

P.- 18.543

Nº 46122 Case 150 Richter
U.S. Serial Núm. 753,113 et al

FEB 1953



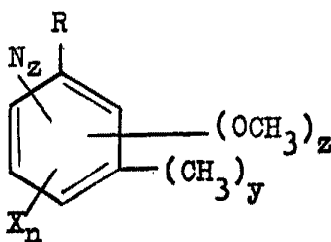
251267

MEMORIA DESCRIPTIVA
para solicitar
PATENTE DE INVENCION
en
ESPAÑA
Por VEINTE años

a nombre de VELSICOL CHEMICAL CORPORATION, entidad norteamericana, establecida en 330 East Grand, Chicago, Illinois, Estados Unidos de América, por:

"MEJORAS INTRODUCIDAS EN LA PREPARACION DE COMPOSICIONES HERBICIDAS".

Esta invención proporciona nuevos herbicidas. De un modo más específico, de acuerdo con esta invención, los nuevos compuestos herbicidas son los que pueden representarse por la fórmula de estructura general



25 1267



en la que X es cloro o bromo, n es un número entero de 0 a 3, z es un número entero de 0 a 2 y es 0 ó 1, N es el radical nitro o amino, y R es el radical $-\text{COOH}$, $-\text{CHClCOOH}$, o $-\text{CCl}_2\text{COOH}$, estando seleccionados dichos compuestos específicamente entre
5 los siguientes: ácido 2-metoxi-3,5-diclorobenzóico, ácido 2-metoxi-3,5-dibromobenzóico, ácido alfa-clorofenilacético, áci
do alfa,alfa-diclorofenilacético, ácido 2-amino-3,5-dicloro-
benzóico, ácido 2,6-dimetoxi-3-clorobenzóico, ácido 2-metoxi-
3,5-dinitrobenzóico, ácido 3-metoxi-2,6-diclorobenzóico, ácido
10 2-cloro-5-metoxibenzóico, ácido 2-metoxi-3-metil-5-cloroben-
zóico y ácido 2-amino-3,5,6-triclorobenzóico, estando dichos
compuestos en forma del ácido libre, del anhídrido de ácido,
de una sal, amida o ester.

La invención proporciona también nuevas composiciones
15 herbicidas que comprenden un vehículo inerte y, como componen-
te activo esencial, un compuesto herbicida según se ha defini-
do anteriormente.

La invención proporciona además un método para comba-
tir las plantas indeseables que comprende poner en contacto
20 dichas plantas con un compuesto o composición herbicida, tal
como se ha definido arriba.

Los compuestos químicos con actividad herbicida arri-
ba citados de esta invención pueden obtenerse fácilmente por
varios métodos de síntesis química. Por ejemplo, puede pre-
pararse ácido 2-metoxi-3,5-diclorobenzóico por cloración de
25 ácido salicílico con cloro gaseoso en solución en ácido acé-
tico glacial a una temperatura inferior a unos 35° C. obte-
niéndose un rendimiento de 75% de ácido 3,5-diclorosalicíli-
co, que luego se disuelve en una solución acuosa de hidróxido
30 sódico, se trata enfriando con hielo, con sulfato dimetílico,

251267



se calienta a la temperatura de reflujo durante varias horas, se trata con una nueva cantidad de hidróxido sódico acuoso, se calienta otra vez a reflujo y, finalmente, se acidifica para obtener el metiléter buscado con rendimiento aproximado de 75%.

5 Puede obtenerse de una manera análoga ácido 2-metoxi-3,5-dibromobenzóico por tratamiento con sulfato dimetílico del ácido 3,5-dibromosalicílico, que se obtiene fácilmente haciendo reaccionar ácido salicílico con ácido bromhídrico. Puede obtenerse fácilmente ácido alfa-clorofenilacético calentando ácido mandélico a unos 140° C. con ácido clorhídrico concentrado, por la acción de hidróxido potásico sobre triclорометилfenilcarbinol, por la acción del agua sobre el cloruro de ácido obtenido a partir de ácido mandélico y pentacloruro de fósforo, o por la cloración directa de ácido fenilacético. El ácido alfa-clorofenilacético puede convertirse luego en ácido alfa, alfadiclorofenilacético, por ejemplo, fundiendo el monoclorocompuesto y tratándolo con una cantidad adicional de cloro gaseoso, preferiblemente bajo iluminación de una fuente de luz actínica.

En la preparación de ácido 2,6-dimetoxi-3-clorobenzóico, puede tratarse 2,6-dihidroxiacetofenona en solución acuosa de hidróxido sódico, con sulfato dimetílico y alcalinizarse luego con nueva cantidad de hidróxido sódico para dar 2,6-dimetoxiacetofenona. Esta cetona intermediaria puede luego agregarse sobre una solución alcalina de hipoclorito sódico, calentarse y acidificarse. La reacción introduce al mismo tiempo un átomo de cloro y oxida la cetona para dar el ácido 2,6-dimetoxi-3-clorobenzóico buscado. El ácido 2-amino-3,5-diclorobenzóico puede sintetizarse con buen rendimiento tratando primeramente ácido 3,5-diclorobenzóico con ácido nítrico fumante a unos 70° C. para convertirlo en ácido 2-nitro-

251267



3,5-diclorobenzóico, que puede luego disolverse en solución de hidróxido amónico, calentarse a reflujo con solución acuosa de sulfato ferroso, y acidificarse para lograr la reducción casi cuantitativa al aminocompuesto buscado.

5 El ácido 2,6-dicloro-3-metoxibenzóico puede obtenerse convenientemente, por ejemplo, tratando 2,6-dicloro-3-hidroxi-benzaldehído en solución acuosa de bicarbonato sódico con sul-
fato dimetílico, para convertirlo en el correspondiente éter
10 metílico, que luego puede oxidarse para pasar al ácido benzóico deseado, calentándolo a reflujo durante varias horas con una solución acuosa de permanganato potásico que contenga bi-carbonato sódico, enfriando, y tratando con bisulfito sódico y, finalmente acidificando. Puede emplearse el mismo método de síntesis para preparar ácido 2-cloro-5-metoxibenzóico a par-
15 tir de 2-cloro-5-hidroxibenzaldehído.

El ácido 2-metoxi-3,5-dinitrobenzóico puede sinteti-
zarse convenientemente enfriando una mezcla de ácido 2-metoxi
benzóico y ácido sulfúrico concentrado a unos 25° C., añadien-
do ácido nítrico concentrado gota a gota mientras se mantiene
20 la mezcla reaccionante a una temperatura inferior a 30° C. y
vertiendo la mezcla sobre hielo machacado. Puede prepararse
ácido 2-metoxi-3-metil-5-clorobenzóico tratando una solución
de ácido 3-metil-5-clorosalicílico en hidróxido sódico acuoso
con sulfato de dimetilo, calentando a reflujo, tratando con
25 una cantidad adicional de solución de hidróxido sódico, calen-
tando de nuevo a reflujo y acidificando la mezcla de reacción
enfriada. Puede obtenerse ácido 2-amino-3,5,6-triclorobenzói-
co tratando 3,4,6-tricloroftalimida con hipoclorito sódico o
por oxidación de 4,5,7-tricloroisatina con solución de peróxi-
30 do de hidrógeno en medio alcalino.

251267



Los anhídridos de los compuestos activos pueden prepararse eliminando una molécula de agua de dos moléculas de los compuestos en forma de ácidos libres. En la práctica, conviene preparar el anhídrido por acilación del ácido carbónico libre por su haluro de ácido, en presencia de un agente de acilación enérgico, tal como piridina. Así, por ejemplo, puede tratarse una mezcla de piridina seca y benceno seco con un mol del cloruro de ácido del compuesto. La reacción ligeramente exotérmica transcurre con formación de una sal de piridinio intermedia. Se añade después un mol del compuesto en forma de ácido libre, se separa el precipitado de hidrocioruro de piridina, y se aísla el anhídrido buscado por eliminación del benceno. Como ejemplo no limitativo, puede añadirse un mol del cloruro de ácido del ácido 3-metoxi-2,6-diclorobenzóico, rápidamente y agitando, sobre una mezcla de dos moles de piridina seca y un litro de benceno seco. Se añade entonces un mol de ácido 3-metoxi-2,6-diclorobenzóico en porciones, en un periodo de unos 10 minutos, y el precipitado se filtra. El filtrado se concentra después in vacuo dando un residuo del anhídrido del ácido 3-metoxi-2,6-diclorobenzóico deseado.

Los haluros de ácido necesarios para la síntesis anterior y para otras, pueden prepararse haciendo reaccionar el ácido libre con un trihaluro de fósforo de la manera corriente. Por ejemplo, el tratamiento de los compuestos con tricloruro de fósforo hasta que cesa la reacción da los cloruros de ácido buscados. Como ejemplo específico no limitativo, un mol de ácido 3-metoxi-2,6-diclorobenzóico puede mezclarse con 500 cc. de benceno seco y tratarse gota a gota con agitación enérgica, con 0,9 moles de tricloruro de fósforo, enfriando

25 12 67



do exteriormente, si es necesario. Cuando se ha añadido la totalidad del PCl_3 y ha cesado el desprendimiento de ácido clorhídrico, se separa el disolvente por destilación in vacuo. Se destila luego el residuo in vacuo para dar el cloruro de ácido del ácido 3-metoxi-2,6-diclorobenzóico que se busca.

Pueden prepararse fácilmente partiendo del ácido libre, compuestos que son sales, esteres o amidas de los compuestos activos. Asi, por ejemplo, el tratamiento del ácido libre con hidróxido amónico da un producto que es la sal amónica. Análogamente, pueden obtenerse sales de metales alcalinos de los compuestos tratando los ácidos libres con bases, por ejemplo, con los hidróxidos de los metales alcalinos. El tratamiento del ácido con hidróxido sódico da asi la sal sódica como producto, mientras que, si se emplea hidróxido potásico resulta la sal potásica. A título ilustrativo, pueden tratarse 0,5 moles de ácido 2-metoxi-3,5-diclorobenzóico en 500 cc. de metanol con 0,5 moles de hidróxido sódico en 100 cc. de metanol. El metanol se elimina destilando in vacuo, y el residuo se convierte en una papilla con 100 cc. de éter frio, seco, se filtra, se prensa hasta secarlo y se seca completamente en una estufa de vacio resultando la sal sódica del ácido 2-metoxi-3,5-diclorobenzóico.

Pueden prepararse sales amónicas de los compuestos activos por adición de los ácidos libres sobre varias aminos. Pueden utilizarse como aminos típicas para la preparación de dichas sales amónicas: dimetilamina, trimetilamina, trietilamina, dietanolamina, trietanolamina, isopropilamina, morfolina y productos análogos. Los productos resultantes son, respectivamente, las sales de dimetilamina, trimetilamina, trietilamina, dietanolamina, trietanolamina, isopropilamina y morfolina de

25 12 67



los diversos ácidos. Esto puede ilustrarse por el tratamiento de 0,5 moles de ácido 2,6-dimetoxi-3-clorobenzóico disueltos en 500 cc. de éter seco, con 0,5 moles de dietanolamina. El sólido que se separa se filtra, se lava con éter frío, se
5 filtra, se prensa para secar, y se seca completamente en una estufa de vacío dando la sal de dietanolamina del ácido 2,6-dimetoxi-3-clorobenzóico buscada.

Pueden prepararse esteres de los compuestos activos por condensación de los ácidos con varios alcoholes. Así, por
10 ejemplo la condensación de alcohol metílico con los ácidos de los esteres metílicos deseados. Otros alcoholes típicos que pueden utilizarse son: propílico, isopropílico, butílico normal, butílico secundario, isobutílico, butílico terciario, amílico, hexílico, heptílico, octílico, nonílico, decílico y análogos.
15 Los productos son los alquilesteres correspondientes de los diversos ácidos. Aunque los esteres complejos del tipo de los preparados por esterificación de los ácidos con butoxietanol, propilenglicol butiléter y análogos son productos útiles de acuerdo con esta invención, son esteres preferidos
20 aquellos en los que el grupo esterificante es un grupo alquilo no sustituido que contiene de 1 a 10 átomos de carbono. La condensación del ácido con el alcohol se realiza convenientemente en un disolvente inerte, por ejemplo un hidrocarburo aromático, y en presencia de un pequeño porcentaje en peso de un
25 catalizador ácido tal como ácido p-toluenosulfónico. El agua que se forma durante la esterificación puede separarse continuamente en muchos casos de la mezcla reaccionante por destilación a medida que se forma, pudiendo medirse su volumen para determinar cuando se ha terminado la esterificación. El
30 ester se aísla después por destilación del disolvente inerte.

251267



Por ejemplo, una mezcla de 0,5 moles de ácido 2-metoxi-3,5-dinitrobenzónico, 0,5 moles de alcohol butílico normal y 3,0 gr. de ácido p-toluenosulfónico en 500 ml. de benceno, se agita y se calienta a reflujo hasta que se han separado del destilado 9 cc. de agua. La mezcla de reacción enfriada se extrae luego con solución acuosa de carbonato sódico, se filtra y se evapora el benceno in vacuo. El residuo puede destilarse luego in vacuo para dar el ester butílico normal del ácido 2-metoxi-3,5-dinitrobenzoico.

10 Pueden prepararse convenientemente amidas de los compuestos activos haciendo reaccionar los haluros de ácido de estos compuestos con amoniaco o con diversas aminas. La reacción puede realizarse en un disolvente inerte, tal como éter o benceno, Se utilizan preferiblemente 2 moles de la amina por cada mol del haluro de ácido empleado, puesto que el haluro de hidrógeno que queda libre durante la reacción es absorbido por una parte de la amina libre que queda. Las amidas insustituidas más sencillas pueden prepararse haciendo reaccionar los cloruros de ácido con amoniaco, bien sea en forma de gas libre o bien de solución acuosa. Estas amidas pueden prepararse también por hidrólisis de los correspondientes nitrilos. Como ejemplo ilustrativo de la preparación de una amida insustituida, puede hacerse pasar gas amoniaco seco, agitando energicamente, sobre un mol del cloruro de ácido del ácido 3-metoxi-2,6-diclorobenzónico disuelto en 500 cc. de benceno seco. Cuando no se absorbe ya más amoniaco gaseoso, se separa por filtración la sal precipitada y se extrae con éter. Los extractos étereos reunidos y el filtrado bencénico se secan, se filtra, y se concentran para dar la amida del ácido 3-metoxi-2,6 diclorobenzónico.

15
20
25
30

25 12 67



Pueden prepararse amidas sustituidas por reacción de los haluros de ácido con aminas, tal como por ejemplo cualquiera de las aminas primarias secundarias propuestas anteriormente para la preparación de las sales amínicas. Así, por ejemplo, la reacción de los cloruros de ácido con metilamina, butilamina, decilamina o dietilamina da, respectivamente, las N-metilamidas, N-butilamidas, N-decilamidas o N,N-dietilamidas. Aunque pueden utilizarse aminas más complejas, tal como las aminas aromáticas, como reaccionante amínico para dar los productos que se buscan, denominadas específicamente anilidas, se prefieren como reaccionantes amínicos las alquilaminas que contienen hasta 10 átomos de carbono. La preparación de amidas sustituidas de acuerdo con esta invención puede ilustrarse por el ejemplo en el cual se añaden 2 moles de dietilamina, disueltos en 250 ml. de benceno, gota a gota, agitando energicamente, sobre un mol del cloruro de ácido del ácido 2,6-dimetoxi-3-clorobenzóico en 500 ml. de benceno seco. Cuando se ha añadido la totalidad de la amina, se calienta a reflujo la mezcla de reacción durante 2 horas y luego se enfría. La sal precipitada se filtra y se extrae con éter. Los extractos etéreos reunidos y el filtrado bencénico se secan luego, se filtran y se concentran dando un residuo de la N,N-dietilamida del ácido 2,6-dimetoxi-3-clorobenzóico.

Para uso práctico como herbicidas, los compuestos activos de esta invención se formulan en composiciones herbicidas con vehiculos inertes para obtener concentraciones adecuadas y facilitar el manejo. Por ejemplo, estos compuestos pueden formularse como polvos combinandolos con sustancias inertes del tipo de los talcos o las arcillas. Las sales de metal alcalino de los compuestos son particularmente adecuadas para



251267

dichas formulaciones en polvo, siendo convenientes para uso en el campo los polvos que contienen de 5 a 25 % en peso de compuesto activo. Como ejemplo no limitativo, puede combinarse 10% en peso de la sal sódica del ácido 2-metoxi-3,5-diclorobenzóico con 90% en peso de talco y molerse hasta el tamaño de partícula deseado en un molino-mezclador mecánico.

Sin embargo, los compuestos de esta invención se aplican preferiblemente como riegos. Estos pueden prepararse como simples disoluciones disolviendo los compuestos en disolventes orgánicos tales como xileno, queroseno o los naftalenos metilados. Los esterres de los compuestos, que son frecuentemente líquidos a la temperatura ambiente, son particularmente adecuados para la preparación de fórmulas por este método. Las sales aminicas de los compuestos suelen presentar buena solubilidad en agua y pueden emplearse directamente en forma de soluciones acuosas.

Los compuestos de esta invención pueden también emulsificarse o suspenderse en agua por adición de emulsificantes y humectantes. Una composición típica de esta clase de acuerdo con esta invención, comprendería, por ejemplo, 59 % del ester butílico normal del ácido 2-metoxi-3,5-dinitrobenzóico, 10 % de xileno, 26 % de queroseno y 5 % de un emulsificador de alcohol alquilarilpoliéter, estando todas las cantidades referidas a peso. Como otro ejemplo ilustrativo, una composición concentrada emulsificable de un ácido libre de acuerdo con esta invención comprendería, en peso, 25 % de ácido 2,6-dimetoxi-3-clorobenzóico, 40 % de un emulsificador aromático de polietilenoglicoléter y 35 % de metanol. Estas composiciones concentradas emulsificables pueden diluirse con agua a cualquier concentración que se desee para el uso.

25 12 67



Las composiciones herbicidas se aplican directamente a las plantas que se quieren combatir, o bien puede tratarse el suelo en el cual se están cultivando las plantas. Si se desea, puede agregarse a las formulaciones sustancias tales como otros
5 pesticidas, estabilizadores, activadores, sinérgicos, esparcidores y adhesivos. No hay diferencia importante en cuanto al efecto por la cantidad de agua o disolvente orgánico que se emplee para diluir estos herbicidas, con tal que se distribuya de una manera uniforme sobre un área determinada la misma cantidad de producto químico. Esta distribución puede conseguirse
10 por ejemplo, con rociados a baja presión y bajo volumen, a la dosis de 38 litros de rociado por cada 0,4047 hectáreas, aproximadamente.

Al aplicar los compuestos herbicidas, hay que tener en
15 cuenta la naturaleza y la fase de desarrollo de la cosecha, las especies de maleza presentes, la fase de desarrollo de la maleza, los factores ambientales que influyen en la velocidad y el vigor del desarrollo de la maleza, las condiciones atmosféricas en el momento de la aplicación e inmediatamente después y la dosis que hay que aplicar a un área determinada. La susceptibilidad de la maleza es máxima cuando es pequeña y está desarrollándose rápidamente. Por lo tanto, la aplicación temprana logra un mejor control con menos producto químico y mayores rendimientos, a causa de la pronta destrucción de la maleza, competitiva.
25 Cuanto mayor y más vieja es la maleza, tanto mayor es la concentración que se necesita para destruirla. Las plantas anuales de verano tales como armuelle silvestre, quenopodio, cizaña y girasol deben rociarse cuando tienen una altura menor de 10,16 cm. Las plantas anuales de invierno, tales como varias
30 clases de mostaza, "fan-weed" cardo estrellado amarillo y rábano

25 12 67



silvestre, se destruyen con la máxima facilidad cuando están todavía en el estado de roseta. Generalmente la maleza que se desarrolla rápidamente bajo condiciones óptimas es relativamente susceptible, mientras que la que se desarrolla en condiciones adversas tiende a ser resistente a los riegos herbicidas.

La eficacia de los compuestos de actividad herbicida de esta invención en pequeñas cantidades hace que resulten económicos para combatir la maleza en áreas grandes, con un gran ahorro de mano de obra y costo, además de conseguir los correspondientes incrementos de las cosechas. Estos compuestos son particularmente útiles en el control de la maleza porque son nocivos para muchas clases de maleza pero inofensivos o relativamente inofensivos para algunas cosechas cultivadas. Cantidades minúsculas en contacto con los tejidos de la planta pueden ser absorbidas y trasladadas a todas las partes de la misma, causando cambios notables en la forma y en las funciones y conduciendo frecuentemente a su muerte. La cantidad real de compuesto que hay que emplear depende de varios factores pero está influida principalmente por las especies vegetales de plantas indeseadas que se quieren combatir. Así, mientras que frecuentemente son suficientes fracciones de 0,4536 kg. del compuesto real o de su equivalente de un ester, sal, amida o su anhídrido, para el control de maleza de post-emergencia, sobre 0,4047 Ha. de zonas de maíz, lino, cosechas de hierbas perennes, pastos o prados (sin legumbres), trigo, y análogos, las especies particulares de maleza que se encuentran en material de vivero durmientes (latentes) caedizos y siempreverdes, coníferas de vivero, eriales, matorrales leñosos, y análogos, pueden necesitar el empleo de 0,4536 Kg., o



251267

multiplos de esta cantidad, de los compuestos o de sus derivados por cada 0,4047 Ha. para un buen control. Pueden hacer se ajustes de dosificación con las aplicaciones de bajo volumen y baja presión propuestas, cambiando el tamaño de tobera, 5 la separación de la misma, la presión o la velocidad de recorrido del equipo de rociado.

La actividad herbicida de los compuestos químicos se demuestra frecuentemente por la facultad de los mismos para anular o retrasar el crecimiento de las plantas de tomate. La 10 planta de tomate se desarrolla fácilmente y se mantiene bajo condiciones uniformes para fines experimentales en invernaderos y su reacción frente a los productos químicos es muy parecida a la que se observa para una gran variedad de plantas indeseables en el campo.

15 La actividad herbicida de los compuestos activos en esta invención, por ejemplo, puede demostrarse en experimentos en invernadero sobre plantas de tomate juvenes en tiestos. Las composiciones herbicidas de acuerdo con esta invención que - contienen 10 % de compuesto activo en forma de polvo, se dispersan en agua a una concentración de 2000 partes por millón 20 de producto químico activo real. Se añaden 10 mililitros de una parte alicuota de la dispersión a la superficie del suelo de las plantas de tomate de una altura de aproximadamente 13 a 18 cm. Para evitar una indebida concentración o acumulación del producto químico en cualquier zona determinada, se 25 abren 5 hoyos del tamaño de un lápiz y aproximadamente 25 mm. de profundidad, en la superficie del suelo alrededor del retoño, y la aplicación de 10 ml. se divide en partes iguales entre los 5 hoyos. Se utilizan 3 plantas para cada aplicación. 30 Las plantas tratadas se mantienen en las condiciones del inver

25 12 67



nadero durante 7 días, provistas con riego subterráneo, y se observa la reacción al tratamiento. Los resultados indican un orden elevado de toxicidad herbicida de las composiciones de esta invención.

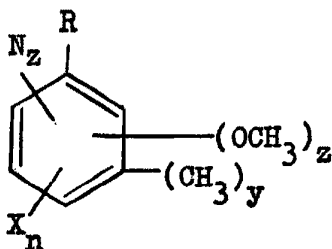
5 Esta solicitud que corresponde a la presentada en E.U. A. el 4 de Agosto de 1958, bajo el número 753.113, 15 de Septiembre de 1958, núm. 760.877, 22 de Septiembre de 1958, núm. 762.237, 23 de Septiembre de 1958, núm. 762709, y 13 de Octubre de 1958, núm. 766.661, 13 de Octubre de 1958, núm. 766.662
10 13 de Octubre de 1958, núm. 766.663, 13 de Octubre de 1958, núm. 766.664, 13 de Octubre de 1958, núm. 766.720, 19 de Noviembre de 1958, núm. 774.806, y 19 de Noviembre de 1958, núm. 774.807, se acoge a los beneficios del artículo 51 del vigente Estatuto sobre Propiedad Industrial.

15

N O T A

20 Los puntos de invención propia y nueva que se presentan para que sean objeto de esta solicitud de Patente de Invención en España, por VEINTE años, son los siguientes:

25 1ª.- Mejoras introducidas en la preparación de composiciones herbicidas, que comprenden combinar un vehículo inerte y un compuesto que tiene la fórmula de estructura general



25 12 67



en la que X es cloro o bromo, n es un número entero de 0 a 3, z es un número entero de 0 a 2, y es 0 o 1, N es el radical nitro o amino y R es el radical $-\text{COOH}$, $-\text{CHClCOOH}$, o $-\text{CCl}_2\text{COOH}$, siendo dicho compuesto específicamente uno de los siguientes:

5 ácido 2-metoxi-3,5-diclorobenzóico, ácido 2-metoxi-3,5-dibromobenzóico, ácido alfa-clorofenilacético, ácido alfa,alfadiflorofenilacético, ácido 2-amino-3,5-dinitrobenzóico, ácido 3-metoxi-2,6-diclorobenzóico, ácido 2-cloro-5-metoxi-benzóico, ácido 2-metoxi-3-metil-5-clorobenzóico y ácido 2-amino-3,5,6-tri-
10 clorobenzóico, estando dicho compuesto en forma del ácido libre, el anhídrido de ácido, una sal, una amida o un ester.

2º.- Método para combatir la vida vegetal indeseable que comprende poner en contacto dichas plantas con un compuesto herbicida según se define en el punto 1, o con una composición herbicida que consiste en dicho compuesto y un vehículo
15 inerte.

3º.- "Mejoras introducidas en la preparación de composiciones herbicidas".

20 Tal y como se ha descrito en la Memoria que antecede, y con los fines que se han especificado.

Esta Memoria consta de quince hojas, escritas por una sola de sus caras.

Madrid, - 1 FEB 1960
P.A.

25

Alberto de Elizaburu
Por Poderes.