

302-26

9 JUL 1964

P.-27.141

Nº 65.370  
U.S. Serial nº 53066  
Case X-2561  
Confirmation of French  
Patent 1.298.717



302526

MEMORIA DESCRIPTIVA

que se presenta para unir a la solicitud  
de  
P A T E N T E    D E    I N T R O D U C C I O N  
formulada el 29 de Julio de 1964, con el Núm. 302.526  
en  
E S P A Ñ A  
por DIEZ años

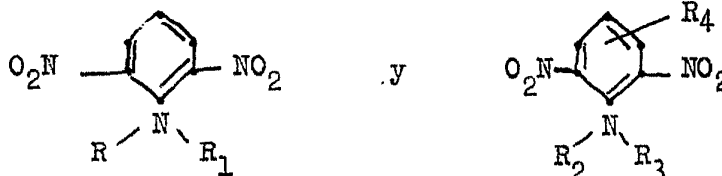
a nombre de ELI LILLY AND COMPANY, entidad norteamericana,  
establecida en 740 South Alabama Street, Indianapolis,  
Indiana, Estados Unidos de América, por:

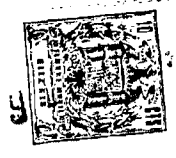
"UN PROCEDIMIENTO PARA LA PREPARACION DE COMPOSICIONES  
HERBICIDAS"

=====

Este invento crea un grupo de nuevas dinitroanilinas  
sustituidas que tienen actividad herbicida, composiciones  
herbicidas que contienen dichos nuevos compuestos y proce-  
dimientos para la preparación de los mismos.

5            Los compuestos creados por este invento están represen-  
tados por las siguientes fórmulas:





5 donde R es etilo, n-propilo, n-butilo o alilo; R<sub>1</sub>, R<sub>2</sub> y R<sub>3</sub> son metilo, etilo, n-propilo, n-butilo o alilo; cuando se agrupan R y R<sub>1</sub>, y R<sub>2</sub> y R<sub>3</sub>, forman una cadena de alquileo necesaria para completar un anillo de piperidina o pirrolidina; y R<sub>4</sub> es un halógeno tal como cloro, bromo o flúor, un grupo halo-alcoholo tal como trifluorometilo, α-bromometilo, fluorometilo, bromometilo, triclorometilo o un grupo clorometilo, o un grupo alcoholo que tiene -14 átomos de carbono tal como metilo, isopropilo, n-butilo, t-butilo o similares.

10

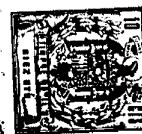
Las dinitroanilinas sustituidas creadas por este invento son o sólidos cristalinos amarillos de bajo punto de fusión o aceites densos y viscosos de color naranja. Se preparan fácilmente por calentamiento del 2,6-dinitroclorobenceno o un 2,6-dinitroclorobenceno sustituido con una amina secundaria en un disolvente inerte. Por ejemplo, la N,N-di-n-propil 2,6-dinitroanilina se prepara por reacción del 2,6-dinitroclorobenceno con un exceso de di-n-propilamina en un disolvente no reactivo adecuado tal como benceno o etanol. El cloruro de hidrógeno producido como un subproducto en la reacción es inmediatamente retenido por el exceso de di-n-propilamina presente, para formar clorhidrato de di-n-propilamina. Si se emplea un disolvente orgánico no polar tal como benceno en el cual es insoluble la sal clorhidrato, la sal se puede separar por filtración y la N,N-di-n-propil 2,6-dinitroanilina deseada se recupera por evaporación del filtrado. Si se usa un disolvente orgánico polar tal como etanol en el cual la sal clorhidrato es soluble, la mezcla de la reacción se evapora a sequedad y el residuo se trata con una mezcla de agua y éter. La sal clorhidrato se disuelve en agua y la N,N-di-n-propil 2,6-dinitroanilina

15

20

25

30



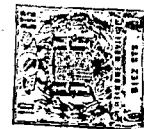
se extrae en la capa de éter y se recupera evaporando el éter. Los compuestos que tienen un sustituyente en la posición 4 de la anilina tales como la N,N-di-n-propil 4-cloro-2,6-dinitroanilina y la N,N-di-n-propil 2,6-dinitro-p-toluidina se preparan de una manera similar empleando como materiales de partida 2,6-dinitro-1,4-dicloro-benceno o 3,5-dinitro-4-cloro tolueno respectivamente en vez de 2,6-dinitroclorobenceno en el procedimiento sintético anterior.

Los siguientes compuestos son ejemplos de los creados por este invento y sintetizables por el procedimiento citado anteriormente:

- N,N-di-n-propil 4-trifluorometil-2,6-dinitroanilina
- N,N-di-n-propil 3-cloro-2,6-dinitroanilina
- N,N-di-n-butil 4-fluoro-2,6-dinitroanilina
- 15 N,N-dietil 4-trifluorometil-2,6-dinitroanilina
- N,N-di-n-butil 3-etil-2,6-dinitroanilina
- N-etil-N-n-butil 2,6-dinitroanilina
- N-metil-N-n-propil 2,6-dinitro-p-toluidina
- N,N-dimetil 2,6-dinitro-m-toluidina
- 20 N,N-di-n-propil 4-n-butil-2,6-dinitroanilina
- N,N-di-n-propil 4-t-butil-2,6-dinitroanilina
- N-n-propil-N-n-butil 4-n-propil-2,6-dinitroanilina
- N-etil-N-n-propil 4-isopropil-2,6-dinitroanilina
- N,N-di-n-propil 4-clorometil-2,6-dinitroanilina
- 25 N,N-di-n-propil 4-bromo-2,6-dinitroanilina
- N,N-dietil 4( $\alpha$ -cloroetil)2,6-dinitroanilina

Los compuestos creados por este invento son herbicidas selectivos y son capaces de exterminar las hierbas en germinación en presencia de hierbas establecidas y de la mayoría de las plantas de hoja ancha. Los compuestos son particular-

302526



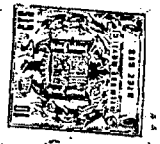
mente efectivos para matar las malas hierbas en germinación, y una ventaja de los compuestos es que se necesitan unas proporciones de aplicación considerablemente mayores para matar las hierbas de cultivo en germinación que las requeridas para destruir las malas hierbas en germinación. Cuando se emplean como herbicidas anteriores al brote, se pueden usar las 2,6-dinitroanilinas de este invento para eliminar o reducir considerablemente el número de malas hierbas, particularmente hierbas rastreras y cola de zorro, en prados establecidos que contienen hierbas deseables tales como hierba azul, Zoysia, hierba de San Agustín, hierba amófila, cañuela y hierba de Bermuda; pueden usarse para eliminar las hierbas en germinación de las áreas de cultivo en donde cultivos tales como soja, algodón y fresas se están desarrollando; y se pueden usar para eliminar la germinación de hierbas de jardines y de otros diversos lugares tales como caminos de grava para coches, paseos, costados de carreteras y similares. Los compuestos se aplican al área particular en dosis que varían de 0.112 a 22.4 kilos por hectárea. Dosis de aplicación superiores a 22.4 kilos por hectárea de la misma sustancia se requieren generalmente para dañar la mayoría de las plantas de hoja ancha, y cantidades de hasta 71.68 kilos por hectárea o aun mayores de N,N-dialcohil 2,6-dinitroanilina han demostrado poco efecto sobre las hierbas de prado establecidas. Los compuestos se pueden formular y distribuir en el área de tratamiento ya sea como pulverizaciones, o en gránulos o sobre soportes tales como vermiculita o turba, como es bien conocido en esta actividad.

Entre los brotes de hierba que se pueden controlar por el uso de uno de los compuestos creados por este invento son



las hierbas indeseables tales como las hierbas rastreras  
(Digitaria Sanguinalis y Digitaria ischaemum); cola de  
zorro verde y amarilla (Setaria viridis y Setaria Lutescens);  
hierba Johnson (Sorghum halepense); hierba de ganso -  
5 (Eleusine indica); espina de arena (Cenchrus pauciflorus);  
hierba de bruja (Panicum Capillare); y análogas, así como  
los brotes de hierbas deseables tales como (hierba de Bermuda)  
(Cynodon dactylon); hierba azul de Kentucky (Poa pratensis)  
cañuelas (Festuca Sp.); hierbas de huerto (Dactylis glomerata)  
10 agrostide (Agrostis alba); sorgo (Sorghum vulgare); y las si-  
milares.

Las 2,6-dinitroanilinas que tienen dos grupos n-pro-  
pilo sustituidos en el nitrógeno amino constituyen un grupo  
preferido de herbicidas selectivos a causa del amplio inter-  
15 valo de seguridad inherente en su uso entre la concentración  
efectiva para el control de las hierbas en germinación y  
la concentración a la cual comienza a aparecer un daño sus-  
tancial en las plantas del cultivo. Por ejemplo en pruebas  
de invernadero, las N-N-di-n-propil 2,6-dinitroanilina, N,N-  
20 di-n-npropil 4 cloro-2,6-dinitroanilina; N,N-di-n-propil-4-  
trifluorometil-2,6-dinitroanilina y N,N-di-n-propil 2,6-di-  
nitro-p-toluidina han demostrado una capacidad para dañar  
seriamente hierbas en germinación en dosis de aplicación de  
0,224 a 0.9 kilos por hectárea de un compuesto herbicidamente  
25 activo cuando se aplicó a la parcela de ensayo como una pul-  
verización. En ensayos similares de invernadero, los compues-  
tos anteriores han mostrado poco o ningún daño a plantas de  
cultivo tales como soja y algodón, ya sean como plantas en  
germinación o como plantas desarrolladas en dosis de aplica-  
30 ción de 4.5 a 9 kilos por hectárea o aun más elevadas. Otras



plantas de cultivo que muestran poco daño al serles apli-  
cada una cantidad herbicidamente efectiva de uno de los  
compuestos preferidos anteriores son las hierbas, avena y  
trigo, y las plantas de hoja ancha como alfalfa, judías ver-  
5 des, soja, fresas, rábanos, abelmosco, pepinos, algodón,  
melones, etc. ....

La falta de toxicidad de los compuestos anteriormente  
citados para los céspedes de hierbas desarrolladas fué es-  
tablecida aplicando 71.7 kilos por hectárea de N-N-di-n-  
10 propil 2,6-dinitro anilina a céspedes de hierba amófila,  
hierba de Bermuda y hierba de San Agustín en el invernadero.  
No hubo daño apreciable en los céspedes desarrollados al ter-  
minar este ensayo. Los ensayos en el campo se llevaron a ca-  
bo empleando el mismo compuesto como un herbicida selectivo pa-  
15 ra la eliminación de las hierbas en germinación. Se empleó  
una dosis más alta puesto que se deseaba que la efectividad  
del compuesto herbicida persistiera por un periodo de varias  
semanas. Los resultados de estos ensayos en el campo emplean-  
do una fórmula granular de N,N-di-n-propil 2,6-dinitroa-  
20 nilina para eliminar los brotes de hierba rastrera se mues-  
tran en la Tabla I. En la columna 1 de la tabla se da la do-  
sis de aplicación en kilos de compuesto activo por hectárea,  
y la columna 2 da el intervalo de control de hierbas rastre-  
ras en términos de eliminación porcentual de brotes de hier-  
25 bas rastreras comparado con el número de plantas rastreras  
presentes en un area de control.

302526



TABLA I

Efecto de la N,N-di-n-propil 2,6-dinitroanilina en la destrucción de hierbas rastreras en brote en el campo

	<u>Dosis de aplicación de material activo en Kg/ha</u>	<u>Eliminación porcentual de hierbas rastreras en brote</u>
5	2.8	67 -99.9
	5.6	87 -99.9
	11.2	98.2-100
10	22.4	99.7-100
	33.6	100
	44.8	99.9-100

Un preparado emulsionable que contiene 1.8 kg. de N,N-di-n-propil 2,6-dinitroanilina por 3.78 l. de concentrado demuestra una eficacia similar en la eliminación de brotes de hierbas rastreras en el campo.

Este invento se ilustra ulteriormente con los siguientes ejemplos específicos:

20

EJEMPLO 1

Preparación de

N,N-di-n-propil 2,6-dinitro-anilina

Una solución que contiene 0.1 m (moles) de di-n-propilamina y 100 ml de benceno se añadió a una solución que contiene 0.05 m de 2,6-dinitroclorobenceno en 100 ml de benceno. La mezcla reaccionante se calentó a la temperatura de reflujo durante media hora aproximadamente, al cabo de cuyo tiempo se forma un precipitado cristalino de clorhidrato de di-n-propilamina. La mezcla reaccionante se filtró para se-

30



parar estos cristales y el filtrado se calentó otra vez a la temperatura de reflujo durante unos 15 minutos. El benceno y la amina en exceso se eliminan por evaporación al vacío.

5 El residuo que contiene N,N-di-n-propil 2,6-dinitroanilina se cristalizó y recristalizó en etanol.

Punto de fusión: 50-52° C.

Análisis Calculado: N, 15.72 Encontrado: N, 15.52

### EJEMPLO 2

10

#### Preparación de

#### N,N-dietyl 2,6-dinitro-anilina

15

Siguiendo el procedimiento del Ejemplo 1, una solución bencénica que contiene 2g de 2,6-dinitroclorobenceno y una solución bencénica que contiene un exceso de dietilamina se calentó a la temperatura de reflujo durante media hora aproximadamente. El clorhidrato de dietilamina formado como un subproducto de la reacción se separó por filtración y el filtrado se calentó otra vez a la temperatura de reflujo durante unos 15 minutos. Evaporando el disolvente y el exceso de amina al vacío se produce un residuo anaranjado que contiene N-N-dietyl 2,6-dinitro-anilina la cual se recristalizó en alcohol. La N,N-dietyl 2,6-dinitroanilina así preparada fundió a unos 46-48°C.

20

25

Análisis

Calculado: N, 17.56

Encontrado: N, 17.63

### EJEMPLO 3

#### Preparación de

#### N,N-di-n-butyl 2,6-dinitroanilina

30

Siguiendo el procedimiento del Ejemplo 1, 2,6-dinitro-

302520



clorobenceno y di-n-butilamina se hacen reaccionar en solución bencénica para preparar N,N-di-n-butil 2,6-dinitroanilina. El compuesto se aisló por el procedimiento del Ejemplo 1. Los intentos de cristalización del material aislado en etanol indicaron que la N,N-di-n-butil 2,6-dinitroanilina tiene un punto de fusión inferior a la temperatura ambiente.

Análisis            Calculado: N, 14.23            Encontrado: N, 14.51

#### EJEMPLO 4

10

#### Preparación de 2,6-dinitro-1-piperidinobenceno

Siguiendo el procedimiento del Ejemplo 1, 2,6-dinitroclorobenceno y piperidina se hacen reaccionar en solución bencénica para producir 2,6-dinitro-1-piperidinobenceno el cual fundió a unos 72-75° C después de dos recristalizaciones en etanol.

Análisis:            Calculado: N, 16.74            Encontrado: N, 16.62

#### EJEMPLO 5

20

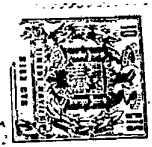
#### Preparación de 2,6-dinitro-1-pirrolidinobenceno

Siguiendo el procedimiento del ejemplo 1, pirrolidina y 2,6-dinitroclorobenceno se hacen reaccionar en solución bencénica. El 2,6-dinitro-1-pirrolidinobenceno así formado se aisló por el procedimiento del Ejemplo 1 y fundió a unos 109-112° C. después de cristalización doble en etanol.

Análisis            Calculado: N, 17.72            Encontrado: N, 17.55

30

302526



EJEMPLO 6

Preparación de

N,N-di-alil 2,6-dinitroanilina

5 Siguiendo el procedimiento del Ejemplo 1, 2,6-dinitro-  
clorobenceno y dialilamina se hacen reaccionar en solución  
bencénica. La N,N-di-alil 2,6-dinitroanilina así formada se  
aisló por el procedimiento del ejemplo 1. El compuesto fundió  
a unos 50.5-52°C. después de dos recrystalizaciones en etanol  
10 acuoso.

Análisis: Calculado: N, 15.96; C, 54.75; H, 4.98.  
Encontrado: N, 15.03; C, 54.55; H, 4.99

EJEMPLO 7

Preparación de

N,N-di-n-propil 4-cloro-2,6-dinitro-anilina

15 Siguiendo el procedimiento del Ejemplo 1, 0.05 m de  
di-n-propilamina y 0.02 m de 1,4-dicloro-2,6-dinitro-benceno  
20 preparado por el método de Ullmann y Sane', Berichte 44,  
3731 (1911).7 en 50 ml de xileno se calentó a 100°C durante  
72 horas aproximadamente. El clorhidrato de di-n-propilamina  
se separó por filtración, y el filtrado que contiene N,N-di-  
n-propil 4-cloro 2,6-dinitroanilina producida en la reacción  
anterior se evaporó hasta sequedad. La recrystalización del  
25 residuo en etanol dió N,N-di-n-propil 4-cloro-2,6-dinitroa-  
nilina que fundió a unos 70-71°C.

Análisis Calculado: N, 13.93 Encontrado: N, 14.17

30 302526



### EJEMPLO 8

#### Preparación de

#### N,N-di-n-propil 2,6-dinitro-p-toluidina

5 Una solución que contiene 3.5 g de 4-cloro-3,5-dinitrotolueno y 10 ml de di-n-propilamina se calentó a unos 100°C durante 16 horas aproximadamente. La mezcla de la reacción se extrae con éter, separándose un residuo insoluble en el éter de clorhidrato de di-n-propilamina. El extracto etéreo se evaporó a sequedad, y el residuo que contiene N,N-  
10 di-n-propil 2,6-dinitro-p-toluidina se recristalizó en exano. El producto fundió a unos 40-42°C.

Análisis      Calculado: N, 14.94      Encontrado: N, 15.21

### EJEMPLO 9

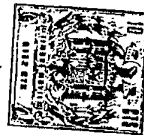
15

#### Preparación de

#### N-etil-N-n-propil 2,6-dinitro-anilina

0.25 m de 4-cloro-2,6-dinitroanilina se disolvieron en 200 ml de xileno y se adicionaron 0.5 m de N-etil-n-propilamina. La mezcla reaccionante se calentó a la temperatura de reflujo durante 4 horas aproximadamente. Se enfrió la mezcla reaccionante, y el clorhidrato de N-etil-n-propilamina, que se formó como un subproducto de la reacción, se separó por filtración. El filtrado que contiene N-etil-N-n-propil  
20 2,6-dinitroanilina producida en la reacción anterior se evaporó a sequedad. El residuo se disolvió en etanol y la solución se decoloró con carbón activo, se concentró y enfrió dando así cristales de N-etil-N-n-propil 2,6-dinitroanilina  
25 que fundió a unos 38-40° C.

302526



## EJEMPLO 10

### Preparación de

### N-n-butil-N-n-propil 2,6-dinitroanilina

5 Una mezcla que contiene 0.5 m de N-n-propil-n-butil-  
amina y 0.25 m de 2,6-dinitroclorobenceno se calentó a la  
temperatura de reflujo durante unas 4 horas. El clorhidrato  
cristalino de N-n-propil-n-butilamina, formada como un sub-  
producto en la reacción anterior, se separó por filtración,  
10 y el filtrado que contiene N-n-butil-N-n-propil 2,6-dinitro-  
anilina se evaporó a sequedad al vacío. Triturando el resi-  
duo oleoso oscuro en exano se obtiene N-n-butil-N-n-propil  
2,6-dinitroanilina cristalina al enfriar a unos 0°C. El com-  
puesto, sin embargo, fundió algo por debajo de la temperatu-  
ra ambiente. Se aisló por filtración a 0° C aproximadamente.

15

Análisis    Calculado: N, 14.93    Encontrado: N, 14.96

## EJEMPLO 11

### Preparación de

### N,N-dietil 4-cloro-2,6-dinitro-anilina

20

Se adicionó a una solución que contiene 8.8 g de dietil-  
amina en 50 ml de etanol, 10 g de 1,4-dicloro-2,6-dinitroben-  
ceno. La mezcla reaccionante se calentó a la temperatura de  
reflujo durante unas 14 horas, se enfrió después, se diluyó  
25 con 50 ml de agua, y se evaporó a la mitad de su volumen apro-  
ximadamente, produciéndose la aparición de un precipitado de  
N,N-dietil 4-cloro-2,6-dinitroanilina. El precipitado se re-  
cristalizó en etanol, para producir N,N-dietil 4-cloro-2,6-  
dinitroanilina que fundió a unos 40-41° C.

30

Análisis    Calculado: N, 15.35    Encontrado: N, 15.54



### EJEMPLO 12

#### Preparación de

#### N,N-di-n-butil- 4-cloro-2,6-dinitroanilina

5 Siguiendo el procedimiento del Ejemplo 11, 10 g de  
1,4-dicloro-2,6-dinitrobenceno y 15.5 g de di-n-butil-amina  
se calientan juntos en solución etanólica, para producir  
N,N-di-n-butil 4-cloro-2,6-dinitroanilina. El compuesto fun-  
día por debajo de la temperatura ambiente, y el compuesto  
10 sólido se aisló de una solución enfriada a 0°C aproxima-  
damente empleando un embudo de filtración enfriado con una  
mezcla de etanol-hielo seco.

Análisis    Calculado: N, 12.74    Encontrado: N, 12.66

### EJEMPLO 13

15

#### Preparación de

#### N,N-dimetil 4-cloro-2,6-dinitroanilina

20 Siguiendo el procedimiento del ejemplo 11, 4.5 g de  
1,4-dicloro-2,6-dinitrobenceno y 3 g de dimetilamina se ca-  
lientan juntos en etanol, formando N,N-dimetil 4-cloro-2,6-  
dinitroanilina. El compuesto fundía a unos 105-108° C des-  
pués de recristalizado en etanol.

Análisis    Calculado: N, 17.10    Encontrado: N, 16.90

25 N,N-di-alil 4-cloro-2,6-dinitroanilina se preparó  
sustituyendo la dialilamina por dimetilamina en el ejemplo  
anterior.

### EJEMPLO 14

30

#### Preparación de

#### N,N-di-n-propil 4-trifluorometil-2,6-dinitroanilina

302520



Se hacen reaccionar en un autoclave a 120°C 50 g de ácido 4-cloro 3,5-dinitrobenzónico con 50 g de tetrafluoruro de azufre durante 7 horas para producir 4-trifluorometil-2,6-dinitroclorobenceno. La evaporación de la mezcla reaccionante a sequedad dejó un residuo sólido que contiene 4-trifluorometil-2,6-dinitroclorobenceno, el cual se purificó por recristalización en una mezcla disolvente de benceno-exano. El 4-trifluorometil-2,6-dinitroclorobenceno cristalino así preparado fundió a unos 53-57°C.

10 Análisis      Calculado: N, 10.35      Encontrado: N, 9.90

8.1 g de 4-trifluorometil-2,6-dinitroclorobenceno se mezcló con 10 ml de di-n-propilamina, y la mezcla reaccionante se calentó a unos 100°C durante unas dos horas. Después, la mezcla reaccionante se diluyó con éter y se filtró para separar el clorhidrato de di-n-propilamina formado como un subproducto de la reacción. El filtrado se lavó con ácido clorhídrico diluido y luego se evaporó a sequedad al vacío. El residuo que contiene N,N-di-n-propil 4-trifluorometil-2,6-dinitroanilina, se recristalizó en exano y fundió a unos 41-43°C.

20 Análisis      Calculado: C, 46,57; H, 4.81; N, 12.53  
                  Encontrado: C, 46,56; H, 4.90; N, 12.62

25

- N O T A -

30 Los puntos de invención propia, no nueva, pero no establecida, practicada ni divulgada en España, que se presen-

302526

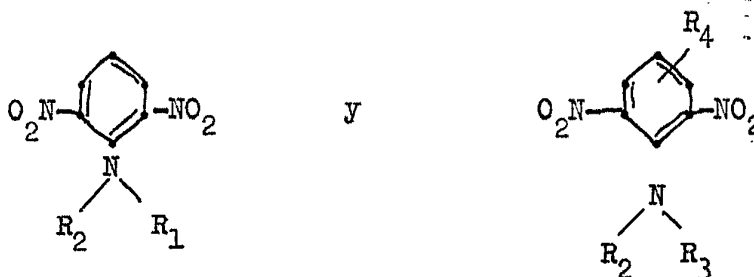


tan para que sean objeto de esta solicitud de Patente de In-  
 troducción por DIEZ años, son los siguientes:

1.<sup>a</sup>.- Un procedimiento para la preparación de com-  
 posiciones herbicidas mezclando con un vehículo un compues-  
 to representado por las fórmulas siguientes:

5

10



15

en donde R es un miembro del grupo que consta de etilo, n-  
 propilo, n-butilo y alilo; R<sub>1</sub>, R<sub>2</sub> y R<sub>3</sub> son miembros del grupo  
 que consta de metilo, etilo, n-propilo, n-butilo y alilo; R  
 y R<sub>1</sub>, y R<sub>2</sub> y R<sub>3</sub>, cuando son tomados conjuntamente con el áto-  
 mo de nitrógeno al que están unidos, forman un miembro del  
 grupo que consta de radicales piperidino y pirrolidino; y R<sub>4</sub>  
 es un miembro del grupo que consta de halogeno, haloalcoholo  
 y alcoholo que tiene de 1 a 4 átomos de carbono.

20

2.<sup>a</sup>.- Un procedimiento de acuerdo con el punto 1 en el  
 que el ingrediente activo es N,N-di-n-propil 4-trifluoro-  
 metil-2,6-dinitro-anilina.

25

3.<sup>a</sup>.- Un procedimiento de acuerdo con el punto 1 en el  
 que el ingrediente activo es N,N-di-n-propil 2,6-dinitro-ani-  
 lina, N,N-di-n-propil 4-cloro-2,6-dinitro-anilina, N,N-di-n-  
 propil 2,6-dinitro-p-toluidina, N,N-di-etil 2,6 dinitro-anili-  
 na o N,N-dialil 2,6-dinitro-anilina.

30

4.<sup>a</sup>.- Un procedimiento para la preparación del ingre-  
 diente activo de acuerdo con el punto 1, caracterizado por  
 poner en contacto 2,6-dinitroclorobenceno o un 2,6-dinitro-

302526



clorobenceno sustituido con una amina secundaria en un disolvente inerte.

5º.- Un procedimiento para la preparación de composiciones herbicidas.

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

Esta Memoria consta de dieciseis hojas escritas a máquina por una sola cara.

Madrid,

P.A.

9 DIC 1954

Handwritten signature and a faint stamp below it.

302525

M. Os AVS.