wir bitten Sie uns mitzuteilen, womit wir die Patentfähigkeit der Anmeldung begründen solle.

Wir weisen ferner darauf hin, dass die Umsetzung von primären Aminen mit Butyrolakton durch Leiten über wasserabspaltende Katalysatoren bereits durch Ihre Anmeldung C.Z.10921 unter Schutz gestellt ist. In dieser Anmeldung sind auch aliphatische Diamine als Ausgangsstoffe erwähnt, sodass die Herstellung aminosubstituierter Alkylpyrrolidone im Rahmen der vorliegenden Neuanmeldung überhaupt nicht mehr patentiert werden kann.

Wir bitten um Ihre Stellungnahme.

3. AUG. 1939

3701

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium
Patent-Abteilung.

3. Aug. 1939

Dr.Schu/E. 2. August 1939

Neuanmeldung.

3701

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Patent-Abteilung.

3. Aug. 1939

Dr.Schu/E. 2. August 1939

Neuanmeldung.

Wir überreichen Ihnen in der Anlage den Entwurf einer Neuanmeldung:

"Verfahren zur Herstellung von Aminoalkyl- bzw. Aminoaryl-N-pyrrolidonen"

zur gefl. weiteren Bearbeitung.

Anlage!

Dr. E. Schuster
Chr. Kalla

Durchschlag

3702

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Ludwigshafen a.Rh., den 2. 8. 1939
Dr.Schu/E.

Verfahren zur Herstellung von Aminoalkyl- bzw. Aminoaryl-N-pyrrolidonen.

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Ludwigshafen a.Rh., den 2. 8. 1939
Dr.Schu/E.

Verfahren zur Herstellung von Aminoalkyl- bzw. Aminoaryl-N-pyrrolidonen.

Es wurde gefunden, dass man Aminoalkyl- bzw. Aminoaryl-N-pyrrolidone erhalten kann, wenn man ein γ-Oxysäurelakton mit einem aliphatischen oder aromatischen Diamin (mit Ausnahme der aromatischen 1.2-Diamine und des 1.8-Naphthylendiamins) mit zwei freien primären Aminogruppen bei erhöhter Temperatur zur Reaktion bringt. Dabei reagiert vorzugsweise nur eine Aminogruppe des Diamins mit einem Mol Lakton unter Bildung des Pyrrolidons, während die zweite Aminogruppe unangegriffen bleibt. Nur in geringer Menge entsteht auch das N.N'-Dipyrrolidon.

Als γ-Oxysäurelaktone kommen für diese Reaktion in Betracht γ-Oxybuttersäurelakton (Butyrolakton), γ-Oxyvalerolakton, Phthalid u.s.w. Als Diamine können angewendet werden alle aliphatischen und aromatischen Diamine mit zwei freien Aminogruppen, mit den oben schon erwähnten Ausnahmen der aromatischen o- und peri-Diamine also z.B. Äthylendiamin, Hexamethylendiamin, m- und p-Phenylendiamin, 1.5-Naphthylendiamin. Man arbeitet zweckmässig so, dass man die beiden Komponenten entweder in einem offenen Gefäss unter Rückflusskühlung oder in einer geschlossenen Apparatur zusammen erhitzt. Das Mengenverhältnis der beiden Komponenten wird dabei so gewählt, dass stets ein mehr oder weniger grosser Überschuss der Aminkomponente vorhanden ist. Je grösser dieser Überschuss ist, desto besser ist im allge-

-/-

Durchschlag

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

meinen die Ausbeute an dem gewünschten Produkt. Man kann auch unter Zusatz eines indifferenten

meinen die Ausbeute an dem gewünschten Produkt. Man kann auch unter Zusatz eines indifferenten Lösungs- oder Verdünnungsmittels z.B. Toluol oder Xylol arbeiten. Die günstigste Reaktionstemperatur liegt zwischen 200 und 300°, doch können unter Umständen auch höhere oder tiefere Temperaturen noch angewendet werden. Die Abtrennung der gesuchten Aminoverbindungen gelingt leicht durch Destillation bzw. durch Behandeln mit Lösungsmitteln. Die erhaltenen Produkte sind infolge der in ihnen noch vorhandenen freien Aminogruppen zu mannigfachen Umsetzungen befähigt und daher für die verschiedensten Zwecke der chemischen Technik z.B. für Farbstoffe, Textilhilfsmittel, Pharmazeutika von grossem Wert.

Beispiel 1.

540 g Äthylendiamin (9 Mol und 258 g Butyrolakton (3 Mol) werden miteinander vermischt und in einem druckfesten Gefäss unter Rühren auf 250° während 8 Stunden erhitzt. Man erhält ein dunkelbraun gefärbtes Reaktionsprodukt, das durch Destillation aufgearbeitet wird. Nach einem Vorlauf von Wasser und dem nicht umgesetzten Äthylendiamin erhält man durch Vakuumdestillation das schwach gelbgefärbte N-β-Aminoäthylpyrrolidon in guter Ausbeute, Kp. des N-β-Aminoäthylpyrrolidon 120 - 125°/1 mm.

Als Nachlauf erhält man das in geringer Menge entstandene N-N'-Äthylendipyrrolidon.

-/-

Durchschlag

Beispiel 2.

464 g Hexamethylendiamin (4 Mol) und 172

Beispiel 2.

464 g Hexamethylendiamin (4 Mol) und 172 g Butyrolakton werden im druckfesten Gefäss 8 Stunden auf 270° erhitzt. Das erhaltene dunkelbraune Reaktionsprodukt wird im Vakuum destilliert. Nach einem Vorlauf von Wasser und nicht umgesetztem Hexamethylendiamin geht das 1-Amino-6-N-pyrrolidon-n-hexan bei 135 - 145°/1 mm über.

Beispiel 3.

490 g m-Phenylendiamin (4,5 Mol) und 258 g Butyrolakton (3 Mol) werden 8 Stunden lang im Druckgefäss auf 300° erhitzt. Man erhält ein bei Zimmertemperatur festes braunes Produkt das durch Destillation aufgearbeitet wird. Die Fraktion, die zwischen 200 - 215°/1 mm abdestilliert, ist das gesuchte N[3'-Amino-phenyl]-pyrrolidon. F. 103 - 104°.

Beispiel 4.

200 g β-Valerolakton (2 Mol) und 300 g Äthylendiamin (5 Mol) werden im druckfesten Gefäss 8 Stunden auf 250° erhitzt. Das dunkelgelb gefärbte Reaktionsprodukt enthält in guter Ausbeute das bei 109 - 111°/1 mm siedende N-β-Aminoäthyl-2-methyl-pyrrolidon.

Beispiel 5.

486 g m-Phenylendiamin (4,5 Mol), 258 g Butyrolakton, 220 g

-/-

Durchschlag

Xylol werden im druckfesten Gefäss 8 Stunden auf 270° erhitzt. Das flüssige dunkelbraune Reaktions-

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Xylol werden im druckfesten Gefäss 8 Stunden auf 270° erhitzt. Das flüssige dunkelbraune Reaktionsprodukt wird destilliert. Nach Entfernung von Wasser, Xylol und m-Phenylendiamin erhält man wie im Beispiel 5 beschrieben das N-[3'-Aminophenyl]-pyrrolidon in guter Ausbeute.

Patentanspruch.

Verfahren zur Herstellung von Aminoalkyl- bzw. Aminoaryl-N-pyrrolidon, dadurch gekennzeichnet, dass man γ-Oxysäurelakton mit einem aliphatischen oder aromatischen Diamin, ausgenommen die aromatischen o- und peri-Diamine mit zwei freien primären Aminogruppen bei erhöhter Temperatur zur Reaktion bringt.

Durchschlag

Beispiel 1. 540 g Äthylendiamin 9 Mol

Beispiel 1.

540 g Äthylendiamin 9 Mol
258 g Butyrolacton 3 Mol

werden miteinander vermischt und in einem druckfesten Gefäß ~~geschlossen~~ unter Rühren auf 250° ~~...~~ während 8 Stunden erhitzt. Man erhält ein dunkelbraun gefärbtes Reaktionsprodukt, das durch Destillation aufgearbeitet wird. Nach einem Vorlauf von Wasser und dem nicht umgesetzten Äthylendiamin ~~wird das N-β-Aminoäthylpyrrolidon im Vakuum abdestilliert~~ erhält man durch Vakuumdestillation das schwachgelbgefärbte N-β-Aminoäthylpyrrolidon in guter Ausbeute. Kp. des N-β-Aminoäthylpyrrolidon 130-135° 1 mm

Als Nachlauf erhält man das in geringer Menge entstandene N-N'-Äthylendipyrrolidon.

Beispiel 2.

464 g Hexamethylendiamin 4 Mol
172 g Butyrolacton

werden im druckfesten Gefäß 8 Stunden auf 270° erhitzt. Das erhaltene dunkelbraune Reaktionsprodukt wird im Vakuum destilliert. Nach einem Vorlauf von Wasser und nicht umgesetztem Hexamethylendiamin geht das 1-Amino-6-N-pyrrolidon-n-hexan bei 135-145° 1 mm über.

~~Als Nachlauf erhält man~~

Beispiel 3.

490 g m-Phenylendiamin 4,5 Mol
258 g Butyrolacton 3 Mol

~~Als Abspaltung erhält man~~

Beispiel 3.
490 g m-Phenylendiamin 4,5 Mol
258 g Butyrolakton 3 Mol

~~Die beiden~~ werden 8 Stunden lang im Druckgefäß auf 300° erhitzt. ~~Das erhaltene~~ Man erhält ein bei Zimmertemperatur festes braunes Produkt, das durch Destillation aufgearbeitet wird. Die Fraktion, die zwischen 200–215°/1 mm abdestilliert, ist das gesuchte N-[3'-Aminophenyl]-pyrrolidon. F. 103–104°

Beispiel 4
200 g γ-Valerolakton 2 Mol
300 g Äthylendiamin 5 Mol

werden im druckfesten Gefäß 8 Stunden auf 250° erhitzt. Das dunkelgelb gefärbte Reaktionsprodukt enthielt in guter Ausbeute das bei 109–111° / 1 mm siedende

N-β-Aminoäthyl-2-methyl-pyrrolidon

Beispiel 5
486 g m-Phenylendiamin 4,5 Mol
258 g Butyrolakton
220 g Xylol

werden im druckfesten Gefäß 8 Stunden auf 270° erhitzt.

durch Destillation,
Das flüssige Reaktionsprodukt ... [illegible]

3708

oder [illegible],
Das flüssige Reaktionsprodukt [illegible]
[illegible] ~~[illegible]~~ [illegible] Wasser, [illegible] mit
[illegible] Phenylendiamin ~~[illegible]~~ [illegible] Beispiel
3 beschrieben [illegible] Aminophenyl [illegible] produ-
den in guter Ausbeute.

TITLE PAGE

11748
Aug. 1939 - Nov. 1942 Bindemittel fuer Anstrichmittel, Spachtelmassen und Kitte.
Binding agents for coatings, cements and putties.

Frame Nos. 3709 - 3730

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

3709

Ø Hauptlabor.

3709

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

Ø Hauptlabor.
30. Nov. 1942

An das
Reichspatentamt, Ing. Lenizchek
Berlin.

30.11.1942 St/Sp

I. 65 519 IVo/22 g - O.Z. 11748.
Bindemittel f.Anstrichmittel, Spachtelmassen und Kitte; Zus.z.I.61 358 IVo/22 g.
Bescheid vom 23. September 1942.

Mit der vorgeschlagenen Fassung der Anmeldung sind wir einverstanden. Anliegend senden wir die amtlichen Unterlagen unverändert zurück.

Die Erfindererklärung liegt bei.

Dem Bekanntmachungsbeschluss wird nunmehr entgegengesehen.

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT
gez. Holdermann ppa. Kleber

2 Anlagen.

Durchschlag 1. Dez. 1942

11748 H. K.

3710

Reichspatentamt

Berlin SW 61, den 23. September 1942.
Gitschiner Straße 97-103
Fernsprecher 17 65 81

Aktenzeichen: J 65 519 IVo/22 g

Anmelder: I.G. Farben..

An
I.G. Farbenindustrie A.G.
Pat. Abtl.

22. OKT. 1942

11 748 H. h.

3710

Reichspatentamt

Berlin SW 61, den 23. September 1942.
Gitschiner Straße 97-103
Fernsprecher: 17 46 21

Aktenzeichen: J 65 519 IVo/22 g.

Anmelder: I.G.Farben..

Vorstehende Angaben sind bei allen Eingaben und Zahlungen erforderlich.

Reichsbank-Girokonto 1/160.
Postscheckkonto: Nr. 2 Berlin.
Bankkonto: 20 73 bei der Brandenburgischen Provinzialbank und Girozentrale, Berlin.

An
22. OKT. 1942
I.G.Farbenindustrie A.G.
Pat.Abtl.
in Ludwigshafen a.Rh.

Hauptlaboratorium

Ihr Zeichen: 11 748

Ing. Benischek

An Referent Herrn Dr. z. Kenntnis u. Prüfung. Unterschr. d. Ref.

24/10

Auf die Eingabe vom 15.Mai 1942 und Anschluß an die Beschwerdeentscheidung vom 27.Mai 1942.

Auf Grund der weiteren Prüfung kann die Bekanntmachung der Anmeldung nach § 30 des Patentgesetzes in Aussicht gestellt werden.

Für die auszulegenden Unterlagen wird die aus der Anlage ersichtliche Fassung vorgeschlagen. Mit den Änderungen wolle sich die Anmelderin

binnen z w e i Monaten

einverstanden erklären und entweder die Anlage unverändert zurückgeben oder zwei Reinschriften der hier alsdann entbehrlichen Anlage einreichen.- Falls Reinschriften nicht eingereicht werden, wird zur öffentlichen Auslegung das die Änderungen als solche enthaltende Stück benutzt werden, wodurch auch die geänderten Stellen für jedermann erkennbar werden.

Kann das Einverständnis nicht ausgesprochen werden, so ist der Widerspruch eingehend zu begründen.

Im Falle des Einverständnisses hat die Anmelderin die nach § 26, Absatz 6 des Patentgesetzes erforderlichen Erklärungen binnen obiger Frist abzugeben.

Patentamtliche Kosten entstehen dadurch nicht.

Erfolgt die Abgabe der Erklärungen nicht oder unvollständig, so kann die Anmeldung nicht bekanntgemacht werden und es ist mit ihrer Zurückweisung zu rechnen.

Die Frist beginnt mit der Zustellung.

Prüfungsstelle für Klasse 22 g.

Dr. Schreiber.

Klg.

24. Nov. 1942

Patentabteilung 24.11.42

Falls bis dahin eine schriftliche Äußerung nicht vorliegt, können wir die Verantwortung für eine rechtzeitige und gründliche Erledigung nicht übernehmen.

G.D.G.
Einschreiben
Mai.Pat.45
7.1942.80000

15.5.42

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

15.5.42

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

LUDWIGSHAFEN A. RH.

den 26. August 1939.
15. [illegible]ai 1942.

[illegible] Anstrichmittel, [illegible]pachtelmassen und Kitte.

[illegible] Patent ... ... (Anm. I 61 358 IVc/22g)

[illegible] Patents ... ... (Anmeldung I 61 358 IVc/22g)
[illegible] für Anstrichmittel, Spachtelmassen und Kitte, [illegible] von wasserunlöslichen, hoch- [illegible] filmbildenden Stoffen, die Alkali-Seifen natürlicher [illegible] Kohlenwasserstofföle [illegible] oder undestillierbaren Rückstände [illegible] sein.

[illegible] gefunden, dass auch solche Bindemittel für [illegible] Spachtelmassen und Kitte ausgezeichnete Eigen- [illegible], die statt der trocknenden Kohlenwasserstoff- [illegible] Kondensationsprodukte aliphatischer [illegible]. Solche ölartigen, trocknenden Kondensations- [illegible] aliphatischer Aldehyde sind beispielsweise solche, die [illegible] Patents 639 430 oder durch Kondensation [illegible] in Gegenwart sekundärer Alkyl- oder [illegible] ihrer Salze als Katalysatoren, Abtrennen der [illegible] Fraktion und weitere Kondensation [illegible] mittels Alkalien erhältlich sind.

[illegible] Hochpolymere organische Stoffe [illegible] genannten Stoffe verwendet ~~werden. [illegible]~~ [illegible]

[illegible] Bindemittel verleihen den Anstrichmitteln, [illegible] und Kitten die gleichen Eigenschaften wie die im

Hauptpatent beschriebenen Bindemittel. Sie können auch in der gleichen Weise hergestellt und mit den gleichen Zusätzen versehen werden wie im Hauptpatent angegeben.

Beispiel.

Eine wässrige Dispersion eines Mischpolymerisats aus 7,14 Teilen Isohexylsäurevinylester, 4,08 Teilen Vinylchlorid und 4,08 Teilen Acrylsäureäthylester in 66,7 Teilen Wasser wird mit 41,4 Teilen Harzseife (die auf 100 Teile Wasser 36 Teile Kolophonium und 4 Teile Natriumhydroxyd enthält) und 41,4 Teilen Wasser vermischt und dann mit 110,4 Teilen des nach Beispiel 3 des Patents 609 431 durch Kondensation von Crotonaldehyd in an sich bekannter geringer Menge Methylvinylketon mittels Alkali erhaltenen trocknenden Öls, 110,4 Teilen einer 50-prozentigen Lösung eines Bleimangantrockenstoffs in Benzol, 5,4 Teilen Leinölfettsäure, 165,8 Teilen eines Gemischs von mono- und dicyclischen Terpenen und 110,4 Teilen Methylcyclohexanol versetzt. Die Mischung wird dann mit 331,8 Teilen Titandioxyd in einer Farbreibmühle oder auf einem Walzenstuhl zu einer streichfertigen Anstrichfarbe verrieben. Das so erhaltene Anstrichmittel läßt sich wie eine Ölfarbe verarbeiten, zeigt gute Deckkraft, guten Verlauf, trocknet rasch und hart auf und liefert Überzüge von hohem Glanz.

Patentanspruch.

Bindemittel für Anstrichmittel, Spachtelmassen und Kitte gemäß Patent ... ... (Anmeldung I 61 358 IVc/22g), dadurch gekennzeichnet, daß sie Anteile von trocknenden Kohlenwasserstoffen teilweise, trocknende Kondensationsprodukte aliphatischer Aldehyde enthalten.

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

ppa.

11748 72

3718

Reichspatentamt

Berlin SW 61, den 27. Mai 1942
Gitschiner Straße 97-103
Fernsprecher: 17 48 ...

Aktenzeichen: J 65 519 IVc/22g
Anmelder: - 9. B. 15/40

Vorstehende Angaben sind bei allen Eingaben und Zahlungen erforderlich.

Reichsbank-Girokonto 1/150, Postscheckkonto: Nr. 1 Berlin, Bankkonto: ... bei der Brandenburgischen Provinzialbank und Bürgerstraße, Berlin.

Ihr Zeichen: 11 748

Pat.

- 5 JUNI 1942

An
die I. G. Farbenindustrie
Aktiengesellschaft Pat- Abt.
in Ludwigshafen a. Rh.

Ing. Benischek

Entscheidung

Auf die Beschwerde der Anmelderin I. G. Farbenindustrie Aktiengesellschaft Pat. Abt. in Ludwigshafen a. Rh. wird der Beschluß der Prüfungsstelle für Klasse 22g vom 27. Juni 1940 aufgehoben und die Sache zur weiteren Prüfung an die genannte Prüfungsstelle zurückverwiesen.

Hauptlaboratorium
8. 6. 42

G r ü n d e:

Nachdem der Anmeldungsgegenstand, der nunmehr als Zusatz auf eine weitere Ausbildung des Gegenstandes der Anmeldung J. 61 358 IVc/22g gerichtet ist, auf einen einheitlichen Erfindungsgegenstand beschränkt wurde, die Gründe des Zurückweisungsbeschlusses somit behoben sind, war die Anmeldung, zumal eine sachliche Prüfung augenscheinlich überhaupt noch nicht erfolgt ist, an die Prüfungsstelle zurückzuverweisen.

9. Beschwerdesenat

gez. Röhmer Dr. Friedel Dr. Fischer

Albrecht

Schmi

G.D.S.
Einschreiben
Kgl.Pat.45
4.1942:50000

- 8. Juni 1942

3714

Abschrift

Reichspatentamt

Abschrift

Reichspatentamt

9. Beschwerdesenat Berlin, am 15. Mai 19..

Anwesend

1. Senatspräsident Dr. Röhmer als Vorsitzende
2. Senatsrat Dr. Fischer als 1. Berichterstatter
3. Senatsrat Dr. Friedel als 2. Berichterstatter.

In Sachen der Patentanmeldung

I 65 519 IVc/22g - 9. B. 15/40

Anmelderin: I. G. Farbenindustrie Aktiengesellschaft

erschienen heute zur Anhörung

für die Anmelderin: Herr Dr. Kleber und Herr Dr. Engel.

Die Anmelderin stellte den Antrag, die vorliegende Anmeldung als Zusatz zur Anmeldung J 61 358 IVc/22g weiter zu behandeln und überreichte entsprechend umgearbeitete neue Unterlagen.

v. g.

Schluß der Verhandlung: 12 Uhr 45 Minuten

Es wurde überreicht:

Eine Vollmacht

ein Antrag auf Erteilung eines Zusatzpatents zur Anmeldung J 61 358 IVc/22g

neue Unterlagen

Beschlossen und verkündet:

Zurückverweisung an die Prüfungsstelle zur Fortsetzung der Prüfung.

gez. Röhmer Dr. Friedel

Schmi

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. Rh.

O.Z.11748 Patentabteilung 19.[illegible]1942. B/K.

I 65 519 IVc/22g

Herrn Direktor Dr. Reppe

Ing. Benischek

Bericht

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. Rh.

3715

O.Z.11748 Patentabteilung 19.5.1942. E/K.

I 65 519 IVo/226.

Herrn Direktor Dr. Reppe
" Ing. Benischek

B e r i c h t :

über die mündliche Verhandlung vor dem 9.Beschwerdesenat am 15.Mai 1942.

Der Senat bestand aus Senatspräsident Dr.Röhmer,
Senatsrat Dr.Friedel und
Senatsrat Dr. Fischer.

Anwesend seitens der I.G.

Dr.Kleber und
Dr.Engel.

Die Verhandlung fand anschliessend an die in Sachen O.Z.10776 statt. Der die Beschwerde veranlassende Hauptgrund, die Frage der Einheitlichkeit, liegt hier genau wie in Sachen O.Z.10776. Auch hier wurde eine auf Bindemittel für Anstrichmittel, Spachtelmassen und Kitte gerichtete Neubeschreibung (siehe Anlage) überreicht. Ferner wurde der Antrag gestellt, die vorliegende Anmeldung als Zusatz zu O.Z.10776 zu behandeln, womit sich der Senat einverstanden erklärte. Auch hier bestanden gegen die Einheitlichkeit der jetzigen Formulierung keine Bedenken. Die Anmeldung soll ebenfalls an die Vorinstanz zurückverwiesen werden.

gez. Engel
" K(leber).

Anlage.

Durchschlag

26.Mai 1942.

3716

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. Rh.

Hauptlaboratorium

Patent-Abteilung

3711

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. Rh.

Hauptlaboratorium

Patent-Abteilung

Ing.Ben/Ko. 28.April 1942.

OZ.10776 – J 61558 IV c/22

OZ.11748 – J 65519 IV c/22

Zur Begründung vor dem Beschwerdesenat des Reichspatentamtes werden folgende Stollen angeführt:

Otto Lang, Chemisch technische Vorschriften Bd. III S.136 1923 "Spachtelmassen, Deckmittel, Wandkitt und Ölfarben-Grundierung Dort heisst es: Eine Spachtelmasse, zu der auch der gewöhnliche Glaserkitt zu rechnen ist, wird entsprechend diesen Ausführungen, demnach für gröbere Waren aufgestrichen, wie man dies beispielsweise mit einem Gipsbrei tut usw. Streichkitt, Streichspachtel, Spachtelkitt. Diese Variationen lassen die innige Verwandschaft deutlich erkennen. Ein "Anstrichkitt" wird unter DRP 141797 angeführt der mittels Pinsel aufgebracht wird.

In Liesegang, Kolloidchemische Technologie S 436, 1932 heisst es: Kitte und Klebstoffe sind grundsätzlich von einander nicht unterschieden. – Eine strenge Trennung zwischen Kitt und Klebstoff ist kaum durchführbar. Nun stellen aber Bindemittel Klebstoffe dar, die die Aufgabe haben, den Untergrund mit dem Farbkörper zu verleimen.

Celluloseesterlacke werden durch stärkere Füllungen mit Füllstoffen und gegebenenfalls Plastifizierungsmitteln zu Kitten.

Cohesan, Ago

Wässrige Harnstoff – Formaldehydkondensationsprodukte als Lack oder Lein und bei stärkerer Füllung Kitt.

Die nach OZ 10776 und 11748 gewonnenen Produkte Spachtel, Anstrichmassen und Kitte zeichnen sich durch eine ausgezeichnete Haftfestigkeit und vorzügliche Verarbeitungsmöglichkeit aus. So z.B. zeigen die Anstriche eine derartige Haftfestigkeit, wie dies bei Anstrichmitteln auf Leinölbasis nicht der Fall ist. Die ausser-

-/-

5067-2046-4111
P 6287

Durchschlag

3

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. Rh.

Hauptlaboratorium

Patentabteilung

Ing.Ben/Ko. 28.4.42.

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. R

Hauptlaborato.

Patentabteilun   Ing.Ben/...   26.4.4..

OZ.10776 - J 61358 IV c/..
OZ.11748 - J 65519 IV c/..

gewöhnliche Haftfestigkeit auf Holzgrund ist dadurch zu erklären, dass der in der Anstrich oder Spachtelmasse u.s.w. enthalten Wasseranteil in die Holzfaser diffundiert, wodurch sich der Film des Anstrichmittels, Spachtels und Kittes an der Oberfläche de Capillarwände konzentriert. Wahrscheinlich kommt hier eine Adsorptionswirkung hinzu. Es wird dadurch erreicht, dass senkrechte Wände ohne weiteres gestrichen werden können, ohne ein Ablaufen befürchten zu müssen.

gez. Benischer
" Kleppe

5087-2086-4111
P 0267

Durchschlag

3718

Reichspatentamt

Berlin SW 61, den 9. März 1942
Gitschiner Straße 97-103
Fernsprecher: 17 43 21

J 65 519 IVc/22g-9.B.15/42

An

13.3.27 19..

3718

Reichspatentamt

Berlin SW 61, den 9. März 1942

Aktenzeichen: J 65 519 IVc/22g-9.B.15/41

Geschäftsnummer d.Ref. 499 847

Anmelder:

Vorstehende Angaben sind bei allen Eingaben und Zahlungen erforderlich.

An

I.G.Farbenindustrie Akt.Ges.

Pat.Abt.

in Ludwigshafen a.Rh.

Hauptlaboratorium

Ihr Zeichen: 11 748

Ing. Bonischek

Auf Antrag der Anmelderin ist zur mündlichen Verhandlung vor dem Beschwerdesenat Termin auf

Freitag, den 15. Mai 1942

um 12 Uhr

im Geschäftsgebäude des Reichspatentamts anberaumt worden.

Zu diesem Termin werden Sie hierdurch mit dem Bemerken geladen, daß auch im Falle Ihres Ausbleibens Beschluß gefaßt werden kann.

Anmeldung im Zimmer 109 des 1.Geschosses

16.

Zur Besprechung bis spätestens

Falls bis dahin eine schriftliche Aeußerung nicht vorliegt, können wir die Verantwortung für eine rechtzeitige und gründliche Erledigung nicht übernehmen.

Patentabteilung

9. Beschwerdesenat

J.A.

Regierungsinspektor

G.D.S.

[redacted]

19. März 1942

3719

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.

Patentabteilung

11748

Hauptlabor.

An das

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteil

1174

Hauptlabor

An das
Reichspatentamt
Berlin

Patentabt. E/.

I 65 519 IVc/22
Anstrichmittel, Spachtelmassen und Kitt.
Beschluss vom 27.Juni 19..

Die gegen die Zurückweisung der oben genannten Anmeldung erhobene Beschwerde begründen wir wie folgt:

Gegenstand der Anmeldung sind Anstrichmittel, Spachtelmassen und Kitte nach Anmeldung I 59 644 IVc/22 g, die anstelle von trocknenden Ölen ölartige, trocknende Kondensationsprodukte aliphatischer Aldehyde enthalten. Es werden also Anstrichmittel, Spachtelmassen und Kitte beansprucht, die Bindemittel der gleichen chemischen Art enthalten.

Die Prüfungsstelle hat keine Einwendungen dagegen erhoben, dass die Anstrichmittel und Spachtelmassen in der gleichen Anmeldung beansprucht werden. Dagegen beanstandet sie die Einheitlichkeit dieser Stoffe mit den Kitten, da der Begriff Kitte nicht auf die Anstrichtechnik beschränkt sei. Lediglich wegen der behaupteten Uneinheitlichkeit wurde die Anmeldung zurückgewiesen.

Die Sachlage ist im vorliegenden Fall ganz analog derjenigen in Sachen unserer Anmeldung I 61 358 IVc/22g. Um Wiederholungen zu vermeiden, fügen wir eine Abschrift unserer in jener Sache eingereichten Beschwerdebegründung bei und beantragen auch hier, den Zurückweisungsbeschluss aufzuheben und die Anmeldung bekannt zu machen bzw. zur weiteren Prüfung

. Aug. 1944

654-8516-20004-35

Durchschlag

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteil

1174

an die Vorinstanz zurückzuverweisen. Um die Anmeldung nicht zu gefährden, stellen wir für den Fall, dass der Beschwerde-

an die Vorinstanz zurückzuverweisen. Um die Anmeldung nic[ht]
zu gefährden, stellen wir für den Fal[l], dass der Beschwerde-
senat nicht ohne weiteres in dem gewünschten Sinne entscheide[n]
kann, hilfsweise Antrag auf mündliche Verhandlu[ng].

I.G.FARB[E]NIN[D]USTRI[E] AKTIENGESELLSCH[AFT]

gez. ppa.

654-8516-20084-326

Durchschlag

3721

Reichspatentamt

Berlin SW61, den 27. Juni 1940

Aktenzeichen: J 65 519 IVc/ 22 g

253 730

An

I.G. Farbenindustrie

3721

Reichspatentamt

Berlin SW 61, den 27. Juni 1940

Aktenzeichen: J 65 519 IVa/ 22 g

Geschäftsnummer P.A.: 253 730

Vorstehende Angaben sind bei allen Eingaben und Zahlungen erforderlich.

Reichsbank-Girokonto, Postscheckkonto: Nr. 2 Berlin. Bankkonto: 20073 bei der Brandenburgischen Provinzialbank und Girozentrale, Berlin.

An I.G. Farbenindustrie Aktiengesellschaft in Ludwigshafen a/Rh

Hauptlaboratorium

Ing. Benischek

Ihr Zeichen:

An Referent Herrn Dr. Engel z. Kenntnis u. Prüfung. Unterschr. d. Ref.:

Beschluß

Die am 28. August 1939 eingegangene Patentanmeldung der I.G.Farbenindustrie Aktiengesellschaft in Frankfurt a/M, betreffend "Anstrichmittel, Spachtelmassen und Kitte" wird auf Grund des § 26 des Patentgesetzes zurückgewiesen.

Gründe:

In vorliegender Anmeldung richtet sich der Patentanspruch zugleich auf Anstrichmittel, Spachtelmassen und Kitte.

Im Bescheide vom 7. Februar 1940 ist der Anmelderin dargelegt worden, daß die Prüfungsstelle die Anmeldung als uneinheitlich ansieht. Dieser Standpunkt ist auch unter Berücksichtigung der Ausführungen der Anmelderin in der Eingabe vom 18. April 1940 aufrechtzuerhalten.

Es wird nicht bestritten, daß Kitte gegebenenfalls als Hilfsstoffe in der Anstrichtechnik Verwendung finden und aus diesem Grunde auch die Kitte, welche für die Anstrichtechnik als Hilfsstoffe Beachtung verdienen, in Lehrbüchern der Anstrichtechnik Erwähnung finden. Der Begriff "Kitte" ist aber keineswegs auf die Anstrichtechnik beschränkt, Kitte finden vielmehr vornehmlich auf anderen, der Anstrichtechnik fernliegenden Gebieten Verwendung. So dienen z.B. Kitte dem Glasermeister beim Verglasen von Fenstern, zum Kitten von Glasbuchstaben, dem Keramiker zum Kitten von Tongegenständen, zum Befestigen von Wandfliesen. Auch können gleiche oder ver-

Patentabteilung 8.7.40 ... falls bis dahin eine schriftliche Äusserung ... nicht vorliegt, können wir die Verantwortung für eine rechtzeitige und gründliche Erledigung nicht übernehmen.

[redacted]

Gegen den Beschluß kann gemäß § 34 des Patentgesetzes innerhalb eines Monats nach der Zustellung Beschwerde eingelegt werden. Diese muß aber vor Ablauf der Frist beim Reichspatentamt eingegangen sein. Mit der Beschwerde ist zugleich die tarifmäßige Gebühr von 20 RM unter Angabe des Aktenzeichens und der Bezeichnung als Beschwerdegebühr an das Reichspatentamt, Amtskasse möglichst bargeldlos zu entrichten. Erfolgt die Zahlung nicht rechtzeitig, so gilt die Beschwerde als nicht erhoben.

3. Juli 1940

RSI.Pat.4
11.1938.10000

3722

- 2 -

schiedene Rohstoffe z.B. an Bruchstellen verkittet werden

schiedene Rohstoffe z.B. an Bruchstellen vermittet werden usw. Alle diese Tatsachen sind der sachverständigen Anmelderin bekannt.

Der Begriff "Mittel" ist daher ein allgemeiner, das Gebiet der Anstrichtechnik nur leicht streifender Begriff.

Unter diesem Gesichtswinkel betrachtet ist die Anmeldung nach wie vor uneinheitlich.

Da die Anmelderin der Aufforderung der Prüfungsstelle, die Anmeldung einheitlich zu gestalten (§ 26, Ziffer 1, Satz 2, des Patentgesetzes, nicht nachgekommen ist und offensichtlich die Ansichten der Anmelderin von denen der Prüfungsstelle in diesem Punkte grundsätzlich abweichen, so blieb der Prüfungsstelle nichts weiter übrig, als die Anmeldung ohne weiteren, die Prüfung nur unnötig verzögernden Zwischenbescheid zurückzuweisen.

Prüfungsstelle für Klasse 22 g

gez. [signature]

Dr. Schreiber

ze

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabt.

3723

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabt.

Hauptlabor. 16.4.4

11

An das
Reichspatentamt
Berlin.

Patentabt. E/-   17.April 1940.

I 65 519 IVc/22 h.
Anstrichmittel, Spachtelmassen und Kitte.
Bescheid vom 7.Februar 1940

Die Ausführungen im Bescheid vom 7.Februar d.J. können uns nicht davon überzeugen, dass die beanspruchte Erfindung uneinheitlich sei und deshalb nicht in einer einzigen Anmeldung beansprucht werden könne. Ist schon die Tatsache, dass Spachtelmassen und Kitte in den Lehrbüchern der Lacktechnik behandelt werden, ein Hinweis darauf, dass es sich um Produkte des gleichen technologischen Gebiets handelt, so geht aus "Scheiber-Sändig, Lacke und ihre Rohstoffe", 1926, Seiten 441 und 443 hervor, dass es sich bei Lacken, Spachtelmassen und Kitten nur um graduell, nicht aber grundsätzlich verschieden zusammengesetzte Stoffe handelt. Die dortige (S.443, Abs.3) Angabe "Die Kitte sind konsistente Gemische von flüchtigen bzw. mageren Lacken ,.... mit Füllstoffen ..." beweist keineswegs, dass ein Kitt etwas grundsätzlich anderes ist als ein Lack, denn Lacke enthalten ebenfalls häufig Füllstoffe.

Wenn dies noch eines Nachweises bedarf, so sei auf das Handbuch der Lack- und Firnisindustrie von Seeligmann-Zieke, 4.Aufl., 1930, S.536 verwiesen. Dort wird im mittleren Absatz, der sich auf die Herstellung von Öl- und Lackfarben, also von Lacken, bezieht, festgestellt, dass die Herstellung der Produkte mit oder ohne Zusatz von sogenannten Füllstoffen

35-0738-10004 3129

Durchschlag

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

11748

erfolgen kann. Somit besagt die oben erwähnte Angabe in Scheiber-Sändig, dass Kitte ihrer Zusammensetzung nach füllstoffreiche

erfolgen kann. Somit besagt die oben erwähnte Angabe in Scheiber-Sändig, dass Kitte ihrer Zusammensetzung nach füllstoffreiche Lacke sind.

In dem bereits erwähnten Handbuch der Lack- und Firnisindustrie werden die Spachtel und Kitte im gleichen Abschnitt unter dem Oberbegriff "Spezialprodukte der Öl- und Lackfarbenfabrikationstechnik" behandelt (S.573 bis 574, Abschnitt F). Die Prüfungsstelle erkennt an, dass Lacke und Spachtelmassen in einer Anmeldung behandelt werden können. Aus dem Abschnitt "Spachtel und Kitte" im Handbuch der Lack- und Firnisindustrie geht die Ähnlichkeit von Spachtelmassen und Kitten hinsichtlich ihrer Zusammensetzung hervor. Auf S.574 ist im dritten Absatz gesagt, dass Kitte zum Verkitten von Schraubenlöchern u.dgl. gewöhnlich aus Lack- und Ölspachteln durch weiteren Zusatz von Bleiweiss hergestellt werden und dass die Glaserkitte aus Kreide und Leinölfirnis bestehen. Auch hieraus ergibt sich, dass es sich bei den Kitten um füllstoffreiche Lacke handelt.

Bei dem gegebenen Sachverhalt bitten wir, von der Forderung nach Einschränkung bzw. Teilung der Anmeldung abzusehen und die Bekanntmachung der Anmeldung zu beschliessen.

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT
gez.: Holdermann ppa. Schönbein

35-6236 ... 3129

Durchschlag

3725

Reichspatentamt

Berlin SW ... 7. Februar 19..

Aktenzeichen: J 65 519 IVc/ ...

3725

Reichspatentamt

Berlin SW. 61, den 7. Februar 19..
Gitschiner Straße 97
Fernsprecher: 17 ..

Aktenzeichen: J 65 519 IVc/ 22

Anmelder:

Vorstehende Angaben sind bei allen Eingaben und Zahlungen erforderlich.

Reichsbank-Girokonto.
Postscheckkonto: Nr 2 Berlin
Bankkonto: 20071 bei der Brandenburgischen Provinzialbank und Girozentrale, Berlin.

Ihr Zeichen: O.Z. 11 748

Hauptlaboratorium

I.G.Farbenindustrie
Aktiengesellschaft
in Ludwigshafen a/Rh.

An Referent
Herrn Dr. ...
z. Kenntnis
Unterschr. d. R. ...

Zur Äußerung bis spätestens ...

Falls bis dahin eine schriftliche Äußerung nicht vorliegt, können wir die Verantwortung für eine rechtzeitige und gründliche Erledigung nicht übernehmen.

Patentabteilung 12.2.40

Einschreiben

In Sachen der Patentanmeldung, betreffend "Anstrichmittel, Spachtelmassen und Kitte", eingegangen am 28. August 1939.

Nachstehend wird das Ergebnis der in Klasse 22 g durchgeführten Prüfung mit der Aufforderung mitgeteilt, binnen drei Monaten sich zu äußern.

Die Anmeldung weist die gemäß § 26, Ziffer 1, Satz 2 des Patentgesetzes erforderliche Einheitlichkeit nicht auf, da nicht nur die Verwendung von Anstrichmitteln und Spachtelmassen (Anstrichtechnik) einerseits, sowie von Kitten (Klebstofftechnik) andererseits auf verschiedenen technischen Gebieten liegen, sondern die verschiedenen Verwendungszwecke auch eine verschiedene Zusammensetzung der Mittel bedingen. So kann man z.B. einen Glaserkitt (plastische Dichtungsmasse) nicht mit einem Anstrichmittel (flüssiges, verspritz- oder mit dem Pinsel verstreichbares Überzugsmittel) in Parallele setzen, vgl. hierzu z.B. Scheiber, Lacke und ihre Rohstoffe, 1926, Seite 443, Absatz 2, Zeile 1 - 3 (Kitte sind konsistente Gemische von .... Lacken .... mit Füllstoffen"; also

Die sachliche Äußerung auf diesen Bescheid ist nur in einfacher Ausfertigung einzureichen; für neue Unterlagen (Beschreibung, Ansprüche, Zeichnungen) sind dagegen 2 Ausfertigungen erforderlich.
Die in diesem Bescheide gesetzte Frist beginnt mit der Zustellung. ~~Anträge auf Verlängerung dieser Frist können nur bei ausreichender, möglichst durch die Beibringung von Belegen gestützter Begründung bewilligt werden (s. Bekanntmachung, betr. Gewährung von Fristen im Patenterteilungsverfahren vom 18. Januar 1935, abgedruckt im Blatt für Patent-, Muster- und Zeichenwesen 1935, Seite 6).~~

Ksl.Pat.45.m.Fr.-Zus.

Frist 13. Mai

3726

also etwas anderes als ein Lack=Anstrichmittel. Die Anmeldung ist daher zunächst einheitlich zu gestalten. § 26, Ziffer 1, ...

also etwas anderes als ein Lacke-Anstrichmittel. Die Anmeldung ist daher zunächst ein sittlich zu gestalten. § 2b, Ziffer 1, Satz 2, Ziffer 3 und § 29/29 des Patentgesetzes.

Prüfungsstelle für Klasse 22

Dr.Schreib

2 [illegible]

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

[illegible]

Unser [illegible]

Ludwigshafen Rhein, den 2[illegible]. August 19[illegible]

Anstrichm[illegible] Spachtelmasse[illegible]

Zusatz zum [illegible] Anmeldung [illegible]

Gegenstand der [illegible] Anm[illegible] [illegible] sind Anstrichmittel, Spachtelmassen und Kitte, die als [illegible] mittel wässrige Dispersionen von wasserunlöslichen hochpolymeren organischen filmbildenden Stoffen, neben natürlichen [illegible] und mit trocknenden Ölen [illegible] [illegible] Holzöl, [illegible] Tranölen kombinierte Harze, gegebenenfalls auch noch trocknende Öle und/oder Pech, Bitumen, Asphalt oder undestillierte Rückstände der Kohlenhydrierung enth[illegible]

Es wurde nun gefunden, dass [illegible] Anstrichmittel, Spachtelmassen und Kitte gleichfalls gute Eigenschaften besitzen, wenn sie statt der mit trocknenden Ölen kombinierten Harze trocknende ölartige Kondensationsprodukte aliphatischer Aldehyde enthalten. Solche ölartige trocknende Kondensationsprodukte aliphatischer Aldehyde sind beispielsweise die nach dem Verfahren [illegible] Patent[illegible] [illegible] Anmeldungen [illegible] IVd [illegible] und I 5[illegible] 9[illegible] IVd/22[illegible] gewon[illegible]

Als geeignete hochpolymere organische Stoffe kommen ausser den im Hauptpatent genannten Stoffen auch beispielsweise Polyvinyloctodecyläther, Mischpolymerisat von Octodecylvinyläther und Vinyläthern der durch Reduktion von Kokosfett erhältlichen Alkohole sowie Polyvinylhydroabietinyläther verwen

Als Seifen können die Alkalisalze von sauren Naturharzen wie Kolophonium oder Kopal benutzt w

Die Anstrichmittel besitzen einen ausgesprochen lackartigen Charakter, d.h. sie lassen sich in gleicher Weise wie Lacke verstreichen, besitzen eine gute Zügigkeit und zeigen einen guten Verlauf, so dass sie auch mit dem Vertreiber verarbeitet werden können. Die Anstriche trocknen ausserordentlich rasch.

Sie lassen sich leicht auf die Unterlage bringen, besitzen eine ausgezeichnete Haftfestigkeit und hohe Deckkraft, was beispielsweise mit Anstrichmitteln auf Leinölbasis nicht der Fall

Die Kitte lassen sich gleichfalls vorzüglich verarbeiten, besitzen hohe Haftfestigkeit bei grosser Geschmeidigkeit und Elastizität, ohne dabei an senkrechten Flächen abzulaufen.

Die Herstellung der Anstrichmittel, Spachtelmassen und Kitte kann in an sich bekannter Weise durch inniges Vermischen der Dispersionen der hochpolymeren Stoffe mit den Ha

seifen und ölartigen trocknenden Kondensationsprodukten a
phatischer Aldehyde in Mischmaschinen ... in Knetern, Tri
termühlen, Walzenstühlen und dergleichen erfolgen. Es kann
dabei auch noch organische Lösungsmittel, Weichmacher, Trocke
stoffe, Pigmente und andere der in Paten... ... Anmeldun
1 59 644 IVc/2... genannten Zusatzstoffe zugesetzt werd

Die beschriebenen Anstrichmittel lassen sich ohne z
zusetzen, oder eine unlösliche Haut zu bilden, lagern. Sie lassen
sich auch in hochkonzentrierter pastenförmiger Zustand ohne Z
satz von Trockenstoffen und Lösungsmitteln herstellen und lagern.
Vor Gebrauch verdünnt man sie zweckmäßig unter Zugab
Trockenstoffen mit organischen Lösungsmitt...

Eine wässrige Dispersion eines Mischpolymerisats a
6,14 Teilen Isohexylacrylvinylester, ...,0 Teilen Vinylchlori
und 4,08 Teilen Acrylsäureäthylester in ... Teilen Wasser wir
mit 4,4 Teilen Harzseife, die aus 10 Teilen Wasser, 5 Tei
Kolophonium und ... Teilen Natriumhydroxyd enthält und ... Teile
Wasser vermischt und dann mit ... Teilen des nach Beispi
der Paten... ... Anmeldun... 1 59 9... IVc/2... durch Konden
sation von Crotonaldehyd in Gegenwart geringer Mengen Met
vinylketon mittels Alkali erhältlichen trocknenden Öl
Teilen einer 50-prozentigen Lösung eines Dieimangantrockenstoffs
in Benzol, 5,4 Teilen Spermölfettsäure, 165,... Teilen ein

Gemisches von mono- und dicyclischen Terpenen und [illegible] Teilen Methylcyclohexanol versetzt. Das ganze wird dann mit [illegible] Teilen Titandioxyd in einer Trichtermühle oder auf einer Walzenstuhl zu einer streichfertigen Anstrichfarbe angerieben. Das so erhaltene Anstrichmittel lässt sich wie eine Ölfarbe verarbeiten, zeigt gute Deckkraft, guten Verlauf, trocknet rasch und hart aus und liefert Überzüge von hohem [illegible].

Patentanspruch

Anstrichmittel, Spachtelmassen und Kitte nach Patent [illegible] (Anmeldung I 59 64[illegible] IVc/22g), dadurch gekennzeichnet, dass sie anstelle von trocknenden Ölen oder ölartige, trocknende Kondensationsprodukte aliphatischer Aldehyde enthalten.

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

Reichspatentamt

Reichspatentamt

[illegible] 3731

Aktenzeichen: [illegible]

Anmelder: [illegible]

An die [illegible]

[illegible] Ludwigshafen, Rhein

Beschluß

Auf die Anmeldung der I.G. Farbenindustrie AG. in Frankfurt, Main wird in der Klasse 12 o, Gruppe 19/05 ein vom [illegible] laufendes Patent unter der Bezeichnung:

Verfahren zur Herstellung von Alkoholen der Acetylenreihe

auf Grund der im Bekanntmachungsbeschluß vom 4. Januar 1943 [illegible] Unterlagen erteilt.

Das Patent führt die Nummer: 740514

Gemäß § 2 Abs. 1 der Verordnung vom 20.7.1940 ist die Erklärung abgegeben worden, daß sich der Schutz auf das Protektorat Böhmen und Mähren erstrecken soll.

Prüfungsstelle für Klasse 12 o.

gez. Dr. Schmalz.

[illegible]

1175 P

3732

Reichspatentamt

Berlin SW [illegible] Januar 194[illegible]

Aktenzeichen: J 65 57: IVd/[illegible]

Anmelder:

I.G. Farbenindustrie [illegible]

3732

Reichspatentamt

Berlin SW ... Januar 194.

Aktenzeichen: J 65 57: IVd/...

Anmelder:

I.G.Farbenindustrie A

Hauptlaboratorium

Ludwigshafen. Rh.

Ihr Zeichen: 02 117 56

Beschluß

Die Patentanmeldung der J.G.Farbenindustrie Aktiengesellschaft in Frankfurt Main ist bekanntzumachen, und zwar in der Klasse 12o Gruppe 10/03 mit der Bezeichnung:

„Verfahren zur Herstellung von Alkoholen der Acetylenreihe.

Anmeldetag ist der ... September 19..

Gemäß ... Absatz ... der Verordnung vom 2.. Juli 1940 ist die Erklärung abgegeben worden, daß sich der Schutz auf das Protektorat Böhmen und Mähren erstrecken soll.

Die Bekanntmachung erfolgt nach Ablauf der beantragten, mit der Zustellung dieses Beschlusses beginnenden Aussetzungsfrist von drei Monaten. Wegen Zahlung der Bekanntmachungsgebühr siehe Anlage. Für die Aussetzung auf länger als drei Monate bedarf es einer Begründung.

Zur Auslegung sind bestimmt:

Erfindernennung, eingegangen am 1.. September 19..

Beschreibung und 1 Patentanspruch, eingegangen am 1.. September 19..

Schutzerstreckungserklärung Böhmen und Mähren, eingegangen am 31. Juli 194..

Auf Seite 2 des Patentanspruchs der Unterlagen vom 16. September 194.. wurde an „Einwirken" angefügt „lassen". In der vorletzten Zeile des Patentanspruchs wurde „oder" durch „bzw." ersetzt (mit Rücksicht auf die Ausführungen auf Seite 2, Zeile 2–7 der Beschreibung vom 16. September 194..

Prüfungsstelle für Klasse 12

Dr. Hindemith

Sta

22 Jan. 1943

G.D.S.

Einschreiben

Rsl.Pat.45
11.1942.50000

3738

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.

Patentabt.

Frist: 7.September 1..

3738

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.

Patentabte

Frist: 7.September 19

f Hauptlaboratori

O.Z.1

An d:

Reichspaten..

Ber..

Patentabt.Fr/Va. den .. Sept. 1941.

I. 65 571 IVd/..

"Verfahren zur Herstellung von Verbindunge der Acetylenreihe

Auf den Amtsbescheid vom 31.Mai 1941.

In der Anlage übersenden wir eine Neubeschreibung, in der die im vorliegenden Bescheid von der Prüfungsstelle erhobenen Forderungen berücksichtigt worden sind. Der Patentanspruch zählt jetzt die Stoffe auf, die in den ursprünglichen Unterlagen als cuprenverhindernde Zusätze vorgeschlagen worden sind. Die Beispiele sind entsprechend dem im letzten Absatz des Bescheids enthaltenen Vorschlag anders angeordnet worden.

Die zur Anmeldung gehörende Erfindererklärung füge wir ebenfalls b..

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

gez. [illegible]

Anlagen.

1 Neubeschreibung (doppel)

1 Erfindererklärung.

2177-1974-25M-451
P/0267

Durchschlag

3734

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.

Patentabte

.Z.1

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.

Patentabteilung

O.Z. [illegible]

A. 65 571 IVd/12o

5. September 1939.
[illegible] September 1941.
Fr/Va.

Verfahren zur Herstellung von Alkoholen der Acetylenreihe.

Es wurde gefunden, dass man bei der Herstellung von Alkoholen der Acetylenreihe durch Einwirkung von Acetylen auf Aldehyde oder Ketone in Anwesenheit von Kupfer oder Kupferverbindungen in flüssiger Phase bei erhöhter Temperatur und gegebenenfalls unter erhöhtem Druck die Umsätze und Ausbeuten steigern und die Durchführung des Verfahrens erleichtern kann, wenn man Zusätze verwendet, die die Cuprenbildung verhindern oder verzögern.

Derartige Zusätze erweisen sich deshalb als besonders vorteilhaft bei der Umsetzung des Acetylens mit Aldehyden oder Ketonen in der flüssigen Phase, weil dort das Cupren leicht Ventile und Rohre verschließen und sich in unerwünschter Weise auf den Gefäßwandungen abscheiden kann. Bei Verwendung von Füllkörpern oder stückigen Katalysatoren kann das Cupren die Zwischenräume verstopfen. Die Wirksamkeit der Katalysatoren kann durch die Bildung von Cuprenüberzügen geschädigt oder beseitigt werden. Alle diese Nachteile werden durch die Verhinderung der Cuprenbildung vermieden.

Als Zusätze zur Verhinderung der Cuprenbildung

verwendet

Durchschlag

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.

1179

Patentabteilung

verwendet man Gold, Quecksilber, Blei, Antimon, Wismut, Selen, Cer, Brom oder Jod. Sie können in elementarer Form angewandt werden, soweit sie nicht, wie Brom und Jod, mit dem Acetylen

verwendet man Gold, Quecksilber, Blei, Antimon, Wismut, Selen, Cer, Brom oder Jod. Sie können in elementarer Form angewandt werden, soweit sie nicht, wie Brom und Jod, mit dem Acetylen unter Zerstörung der dreifachen Bindung reagieren. Man kann die genannten Elemente auch in Form ihrer Verbindungen benutzen, wobei man solche Verbindungen vermeidet, die Anlagerungen an die dreifache Bindung begünstigen. Die Wirksamkeit lässt sich noch erhöhen, wenn man Verbindungen mehrerer solcher wirksamer Stoffe untereinander verwendet, z.B. Quecksilber- oder Wismutjodid. An anderen geeigneten Verbindungen seien beispielsweise noch genannt: Quecksilberoxyd und -phosphat, Wismutoxyd und -hydroxyd, Wismutoxynitrat, Selenschwefel, Selendioxyd, Kalium-, Kupfer-, Silber- oder Bleijodid.

Die Zusätze können im Umsetzungsgemisch gelöst oder suspendiert sein. Man kann sie auch im Umsetzungsgefäß, zweckmäßig zusammen mit dem Kupferkatalysator, auf Trägern fest anordnen und die Umsetzungsteilnehmer daran vorbeifließen oder darüber rieseln lassen.

Die Erfindung sei nachstehend an Hand der Herstellung von Alkoholen der Acetylenreihe aus Acetylen und Formaldehyd in Gegenwart von Kupferkatalysatoren entsprechend den Patenten .... (Anmeldungen I 58 936 IVd/12 o und I 59 449 IVd/12o beispielsweise erläutert. Sie kann indessen auch bei Umsetzungen des Acetylens mit anderen Aldehyden nach den genannten Patenten benutzt werden.

Beispiel 1.

2177-1974-2SM-451 PK087

Durchschlag

Beispiel

Ein Gemisch aus 5 g 3 %iger wässeriger Formaldehyd-

Beispiel

Ein Gemisch aus 5. g 3. %iger wässriger Formaldehydlösung mit 3 g Kupferpulver und ,25 g Calciumcarbonat erhitzt man unter Zusatz von ,3 g Quecksilberoxyd oder ,3 g Wismuthydroxyd oder 0,3 g Kaliumjodid oder 0,3 g Wismutoxyjodid oder 0,3 g Selen-Schwefel in einem Rührdruckgefäß auf 110° und presst dann ein Acetylen-Stickstoff-Gemisch (Volumenverhältnis 3 : 1) unter 20 Atmosphären Druck ein. Durch Nachpressen von frischem Acetylen sorgt man dafür, dass das verbrauchte Acetylen ergänzt wird. Nach Beendigung der Acetylenaufnahme filtriert man das flüssige Umsetzungsgemisch ab. Man ~~[illegible]~~ findet man kein Cupren. Der Umsatz zu Butin-2-diol-1,4 beträgt zwischen 18 und 22 %, auf eingesetzten Formaldehyd berechnet. Das Kupfer mit dem die Cuprenbildung verhindernden Stoff kann wiederholt als Katalysator für die gleiche Umsetzung von Formaldehyd mit Acetylen verwendet werden, ohne dass Cupren gebildet wird. Der Umsatz zu Butin-2-diol-1,4 beträgt dann unter gleichen Bedingungen bei Zusatz von Kaliumjodid 56 %, von Wismuthydroxyd 46 %, von Quecksilberoxyd 30 %, von Wismutoxyjodid 78 %.

Wenn man zum Vergleich die Umsetzung unter sonst gleichen Bedingungen in Gegenwart von Kupfer und Calciumcarbonat, jedoch ohne die übrigen Zusätze durchführt, so erhält man nach dem Abfiltrieren des Umsetzungsgemisches etwa 18 g eines rotbraunen pulverigen Gemisches von Kupfer mit Cupren. Aus dem Filtrat wird zunächst unveränderter Formaldehyd und Wasser und dann Butin-2-diol-1,4 durch Destillation gewonnen. Der

Umsatz

Umsatz zu Butin-2-diol-1,4 beträgt 4 %, berechnet auf eingesetzten Formaldehyd.

Beispiel 2

Umsatz zu Butin-2-diol-1,4 beträgt 4 %, berechnet auf eingesetzten Formaldehyd.

Beispiel 2

Als Umsetzungsgefäß dient ein senkrecht angeordnetes, druckfestes Edelstahlrohr (Länge 900 cm, Durchmesser 12 cm), das mit 70 Liter eines in der folgenden Weise hergestellten Katalysators gefüllt ist: 70 Liter Kieselsäurezylinder werden mit einer Lösung von 16 kg Kupfernitrat und 3,2 kg Wismutnitrat in verdünnter Salpetersäure getränkt, getrocknet und so lange auf 500° erhitzt, bis keine Stickoxyde mehr entweichen. Anschließend werden die Zylinder mit einer Lösung von 85 g Ammoniumjodid in 2 %iger Essigsäure befeuchtet und nochmals bei 500° getrocknet. Man läßt nun bei 100° bis 110° von oben über den Katalysator stündlich 15 kg 30 %ige wässrige Formaldehydlösung rieseln und leitet gleichzeitig im Gleichstrom überschüssiges Acetylengas im Kreislauf. Der Druck im Turm beträgt 5 Atmosphären. In einem druckfesten Abscheider, der mit dem unteren Ausgang des Turmes in Verbindung steht, zieht man eine wässrige Lösung von Butin-2-diol-1,4 ab. Die Umsetzung liefert lange Zeit gleichbleibend gute Ausbeuten an Butin-2-diol-1,4 (etwa 94 bis 95 %) im Dauerbetrieb. Noch nach 15 Wochen ist der Katalysator voll wirksam und das Rohr noch nicht durch Cupren verstopft.

Zum Vergleich wurde unter sonst gleichen Bedingungen die Umsetzung mit einem Katalysator ausgeführt, der in folgender Weise hergestellt war: Kieselsäurezylinder von 4 mm Durchmesser und 10 mm Länge werden mit einer gesättigten Kupfernitratlösung getränkt, getrocknet und bis zum Aufhören der

Durchschlag

der Stickoxydentwicklung auf 500° erhitzt. Man erhält so Kieselsäurezylinder mit einem Kupfergehalt

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

der Stickoxydentwicklung auf 500° erhitzt. Man erhält so Kieselsäurezylinder mit einem Kupferoxydüberzug (Kupfergehalt 13 %). Die anfangs guten Durchsätze fallen nach und nach ab, bis nach 1 1/2 Wochen das Rohr mit Cupren völlig verstopft ist.

Patentanspruch:

Verfahren zur Herstellung von Alkoholen der Acetylenreihe durch Einwirken von Acetylen auf Aldehyde oder Ketone in Anwesenheit von Kupfer oder Kupferverbindungen in flüssiger Phase bei erhöhter Temperatur, dadurch gekennzeichnet, dass man die Umsetzung unter Zusatz von Gold, Quecksilber, Blei, Antimon, Wismut, Selen, Cer, Brom oder Jod oder ihren Verbindungen bewirkt.

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT
gez. Holdermann ppa. Schönberg

Doppelt.

2377-1934-2536-651

Durchschlag

3739 Dr. Niemann

Reichspatentamt

31. Mai 1941

Aktenzeichen: J 65 571 IVd/ 12 o

3739 Dr. Niemann

Reichspatentamt

31. Mai 1941

Aktenzeichen: J 65 571 IVa/ 12 o

Anmelder:

I.G.Farbenindustrie
Aktiengesellschaft
Ludwigshafen a/Rh

Hauptlaboratorium

Hr. Dr. Steinhofer

14. 6. 41.

Ihr Zeichen: O.Z. 11758

An Referent
Herrn Dr. [redacted]
...
Unterschr. d. Ref.:

Auf die Eingabe vom 14. August 1940.

Nachstehend wird das Ergebnis der weiteren Prüfung mit der Aufforderung mitgeteilt, binnen d r e i M o n a t e n sich zu äußern.

Die Frist beginnt mit der Zustellung.

Da aus dem Stande der Technik offenbar nicht ohne weiteres abzuleiten ist, welche Stoffe im allgemeinen und insbesondere unter den Bedingungen des vorliegenden Verfahrens die Cuprenbildung verhindern oder verzögern, stellt die Angabe des kennzeichnenden Teiles des neuen Patentanspruchs ("daß man Zusätze verwendet, die die Cuprenbildung verhindern oder verzögern") lediglich eine Aufgabe dar, ohne die Mittel zur Lösung dieser Aufgabe des näheren zu bezeichnen.

Im Falle der Aufrechterhaltung der vorliegenden Anmeldung sind daher im kennzeichnenden Teil des Patentanspruches diejenigen Zusatzstoffe, die den ursprünglichen Unterlagen zufolge beim beanspruchten Verfahren tatsächlich zur Verhinderung der Cuprenbildung anzuwenden sind, in bestimmter Weise anzuführen.

Im übrigen erscheint es mit Rücksicht auf das Wesen des Anmeldungsgegenstandes zweckmäßig, in den Beispielen an 1. Stelle die mit cuprenverhindernden Zusätzen ausgeführten Arbeitsweisen und an 2. Stelle die ohne solche Zusätze durchgeführten Versuche anzuordnen. Hierbei wäre zum Ausdruck zu bringen, daß die zuletzt genannten Versuche lediglich zum Vergleich ausgeführt wurden.

Prüfungsstelle für Klasse 12 o

16. Juni 1941

G.D.S.

Einschreiben

RJE.Pat.45
3.1941.50000

3740

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

Frist: 20. August 1940

Ø Hauptlaboratorium 14.8.40

O.Z. 11758

An das
Reichspatentamt,
Berlin.

Dr. Stofnhofer

Patentabt. Fr/Va. den 14. August 1940.

I. 69 571 IV d/12 o.

"Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der Acetylenreihe".

Auf den Amtsbescheid vom 17. Mai 1940.

In der Anlage übersenden wir einen neuen Patentanspruch, der zum Ausdruck bringt, dass das angemeldete Verfahren bei der Herstellung von Alkoholen der Acetylenreihe durch Umsetzen von Acetylen mit Aldehyden oder Ketonen bei erhöhter Temperatur in flüssiger Phase in Anwesenheit von Kupfer oder Kupferverbindungen angewandt werden soll. Die Beschreibung wird diesem Anspruch angepasst werden, wenn die Prüfungsstelle sich mit ihm einverstanden erklärt hat.

Durch die Neufassung des Patentanspruchs wird klar zum Ausdruck gebracht, dass es sich bei dem Anmeldungsgegenstand um die Lösung einer Aufgabe unter Bedingungen handelt, die völlig verschieden sind von den Versuchsbedingungen in dem Artikel der Brennstoffchemie, 1921, Seite 6. Die Autoren dieser Arbeit beschäftigten sich mit der pyrogenen Zersetzung des Acetylens, also mit einer Umwandlung des Acetylens unter Bedingungen, die völlig verschieden sind von den Arbeitsbedingungen des angemeldeten Verfahrens. Während hier in flüssiger Phase bei verhältnismässig tiefen Temperaturen gearbeitet wird, werden dort, wie aus den Ausführungen im zweiten Absatz der rechten Spalte auf Seite 6 hervorgeht, Temperaturen über 440° bis zu 600° angewandt. Die auf Seiten 7 und 8 geschilderten Versuche sind

Durchschlag

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

sind sogar sämtlich bei 600° ausgeführt worden.
Wegen der völlig verschiedenen Umsetzungsbedingungen

sind sogar sämtlich bei 600° mageführt worden.

Wegen der völlig verschiedenen Umsetzungsbedingungen können die Erfahrungen bei de Untersuchung der pyrogenen Acetylenzersetzung dem Fachman keinen Hinweis für die Durchführung des angemeldeten Verfahrens geben. Hier handelt es sich um die Verhinderung der Cuprabildung, während bei der pyrogenen Zersetzung des Acetylens andere Reaktionen eintreten als die Bildung von Cupren. Cupren wird als Reaktionsprodukt auch niemals von den Autoren der Arbeit in der Brennstoffchemie erwähnt. Es wird lediglich auf Seite 8 unten darauf hingewiesen, dass das Kupfer, das bei der pyrogenen Zersetzung des Acetylens eine Sonderstellung einnimmt, auch bei anderen Reaktionen des Acetylens, beispielsweise der Cuprenbildung, eine Rolle spiele. Damit ist aber noch lange nicht gesagt, dass die bei der pyrogenen Zersetzung des Acetylens gemachten Erfahrungen auch bei der cuprenbildenden Reakton gültig sind und daher dort allgemein brauchbare Regeln bdeuten. Dies geht mit besonderer Deutlichkeit aus den Angaben des fraglichen Artikels im Lichte des übrigen Standes der Technik hervor. Während beispielsweise das Zinn nach der genannten Arbeit die pyrogene Zersetzung des Acetylens in Gegenwart von Kupfer weitgehend verhindert, ist dies bei der Cuprenbildung nicht der Fall, ja Zinn wird sogar als Kupferzusatz bei der Herstellung von Cupren in der Patentschrift 407 485 empfohlen. So wird dort in Beispiel 1 Kupferbronze als Katalysator verwendet, also eine Legierung aus Kupfer und Zinn.

In der englischen Patentschrift 303 797 wird metallisches Magnesium als Zusatz zu dem cuprenbildenden Metall, beispielsweise Kupfer, empfohlen. Magnesium wird aber in der Arbeit in der Brennstoffchemie als ein bei der pyrogenen Acetylenzersetzung nicht wirksames Metall bezeichnet. Schon aus dieser Gegenüberstellung geht hervor, dass die pyrogene Acetylenzersetzung und die Cuprenbildung grundsätzlich verschiedene Umsetzungen sind, sodass Erfahrungen bei der einen Reaktion unmöglich auf die andere angewandt werden können.

Es

Durchschlag

Es ergibt sich also, dass die Lösung des Problems,

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentbüro
11758

Es ergibt sich also, dass die Lösung des Problems, die Herstellung von Alkoholen der Acetylenreihe durch Umsetzen von Aldehyden und Ketonen mit Acetylen in Gegenwart von Kupferkatalysatoren durch Zusatz die Cuprenbildung verhindernder Stoffe, vollständig neu ist und, wie nicht bestritten werden kann, auch einen technischen Fortschritt von erheblicher Bedeutung mit sich bringt. Es ist bereits ein erfinderisches Verdienst, festgestellt zu haben, dass die Verschlechterung der Ausbeuten im Dauerbetrieb auf die Bildung von Cupren zurückzuführen ist; die in der Anmeldung gegebenen verschiedenen Wege zur Beseitigung dieses Mißstandes sind aus dem Schrifttum nicht bekannt geworden, sodass an der Patentfähigkeit der Erfindung nicht gezweifelt werden darf.

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

gez.: Holdermann ppa. Braun

Anlage:
1 neuer Patentanspruch
(doppelt).

Durchschlag

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteil

O.Z.1175

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteil

O.Z.1175

I. 65 571 IVd/12

14.August 1940.Fr/Va.

Nachtrag.

Neuer Patentanspruch:

"Verfahren zur Herstellung von Alkoholen der Acetylenreihe durch Einwirken von Acetylen auf Aldehyde oder Ketone in Anwesenheit von Kupfer oder Kupferverbindungen in flüssiger Phase bei erhöhter Temperatur, dadurch gekennzeichnet, dass man Zusätze verwendet, die die Cuprenbildung verhindern oder verzögern."

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

gez.: Holdermann ppa. Braun

Doppelt.

2534-5084-400
P/0267

Durchschlag

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaborator

Patent-Abteilu.

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. Rh.
Hauptlaboratorium

Patent-Abteilung

Dr.Sth/... 5. Jun. 19..

O.Z. 11 756 - J 65 571 IVd/12 o - Deutschland
Amtsbescheid des Reichspatentamts vom 17.5.19..

Zu der entgegengehaltenen Literaturstelle des Prüfers (Brennstoffchemie 1921, S. 8,) möchten wir folgendes bemerken:

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit der pyrogenen Acetylenzersetzung und die Untersuchungen wurden bei Temperaturen von 600° durchgeführt. Es wurde gefunden, dass eine Reihe von Metallen geringen und andere grösseren Einfluss auf diese pyrogene Zersetzung haben. Unter den Arbeitsbedingungen wurde, wie aus der Arbeit hervorgeht, nie Kupren, sondern nur Kohle, Öle und Gase erhalten. Durch Verschmelzen von wirkenden und nichtwirkenden Metallen wurden Legierungen erhalten, z.B. Cu/Sn und Cu/Al, die nur geringen Einfluss auf die pyrogene Zersetzung von Acetylen haben.

Bei dem Verfahren der Patentanmeldung ist
1.) keine pyrogene Zersetzung des Acetylens zu befürchten, da die Reaktionstemperaturen zwischen 50° bis 150° liegen.
2.) Bei diesen Temperaturen ist nur mit hochwirksamen Kontakten Cuprenbildung zu befürchten, die
3.) in Anwesenheit von z.b. Aluminium oder Zinn (die nach der zitierten Arbeit die pyrogene Zersetzung des Acetylens in Gegenwart von Kupfer verhindern) nicht wirksam sind.
4.) denn im DRP. 407 485 der Lonza wird sogar Kupferbronze, also eine Legierung von Cu und Zinn zur Herstellung von Cuprit empfohlen.
5.) Ebenso wird im E.P. 303 797 bei der Herstellung von Cuprit ein Zusatz von Mg zum Metall (Cu) empfohlen. Mg ist in der von Prüfer entgegengehaltenen Arbeit als ein bei der pyrogenen Acetylenzersetzung nicht wirksames Metall bezeichnet.

-/-

Durchschlag

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. Rh.
Hauptlaboratorium

Patent-Abteilung
O.Z.11758-J 65 571 IVd/12 o-Deutschland 2.6.4 Dr.Sth/...

Pyrogene Acetylenzersetzung und Acetylenpolymerisation (Cuprenbildung) sind grundsätzlich verschiedene Reaktionen und es ist

3745

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Patent-Abteilung
O.Z.11758-J 65 571 IVd/12 o-Deutschland 5.6.4 Dr.Sth/

Pyrogene Acetylenzersetzung und Acetylenpolymerisation (Cuprenbildung) sind grundsätzlich verschiedene Reaktionen und es ist nicht als bekannt vorauszusetzen, dass die Cuprenbildung bei den in der Anmeldung geschilderten Bedingungen durch gleichzeitige Gegenwart bestimmter Stoffe aufgehoben wir

Dr. [illegible]

3077-20043100

Durchschlag

3746

Reichspatentamt

Berlin, den 17. Mai 1940

Aktenzeichen: J 65 571 IVd/ 12 o

An

Reichspatentamt

Aktenzeichen: J 65 571 IVd/ 12 o

Anmelder:

Vorstehende Angaben sind bei allen Eingaben und Zahlungen erforderlich.

Ihr Zeichen: O.Z. 11758

Berlin SW 61, den 17. Mai 1940

An
I.G.Farbenindustrie
Aktiengesellschaft
in Ludwigshafen a/Rh

An Referent Herrn Dr. ...
z. Kenntnis u. Prüfung
Unterschr. d. Ref.:

In Sachen der Patentanmeldung, betreffend "Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der Acetylenreihe", eingegangen am 7. September 1939, und auf die Eingabe vom 18. September 1939.

Nachstehend wird das Ergebnis der in Klasse 12 o durchgeführten Prüfung mit der Aufforderung mitgeteilt, binnen **d r e i M o n a t e n** sich zu äußern.

Die Frist beginnt mit der Zustellung.

Es ist bekannt, Verbindungen der Acetylenreihe durch Einwirken von Acetylen auf organische Verbindungen mit beweglichem Wasserstoffatom in Anwesenheit von Kupferverbindungen herzustellen (vgl. den Auszug der belgischen Patentschrift 429 527, veröffentlicht am 22. Februar 1939).

Es ist ferner bekannt, daß die katalytische Wirksamkeit des Kupfers gegenüber Acetylen, die bekanntlich zur Bildung von Cupren führt, durch die gleichzeitige Gegenwart bestimmter Stoffe aufgehoben wird (vgl. Brennstoffchemie, 1921, Seite 8).

Wenn also bei dem Verfahren der oben genannten belgischen Patentschrift der Nachteil erheblicher Störungen und mangelhafter Ausbeuten infolge Cuprenbildung auftrat, lag es für den technischen Sachverständigen offenbar ohne weiteres nahe, solche Stoffe anzuwenden, die bekanntermaßen die Cuprenbildung verhindern.

Es ist somit nicht ersichtlich, inwiefern es einer erfinderischen Leistung bedurfte, um zu dem beanspruchten Verfahren zu gelangen.

Die Bekanntmachung der vorliegenden Anmeldung kann daher nicht in Aussicht gestellt werden.

Prüfungsstelle für Klasse 12 o.

Dr. Hindemith Hindemith Ze

G.D.G.
Einschreiben

Frist 20. August

Kal.Pat.45
2.1940.50000

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabt.

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. Rh

Patentab

O.Z.11

Hauptlaboratorium

An d

Reichspatent

Berlin

Patentabteilung

tember 1939.

I 65 571 IVd/

"Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der Acetylenreihe

In unserer am 5. September eingereichten oben genannten Patentanmeldung ist uns ein Schreibfehler unterlaufen. Es muss dort auf Seite 3 in der 2. Zeile statt I 59 947 IVd/12 o heißen I 59 747 IVd/12 o. Wir bitten diesen Fehler richtigzustellen.

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

gez. ppa. Schönberg ppa. Braun

9 Sep 1939

Durchschlag

3

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

Unser Zeichen [illegible]

Ludwigshafen a. Rhein, den [illegible]. September [illegible]

Verfahren zur Herstellung von Vertretern der Acetylen

Es wurde gefunden, dass man bei der Herstellung von Verbindungen der Acetylenreihe durch Einwirkung von Acetylen auf organische Verbindungen mit beweglichem Wasserstoff in Anwesenheit von Kupfer oder Kupferverbindungen bei erhöhter Temperatur und gegebenenfalls erhöhtem Druck die Umsätze und Ausbeuten steigern und die Durchführung des Verfahrens erleichtern kann, wenn man Zusätze verwendet, die die Cuprenbildung verhindern oder vermindern.

Derartige Zusätze erweisen sich als besonders vorteilhaft bei Umsetzungen des Acetylens in der flüssigen Phase, da das Cupren leicht Ventile und Rohre/schliesst und sich in unerwünschter Weise auf den Gefässwandungen abscheidet. Bei Verwendung von Füllkörpern oder stückigen Katalysatoren kann das Cupren die Zwischenräume verstopfen. Die Wirksamkeit der Katalysatoren kann durch die Bildung von Cuprenüberzügen geschädigt oder beseitigt werden.

Als

Als besonders geeignete Zusatze zur Verhinderung der Cuprenbildung haben sich Gold, Quecksilber, Blei, Antimon, Wismut, Selen, Cer, Brom und Jod erwiesen. Sie konnen in elementarer Form angewandt werden, soweit sie nicht, wie Brom und Jod, mit dem Acetylen unter Zerstorung der dreifachen Bindung reagieren. Man kann die genannten Elemente auch in Form ihrer Verbindungen benutzen, wobei man solche Verbindungen vermeidet, die Anlagerungen an die dreifache Bindung begunstigen. Die Wirksamkeit lasst sich noch erhohen, wenn man Verbindungen mehrerer solcher wirksamer Stoffe untereinander verwendet, z.B. Quecksilber- oder Wismutjodid. An anderen geeigneten Verbindungen seien beispielsweise noch genannt: Quecksilberoxyd und -phosphat, Wismutoxyd und -hydroxyd, Wismutoxynitrat, Selenschwefel, Selendioxyd, Kalium-, Kupfer-, Silber- oder Blei[illegible]

Die Zusatze konnen im Umsetzungsgemisch gelost oder suspendiert sein. Man kann sie auch im Umsetzungsgefaß zweckmaßig zusammen mit dem Kupferkatalysator auf Tragern fest anordnen und die Umsetzungsteilnehmer daran vorbeifließen oder daruber rieseln lassen.

Die Erfindung sei nachstehend an Hand der Herstellung von Alkoholen der Acetylenreihe aus Acetylen und Formaldehyd in Gegenwart von Kupferkatalysatoren entsprechend dem Patente .... (Anmeldungen I 58 93[illegible] IVc [illegible] und I 5[illegible] 44[illegible] IVd [illegible]) beispielsweise erlautert. Sie kann indessen auch bei Umsetzungen des Acetylens mit anderen Aldehyden nach den genannten Patenten

E

mit organischen Stickstoffverbindungen z.B. nach den Patent... .... (Anmeldungen I 58 [illegible] IVd 1[illegible] und I 5[illegible] [illegible] IVd 1[illegible] und I 6[illegible] 30[illegible] IVd 12 [illegible]) oder mit Mercaptanen nach den Paten[illegible] ... ... (Anmeldung I 6[illegible] 64[illegible] IVd 1[illegible] [illegible]) benutzt w[illegible]

Bei[illegible]

Ein Gemisch aus 5[illegible] g [illegible]%iger wässriger Formaldehydlösung mit [illegible] g Kupferpulver und 0,2[illegible] g Calciumcarbonat erhitzt man in einem Rührdruckgefäß auf [illegible] und presst dann Acetylen-Stickstoff-Gemisch (Volumenverhältnis [illegible]) und 20 Atmosphären Druck ein. Durch Nachpressen von frisch[illegible] Acetylen sorgt man dafür, dass das verbrauchte Acetylen ergänz[illegible] wird. Nach Beendigung der Acetylenaufnahme filtriert man d[illegible] flüssige Umsetzungsgemisch ab. Zurück bleiben etwa 1[illegible] g eine[illegible] rotbraunen pulverigen Gemisches von Kupfer mit Cupren. Aus de[illegible] Filtrat wird zunächst unveränderter Formaldehyd und Wasser un[illegible] dann Butin-2-diol-1,4 durch Destillation gewonnen. Der Umsa[illegible] zu Butin-2-diol-1,4 beträgt [illegible] % berechnet auf eingesetzt[illegible] Formald[illegible]

Unter den gleichen Bedingungen wird die Umsetzu[illegible] unter Zusatz von 0,[illegible] g Quecksilberoxyd oder 0,[illegible] g Wismuthydroxyd oder 0,3 g Kaliumjodid oder 0,[illegible] g Wismutoxyjodid oder [illegible] Selen-Schwefel ausgeführt. Beim Aufarbeiten des Umsetzungsgemisches findet man kein Cupren und der Umsatz zu Butin-2-diol-1,4 beträgt zwischen 18 und 22 % auf eingesetzten Formaldehyd berechnet. Das Kupfer mit dem die Cuprenbildung verhindernde Stoff kann wiederholt als Katalysator für die gleiche Umsetzung von Formaldehyd mit Acetylen verwendet werden, ohne dass Cupren gebildet

376

11?

gebildet wird. Der Umsatz zu Butin-2-diol-1,4 betragt unter gleichen Bedingungen bei Zusatz von Kaliumjodid 5? %, von Wismuthydroxyd 4? %, von Quecksilberoxyd 3? % von Wismutoxyjodid 7? %.

Beispiel

Als Umsetzungsgefäß dient ein senkrecht angeordnetes druckfestes Edelstahlrohr (Länge 9?? cm, Durchmesser ?? cm), das mit 7? Liter eines in der folgenden Weise hergestellten Katalysators gefüllt ist: Kieselsäurezylinder von 4 mm Durchmesser und 1? mm Länge werden mit einer gesättigten Kupfernitratlösung getränkt, getrocknet und bis zur Aufhören der Stickoxydentwicklung auf 5??° erhitzt. Man erhält so Kieselsäurezylinder mit einem Kupferoxydüberzug (Kupfergehalt 1? %). Man läßt nun bei 1??° bis 11?° von oben über den Katalysator stündlich 1? kg 3?%ige wässrige Formaldehydlösung rieseln und leitet gleichzeitig im Gleichstrom überschüssiges Acetylengas im Kreislauf. Der Druck im Turm beträgt ? Atmosphären. In einem druckfesten Abscheider, der mit dem unteren Ausgang des Turmes in Verbindung steht, zieht man eine wässrige Lösung von Butin-2-diol-1,4 ab. Die anfangs guten Durchsätze fallen nach und nach ab, bis nach 1 ½2 Wochen das Rohr mit Cupren völlig verstopft ist.

Bei sonst gleichen Bedingungen wird die Umsetzung an einem Katalysator ausgeführt, der in folgender Weise hergestellt worden ist: 7? Liter Kieselsäurezylinder werden mit einer Lösung von 1? kg Kupfernitrat und ?,2 kg Wismutnitrat in verdünnter Salpetersäure getränkt, getrocknet und so lange auf 5??° erhitzt, bis keine Stickoxyde mehr entweichen. Anschließend werden die Zylinder mit einer Lösung von ?? g Ammoniumjodid

in 2 %iger Essigsäure berieselt und nochmals bei 30° getrocknet. Die Umsetzung liefert lange Zeit gleichbleibend gute Ausbeuten an Butin-2-diol-1,4 (etwa 90 bis 95 % in Dauerbetrieb. Noch nach 15 Wochen ist der Katalysator voll wirksam und das Rohr noch nicht durch Cupren verstopft.

Patentanspruch:

Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der Acetylenreihe durch Einwirken von Acetylen auf organische Verbindungen mit beweglichem Wasserstoffatom in Anwesenheit von Kupfer oder Kupferverbindungen bei erhöhter Temperatur, dadurch gekennzeichnet, dass man Zusätze verwendet, die die Cuprenbildung verhindern oder verzögern.

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

3759

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Patent-Abteilung
Herrn Dr. FREIENSEHNER.

Dr. Niemann

28. Juli 1939

3759

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Patent-Abteilung
Herrn Dr. FREIENSEHNER.

29. Juli 1939

Dr. Wiemann

Dr.Sth/E. 28. Juli 1939

Neuanmeldung.

Wir bitten Sie, das beifolgende Material zu einer Patentanmeldung zusammenfassen ~~zu wollen~~. Einzelne Versuchsergebnisse gehen Ihnen noch getrennt zu.

Anlage!.

Durchschlag

3754

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Ludwigshafen a.Rh., den 28. Juli 1939
Dr.Sth/E.

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Ludwigshafen a.Rh., den 28. Juli 1939
Dr.Sth/E.

Verfahren zur Verhinderung der Bildung von Kondensationsprodukten des Acetylens.

Es ist bekannt, dass sich beim Arbeiten mit Acetylen in Gegenwart von Schwermetallen oder deren Salzen, insbesondere von Kupfer und seinen Verbindungen feste Kondensationsprodukte des Acetylens (Cupren oder cuprenartige Körper, im folgenden Cupren genannt) bilden. Es ist weiterhin bekannt, dass die Bildung dieser Körper besonders leicht eintritt bei erhöhter Temperatur, bei erhöhtem Acetylendruck und in Anwesenheit von Eisen und von Sauerstoff.

Beim Arbeiten mit Acetylen in geschlossenen Reaktionsgefässen macht sich die Bildung des festen Cuprens besonders unangenehm bemerkbar und gibt zu Betriebsstörungen Anlass. Das Cupren verstopft, wenn es pulverig anfällt, Ventile und Rohre etc. oder setzt sich an den Gefässwänden und Rohren ab und erschwert so das Arbeiten.

Besonders in Gegenwart von Kupfer und seinen Verbindungen ist die Ausführung von Reaktionen mit Acetylen unter Druck und bei erhöhter Temperatur infolge der Cuprenbildung ausserordentlich erschwert und eine Ausführung von Reaktionen über weite Zeiträume fast unmöglich.

Bei chemischen Reaktionen, die in Rohren ausgeführt werden, die ausserdem mit stückigen Massen gefüllt sind (RASCHIG-Ringen,

-/-

Durchschlag

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Kontakt-Körnern), wird durch die Cuprenbildung bald eine Verengung des Rohrdurchmessers und schliesslich eine Verstopfung eintreten. Das Cupren bildet dann mit den Körnern eine ausserordentlich feste Masse, sodass ausserdem die Entleerung des Rohres auf grosse Schwierigkeiten stösst. Bei der Ausführung katalytischer Prozesse mit Katalysatoren auf Kupferbasis wird durch das gebildete Cupren die Kontaktoberfläche natürlich sehr schnell überdeckt und damit unwirksam.

Es hat sich nun gezeigt, dass man Reaktionen mit Acetylen mit organischen Verbindungen, die ein bewegliches Wasserstoffatom haben, in Gegenwart von kupferhaltigen Verbindungen durchführen kann, ohne eine Cuprenentwicklung befürchten zu müssen, wenn man dem Reaktionsgemisch solche Stoffe zusetzt, die die Cuprenbildung verhindern bzw. verzögern. In dieser Richtung wirken z.B. die Elemente und Verbindungen von Gold, Quecksilber, Blei, Antimon, Wismut, Selen, Brom, Jod, Cer etc. Aus dieser Reihe ragen besonders Quecksilber, Wismut und Jod hervor. Die Wirkung dieser Stoffe erhöht sich noch, wenn man Verbindungen der wirksamen Stoffe untereinander verwendet z.B. Quecksilberjodid, Bleijodid oder Wismutoxyjodid. Diese Stoffe sind sowohl in gelöster Form als auch in suspendierter, ungelöster Form wirksam. Beim Arbeiten mit fest angeordneten Kontakten (z.B. Rieselverfahren oder Gasphase) bringt man die die Cuprenbildung verhindernden Stoffe am besten als schwerlösliche Verbindungen auf Trägerstoffe auf. Es ist so möglich, beim Arbeiten mit Acetylen oder acetylenhaltigen Gasen eine Verstopfung des Reaktionsraumes durch Cupren weitgehendst zu vermeiden. Besonders beim

-/-

Durchschlag

kontinuierlichen Arbeiten mit Acetylen erweist sich die Verhinderung der Cuprenbildung als notwendig.

kontinuierlichen Arbeiten mit Acetylen erweist sich die Verhinderung der Cuprenbildung als notwendig.

Beispiel 1.

a) 50 Gew.-Teile 30%ige wässrige Formaldehydlösung werden mit 3 Gew.-Teilen Kupferpulver und 0,25 Gew.-Teile Kalziumkarbonat in einem Rührautoklaven auf 110° erhitzt und ein Acetylen-Stickstoff-Gemisch (15:5) bei 20 atm. eingepresst. Nach Beendigung der Acetylenaufnahme findet man als Reaktionsprodukt ca. 18 g eines rotbraunen pulverigen Gemisches von Kupfer mit Cupren. Im Formaldehyd ist etwas Butin-2-diol-1.4 gelöst. Ausbeute an Butin-2-diol-1.4 4% der Theorie auf Formaldehyd berechnet. Das durch das Cupren verunreinigte Kupfer zeigt also nur ~~nur~~ ausserordentlich geringe katalytische Wirkung auf die Umsetzung von Formaldehyd und Acetylen.

b) Setzt man dem Reaktionsgemisch 0,3 g Quecksilberoxyd zu, so kann keinerlei Cuprenbildung beobachtet werden. Auch bei Zusatz von 0,3 g Wismuthydroxyd oder von 0,3 g Kaliumjodid oder von 0,3 g Wismutoxyjodid oder 0,3 g Selen-Schwefel wird nach Beendigung der Acetylenaufnahme keine Cupren gefunden. Die Ausbeute an Butin-2-diol-1.4 beträgt hierbei ca. 18 bis 22% d.Th. auf Formaldehyd bezogen. Wird das hier gebrauchte Kupfer mit dem darauf niedergeschlagenen, die Cuprenbildung verhindernden Stoff 3-mal hintereinander als Katalysator für die Umsetzung von Formaldehyd mit Acetylen verwendet, so ist auch dann noch kein Cupren gebildet. Die Ausbeute an Butin-2-diol-1.4 steigt an und beträgt bei Kaliumjodidzusatz 56%, bei Wismuthydroxydzusatz 46%, bei Quecksilberoxydzusatz

-/-

Durchschlag

30%, bei Wismutoxyjodidzusatz 78%.

Beispiel 2.

a) Ein senkrecht angeordnetes, druckfestes Edelstahlrohr (Länge 900 cm, 12 cm Durchmesser) wird mit 70 Ltr. Kontakt gefüllt. Die Herstellung des Kontaktes erfolgt durch Tränken von Kieselsäurekörnern (zylinderförmig, 4 mm Durchmesser, 10 mm Länge) mit einer gesättigten Kupfernitratlösung, Trocknen und Erhitzen der Körner auf 500°. Man erhält so Kieselsäurestränge mit 13% Kupfer als Kupferoxyd. Bei 100° bis 110° werden nun von oben über den Kontakt pro Stunde 15 kg 30%ige wässrige Formaldehydlösung gerieselt und gleichzeitig durch den Turm ein Überschuss von Acetylengas im Kreislauf von oben nach unten geleitet. Der Druck im Turm beträgt 5 atm. In einem druckfesten Abscheider, der mit dem unteren Ausgang des Turmes in Verbindung steht, wird eine wässrige Lösung von Butin-2-diol-1.4 abgezogen. Das Kontaktrohr war bei kontinuierlichem Betrieb nach 1½ Wochen mit Cupren völlig verstopft und die Entleerung des Rohres war ausserordentlich schwierig.

b) Der Versuch wurde bei gleicher apparativer Anordnung mit einem Kontakt wiederholt, der neben Kupferoxyd noch Wismutoxyd und etwas Jod enthielt

Herstellung des Kontaktes:
70 Ltr. Kieselsäurestränge werden mit einer Lösung von 16 kg Kupfernitrat und 3,2 kg Wismutnitrat und verdünnter Salpetersäure getränkt, getrocknet und bei 300° solange gemuffelt bis keine Stickoxyde mehr entweichen. Anschliessend werden die Körner mit einer Lösung von 85 g Ammonjodid in ca. 2% Essigsäure befeuchtet und nochmals bei 300° getrocknet.

-/-

Durchschlag

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Bei Verwendung dieses Kontaktes kann die Umsetzung von Formaldehyd und Acetylen zu Butin-2-diol-1.4 mit guter Ausbeute (ca. 94 bis 95%) im kontinuierlichen Betrieb über grosse Zeiträume ausgeführt werden. Nach 15 Wochen war der Kontakt noch voll aktionsfähig und noch keine Anzeichen für Verstopfung des Kontaktrohres vorhanden.

Durchschlag

I. G. Ludwigshafe
Patentabteil

I. G. Ludwigshafen
Patentabteilung

An Hauptlaboratorium

Ihre Zeichen	Ihre Nachricht vom	Unsere Nachricht vom	Unser Haus	Unsere Zeichen	Ludwigshafen a. Rh.
				Pr/Va	den 12.8.1941.

Betreff O.Z.11758 Ameri...

Da es nicht möglich ist, die allgemeinen Ansprüche gegenüber dem Reppe-Patent zu verteidigen, müssen wir uns auf eine Art cuprenverhindernder Zusätze in der vorliegenden Anmeldung beschränken. In der Anlage übersenden wir Ihnen ein Schreiben an unsere amerikanischen Anwälte, in dem wir unsere Vorschläge für die Änderung der Ansprüche übermitteln. Dabei haben wir die Ansprüche auf die Verwendung von Wismutverbindungen, insbesondere von Wismutjodid, gerichtet.

Das als Cuprenverhinderer ebenfalls sehr geeignete Quecksilber lässt sich nicht mehr schützen, da die Durchführung des Reppe-Verfahrens in Gegenwart von Quecksilber bereits im ersten Reppe-Patent in U.S.A. beschrieben ist.

Da dieses grundlegende Reppe-Patent im übrigen einen ausgezeichneten Schutz für die Umsetzung von Acetylen mit Aldehyden und Ketonen in Gegenwart von Schwermetallacetyliden bietet, messen wir der Einschränkung der vorliegenden Anmeldung keine sonderliche Bedeutung bei. Wenn die Anmeldung auch nur in beschränkter Form zu Patent führt, so wird doch durch das Erscheinen der Patentschrift es fremden Firmen unmöglich gemacht, noch die Verwendung anderer cuprenverhindernder Stoffe, die uns nicht geschützt sind, in U.S.A. zu patentieren.

Wir bitten Sie, uns umgehend das anliegende Schreiben an Hutz and Joslin mit Ihrer Richtigkeitsbestätigung versehen zurückzusenden.

1 Anlage.

12 Aug. 1941

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT, LUDWIGSHAFEN A.RHEIN
Patentabteilung

...torium

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT, LUDWIGSHAFEN A.RHEIN
Patentabteilung

Herren
Hutz and Joslin,
New York.

Dr. Steinhofer

557

Ludwigshafen a.Rhein, den 18. August 1941.
Fr/Va.

Betr.: Walter Reppe et al - Ser.No.353,390 - O.Z.11758 - I.14,700.

Zur Erledigung der Verfügung vom 22.März ds.Js. bitten wir Sie, den G.A.P. folgende Vorschläge zu machen:

Es ist nicht möglich, das entgegengehaltene Reppe-Patent dadurch unschädlich zu machen, dass wir die Prioritätsunterlagen der vorliegenden Anmeldung einreichen, da das amerikanische Einreichungsdatum des Reppe-Patents vor dem deutschen Prioritätsdatum liegt. Das Reppe-Patent ist daher unter allen Umständen eine "valid reference" und, da es die Verwendung von Quecksilber und Silber und deren Verbindungen zusammen mit Kupferacetylid beschreibt, ist es nicht mehr möglich, für dieses Verfahren, das auch unter die vorliegende Anmeldung fällt, in U.S.A. Patentschutz zu erhalten. Auch wird es nicht möglich sein, die anderen als Cuprenverhinderer geeigneten Elemente und Verbindungen in Form eines Markush-Ausdrucks zu beanspruchen, da es nach der allgemeinen Praxis des amerikanischen Patentamts nicht möglich ist, Markush-Ansprüche aufzustellen, wenn dadurch etwas Bekanntes ausgeschlossen werden soll. Es kommt hinzu, dass sich sehr schwer ein Nachweis führen lassen wird, dass die nach Abzug des Quecksilbers verbleibenden Elemente gemeinsame chemische und physikalische Eigenschaften besitzen, die in der wissenschaftlichen Klassifizierung anerkannt sind.

Auf Grund der vorstehenden Überlegungen erscheint es uns am zweckmäßigsten, die Anmeldung auf die Verwendung von Wismutverbindungen zu beschränken, da, wie aus den Beispielen hervorgeht, die Verwendung von Wismutverbindungen als Cuprenverhinderer die am ausführlichsten behandelte Ausführungsform der Erfindung ist. Besonderes Gewicht wäre dabei auf die Verwendung von Wismutjodid zu legen. Dementsprechend schlagen wir vor, folgende Änderungen in den Ansprüchen vorzunehmen.

In den Ansprüchen 1 und 2 ist in den letzten beiden Zeilen der Ausdruck "substance preventing the formation of cuprene" zu ersetzen durch compound of bismuth. Im Anspruch 3 ist in den letzten drei Zeilen der Ausdruck "substance containing ..... iodine" zu ersetzen durch halogen compound of bismuth

Im

16 AUG 1941

Herren
Hutz and Joslin,
New York.

Herren
Hutz and Joslin,
<u>New York.</u>

Im Anspruch 4 ist an Stelle des Ausdrucks "substance containing ...... iodine" zu setzen <u>iodine compound of bismuth.</u> Im Anspruch 6 schlagen wir vor, in der vorletzten Zeile zu streichen "substance containing" und hinter "bismuth" in der letzten Zeile einzufügen <u>oxide.</u> Die Ansprüche 5 und 7 sind zu streichen.

Durch die vorstehend vorgeschlagenen Änderungen werden auch die anderen Beanstandungen des Bescheids erledigt. Auch die vom Prüfer verlangte ~~Election~~ ist durch die Beschränkung der Ansprüche auf Wismutverbindungen bereits vorgenommen worden.

Hochachtungsvoll

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

[illegible] gez. Schönberg

Bitte um Rückgabe an Patentabteilung

3762

DEPARTMENT OF COMMERCE
UNITED STATES PATENT OFFICE
WASHINGTON

... below a communication from the EXAMINER in ...

Bitte um ~~Rückgabe an~~ Patentabteilung

376

4898-C | Zitvertr. 3 | Paper No. 2

DEPARTMENT OF COMMERCE
UNITED STATES PATENT OFFICE
WASHINGTON

Find below a communication from the EXAMINER in charge of this application.

Commissioner of Patents.

Applicant: Walter Reppe et al
Ser. No. 353,390
Filed August 20, 1940
For PRODUCTION OF ALKINOLS.

Mutz and Joslin
521 Fifth Avenue
New York, N. Y.

MAILED MAR 2? 1941

Dr. Steinhofer

This application has been examined and the following reference is made of record:-

Reppe et al 2,232,867 Feb. 25, 1941 260-638
(Filed Aug. 9, 1938)

Claims 1 to 5 are rejected as being unpatentable over Reppe et al, who disclose the liquid phase reaction of acetylene and carbonyl compounds in the presence of copper acetylide and compounds of silver or mercury (page 2, top of column 1).

Claims 1 and 2, furthermore, distinguish over the Reppe et al patent, if at all, only in the functional expression "a substance preventing the formation of cuprene". The mere recitation of result does not render the claim patentable over the prior art. See In re Gaunt 1936 C. D. 205.

Claims 3 and 4 are further rejected as including improper "Markush" groups. Only substances having a community of chemical and physical characteristics definitely recognized in scientific classification may properly be placed in the same "Markush" group. Ex parte Burke, 1934 C. D. 5. The burden is on applicants to show that such community of characteristics exists.

Claims 1 to 7 are rejected as being indefinite and too broad in the expression "a substance containing". This would include substances having only very minor proportions of the named elements, as well as substances containing other constituents which might tend to hinder the reaction.

In the absence of an allowable generic claim election ...

RETAINED
JOSLIN

... tend to hinder the reaction.

... in the absence of an allowable generic claim election

Serial No. 353,390 2.

of a single species is required from among the following:

(I) Performing the reaction in the presence of mercury.
(II) Performing the reaction in the presence of bismuth.
(III) Performing the reaction in the presence of iodine.

Applicants' response to be complete under Order No. 3527 must include an election of species or a statement that in their opinion all claims are in fact readable on a designated species which applicants must identify.

Examiner.

DUE FOR REPLY: SEP 22 1941

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

No. [illegible]

Unser Zeichen O.Z. 1040

Ludwigshafen a/Rh., [illegible] August 1937 K/Sp.

Verfahren zur Herstellung von Methylolverbindungen.

Es wurde gefunden, dass man Methylolverbindungen mit dreifach gesättigter Kohlenstoffbindung in ausserordentlich einfacher Weise mit sehr guten Ausbeuten erhält, wenn man Aldehyde mit Acetylen in Gegenwart eines Katalysators und einer kondensierend wirkenden Verbindung umsetzt.

Die Umsetzung verläuft besonders leicht bei mässig erhöhter Temperatur, beispielsweise 50-150°. Sie kann bei gewöhnlichem, vermindertem oder erhöhtem Druck durchgeführt werden.

Als Katalysatoren kommen insbesondere Schwermetalle der 1. und 2.Gruppe des periodischen Systems und ihre Verbindungen, vor allem Kupfer und dessen Salze, wie Kupferchlorid, Kupferchlorür, Kupferacetat, Kupferformiat und Acetylen-Kupfer-Verbindungen in Betracht.

Als kondensierende Mittel eignen sich vorzugsweise schwach alkalische bis praktisch neutrale Stoffe, wie Formiate, Acetate, Carbonate und Bicarbonate der Alkalien, Erdalkalien und des Magnesiums. Auch stärker basische Stoffe, wie beispielsweise Calcium- oder Bariumhydroxyd können Verwendung finden.

Häufig ist es zweckmässig, die Katalysatoren und kondensierend wirkenden Mittel in Gegenwart von Lösungs-, Verdünnungs- bezw. Suspensionsmitteln zu benutzen. Als solche eignen sich insbesondere Alkohole, Äther und Kohlenwasserstoffe. Überdies wird die Acetylenaufnahme begünstigt durch Zusatz von großoberflächigen Stoffen, wie Kieselgur, Kieselgel, aktiver Kohle u.s.w.

O.Z.1040.

Neben reinem konzentriertem Acetylen eignet sich auch

C.2.104C

Neben reinem konzentriertem Acetylen eignet sich auch das Acetylen in Verdünnung mit inerten Gasen, wie Stickstoff oder Wasserstoff. Solche verdünnten acetylenhaltigen Gemische können vor allem dann Verwendung finden, wenn die Umsetzung unter Druck ausgeführt wird. Als verdünntes Gas kommt beispielsweise das durch thermische Zersetzung von Kohlenwasserstoffen, beispielsweise das im elektrischen Lichtbogen erhaltene Acetylen, das neben Wasserstoff etwa 20% Acetylen enthält, in Frage.

Die Umsetzung erfolgt unter Anlagerung des Acetylens an den Aldehyd, beispielsweise bei Verwendung von Formaldehyd in folgender Weise $HC{:}CH + 2\ CH_2O \longrightarrow HOCH_2.C{:}C.CH_2OH$.

Das Verfahren kann kontinuierlich und diskontinuierlich ausgeführt werden.

Man erhält so mit sehr guter Ausbeute die als Zwischenprodukt infolge ihrer ausserordentlichen Reaktionsfähigkeit sehr wertvollen Methylolacetylenverbindungen.

Beispiel

20 g kristallisiertes Kupferformiat werden in 500 ccm 40%igem Formaldehyd gelöst und 20 g frischgefälltes Calciumcarbonat zugesetzt. Die so erhaltene Mischung wird in ein druckfestes Gefäß eingefüllt und bei 80 - 100° mit einem Gemisch aus 2 Teilen Acetylen und 1 Teil Stickstoff bei einem Druck von 15 - 20 Atm. behandelt. Das durch die Umsetzung verbrauchte Acetylen wird durch Nachpressen von unverdünntem Acetylen fortlaufend ergänzt. Nach etwa 12 Stunden ist die theoretisch erforderliche Menge Acetylen aufgenommen. Das während der Umsetzung gebildete Acetylenkupfer und das Calciumcarbonat werden sodann abfiltriert. Das Filtrat wird im Vakuum destilliert. Nachdem

C.2.104C

das vorhandene Wasser übergegangen ist, destilliert bei 125-127°

das vorhandene Wasser übergegangen ist, destilliert bei 125-127° unter 2 mm Hg-Druck das durch die Umsetzung gebildete 1.4-Butindiol über. Dieses kristallisiert in weissen glänzenden Plättchen. Sein Schmelzpunkt ist 58°, die Ausbeute ist nahezu quantitativ. Statt des Stickstoffs kann man zur Verdünnung des Acetylens auch andere Gase, beispielsweise Kohlenoxyd, verwenden.

Patentanspruch

Verfahren zur Herstellung von Methylolverbindungen mit dreifach ungesättigter Kohlenstoffbindung, dadurch gekennzeichnet, dass man Aldehyde mit Acetylen in Gegenwart eines Katalysators und einer kondensierend wirkenden Verbindung umsetzt.

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

3767

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

Ø Hauptlaboratorium

Patentanwalts-Bureau
E. B l u m & C o .,
Z ü r i c h (Schwei),
Bahnhofstr.31.

29. Nov. 1941.

Dr. Steinhofer

Techn.Büro Dr.St./Kn. 17.11.1941 Patentabt.Fr/Va. den 29. Nov. 1941.
Anmeldung Schweiz 58 678 - O.Z.11758 -
"Verfahren zur Herstellung von Alkoholen der Acetylenreihe".

Die Voraussetzung, an die nach Ihrem Schreiben vom 17.November 1941 die Beibehaltung des jetzigen Umfangs der Anmeldung gebunden ist, trifft zu. Aus der französischen Patentschrift 781 500 ist die Umsetzung von Acetylen mit Aldehyden und Ketonen bereits bekannt. Dementsprechend bitten wir, vor dem 1.Absatz der Beschreibung folgendes einzufügen:

"Es ist bekannt, Alkohole der Acetylenreihe durch Einwirkung von Acetylen auf Aldehyde oder Ketone in Gegenwart von Kupfer oder Kupferverbindungen bei erhöhter Temperatur, gegebenenfalls unter erhöhtem Druck, herzustellen."

In der ersten Zeile des bisherigen Absatzes 1 wäre dann hinter "wurde" einzufügen "nun".

Hochachtungsvoll
I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT
gez. Holdermann gez. i.V. Pattel

29. NOV. 1941

Durchschlag

3768

Patentanwalts-Bureau E. BLUM & Cie. ZURICH, Bahnhofstraße 3
Gegründet 1877 Eingang St. Peterstraße

Telegramm-Adresse: PATENT ZURI... Postcheck-Konto VIII/1...
Patent Code 2. Ed... Telephon 51.6...

Abt. Techn. Büro Dr. St... Zürich, den 17. Nov. 19...
In der Antwort gef. angeben

3768

Patentanwalts-Bureau E. BLUM & CO. ZURICH, Bannhofstraße 3
Gegründet 187
Eingang St. Peterstraße

Telegramm-Adresse: PATENT ZÜRICH
Patent Code 2. Ed.

Postcheck-Konto VIII/1
Telephon 51.6

Abt. Techn. Büro Dr. St.
In der Antwort zu wiederh.

Man bittet, für technische Erörterungen nur ein Objekt per Brief zu behandeln unter bezg. Textübersc.

Zürich, den 17. Nov. 194.

I.G. Farbenindustrie Aktiengesellschaft
Patentabteilung

Ludwigshafen

Betr. Anmeldung Schweiz 56 676.- "Verfahren zur Herstellung von Alkoholen der Acetylenreihe."
O.Z. 12 7..

In dieser Sache erhalten Sie den beiliegenden ersten Bescheid, in welchem der Prüfer mitteilt, dass von der Beschränkung des Anmeldungsgegenstandes nur noch dann abgesehen werden kann, wenn die Herstellung von Alkoholen der Acetylenreihe durch Einwirken von Acetylenen auf Aldehyde oder Ketone an sich bereits bekannt war, was jedoch in der Beschreibung ausdrücklich gesagt werden müsste. Es würde sich dabei um ein sogenanntes Arbeitsverfahren handeln, bei welchem die Erfindung in der nicht chemischen Änderung eines bekannten Prozesses liegt.

Die Frist zur Beantwortung des Bescheides läuft am 12. Jan. 1942 ab und kann um einen Monat kostenpflichtig verlängert werden.

Hochachtungsvoll
Sig. E. Blum & Co.

1 Verfügung
1 Briefdoppel

EINSCHREIBEN

Form. 50 – L 37 – 100000

Abschrift

3769

Eidg. Amt
geistiges Eigentum

Bern, den .. Nov. 19..

Abschrift

Eidg. Amt für
geistiges Eigentum
Pa.

Bern, den [illegible] Nov. 19[illegible]

Herrn [illegible] Bl[illegible]

[illegible]

A. Gesuchst. I.G. Farbenindustrie A.G., Frankfurt a.
Gesuch No. 5889[illegible] 2[illegible]. Juli 194[illegible]

Frist [illegible]

Von einer Beschränkung des Gesuches gemäss Art. 6, zweites Alinea, des Patentgesetzes kann nur abgesehen werden, wenn die Herstellung von Alkoholen der Acetylenreihe durch Einwirken von Acetylenen auf Aldehyde oder Ketone an sich bereits bekannt ist, und dies in der Beschreibung deutlich gesagt wird. Wir gewärtigen Ihre diesbezügliche Stellungnahme.

Hochachtungsvoll
Eidg. Amt für
geistiges Eigentum
i.A. der Adjunkt
sig. Hornann

Beilg.
1 Beschreib.

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

3770

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A.RH. 3770

Patentabteilung

Ø Hauptlaboratorium

1942

Patentanwalts-Bureau
E. B l u m & C o . ,
Z ü r i c h (Schweiz),
Bahnhofstr.31.

Hp Dr Steinhofer
Spänig Hp

Techn.Büro 23.1.1942 Patentabt.Fr/Va. den 19. Februar 1942.
Dr.St/Kn.

Anmeldung Schweiz 58 878 - O.Z.11758 -
"Verfahren zur Herstellung von Alkoholen der Acetylenreihe".

Wir bitten Sie, bei der Beantwortung des Bescheids vom 20.Januar 1942 sich mit den im 1.Punkt vorgeschlagenen Änderungen einverstanden zu erklären.

Punkt 2 bitten wir dadurch zu erledigen, dass in der 3.Zeile des letzten Absatzes auf Seite 2 hinter dem Wort "Kupferkatalysatoren" eingesetzt wird ",die unter den Verfahrensbedingungen ganz oder zum Teil in Kupferacetylid übergehen". In der letzten Zeile des gleichen Absatzes muss es "nach dem genannten Patent" heißen.

Im Beispiel 1 bitten wir, in Zeilen 10 und 21 jeweils hinter "Kupfer" einzufügen "bezw. Kupferacetylid".

Im Beispiel 2 bitten wir, in Zeile 13 hinter "Kreislauf" einzufügen: "Dabei geht das Kupferoxyd in Kupferacetylid über".

Hochachtungsvoll

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

gez. Holdermann ppa. Kleber

11.Feb.1942

Durchschlag

3770

Patentanwalts-Bureau E. BLUM & CO. ZÜRICH. Bahnhofstraße
Gegründet Eingang St. Peterstraße

Postscheck-Konto VIII

Patentanwalts-Bureau E. BLUM & Co. ZÜRICH Bannhofstraße 1
Gegründet
Eingang St. Peterstraße
Postcheck-Konto VIII/
Telegramm-Adresse: PATENT ZÜ
Patent Code 2 r.
Telephon 512

Abt. ...

I.G. Farbenindustrie Aktiengesellschaft
Patentabteilung
Ludwigshafen.

Betr. Anmeldung Schweiz 58 876.- I.G. 11 756
"Verfahren zur Herstellung von Alkoholen der Acetylenreihe."

In dieser Sache ist der beiliegende weitere Bescheid herausgekommen, der bis zum 2. April a.c. beantwortet werden muss.

Zu Punkt 1 des Bescheides schlägt der Prüfer vor, die Zeilen 7 - 9 auf Seite 2 (Stelle A) wie folgt abzuändern. "genannten Elemente aber auch in Form ihrer Verbindungen benutzen, wobei man zweckmässig solche Verbindungen vermeidet, die Tendenz zur Anlagerung an das Acetylen haben"

Im zweiten Punkt des amtlichen Schreibens verweist der Prüfer darauf, dass aus den Ausführungen im ersten Satz des letzten Absatzes auf Seite 2 geschlossen werden muss, dass in den folgenden Beispielen stets Acetylenkupfer als Katalysator für die Reaktion verwendet werden soll, was jedoch aus diesen nicht hervorgeht. Sollte daher stets Acetylenkupfer verwendet werden, so müsste in den Beispielen ein entsprechender Hinweis aufgenommen werden, andernfalls wäre die Stelle B im letzten Absatz der Seite 2 entsprechend klarzustellen.

Wir bitten Sie, uns Ihre Weisungen rechtzeitig vor Fristablauf zukommen zu lassen, und verbleiben

hochachtungsvoll

E. Blum & Co.

1 Verfügung 1.
1 Briefdopp.
EINSCHREIBEN

Telephongespräche haben, solange nicht schriftlich bestätigt, keine rechtliche ...

Abschr.

Eidg. Amt
geistiges Eig.
Pat

Bern, den 20. Jan. 19..

Herren E. Blum & Co.
Zürich

II. Beanstandung. I.G. Farbenindustrie A.G., Frankfurt a.M.
Gesuch No. 58878 29. Juli 1940. 19 Uhr

Frist: 3 Monat

1. Nachdem es sich bei dem beanspruchten Verfahren um eine Anlagerung von Aldehyden oder Ketonen an Acetylen handelt, muss im Passus A der Beschreibung noch klargestellt werden, inwiefern die zuvor genannten Zusätze Anlagerungen an die dreifache Bindung nicht begünstigen sollen. Wir verweisen auf unsern diesbezüglichen Vorschlag.

2. Nach Anführung des Patentes Nr. 20963.. an der Stelle B der Beschreibung müsste in den nachfolgenden Beispielen Acetylenkupfer als Katalysator für die Anlagerungsreaktion verwendet werden. Es geht dies jedoch aus den Beispielen nicht hervor. Wenn bei den betreffenden Arbeitsweisen tatsächlich Acetylenkupfer als Katalysator auftritt, so ist dies in den Beispielen ausdrücklich zu sagen.

Hochachtend
Eidg. Amt für geistiges Eigentum
I.A. Adjunkt.

Graf

Beilage:
1 Beschreibung.

kop. Se.23.1.42.

TITLE PAGE

11762
Sept. 1939 - April 1940

Verfahren zur Herstellung von sauren Schwefelsaeureestern hoehermoekularer, Hydroxylgruppen enthaltender Verbindungen.

Preparation of acid sulfonic-acid esters of high-molecular compounds containing hydroxyl groups.

Frame Nos. 3773 - 3794

3773

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Patent-Abteilung.

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH. 3773

Hauptlaboratorium

Patent-Abteilung.

Lu/Si. 21.3.40 Dr.Fh/E. 16.April 1940

O.Z. 6164 - 8 i J. 10.30 - Deutschland.
O.Z.11762 - J.65 587 IVd/12 o - Deutschland.

Wir sind der Ansicht, dass aus dem Beispiel 2 unserer Anmeldung O.Z. 6164 ein Verfahren zum Waschen von Wolle in neutraler oder schwach saurer Lösung abgeleitet werden kann. Da die Verwendung der von uns beschriebenen Stoffe zu diesem bestimmten Zweck u.W. noch nicht bekannt war, erscheint uns die Beschränkung des Patentanspruchs auf diesen Verwendungszweck für die Carboxylgruppen freien Produkte noch patentfähig. Die im Beispiel 1 beschriebenen Schwefelsäureester von α-Oxycarbonsäuren sind dagegen noch nicht als kapillaraktive Mittel verwendet worden und ihre Verwendung könnte u.E. daher noch allgemein geschützt werden.

Im Übrigen sind wir damit einverstanden, dass Sie die Angelegenheit gelegentlich mit dem Prüfer besprechen.

Entgegen Ihrer Ansicht fallen die Lara-Produkte, die in den ersten Unterlagen Beispiel 2 erwähnt sind, auch unter den ursprünglichen Anspruch unserer Anmeldung, da auf Seite 2, Zeile 8 von unten ausdrücklich darauf verwiesen ist, dass die Schwefelsäureestergruppe nicht direkt mit der aliphatischen Kette verbunden zu sein braucht, sondern auch durch Vermittlung von Substituenten mit ihr verbunden sein kann. Wegen einer besser verständlichen Fassung des Anspruchs bitten wir um Ihre Vorschläge.

gez. Fuchsläufer
" Hofmann
" (Kalkalla)
" (Kapper)

Durchschlag

I. G. Ludwigshafen 3774

Patentabteilung

An

Hauptlaboratorium.

Dr. Hau...

3774

I. G. Ludwigshafen

Patentabteilung

An

Hauptlaboratorium.

Dr. Ha...

Ihre Zeichen	Ihre Nachricht vom	Unsere Zeichen	Tag
Dr.Ph/E.	9.3.40	Lu/Si.	21. März 1940.

Betreff O.Z. 11762 - I.65 567 IVd/12 o - Deutschland.

Wir haben Ihren Vorschlag, die obengenannte Anmeldung nochmals neu einzureichen, geprüft und sind dabei zu der Erkenntnis gekommen, dass ein solches Vorgehen keinen Vorteil brächte. Die Herstellung von lanaartigen Erzeugnissen durch gleichzeitige oder nachträgliche Einführung von Sulfonsäuregruppen in Monofettsäureester von Glycerin und anderen mehrwertigen aliphatischen Alkoholen ist in unserer französischen Patentschrift 702 526 beschrieben, die auf unsere Anmeldung O.Z. 6046 (aus der O.Z. 11762 abgezweigt worden war) und auf die Golfener Anmeldung I. 39 550 zurückgeht. Die der Anmeldung O.Z. 11762 zu Grunde liegende Arbeitsweise (Verestern von Glycerin mit Schwefelsäure und anschliessende Umsetzung mit einer höhermolekularen Fettsäure) ergibt sich auf Grund der Beschreibung der genannten französischen Patentschrift ganz zwanglos. In Beispiel 8 wird Glycerin in einem beträchtlichen Überschuss von Schwefelsäure gelöst, und anschliessend Abietinsäure zugegeben. Da die Veresterung mit anderen höhermolekularen und insbesondere auch Fettsäuren den wesentlichen Gegenstand der französischen Patentschrift bildet, kann demgegenüber die Anmeldung eines Verfahrens im Sinne der zurückgezogenen Anmeldung O.Z. 11762 schon wegen Nichtneuheit keine Aussicht auf Patenterteilung haben.

Eine Wiederaufnahme des Prüfungsverfahrens der Verwendungsanmeldung O.Z. 6164 wäre zur Zeit möglich, da die entgegenstehende Anmeldung O.Z. 5527 von den ihr als ältere Rechte entgegengehaltenen fremden Anmeldungen inzwischen abgegrenzt worden ist und somit nur noch eine Abgrenzung unserer beiden Anmeldungen gegeneinander erforderlich wäre. Allerdings ist durchaus noch nicht sicher, ob der Prüfer der Anmeldung O.Z. 5527 mit der vorgeschlagenen Abgrenzung einverstanden sein wird. Eine Weiter-

formell

-2-

3775

I.G. Ludwigshafen

Patentabteilung

Hauptlaboratorium.

Unsere Zeichen	Tag	Blatt
Lu/Si.	21.3.40	-2-

behandlung von O.Z.6164 durch Ausscheidung eines im Sinne Ihres Vorschlages auf Schwefelsäureester von Carbonsäuren gerichteten Teils ist ohne Aufforderung des Prüfers zur Teilung nicht möglich. Mit Rücksicht auf den noch nicht festliegenden Umfang von O.Z. 5527 halten wir es im Augenblick auch für untunlich, durch Einreichung eines uneinheitlichen und von dem derzeit vorliegenden Anspruch von O.Z. 5527 abgegrenzten Anspruchs vom Prüfer ein Verlangen nach Teilung von O.Z. 6164 herbeizuführen.

Im übrigen bemerken wir, dass der von Ihnen vorgeschlagene Anspruch Erzeugnisse von der Art des Waschmittels Lana kaum umfasst, denn der mehr als 10 Kohlenstoffatome enthaltende Rest ist kein Kohlenwasserstoffrest.

Es ist schliesslich ungewiss, wie weit die allgemeine Beschreibung der ursprünglichen Unterlagen von O.Z. 6164 und die Erwähnung des Schwefelsäureesters des Butylenglykolmonopalmitinsäureesters am Ende des ursprünglichen Beispiels 2 eine genügende Grundlage zu bilden vermögen, bei der Weiterverfolgung der Anmeldung einen Verwendungsanspruch gewährt zu erhalten, der es ermöglichte, gegen den Vertrieb von Lana vorzugehen.

Schliesslich spielt hier noch die Frage herein, wie weit in der Verwendung derartiger Verbindungen gegenüber dem nicht vorveröffentlichtem Herstellungspatent der Dehydag 635 903 (vgl. insbesondere die Einleitung) das Vorliegen einer selbständiger Erfindung geltend gemacht werden kann. Bekanntlich ist eine Erfindung nur einmal schützbar; dies bedeutet im vorliegenden Fall, dass durch die Erteilung des genannten älteren Herstellungspatents die Gewährung eines Verwendungspatents auf Grund derselben technischen Wirkung nicht mehr möglich ist. Wenn auch der Prüfer eine derartige Beanstandung noch nicht erhoben hat, ist dieser Sachverhalt schon jetzt zu berücksichtigen, und zwar umsomehr, als der Einwand der Doppelpatentierung einem Schutzrecht während dessen gesamter Laufdauer entgegensteht und jederzeit als Nichtigkeitsgrund angeführt werden kann.

-3-

I.G. Ludwigshafen
Patentabteilung

Hauptlaboratorium.

Unsere Zeichen: Lu/Si. Tag: 21.3.40 Blatt: -3-

Wennwir angesichts der vorstehend geschilderten Umstände, die die Erlangung eines gegen den Vertrieb von Lana mit Erfolg anwendbaren Patents als zweifelhaft erscheinen lassen, trotzdem versuchen wollen, die Prüfung der Anmeldung C.D. 6164 zu beschleunigen, wäre es am besten, unter Hinweis auf das Alter dieser sowie der entgegenstehenden Anmeldung C.D. 5527 dem Prüfer vorzuschlagen, die ganze Angelegenheit anlässlich der Anwesenheit eines unserer Vertreter in Berlin in einer mündlichen Besprechung zu behandeln.

gez.Luber
Sch(önberg)
H(oldermann)

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Patent-Abteilung.

3777

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Patent-Abteilung.

F. 7.2.40 Dr.Han/E. 13. März 1940

O.Z.11 727 abgesw.aus O.Z.9831; O.Z.11 762/3 abgesw.aus O.Z.6046.

Die Erfinder von O.Z. 6046 sind Dr. GÜNTHER und Dr. HAUSSMANN. Von ersterem stammt der allgemeine Auftrag, über Waschmittel zu arbeiten, von Herrn Dr. HAUSSMANN der Gedanke, mehrwertige Alkohole mit Fettsäuren einerseits zu verestern und andererseits zu sulfieren, sowie die experimentelle Bearbeitung der Anmeldung.

gez. Hansmann
(Dr. Hansmann)

Durchschlag

3778

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Patent-Abteilung.

11. März 1940

Sehr eilig

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Patent-Abteilung.

11 März 1940

Sehr eilig

Dr. Fh/E. 9. März 1940

O.Z. 11 762 - J.65 587 IVd/12 o - Deutschland.

Auf der 54. T.H.K.-Sitzung wurde von Wolfen darauf hingewiesen, dass auf die gleichzeitige Umsetzung von Glycerin, Schwefelsäure und Fettsäure (Anmeldung J.39 550 IVa/12 o 4), die für uns gegen das Konkurrenzprodukt Lama von grosser Wichtigkeit ist, vom Beschwerdesenat ein Patent erteilt worden ist.

Im Hinblick auf diese Sachlage ist es nun aber notwendig, möglichst alle Wege, die zu einem lamaähnlichen Produkt führen können, zu blockieren. Eine dieser Möglichkeiten, die im übrigen technisch ohne weitere Schwierigkeit durchführbar ist, wurde in O.Z. 6046 bzw. in der daraus abgezweigten Anmeldung O.Z.11762 beschrieben und betrifft die Umsetzung von Glycerin mit Schwefelsäure zum Dischwefelsäureester und anschliessend die Umesterung einer der Schwefelsäureestergruppen mit einer höhermolekularen Fettsäure. Der Prüfer hatte die Patentfähigkeit dieser Arbeitsweise abgelehnt, weil in den ursprünglichen Unterlagen von O.Z. 6046 für diese Arbeitsweise keinerlei "substanziierten" Unterlagen gegeben waren. Beschwerde gegen diese Verfügung des Prüfers haben wir nicht erhoben, da uns das Schicksal der Wolfener Anmeldung nicht bekannt war. Wolfen, das wir durch Schreiben auf diese Verfügung des Prüfers besonders aufmerksam gemacht hatten, hat unverständlicherweise ebenfalls keine Beschwerde eingelegt bzw. hat es versäumt, uns zu benachrichtigen.

Wir bitten Sie nun, im Hinblick auf diese Wolfener Anmeldung zu prüfen, ob nicht versucht werden sollte, die abgezweigte Anmeldung O.Z. 11 762 als Neuanmeldung von neuem einzureichen, um, wie bereits erwähnt, einen möglichst grossen Schutzumfang für diesen Gebiet zu erhalten. Als generellen technischen Fort-

-/-

Durchschlag

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Patent-Abteilung II
O.Z.11762-J.65587 IVd/12o-Deutschland 9.3.40 Dr.Fh/E.

schritt möchten wir anführen, dass die Fettsäuren bei dieser Reaktion nicht mit dem eigentlichen Sulfierungsmittel, sondern ledig-

3779

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Patent-Abteilung II
O.Z.11762-J.65587 IVd/12o-Deutschland 9.3.40 Dr.Fh/E.

schritt möchten wir anführen, dass die Fettsäuren bei dieser Reaktion nicht mit dem eigentlichen Sulfierungsmittel, sondern lediglich mit dem fertig gebildeten Schwefelsäureester in Berührung kommt, sodass eine weitgehende Schonung der Fettsubstanz erreicht wird, bzw. ohne Schaden für das Umsetzungsprodukt mit sehr starken Sulfierungsmitteln gearbeitet werden kann.

Wir möchten Sie weiterhin in diesem Zusammenhang auf unsere Anmeldung O.Z. 6164 verweisen, die unter anderem auch die Verwendung Lana-ähnlicher Stoffe unter Schutz stellt. Diese Anmeldung befindet sich noch im Prüfungsverfahren, das allerdings seit Dezember 1935 ausgesetzt ist. Es wäre u.E. günstig, wenn man beim Patentamt die baldige Wiederaufnahme des Prüfungsverfahrens für O.Z.6164 erreichen könnte. Wir empfehlen dazu die Abzweigung einer Anmeldung mit folgendem Patentanspruch:

" Verwendung von Schwefelsäureestern aus aliphatischen oder cycloaliphatischen Carbonsäuren oder deren Estern, die mindestens einen Kohlenwasserstoffrest enthalten, der, von der OSO_3H-Gruppe ab gerechnet, mehr als 10 Kohlenstoffatome aufweist, als Wasch-, Reinigungs- und Dispergiermittel ".

Dieser Teil der Anmeldung wird u.E. von der prioritätsälteren Anmeldung J. 37 737 IVa/8 o nicht betroffen, sodass eine Wiederaufnahme des Prüfungsverfahrens für diese abgezweigte Anmeldung möglich sein müsste.

i.A. Fürhäuser
" Hauptmann
" Rieffer)

Durchschlag

3780

I. G. Ludwigshafe
Patentabteilu

An

Hauptlaborat...

3780

I. G. Ludwigshafe[illegible]

Patentabteilu[illegible]

An

Hauptlabor[illegible]

Ihre Zeichen	Ihre Nachricht	Unsere Zeichen	Tag
			[illegible]

Betreff C.[illegible]

[illegible] B[illegible]

meldung nimmt [illegible] wurde [illegible]

ner Gründer [illegible]

versicht werden [illegible] Weiterführung

der Anmeldung [illegible] erteilt [illegible]

ben in Sachen der [illegible] .604 [illegible]

Anmeldung [illegible] vom [illegible] Wir bitten Sie, uns bis spä-

testens 1.[illegible].70 mitzuteilen [illegible] befürworten

oder auf die Weiterführung der Anmeldung verzichten.

[illegible]

3781

15. Dezember 1939

3781

Reichspatentamt

Aktenzeichen: J 65 587 IVd/12o

Geschäftsnummer P.A.: 859 248

Vorstehende Angaben sind bei allen Eingaben und Zahlungen erforderlich.

Reichsbank-Girokonto, Postscheckkonto: Nr. 2 Berlin, Bankkonto: 20073 bei der Brandenburgischen Provinzialbank und Girozentrale, Berlin.

Ihr Zeichen: 11 762

Berlin SW 61, den 15. Dezember 1939
Gitschiner Straße 97-103
Fernsprecher: 17 48 21

An
I.G. Farbenindustrie Akt.-Ges.
Patentabteilung
in Ludwigshafen a.Rh.
Anilinfabrik

Dr. Haussmann

An Referent Herrn Dr. ... z. Kenntnis u. Prüfung. Unterschrift erb.

Hauptlaboratorium

Patentabteilung 1.2.40

G.D.G.

[redacted]

Beschluß

Die am 11. September 1939 eingegangene Patentanmeldung der I.G. Farbenindustrie Aktiengesellschaft in Frankfurt a. M., betreffend:

" Verfahren zur Herstellung von sauren Schwefelsäureestern höhermolekularer Hydroxylgruppen enthaltender Verbindungen "

wird auf Grund des § 29 des Patentgesetzes zurückgewiesen.

Gründe.

Anmeldungsgegenstand ist entsprechend dem mit der Eingabe vom 12. Dezember 1939 vorgelegten Anspruch ein Verfahren zur Herstellung von sauren Schwefelsäureestern höhermolekularer, Hydroxylgruppen enthaltender Verbindungen, das dadurch gekennzeichnet ist, dass man mehrwertige aliphatische Alkohole unter Erhaltung mindestens einer freien Hydroxylgruppe mit Schwefelsäure verestert und die erhaltenen Ester mit gesättigten aliphatischen oder hydroaromatischen Carbonsäuren oder ihren veresternd wirkenden Abkömmlingen umsetzt.

Der Anspruch deckt sich inhaltlich, jedoch in

/2/

1. Feb. 1940

Gegen den Beschluß kann gemäß § 34 des Patentgesetzes innerhalb eines Monats nach der Zustellung Beschwerde eingelegt werden. Diese muß aber vor Ablauf der Frist beim Reichspatentamt eingegangen sein. Mit der Beschwerde ist zugleich die tarifmäßige Gebühr von 20 RM unter Angabe des Aktenzeichens und der Bezeichnung als Beschwerdegebühr an das Reichspatentamt, Amtskasse möglichst bargeldlos zu entrichten. Erfolgt die Zahlung nicht rechtzeitig, so gilt die Beschwerde als nicht erhoben.

Kl. Pat. 4
11. 1938. 10000

3782

- 2 -

klargestellterer Form mit dem in der vorliegenden Anmeldung erstmalig eingereichten Anspruch. Dem so beanspruch-

klargestellterer Form mit dem in der vorliegenden Anmeldung erstmalig eingereichten Anspruch. Dem so beanspruchten Gegenstand kann daher, entsprechend dem Bescheid vom 5. Oktober 1939 der beanspruchte Anmeldungstag vom 17. Dezember 1929 zuerkannt werden. Im Hinblick auf die nachstehenden Ausführungen braucht nicht näher auf die Tatsachen eingegangen zu werden, da der mit Eingabe vom 12. Dezember 1939 eingereichte Anspruch aufgehoben ist. (Es läßt sich nämlich aus diesem Anspruch nicht erkennen welche besonderen Maßnahmen erforderlich sind, um bei der Schwefelsäurebehandlung des mehrwertigen Alkohols zu erreichen; dass nur eine freie Hydroxylgruppe und nicht etwa mehrere oder alle OH-Gruppen mit Schwefelsäure verestert werden).

Die Zurückweisung der Anmeldung hat vielmehr aus einem anderen, im Bescheid, vom 5. Oktober 1939 bereits angeführten Grunde zu erfolgen, nämlich der mangelnden Offenbarung des Gegenstandes der vorliegenden Anmeldung in substanzierter Form in den ersten Unterlagen der Anmeldung J 40 166 IVd / 12o, aus der die vorliegenden Anmeldung unter Beanspruchung des dortigen Anmeldungstages ausscheiden ist. Wie in der bereits angeführten Beschwerde-Entscheidung vom 25. November 1937 (Blatt------ 1938 Seite 5) angegeben ist, begründet die Wahl eines allgemeinen Begriffes zur Kennzeichnung der Ausgangsstoffe eines chemischen Verfahrens in den ursprünglichen Anmeldungsunterlagen noch nicht allein einen unbedingten Anspruch auf Anerkennung eines dem grossen Begriffsinhaltes entsprechenden Umfangs des ursprünglichen Anmeldungsgegenstandes. Der gewählte Begriff muß auch durch eine hinter im stehende und für den Sachverständigen erkennbar hervortretende Erfindungswirklichkeit gedeckt sein.

Unter sinngemäßer Anwendung dieser Entscheidung in dem vorliegenden Fall, und zwar nicht auf die nichtstrittigen Ausgangsstoffe sondern auf die Reihenfolge der Umsetzungen selbst, kann nicht anerkannt werden, dass

-3-

die in der vorliegenden Anmeldung beanspruchte Reihenfolge der Umsetzungen durch eine dahinter stehende und

die in der vorliegenden Anmeldung beanspruchte Reihenfolge der Umsetzungen durch eine dahinter stehende und für den Sachverständigen klar und erkennbar hervortretende Erfindungswirklichkeit gedeckt ist.

Dementsprechend wird auch von der Anmelderin (auf Seite 2 unten der Eingabe vom 12. Dezember 1939) der die Grundlage des jetzigen Patentbegehrens bildende Anspruch der Stammanmeldung J. 40 166 lediglich als Erkenntnis bezeichnet und nicht etwa als eine , auf tatsächlich Gefundenem beruhende Erfindung.

Auch den weiteren Ausführungen der Anmelderin auf Seite 3 der Eingabe vom 12. Dezember 1939 kann nicht beigestimmt werden, da gerade auf dem komplizierten Gebiet der Kondensations- und Sulfonierungsreaktionen rein spekulative Überlegungen bzw. lediglich auf Grund fachmännischen Wissens gemutmasste Erkenntnisse zumeist keineswegs den tatsächlichen Verhältnissen entsprechen.

Bei dieser Sachlage war wie oben angegeben zu beschliessen.

Prüfungsstelle für Klasse 12o.

Dr. Möllering. Sohm.

3784

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.

Ludwigshafen

Patentabteilung.

An die
Patentabteilungen
der I.G.Werke.

3784

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.

Ludwigshafen

Patentabteilung.

An die
Patentabteilungen
der I.G.Werke.

Lu/C. . Januar 1940.

O.Z.11762. - I.65 687 IVd/12o.

Unsere oben bezeichnete Anmeldung wurde von der Prüfungsstelle zurückgewiesen. Wir wollen wegen der geringen Bedeutung des Anmeldungsgegenstands auf die Erhebung einer Beschwerde verzichten. Die Beschwerdefrist läuft am 16.2.1940 ab.

Der Patentanspruch lautet:

"Verfahren zur Herstellung von sauren Schwefelsäureestern höhermolekularer, Hydroxylgruppen enthaltender Verbindungen, dadurch gekennzeichnet, dass man mehrwertige aliphatische Alkohole unter Erhaltung mindestens einer freien Hydroxylgruppe mit Schwefelsäure verestert und die erhaltenen Ester mit gesättigten aliphatischen oder hydroaromatischen Carbonsäuren oder ihren veresternd wirkenden Abkömmlingen umsetzt."

PATENTABTEILUNG LU.

gez. Schönberg

Hauptlaboratorium 29.1.40

29. Jan. 1940

654-8516-2004-329

Durchschlag

3785

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.

Patentabteilung

11762.

3785

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

11762.

Hauptlaboratorium 13.12.39

An das
Reichspatentamt
Berlin.

Patentabt.Lu/O. 12.Dez.1939.

I.65 587 IVd/12o.
V.z.H.v.sauren Schwefelsäureestern höhermolekularer, Hydroxylgruppen enthaltender Verbindungen.

Wir schlagen für den Patentanspruch die aus dem beifolgenden Nachtrag ersichtliche Fassung vor. Der neue Patentanspruch enthält die von der Prüfungsstelle angeführte Wendung "oder ihre mindestens zwei freie Hydroxylgruppen enthaltenden Derivate" nicht mehr. Wir sind der Auffassung, dass der Ausdruck "mehrwertiger Alkohole" zweifelsfrei auch Verbindungen umfasst, die neben den für die beanspruchte Umsetzung erforderlichen veresterbaren Gruppen bereits abgewandelte, z.B. verätherte, Hydroxylgruppen enthalten. Zur näheren Begründung verweisen wir auf unsere gleichzeitige Eingabe in Sachen der Stammanmeldung I. 40 166 IVd/12o. Weiterhin werden die für die Umsetzung verwendbaren Abkömmlinge von Carbonsäuren schärfer gekennzeichnet, nämlich als solche, die noch veresternd wirken, denn entsprechend dem ursprünglich offenbarten Erfindungsgedanken kommen nur solche Abkömmlinge in Betracht. Nach diesen Änderungen entspricht der Patentanspruch den gesetzlichen Anforderungen.

Zu dem letzten Absatz des vorliegenden Bescheids bemerken wir, dass die vorliegende Anmeldung deswegen aus der

Durchschlag

13 DEZ 1939

3786

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

Reichspatentamt
Berlin.

Lu/C. 12.12.39. 8

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

Reichspatentamt
Berlin.

Lu/C. 12.12.39. 2

Stammanmeldung ausgeschieden wurde, weil dort die Herstellung der bestimmten gemischten Schwefelsäure-Carbonsäureester nicht mehr in der ursprünglich offenbarten beliebigen Reihenfolge beansprucht werden konnte, sondern nur noch die gleichzeitige Einführung des Carbonsäure- und des Schwefelsäurerestes. Die Beibehaltung der besonderen Ausführungsform, die den Gegenstand der vorliegenden Anmeldung bildet, hätte in der Stammanmeldung einen uneinheitlichen Anspruch ergeben. Der Umstand, dass wir zur Herstellung der Einheitlichkeit der Stammanmeldung nun diese Ausführungsform ausgeschieden und zum Gegenstand einer besonderen Anmeldung gemacht haben, bietet jedoch keinen Grund dafür, nunmehr diesen Teil der ursprünglichen erfinderischen Erkenntnis die Erfindungswirklichkeit abzusprechen. In den ursprünglichen Unterlagen der Stammanmeldung kommt eindeutig zum Ausdruck, dass man die mehrwertigen Alkohole auch zunächst unter Erhaltung mindestens einer Hydroxylgruppe mit Schwefelsäure verestern und dann erst mit Carbonsäuren oder den genannten Abkömmlingen umsetzen kann. Wir haben bereits in Sachen der Stammanmeldung früher darauf hingewiesen, dass nach den zur Zeit der Einreichung der Stammanmeldung üblichen Anforderungen alle Ausführungsformen des beanspruchten Verfahrens, die zu den gewünschten Erzeugnissen führen, zweifelsfrei beschrieben waren. Es ist zu beachten, dass der ursprüngliche Patentanspruch der schärfste Ausdruck dessen ist, was der Erfinder als erfinderische Erkenntnis betrachtet, denn in ihm gibt sich doch das zu erkennen, was er auf Grund der für den sogenannten Patentanspruch gestellten Anfor-

Durchschlag

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

Reichspatentamt

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

Reichspatentamt
Berlin. Lu/O. 12.12.39. 3

derungen dem Patentamt gegenüber offenbart. Der Patentanspruch soll dasjenige kurz bezeichnen, was als patentfähig unter Schutz gestellt werden soll. Wenn nun durch veröffentlichte Schriftstellen oder ältere, nicht vorveröffentlichte Patentanmeldungen ein derartiger allgemeiner Erfindungseinhalt sich als teilweise nicht mehr schutzfähig und der verbleibende Rest als uneinheitlich erweist und damit eine Teilung der Anmeldung notwendig wird, muss dem Erfinder die Möglichkeit bleiben, auf alles, was er in dieser ersten Offenbarung gesagt hat, zurückzugreifen. Es darf dabei nicht sein Bewenden haben, dass nur etwa Angaben der Beispiele herangezogen werden können. Gerade bei Erfindungen wie der vorliegenden, wo die erfinderische Erkenntnis weniger in den Verfahrensschritten als in der Beobachtung technisch fortschrittlicher Eigenschaften bestimmter chemischer Stoffe liegt, wird es häufig vorkommen, dass der Erfinder in den ursprünglichen Unterlagen nur den einen oder anderen Weg in Ausführungsbeispielen schildert, im übrigen aber auf Grund seines fachmännischen Wissens seine erfinderische Erkenntnis in einem Patentanspruch zum Ausdruck bringt, der auch die anderen von ihm gefundenen Wege offenbart. Gewiss wird eine Abtrennung gerade eines solchen nur grundsätzlich offenbarten und nicht etwa durch ein Beispiel belegten Weges bei der Einreichung einer besonderen Anmeldung noch nähere Erläuterungen erfordern. Dies ist in der vorliegenden Anmeldung durch Hereinnahme weiterer Beispiele geschehen. Solange jedoch diese Beispiele den ursprünglichen Erfindungsinhalt nicht verändern, kann dagegen nicht nur nichts eingewandt werden, sondern diese sind sogar erwünscht, um dem die Patentschrift le-

Durchschlag

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

Reichspatentamt
Berlin. Lu/O. 12.12.39. 4

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

Reichspatentamt
Berlin.

Lu/O. 12.12.39. 4

senden Fachmann nähere Aufschlüsse über die Erfindung zu geben. Insbesondere beheben diese Beispiele auch einen etwa auftauchenden Zweifel über die Erfindungswirklichkeit. Jedenfalls steht im vorliegenden Fall fest, dass die in der Anmeldung beanspruchte Ausführungsform in den ursprünglichen Unterlagen offenbart und ihre technische Durchführbarkeit durch die näheren Angaben in der Anmeldungsbeschreibung bewiesen ist.

Wir sind überzeugt, dass die vorstehenden Ausführungen die sachliche wie die formelle Zulässigkeit des neuen Patentanspruchs belegen, und dass dem Bekanntmachungsbeschluss nun nichts mehr im Wege steht.

I.G.FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT
gez. Holdermann ppa. Kleber

Neuer
Patentanspruch.

Durchschlag

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

11762.

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Patentabteilung

11762.

I.65 687 IV6/12o.

12. Dezember 1938.
Lu/O.

Neuer Patentanspruch.

"Verfahren zur Herstellung von sauren Schwefelsäureestern höhermolekularer, Hydroxylgruppen enthaltender Verbindungen, dadurch gekennzeichnet, dass man mehrwertige aliphatische Alkohole unter Erhaltung mindestens einer freien Hydroxylgruppe mit Schwefelsäure veresterte und die erhaltenen Ester mit gesättigten aliphatischen oder hydroaromatischen Carbonsäuren oder ihren veresternd wirkenden Abkömmlingen umsetzt."

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT
gez. Holdermann ppa. Kleber

doppelt.

Durchschlag

I.G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

3790

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT LUDWIGSHAFEN A. RH.
Hauptlaboratorium

Patentabteilung.

13. Nov. 1939

Dr.Fh/Ri. 10.November 1939

O.Z. 11 762 - J. 65 587 IV d/12 o.
Verfügung des Reichspatentamtes vom 5. Oktober 1939.

Die Ansicht des Prüfers, dass im Anspruch dieser Anmeldung genau wie im Anspruch unserer O.Z. 6046 der Satzteil: "oder ihre mindestens zwei freien Hydroxylgruppen enthaltenden" zu streichen ist, ist u.E., wie wir bereits in unserem Memo an Ihre Abtlg. vom 10.11.1939 in Sachen O.Z. 6046 - Deutschland ausführten, ungerechtfertigt.

Es ist weiterhin unbegründet, dass der Prüfer den Anspruch dieser Anmeldung als nicht "auf ein bestimmtes Verfahren gerichtet" betrachtet, denn es wird im Anspruch ganz eindeutig das Verfahren der Sulfierung von aliphatischen mehrwertigen Alkoholen und die anschliessende Veresterung mit Carbonsäuren, also ein ganz bestimmtes Verfahren, beschrieben, bei dem überdies stets Produkte der gleichen Zusammensetzung, die gleichzeitig Carbonsäure- und Schwefelsäureester darstellen, erhalten werden.

Da die übrigen Einwände des Prüfers mehr patentrechtlicher Art sind, bitten wir Sie, diese von sich aus, gegebenenfalls nach Rücksprache mit uns, zu beantworten.

Durchschlag

11762

Reichspatentamt

J 65 587 IVd/12 o

Patentamt Eing. 3791
13. OKT. 1939

Berlin SW 61, den 5. Oktober 1939.
Gitschiner Straße 97-103

Patentabt. Eing. 3791
13. OKT. 1939

Reichspatentamt

Aktenzeichen: J 65 587 IVd/12 o

Anmelder:

Ihr Zeichen:

Berlin SW 61, den 5. Oktober 1939.

An
J.G. Farbenindustrie A.G.
Patentabteilung
in Ludwigshafen a.Rh.

In Sachen der Patentanmeldung, betreffend: "Verfahren zur Herstellung von sauren Schwefelsäureestern", eingegangen am 11. September 1939.

Nachstehend wird das Ergebnis der in Klasse 12 o durchgeführten Prüfung mit der Aufforderung mitgeteilt, binnen z w e i Monaten bei Weiterverfolgung der Anmeldung sich zu äußern.

Die Frist beginnt mit der Zustellung.

Sofern in dem vorgelegten Patentanspruch in Zeile 4 der Satzteil "oder ihre mindestens zwei freie Hydroxylgruppen enthaltende" gestrichen wird, kann für eine derartige Fassung des Anspruchs als Anmeldungstag der 17. Dezember 1929 anerkannt werden. Der Anspruch erscheint indessen auch dann nicht gewährbar, da er nicht entsprechend den Erfordernissen des § 1 des Patentgesetzes (vgl. Klauer-Möhring, Patentgesetz, 1937, Seite 98) auf ein bestimmtes Verfahren gerichtet ist.

Im übrigen kann aber die Bekanntmachung der Anmeldung auch deshalb nicht in Aussicht gestellt werden, da eine substanziierte Erfindungswirklichkeit am 17. Dezember 1929 offenbar überhaupt nicht bestanden hat; vgl. Beschwerde-Entscheidung vom 25. November 1937, Blatt für Patent-, Muster- und Zeichenwesen, 1938, Seite 5.

Prüfungsstelle für Klasse 12 o.

Dr. Möllering.

Ausgefertigt:

Kanzleiangestellte

Frist 13. Dez. 39

18. OKT. 1939

3791

Dr. Möllering. Ger
Ausgefertigt:
Kanzleiangestellte
18. Okt. 1939

I. G. FARBENINDUSTRIE AKTIENGESELLSCHAFT

Unser Zeichen C.Z. 117

Ludwigshafen a/Rhein, den 8. September 193 Schb/Si.

Verfahren zur Herstellung von sauren Schwefelsäureestern höhermolekularer, Hydroxylgruppen enthaltender Verbindungen.

Es wurde gefunden, dass man saure Schwefelsäureester von höhermolekularen, Hydroxylgruppen enthaltenden Verbindungen mit sehr wertvollen technischen Eigenschaften erhalten kann, wenn man mehrwertige aliphatische Alkohole oder ihre mindestens zwei freie Hydroxylgruppen enthaltender Derivate derart sulfoniert, dass mindestens eine Hydroxylgruppe mit mit Schwefelsäure verestert wird und die erhaltenen Sulfonierungsprodukte mit gesättigten aliphatischen oder hydroaromatischen Carbonsäuren oder ihren Derivaten umsetzt. Die so erhaltenen sauren Schwefelsäureester stellen als solche oder in Form ihrer wasserlöslichen Salze sehr wertvolle Wasch-, Reinigungs-, Dispergier-, Netz- und Lösemittel dar, die sich insbesondere für die Wollwäscherei gut eignen.

Zwecks Gewinnung von Türkischrotölen hat man bereits Ester der Ricinolsäure in Lösung oder Suspension mit Chlorsulfonsäure sulfoniert; ferner hat man schon Netzmittel hergestellt, indem man Ester ungesättigter Fettsäuren und einwertiger Alkohole sulfonierte. Die nach dem vorliegenden Verfahren gewonnenen

Produkte zeichnen sich vor den bekannten durch ein bessere Waschvermögen aus und besitzen ausserdem ein gutes Weichmachungsvermög.

Beisp..

Man sulfoniert 46 Gewichtsteile Glycerin durch Eintragen in 196 Gewichtsteile konzentrierte Schwefelsäure bei etwa 30°. Dann löst man 128 Gewichtsteile Palmitinsäure bei etwa 60° in 192 Gewichtsteilen konzentrierter Schwefelsäure und trägt diese Lösung in das Glycerin-Schwefelsäuregemisch ein. Hierauf wird bei etwa 70° solange gerührt, bis das Gemisch in Wasser klar löslich geworden ist. Dieses wird dann auf Eis gegossen und mit Natronlauge neutralisiert, worauf man die erhaltene wässrige Lösung mit festem Kochsalz versetzt. Das Umsetzungsprodukt wird in einem Gemisch aus 50 % Alkohol und 50 % Äther aufgenommen und daraus durch Abdestillieren der Lösungsmittel in reiner Form gewonnen. Man erhält ein auch in saurer Lösung klar lösliches, stark schäumendes Erzeugnis von gutem Waschvermög.

Beispiel

In 196 Gewichtsteile konzentrierte Schwefelsäure lässt man bei etwa 30° langsam 46 Gewichtsteile Glycerin einfliessen. In diese Mischung trägt man eine Lösung von 90 Gewichtsteilen Naphthensäure in 98 Gewichtsteilen konzentrierter Schwefelsäure, die auf etwa 60° erwärmt ist, langsam ein, wobei die Temperatur auf 65° gesteigert wird. Schon nach kurzer Zeit entsteht ein in Wasser klar lösliches Produkt. Man gibt nun das