(19) **Bundesrepublik Deutschland**
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) **DE 693 32 902 T2** 2004.02.05

(12) # Übersetzung der europäischen Patentschrift

(97) **EP 0 624 250 B1**
(21) Deutsches Aktenzeichen: **693 32 902.5**
(86) PCT-Aktenzeichen: **PCT/US93/00647**
(96) Europäisches Aktenzeichen: **93 904 606.6**
(87) PCT-Veröffentlichungs-Nr.: **WO 93/015398**
(86) PCT-Anmeldetag: **25.01.1993**
(87) Veröffentlichungstag der PCT-Anmeldung: **05.08.1993**
(97) Erstveröffentlichung durch das EPA: **17.11.1994**
(97) Veröffentlichungstag der Patenterteilung beim EPA: **23.04.2003**
(47) Veröffentlichungstag im Patentblatt: **05.02.2004**

(51) Int Cl.[7]: **G01N 30/02**
G01N 33/22, G01N 33/26, G01M 3/20, G01N 33/28

(30) Unionspriorität:
825478 **29.01.1992** **US**

(84) Benannte Vertragsstaaten:
AT, BE, CH, DE, DK, ES, FR, GB, GR, IE, IT, LI, LU, MC, NL, PT, SE

(73) Patentinhaber:
Isotag Technology, Inc., North Miami Beach, Fla., US

(74) Vertreter:
BOEHMERT & BOEHMERT, 28209 Bremen

(72) Erfinder:
Anderson, David King, Houston, US; Gonzales, Manuel Edu, Kingswood, US; Valenti, Nicholas Paul, Kingswood, US

(54) Bezeichnung: **VERFAHREN ZUR IDENTIFIZIERUNG VON CHEMIKALIEN DURCH NICHT-RADIOAKTIVE ISOTOPE**

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelegt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist (Art. 99 (1) Europäisches Patentübereinkommen).

Die Übersetzung ist gemäß Artikel II § 3 Abs. 1 IntPatÜG 1991 vom Patentinhaber eingereicht worden. Sie wurde vom Deutschen Patent- und Markenamt inhaltlich nicht geprüft.

Beschreibung

HINTERGRUND DER ERFINDUNG

[0001] Die Kontamination von Wasser mit potentiell gefährlichen Materialien ist ein häufiges Problem, dem sich die Industrie, die Regierung und die allgemeine Öffentlichkeit gegenüber sieht. Als ein Ergebnis von Ablassen in Wasserwegen, Leckage aus Lageranlagen und Oberflächenleitungen zerstören Verunreinigungen langsam unseren Wasservorrat. Solche Verunreinigungen können weiter in unsere Wasservorräte über unter der Oberfläche liegende Boden- und/oder Felsformationen eintreten und letztendlich in das Grundwasser einsickern. Es gibt über zweihundert organische und anorganische Chemikalien, die allein in verschiedenen Grundwasservorräten identifiziert worden sind. Solches Grundwasser ist die hauptsächliche Quelle für die kommunale Wasserversorgung, landwirtschaftliche Bewässerung und Wasser, das von der Industrie verwendet wird. Es besteht daher eine konstante Gesundheitsbedrohung unserer Trinkwasservorräte. Zusätzlich hat die Abgabe von Chemikalien in Meeresgewässer zur Schädigung von marinem Leben sowie marinen Ökosystemen geführt.

[0002] Es ist ein ziemlich häufiges Vorkommnis, solche Verunreinigungen in unseren Seen und Flüssen sowie den umgebenden Ozeanen zu finden. Der Umfang an nicht-rechtmäßiger Verklöppung solcher Abfälle steigt in den Gewässern der Vereinigten Staaten an. Grundwasser, Trinkwasser und Abwasser wird weiterhin kontinuierlich gefährdet, wenn sich solche Aktivitäten fortsetzen. Nützliche Verfahren zur Bestimmung der Herkunft solcher Verunreinigungen in unsere Wasserwege ist essentiell.

[0003] Zweifellos besteht ein seit langem bestehendes Bedürfnis der Öffentlichkeit nach einer sicheren Technik zum "Serialisieren" oder "Fingerprinting" von Erdöl, Erdölprodukten und Massenchemikalien in Lagerung oder Transport, so daß die Verantwortlichkeit für Verkippen, Ablassen oder Leckage solcher Chemikalien in angemessener Weise bestimmt werden kann. Es besteht auch ein Bedürfnis zum Serialisieren von Massenverfälschungsmitteln, wie eriva Cyaniden, die manchmal von gestörten Leuten in Lebensmittel oder Arzneimittel hineingegeben werden, um bei der Ergreifung solcher Leute zu helfen. Es besteht auch ein seit langem bestehendes Bedürfnis von Seiten der Erdöl- und chemischen Industrie nach sicheren Techniken zum Serialisieren von Öl und anderen chemischen Produkten zum internen Überwachen der Überführung solcher Produkte, um Diebstahl zu verhindern und/oder zu beweisen.

[0004] Es ist vorgeschlagen worden, radioaktive Materialien als Spurenstoffe in Fluiden zu verwenden. Die Verwendung von radioaktiven Materialien zum Fingerprinting von Flüssigkeiten wäre jedoch nicht vollständig befriedigend. Der Verbrauch von Erölprodukten, die radioaktive Spurenstoffe enthalten, würde zum Beispiel zu ihrer unkontrollierten Freisetzung in die Umgebung führen. Es ist auch vorgeschlagen worden, bestimmte nichtradioaktive Spurenstoffe in Speichercharakterisierungsstudien zu verwenden, um Fluidverweilzeiten und Strömungsfluidfließwege zu bestimmen. In solchen Anwendungen wird der Spurenstoff jedoch in Salzwasser nachgewiesen. Salzwasser ist eine sehr einfache chemische Zusammensetzung, und es ist leicht, eine niedrige Nachweisschwelle zu erreichen, weil es nicht viele störende Materialien gibt. Unsere Vorschläge, Rohöl und andere chemische Materialien mit geringen Gehalten an nicht-radioaktiven Markierungsmitteln zu markieren, sind jedoch wegen vermuteten Schwierigkeiten beim Nachweis solcher Markierungsmittel auf Skeptizismus gestoßen. Wir haben festgestellt, daß es nicht schwierig ist, viele nichtradioaktive Materialien bei sehr niedrigen Gehalten zu identifizieren, wenn man weiß, wonach man sucht.

ZUSAMMENFASSUNG DER ERFINDUNG

[0005] Gemäß der Erfindung wird ein Verfahren zur Markierung eines Fluids zur Verfügung gestellt, wie beschrieben in Beispiel 1.

[0006] Die Erfindung macht es für eine Partei möglich, den Mangel an Verantwortlichkeit für ein Material zu beweisen, das an einer Müllablade-, Ablass- oder Leckagestelle gefunden wird. Das Material kann analysiert werden, um Analyseergebnisse zu erhalten, die das Vorhandensein oder Nichtvorhandensein von Markierungsmitteln im Material identifizieren. Anschließend stellt die Partei, auf der Grundlage solcher Analyseergebnisse, entweder fest, daß besagte Partei besagtes Material nie verwahrt hatte oder daß, obgleich besagte Partei besagtes Material zu einem bestimmten Zeitpunkt verwahrt hatte, eine solche Verwahrung von besagter Partei auf einen Übernehmer übergegangen war.

DETAILLIERTE BESCHREIBUNG DER ERFINDUNG

[0007] Die Erfindung besteht in einem Verfahren zur Identifizierung der Herkunft einer transportierten chemischen Ladung. Das Verfahren kann eingesetzt werden, um zu verifizieren, das eine von einer Person erhaltene Probe identisch ist mit der Probe, die versandt wurde. Zusätzlich kann die Erfindung eingesetzt werden, um die Herkunft einer neu eingeführten Verunreinigung in einer Quelle, wie einem Wasservorrat, nachzuweisen.

[0008] Das Verfahren setzt ein nicht-radioaktives chemisches Isotop ein, das, mit dem zu transportierendem Material, in den Vorratsbehälter eingebracht wird, bevor der Behälter auf ein Transportfahrzeug geladen wird. Nicht-radioaktive organische Verbindungen werden eingesetzt. Die Menge an isotopischer Verbindung, die in den Vorratsbehälter eingebracht wird, kann geringer sein als ein Teil pro 10^9

Teile (ppb) der zu transportierenden Chemikalie.

[0009] Für bestimmte isotopische Verbindungen ist die eingebrachte Menge an isotopischer Verbindung zwischen etwa 1 bis etwa 5 ppb der zu transportierenden Chemikalie.

[0010] Die Erfindung findet besondere Anwendbarkeit zur Markierung von chemischen Proben. Die Markierung der Probe erlaubt dem Empfänger des versandten Produktes zu verifizieren, daß die erhaltene Probe identisch ist mit der Probe, die versandt wurde. In dieser Ausführungsform der Erfindung wird nicht-radioaktive isotopische Substanz mit der zu transportierenden Chemikalie vor dem Versand der Chemikalie vermischt. Bei Ankunft an seinem Bestimmungsort wird die chemische Ladung analysiert. Übereinstimmung der isotopischen Verbindung mit der in dem Vorratsbehälter vor dem Versand eingebrachten isotopischen Verbindung zeigt an, daß die versandte Chemikalie identisch ist mit der erhaltenen Chemikalie. Die Erfindung findet Anwendung beim Versand jedes chemischen Produktes, unabhängig vom Verfahren des Versandes oder der chemischen Struktur des Produktes.

[0011] Das Verfahren findet besondere Anwendbarkeit beim Versand von Rohöl, raffiniertem Öl, Granulat, verarbeiteten und nicht-verarbeiteten Chemikalien sowie bei massenraffinierten Produkten. Zusätzlich kann die Erfindung eingesetzt werden beim Versand eines verunreinigenden, gefährlichen Materials oder eines toxischen Materials. Als solches findet die Erfindung Anwendbarkeit bei der Identifizierung von abgelassenen Ladungen von abgelassenem Öl, Pestiziden, Verbindungen auf Cyanid-Basis, arsenhaltigen Verbindungen, Dioxin, militärischen chemischen Mitteln, militärischen biologischen Mitteln, Naphtalin und Biphenolen.

[0012] Die chemische Substanz kann ein nicht-radioaktives Isotop der zu transportierenden chemischen Ladung sein.

[0013] Die chemische Substanz ist ein nicht-radioaktives Isotop solcher organischen Lösungsmittel wie Aceton, Acetonitril, Benzol, Brombenzol, Chlorbenzol, Chloroform, Cyclohexan, Dichlorbenzol, Trichlorethylen, Diethylether, Diglyme, Dimethylsulfoxid, Dioxan, Ethanol, Methanol, Methylenchlorid, Nitrobenzol, Octan, Pyridin, Tetrachlorethan, Tetrahydrofuran, Tetrametholsilan, Toluol, Trifluoressigsäure, Trifluorethylalkohol, Xylol, Ammoniumbromid oder Acetylchlorid.

[0014] Die verwendeten organischen Verbindungen sind diejenigen, die deuteriert worden sind, d. h. in denen die kovalent an Kohlenstoffatome gebundenen Wasserstoffatome durch Deuteriumatome ersetzt sind. Deuterium ist ein nicht-radioaktives Isotop von Wasserstoff, das oft schwerer Wasserstoff genannt wird. Die Deuterierung von organischen Verbindungen kann durchgeführt werden mit in der Technik bekannten Verfahren wie denjenigen, die in U. S.-Pat. Nrn. 3,746,634 und 3,876,521 offenbart sind, in denen die Deuterierung mit Deuterium-Gas in Gegenwart eines Gruppe-VII- oder -VIII-Metall-Katalysators bei einer Temperatur zwischen etwa 100 und etwa 300 Grad C durchgeführt wird. Die nichtradioaktiven Isotope zur Verwendung dieser Erfindung können weiter gemäß den Lehren aus dem Stand der Technik für solche Materialien hergestellt werden, die in der Medizin verwendet werden.

[0015] Die nicht-radioaktive chemische Substanz kann das schwere Atom an jeder Position des Moleküls besitzen. In ähnlicher Weise können eine oder mehrere der reaktiven Stellen des Moleküls ein schweres Atom enthalten. Die Anzahl von Permutationen, die zum Beispiel mit n-Octan möglich sind, liegt in den Tausenden, da ein oder alle Wasserstoffatome des Moleküls durch Deuterium ersetzt sein können, wie unten angegeben:

$CH_2DCH_2CH_2CH_2CH_2CH_2CH_3$;
$CH_3CHDCH_2CH_2CH_2CH_2CH_3$;
$CH_2DCHDCH_2CH_2CH_2CH_2CH_3$;
$CH_2DCH_2CH_2CH_2CH_ZCH_2CH_2CH_2D$;
$CH_2DCHDCHDCH_2CH_2CH_2CH_2CH_3$;
$CH_2DCHDCHDCH_2CH_2CH_2CH_2CH_2D$.

[0016] Die Anzahl von einzigartig identifizierbaren Kombinationen von deuterierten n-Octanen senkt natürlich die Chance, daß mehr als ein Versandbehälter dasselbe nicht-radioaktive Isotop enthalten wird.

[0017] Wenn die eingesetzten Markierungsmittel aus einer Sammlung von Markierungsmitteln mit mittlerer Größe ausgewählt werden, macht die Verwendung von zwei oder mehr Markierungsmitteln eine sehr große Anzahl von einzigartigen Besitzmarkierungsmöglichkeiten möglich.

[0018] Das Verfahren dieser Erfindung kann weiter zur Identifizierung der Herkunft von nichtradioaktiven Materialien, die Wasservorräte infiltrieren, eingesetzt werden. Das Verfahren findet besondere Anwendbarkeit, wo die Substanz, die den Wasservorrat infiltriert, unter Umweltgesichtspunkten toxisch und gefährlich ist. Durch dieses Verfahren wird ein nichtradioaktives Isotop einer wasserstoffhaltigen organischen chemischen Substanz in einen Vorratsbehälter eingebracht, der den zu transportierenden chemischen Vorrat enthält, bevor der Vorratsbehälter auf das Transportfahrzeug geladen wird, das den Abgangshafen verläßt. Wenn Verunreinigungen der transportierten Chemikalie vermutet werden, wird eine Probe von kontaminiertem Wasser aus dem Wasservorrat entnommen. Die Probe wird anschließend analysiert. Der Nachweis des nicht-radioaktiven Isotops in der kontaminierten Probe weist auf die Herkunft der Verunreinigung hin. Die wasserstoffhaltige organische chemische Substanz kann ein nicht-radioaktives Isotop der zu transportierenden chemischen Ladung sein.

[0019] Geeignet als die chemische Substanz, die beim Nachweis der Verschmutzungsquelle verwendet wird, sind diejenigen, die oben angegeben sind.

[0020] Noch weiter kann das Verfahren dieser Erfindung eingesetzt werden, um die Quelle chemischer Leckage aus einem landgestützten Vorratstank, der

solche eine Verunreinigung enthält, zu identifizieren. Der Ort der Leckage kann entweder ein Gewässer oder ein Erdbereich sein. Das Vorhandensein der Verunreinigung wird nachgewiesen durch Entnehmen einer Probe des kontaminierten Bereichs und Analysieren der Probe auf das Vorhandensein des nicht-radioaktiven Isotops, um die Stelle des bestimmten landgestützten Vorratstanks zu bestimmen, die leckt.

[0021] Isotopen-Identifizierung kann leicht erreicht werden durch Massenspektroskopie, magnetische Kernresonanzspektroskopie oder Gaschromatographieanalyse. Die Spektren oder die Retentionszeit des markierten Isotops [bevor es in den Behälter eingeführt wird, der die gewünschte (bestellte) Chemikalie enthält] kann zum Beispiel mit den Spekren oder der Retentionszeit der im Wasservorrat vorhandenen Verunreinigung verglichen werden. Siehe weiter B. B. McInteer et al., "The ICONS Facility: Separating Nitrogen and Oxygen Isotopes at Los Alamos", Los Alamos Technical Bulletin, März 1988.

[0022] In bevorzugten Aufführungsformen der Erfindung können Fluidzusammensetzungen durch Einbeziehung von Besitzmarkierungen oder Besitzmarkierungsmodifikatoren darin markiert werden. Die Fluidzusammensetzungen sind im allgemein Gase oder Flüssigkeiten. Die Flüssigkeiten werden im allgemeinen als ölbasiert oder wasserbasiert klassifiziert. Ölbasierte Flüssigkeiten schließen im allgemeinen Erdöl und Erdölprodukte ein. Flüchtige Besitzmarkierungen und Besitzmarkierungsmodifikatoren werden verwendet, um Gase zu markieren. Öllösliche Besitzmarkierungen und Besitzmarkierungsmodifikatoren werden im allgemeinen verwendet, um ölbasierte Flüssigkeiten zu markieren. Wasserlösliche Besitzmarkierungen und Besitzmarkierungsmodifikatoren werden im allgemeinen verwendet, um wasserbasierte Flüssigkeiten zu markieren. Die Besitzmarkierungen sind integral mit den Fludis und sind nahezu unmöglich zu entfernen.

[0023] Die Menge an Besitzmarkierung oder -markierungsmodifikator, die in das Fluid einbezogen wird, kann über einen weiten Bereich variieren. Das Markierungsmittel sollte jedoch immer in einer Menge zugegeben werden, die ausreichend ist, um im markierten Produkt nachgewiesen zu werden. Weil die markierten Fluids im großen Umfang mit anderen Materialien verdünnt werden können, bevor eine Probe für die Analyse entnommen wird, kann es wünschenswert sein, eine relativ große Menge an Besitzmarkierung in das Fluid einzubeziehen, obgleich die verwendete Menge aus ökonomischen Gründen im allgemeinen unter etwa 1 ppm liegen wird. Am anderen Ende der Skala, unter Verwendung gegenwärtiger Technologie, können bestimmte Markierungsmittel möglicherweise bei Gehalten von wenigen Teilen pro Trillion in Gasen und einfachen Wasserlösungen nachgewiesen werden. Die Menge an Besitzmarkierung, die in ölbasierten Flüssigkeiten eingesetzt wird, wird im allgemeinen zwischen diesen zwei Bereichen liegen. Oft wird die Besitzmarkierung in einer ölbasierten Flüssigkeit bei unterhalb des 500-ppb-Niveaus verwendet werden. In vielen Fällen wird eine Konzentration an Besitzmarkierung im Bereich von 1 bis 100 ppb wünschenswerte Ergebnisse ergeben.

[0024] Die Besitzmarkierung kann zum Fluid unter Verwendung einer Vielzahl von Techniken zugegeben werden, in Abhängigkeit davon, wie gut Dispersion erwartet wird. Die Besitzmarkierung kann zum Beispiel in einen Strom zudosiert werden, wenn dieser durch eine Leitung strömt. Dies wird im allgemeinen ein besseres Ergebnis liefern, als die Besitzmarkierung einfach zum Beispiel in einen großen Vorratstank zuzugeben. Ein Öltanker kann jedoch dadurch behandelt werden, daß die Besitzmarkierung in den Schiffsraum gegossen wird und anschließend der Tanker mit Öl gefüllt wird. Es ist bevorzugt, die Besitzmarkierung durch ein Methodensystem an einer Transfer- oder Lageranlage kontinuierlich zum Fluid zuzugeben.

[0025] Eine Besitzmarkierung wird wenigstens zwei Markierungsmittel, vorzugsweise drei oder mehr umfassen. Besitzmarkierungsmodifikatoren umfassen wenigstens ein Markierungsmittel, vorzugsweise nur eines. Ein Besitzmarkierungsmodifikator kann verwendet werden, um ein Fluid, das eine Besitzmarkierung enthält, erneut zu markieren, um zum Beispiel einen Besitzübergang anzuzeigen. Vorzugsweise ist das in einem Besitzmarkierungsmodifikator vorhandene Markierungsmittel verschieden von jedem der Markierungsmittel in dem erneut zu markierenden, besitzmarkierten Fluid.

[0026] Markierungsmittel, die zur Verwendung geeignet sind, können im allgemeinen als nichtradioaktive wasserstoffhaltige organische Verbindungen beschrieben werden, die nicht natürlich vorkommen und die in markierten Fluids bei niedrigen Nachweisschwellen identifizierbar sind. Neben den oben aufgelisteten Markierungsmitteln ist ein weiteres Beispiel für geeignete Materialien die Klasse der halogenierten Kohlenwasserstoffe, wie etwa chlorierte und/oder fluorierte Alkene, Alkane und Aromaten. Diese Materialien können bei niedrigen Konzentrationen unter Verwendung von Gaschromatographietechniken, gekoppelt mit Ionenfallen und/oder Massenspektrometertechniken, leicht nachgewiesen werden. Vorzugsweise können die verwendeten Markierungsmittel im Fluid nachgewiesen werden, das sie bei Konzentration von weniger als 500 ppb enthält, wie etwa im Bereich 1–100 ppb. Es ist wünschenswert, eine Bibliothek oder Sammlung von geeigneten Markierungsmitteln zusammenzustellen und Selektionen aus besagter Bibliothek vorzunehmen, um Besitzmarkierungen auf der Basis der Kompatibilität der Markierungsmittel mit dem zu markierenden Fluid und der Verwendung einer einzigartigen Markierung zu formulieren. Kompatibilität ist ziemlich leicht zu bestimmen und beruht auf dem Bereich von Eigenschaften des zu transportierenden oder zu lagernden Fluids. Es erfordert keine besonders große

Sammlung von Markierungsmitteln, um die Fähigkeit zu erreichen, einzigartige Kombinationen bereitzustellen. 1.000 Markierungsmittel können zum Beispiel verwendet werden, um über 41×10^9 einzigartige 3-Komponenten-Besitzmarkierungen zu formulieren. Wo das Ziel ist, Verkippen, Ablassen und Lecks zu überwachen, sollte eine Aufstellung der Besitzmarkierungen gemacht werden, die einzelnen Firmen oder Lieferungen zugeordnet worden sind. Die Aufzeichnungen sollten in einer Datenbasis gesammelt oder zusammengestellt werden. Die Datenbasis könnte man im Falle eines Ablassens, eines Lecks oder eines Verkippens zurückgreifen, um die Verantwortlichkeit zuzuordnen.

[0027] Die gegenwärtig bevorzugte Analysetechnik für den Nachweis von Markierungsmitteln setzt einem Gaschromatographen ein, gekoppelt mit einem Massenspektrometer, obgleich andere chromatographische Techniken ebenso verwendet werden können. Es ist natürlich zunächst notwendig, eine Probe des auf das Vorhandensein von Markierungsmitteln zu analysierenden Materials zu erhalten. Die Probe wird zu einem Gaschromatographenstrom ausgebildet und der Strom wird anschließend durch den Gaschromatographen geschickt. Vorbestimmte Anteile des Stroms werden abgefangen und auf Markierungsmittel analysiert. Allgemein gesprochen wird die Analyse mit einem Massenspektrometer durchgeführt. Für schwierige Trennungen werden die abgefangenen Anteile der Probe zu einem zweiten Strom ausgebildet und durch einen zweiten Gaschromatographen geschickt. Vorbestimmte Anteile des zweiten Gasstromes werden abgefangen und auf Markierungsmittel analysiert. Die Bestimmung, welche Anteile der Chromatographenstroms abgefangen werden sollen, wird im allgemeinen vor der ursprünglichen Analyse der Probe durchgeführt und beruht üblicherweise auf Retentionszeit. Sie wird unter Verwendung der Kenntnis der Markierungsmittelsammlung durchgeführt, aus der die Markierungsmittel ausgewählt wurden, manchmal nach einem Kalibrierungsdurchlauf unter Verwendung bekannter Kombinationen von Markierungsmitteln aus der Sammlung.

[0028] Neben der Produktverfolgung wird erwartet, daß eine der wichtigeren Verwendungen der Erfindung den Beweis der Unschuld von Umweltsünden besteht. Angenommen eine Firma steht in Verdacht oder wird angeklagt, zu der Menge an schädlichen Materialien beigetragen zu haben, die an der Stelle eines Verkippens, Ablassens oder Lecks vorhanden sind. Beweisen des Fehlens der Schuldhaftigkeit wäre mit der Verwendung von Besitzmarkierungen viel leichter.

[0029] Eine Probe des Materials sollte zunächst erhalten und anschließend analysiert werden, um zu bestimmen, ob irgendwelche Markierungsmittel vorhanden sind. Wenn keine Markierungsmittel gefunden wurden, sollte die Firma in der Lage sein, das Fehlen von Schuldhaftigkeit festzustellen, wenn sie zeigen könnte, daß sie routinemäßig Markierungsmittel während des in Frage stehenden Zeitraums verwendet hat. Wenn Markierungsmittel gefunden wurden, sollte die Firma in der Lage sein, das Fehlen von Schuldhaftigkeit festzustellen, wenn es unterschiedliche als diejenigen, die gefunden wurden, verwendet hat, oder wenn es von ihren Übernehmern des Materials gefordert hat, die Markierungsmittel zu verwenden, die gefunden wurden.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Markierung eines Fluids, um es von anderen Fluids unterscheidbar zu machen, welches umfaßt, daß in besagtes Fluid wenigstens zwei Markierungsmittel eingebracht werden, von denen jedes in besagtem Fluid dispergieren wird, wobei jedes Markierungsmittel eine unterschiedliche deuterierte Version derselben wasserstoffhaltigen organischen chemischen Verbindung ist, und wobei, in jeder deuterierten Version, in einem signifikant größeren Anteil der Moleküle derselben, als von der natürlichen Häufigkeit von Deuterium zu erwarten ist, wenigstens eine Wasserstoffstelle im Molekül von Deuterium besetzt ist, und wobei, in jedem besagten Markierungsmittel, dieselbe Wasserstoffstelle oder Kombination von Wasserstoffstellen von Deuterium besetzt ist wie in den anderen Molekülen dieses Markierungsmittels und eine unterschiedliche Wasserstoffstelle oder Kombination von Wasserstoffstellen von Deuterium besetzt ist als in den anderen Markierungsmitteln.

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß ein besagtes Markierungsmittel deuteriertes Octan oder deuteriertes n-Octan oder deuteriertes Aceton umfaßt.

Es folgt kein Blatt Zeichnungen