

FEB. 1965

P. 28.543

Case A-47 Div.



FEB.

308829

MEMORIA DESCRIPTIVA

para solicitar

P A T E N T E D E I N V E N C I O N

en

E S P A Ñ A

por VEINTE años

a nombre de MONSANTO CHEMICAL (AUSTRALIA) LIMITED, entidad australiana establecida en Somerville Road, West Footscray, Victoria, Australia, por:

"MEJORAS INTRODUCIDAS EN LA FABRICACION DE CONCENTRADOS INSECTICIDAS".

La presente invención proporciona nuevos 1-(4-substituídos fenil)-1-(4'-substituídos fenil)-2,2-diclorociclopropanos que, entre otras propiedades, tienen propiedades útiles para combatir pestes de insectos. La invención proporciona también métodos de preparación de dichos compuestos nuevos; el método de combatir pestes de insectos, utilizando dichos compuestos nuevos; y formulaciones insecticidas que incorporen dichos compuestos nuevos.

Los nuevos 1-(4-substituídos fenil)-1-(4'-substituídos fenil)-2,2-diclorociclopropanos de la invención tienen

3 08829



nera diclorocarbeno o que contiene un agente de transferencia de diclorometileno. Así, el 1,1-di-(p-substituído fenil)-etileno se puede hacer reaccionar con un fenil (trihalometil)-mercurio apropiado, tal como fenil(triclorometil)mercurio o fenil(bromodiclorometil)mercurio, el bromodicloro-compuesto reaccionando más rápida y más fácilmente. Los dos componentes de la reacción pueden ser mezclados de cualquier manera apropiada en un solvente aprótico, y calentados. Preferentemente se usa benceno como solvente, pero se pueden usar también otros solventes tales como clorobenceno, dimetoxietano, sulfolano, dimetilformamida, y similares. La temperatura varía según el solvente, que preferentemente debe hervir a más de 50°C. La reacción se hace continuar hasta su substancial completamiento, lo que por lo general insume aproximadamente dos horas, pero períodos más prolongados no son perjudiciales. Como subproducto se obtiene cloruro o bromuro fenilmercúrico, que puede ser separado por filtración. El producto final deseado puede ser aislado con medios convencionales, tales como evaporación y filtración. Se pueden obtener rendimientos de casi un 100%.

Los siguientes ejemplos no limitativos ilustran la preparación de los nuevos compuestos de la invención, por reacción de un 1,1-di-(p-substituído fenil)etileno apropiado con un fenil(trihalometil)mercurio apropiado.

Ejemplo 1

4,4 g. de bromodiclorometilfenilmercurio se agregaron a una solución de 2,54 g. de 1-(p-metoxifenil)-1-(p-etoxi-fenil)etileno en 50 ml. de benceno, y la solución se reflujo durante diez horas. La solución se filtró para separar el bromuro fenilmercúrico y se evaporó bajo presión re-



ducida. La recristalización del residuo proporcionó 1-(4-metoxifenil)-1-(4'-etoxifenil)-2,2-diclorociclopropano, punto de fusión 114-117°C.

Ejemplo 2

5 1-(4-tolil)-1-(4'-tolil)-2,2-diclorociclopropano, punto de fusión 115°C., se preparó mediante el procedimiento descrito en el ejemplo 1, excepto que 1,1-di-(p-tolil)etileno se usó como material inicial.

Ejemplo 3

10 1-(4-metiltiofenil)-1-(4'-metiltiofenil)-2,2-diclorociclopropano se preparó mediante el procedimiento descrito en el ejemplo 1, excepto que 1,1-di-(p-metiltiofenil)etileno y triclorometilfenilmercurio se usaron como materiales iniciales.

15 Ejemplo 4

 Cloroformo (0,2 mol) se agregó de a gotas con agitación a una solución de 1,1-di-(p-metoxifenil)etileno (0,1 mol) en metilciclohexano conteniendo terbutóxido potásico (0,4 mol) a 0°C. La mezcla se dejó calentar hasta 20°C durante la noche, luego se vertió en agua. La fase aceitosa se separó y el solvente se recuperó. El sólido residual se recristalizó en éter de petróleo, para proporcionar 1-(4-metoxifenil)-1-(4'-metoxifenil)-2,2-diclorociclopropano, punto de fusión 141°C.

20

 Un procedimiento alternativo para la preparación de los nuevos compuestos de la invención comprende la reacción del 1,1-di-(p-sustituído fenil)etileno apropiado con un haloformo y una base. El haloformo puede ser cloroformo o bromodiclorometano, mientras que la base es preferentemente terbutóxido potásico; sin embargo, se pueden usar también otras basestales como litio butílico, litio metílico, e hidruro

25

30

3 0 8 8 2 9



sódico. Otros procedimientos alternativos involucrando sistemas que generan diclorocarbano, que pueden ser usados, son la reacción de tricloroacetato etílico y metóxido sódico; o la descarboxilación de tricloroacetato sódico; o la reacción de hexacloroacetona y una base; en cada caso, el 1,1-di-(p-substituído fenil)etileno está incluido en el sistema de reacción.

El 1,1-di-(p-substituído fenil)etileno apropiado como material inicial puede ser preparado mediante métodos conocidos, por ejemplo a partir de bromuro de fenilmagnesio p-substituído y acetato etílico; o a partir de yoduro de metil-magnesio y benzofenona 4,4'-disubstituída, seguido por deshidratación; o a partir de acetofenona substituída, según se indica en "Síntesis Orgánicas", tomos colectivos I, páginas 221-222, edición de 1932.

Los compuestos de acuerdo con la invención son útiles, entre otras aplicaciones, para combatir pestes de insectos, particularmente pestes de insectos resistentes al DDT tales como mosquitos y moscas resistentes al DDT y sus larvas, así como para combatir otras pestes de insectos en general, tales como Prodenia eridania, según se indicará más adelante en la presente. Se supone que la incapacidad de la vida insectil de efectuar la deshidrocloración del compuesto activo arriba especificado es responsable de la actividad, única en su género, del compuesto activo arriba especificado contra pestes de insectos que han llegado a ser resistentes al DDT. Se ha establecido que los compuestos arriba especificados, además de su actividad insecticida mencionada, tienen también un nivel de toxicidad muy bajo con respecto a animales y una gama extensa de plantas económicas.

Al combatir pestes de insectos de acuerdo con



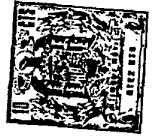
la invención, cualquiera de los compuestos activos especificados, ya sea tal cual o formando parte de una composición insecticida, es aplicado a las plagas insectiles o a su medio ambiente, en cantidad letal o tóxica. Esto puede ser efectuado, distribuyendo el o los compuestos activos especificados, o una composición insecticida que los contiene, en el ambiente infestado o en un ambiente frecuentado por los insectos, por ejemplo suelo agrícola u otros medios de desarrollo, o medios que atraen a los insectos por razones de habitación, alimentación o propagación, de cualquier manera convencional que permita someter los insectos a la acción pesticida del o de los compuestos activos especificados. Esta distribución puede ser efectuada por pulverización o aplicación de composiciones en forma de partículas sólidas a una superficie infestada con insectos o que los atrae, por ejemplo la superficie de suelo agrícola u otros medios ambientes de habitación, tales como la superficie, sobre el suelo, de plantas huéspedes, mediante cualquiera de los métodos convencionales por ejemplo espolvoreo, pulverización mecánica o manual, o pulverización y espolvoreo. Esta distribución también puede ser realizada en el subsuelo, mezclando simplemente el o los compuestos activos especificados, solos o como componentes de un líquido insecticida para pulverización o de una composición en forma de partículas sólidas, con el medio ambiente infestado o con el medio ambiente frecuentado por los insectos, o empleando un vehículo líquido para el o los compuestos activos especificados a fin de efectuar la penetración e impregnación del subsuelo.

Así, aunque los compuestos activos especificados son útiles por sí solos para combatir plagas de insectos, es preferible, al llevar a la práctica el método de la presen-

3 08829



te invención, aplicar el o los compuestos activos especificados a las plagas o al ambiente de las mismas en forma dispersada en un agente de extensión apropiado. En esta memoria descriptiva, el término "dispersado" se usa en su acepción más lata posible, por tanto, el término significa que las partículas del o de los compuestos activos especificados pueden ser de tamaño molecular y mantenidas en solución verdadera en un solvente orgánico apropiado; el término significa también que las partículas pueden ser de tamaño coloidal y distribuidas en una fase líquida en forma de suspensiones o emulsiones o en forma de partículas mantenidas en suspensión por agentes tensioactivos de carácter inionizante; el término significa también que las partículas pueden ser distribuidas en un vehículo semisólido viscoso tal como petróleo u otra base de ungüento de carácter inionizante, pudiendo estar efectivamente disueltas en el vehículo semisólido o mantenidas en suspensión en el mismo con ayuda de apropiados agentes tensioactivos inionizantes; el término significa también que las partículas pueden ser mezcladas con y distribuidas en un vehículo sólido, proveyendo una mezcla en forma de partículas, por ejemplo bolitas, gránulos o polvos; y el término significa también que las partículas pueden formar parte de mezclas que se prestan para ser usadas como aerosoles, inclusive soluciones, suspensiones o emulsiones del compuesto activo especificado en un vehículo tal como diclorodifluorometano y fluorocloroalcanos similares, o mezclas de éstos y/o con otras sustancias, y que hiervan a una temperatura inferior a la ambiental a presión atmosférica. En esta memoria descriptiva, la expresión "agente de extensión" incluye todas las sustancias en las cuales está dispersado el compues

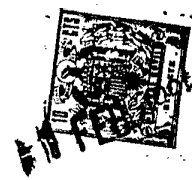


to activo especificado, incluyendo por lo tanto los solventes de una solución verdadera, la fase líquida de suspensiones, emulsiones o aerosoles, el vehículo semisólido de ungüentos, y la fase sólida de sólidos en forma de partículas, por ejemplo bolitas, gránulos y polvos.

La concentración del o de los compuestos activos especificados, empleados de acuerdo con la presente invención para combatir pestes de insectos, puede variar considerablemente, siempre que la dosis requerida de los mismos (es decir la cantidad tóxica o letal) sea suministrada a las pestes o al ambiente de las mismas. Cuando el agente de extensión es un líquido o una mezcla de líquidos (por ejemplo en soluciones, suspensiones, emulsiones o aerosoles), la concentración del compuesto activo especificado, empleada para proporcionar la dosis deseada, es generalmente del orden de un 0,001 hasta un 50 por ciento ponderal. Cuando el agente de extensión es un semisólido o un sólido, la concentración del compuesto activo especificado, empleada para proporcionar la dosis deseada, es generalmente del orden de un 0,01 hasta un 25 por ciento ponderal.

Existe un gran número de líquidos orgánicos que pueden ser usados para la preparación de soluciones, suspensiones o emulsiones del compuesto activo especificado. Por ejemplo, éter isopropílico, acetona, metiletilquetona, octona, dioxano, ciclohexanona, tetracloruro de carbono, dicloruro etilénico, tetracloroetano, hexano, heptano, y alcanos superiores líquidos similares, naftalenos hidrogenados, nafta disolvente, benceno, tolueno, xileno, fracciones de petróleo (por ejemplo las que hierven casi completamente a menos de $204,4^{\circ}\text{C}$ y tienen un punto de inflamación superior a

3 0 8 8 2 9



aproximadamente 26,7°C, particularmente querósén), aceites
minerales que tienen un residuo insulfonable superior a apro-
ximadamente un 80 por ciento y preferiblemente superior a apro-
ximadamente un 90 por ciento. Cuando la fitotoxicidad del
5 agente de extensión líquido orgánico puede presentar un pro-
blema, una porción del mismo puede ser reemplazado por hidro-
carburos alifáticos de bajo peso molecular, tales como dipen-
teno, diisobutileno, trímero propilénico, y similares, o lí-
quidos orgánicos polares apropiados tales como ésteres alifá-
10 ticos y las quetonas alifáticas conteniendo no más de aproxi-
madamente 10 átomos de carbono, ejemplificadas por acetona,
metiletilquetona, diisobutilquetona, dioxano, éter isopro-
pilico, y lo similar. En ciertos casos es conveniente em-
plear como agente de extensión una mezcla de líquidos orgá-
15 nicos, por ejemplo un hidrocarburo aromático y una quetona
alifática.

Quando los compuestos activos especificados
han de ser suministrados a las pestes de insectos o a sus
ambientes en forma de aerosoles, es conveniente disolver di-
20 chos compuestos en un solvente apropiado y dispersar la solu-
ción resultante en diclorodifluorometano o clorofluoro alcanos
similares, o mezclas de éstos, con o sin otros dispersantes de
aerosoles que hiervan a una temperatura inferior a la ambien-
tal a presión atmosférica. Para tal fin, la invención provee
25 como un nuevo artículo de fabricación, que se presta para
combatir insectos voladores, particularmente mosquitos re-
sistentes al DDT, en casas y sus alrededores, un envase pre-
sionizado de aerosol comprendiendo un continente presioniza-
do conteniendo una composición de aerosol que incorpora di-
30 chos compuestos activos.

3 0 8 8 2 9



Los compuestos activos especificados son preferentemente aplicados a las pestes de insectos, o a sus ambientes, en forma de emulsiones o suspensiones. Las emulsiones o suspensiones se preparan, dispersando dichos compuestos activos, ya sea tal cual o en forma de una solución orgánica de los mismos, en agua con ayuda de un agente tensioactivo inióni-
5 co, soluble en agua. La expresión "agente tensioactivo" tal como empleada en esta memoria descriptiva, se usa como en el volumen II de "Agentes tensioactivos y Detergentes" de Schwartz, Perry y Berch (1958, Interscience Publishers, Inc., Nueva York),
10 en lugar de la expresión "agente emulsionante", para significar genéricamente los diversos "agentes emulsionantes" "agentes dispersantes", "agentes humectantes" y "agentes esparcidores" que se prestan para ser mezclados con dichos compuestos activos a fin de asegurar una mejor humectación y dispersión del
15 ingrediente activo en el vehículo acuoso en el cual dichos compuestos activos son insolubles, por reducción de la tensión superficial del agua (ver también "Química de Insecticidas, Fungicidas y Herbicidas" de Frear, segunda edición, página 280). Los agentes tensioactivos contemplados son las
20 substancias capilarmente activas, bien conocidas, que son inionizantes (o iniónicas) y que se describen detalladamente en los tomos I y II de "Agentes tensioactivos y Detergentes" de Schwartz, Perry y Berch (1958, Interscience Publishers, Inc., Nueva York) y también en la publicación de noviembre
25 de 1947, de "Chemical Industries" (páginas 811-824) en un artículo intitulado "Detergentes sintéticos" por John W. McCutcheon, y también en las publicaciones de julio, agosto, septiembre y octubre de 1952 de "Soap and Sanitary Chemicals"
30

3 08829



5 bajo el título "Detergentes Sintéticos". Las exposiciones de estos artículos con respecto a substancias capilarmente activas, no ionizantes, quedan incorporadas por referencia en esta memoria descriptiva a fin de no alargarla innecesariamente. Los agentes tensioactivos preferidos son los agentes tensioactivos iniónicos, solubles en agua, señalados en la patente norteamericana n^o 2.846.398.

10 Dichos compuestos activos pueden ser dispersados mediante procedimientos apropiados (por ejemplo, tambo-reo o molienda) en agentes de extensión sólidos de naturaleza orgánica o inorgánica, y aplicados en forma de partículas al ambiente de las pestes insectiles. Tales materiales sólidos incluyen por ejemplo fosfato tricálcico, carbonato cálcico, caolín, arcilla calcareoferruginosa, kieselguhr, talco, 15 bentonita, tierra de batán, pirofilita, tierra de diatomeas, magnesia calcinada, ceniza volcánica, azufre y materiales sólidos inorgánicos similares, e incluyen por ejemplo materiales de naturaleza orgánica tales como corcho pulverulento, madera pulverulenta, y cáscaras de nuez pulverulentas. Los 20 vehículos sólidos preferidos son las arcillas absorbentes, por ejemplo bentonita. Estas mezclas pueden ser usadas para fines insecticidos en forma seca, o por adición de agentes tensioactivos iniónicos, solubles en agua, los sólidos en forma de 25 partículas secas se pueden hacer humectables por agua de modo de obtener dispersiones o suspensiones acuosas estables que pueden ser usadas para pulverización. Para fines especiales, el o los compuestos activos especificados pueden ser dispersados en un agente de extensión semisólido tal como petrolato, con o sin ayuda de promotores de solubilidad y/o agentes tensioactivos iniónicos. 30

3 08829



Un concentrado, por ejemplo en forma de una base para pulverización o una base sólida en forma de partículas puede ser preparado de manera tal que mezclándolo simplemente con agua o con un agente de extensión sólido (por ejemplo arcilla pulverulenta o talco) u otro material económico, fácilmente obtenible, se pueda producir un insecticida líquido o sólido, en forma de partículas, para uso doméstico o agrícola. En tal composición de concentrado, el o los compuestos activos arriba especificados estarán generalmente presentes en una concentración del 5 al 95 por ciento ponderal, el resto siendo formado por uno o más de los adyuvantes insecticidas bien conocidos, tales como arcillas tensioactivas, solventes, diluentes, vehículos, adhesivos, agentes esparcidores, humectantes, y lo similar.

Un concentrado particularmente útil, listo para mezclarlo o dispersarlo en otros agentes de extensión, es una mezcla íntima de uno o más compuestos activos especificados con un agente humectante y dispersante en una proporción de 0,1 hasta 20 partes del agente tensioactivo con una cantidad suficiente del o de los compuestos activos especificados para formar 100 partes ponderales. Tal concentrado se presta particularmente bien para pulverización a fin de combatir diversas formas de pestes insectiles, agregándole agua. Es ilustrativa de tal concentrado una mezcla íntima de 20 partes ponderales de 1-(4-metoxifenil)-1-(4'-etoxifenil)-2,2-diclorociclopropano y 5 partes ponderales de un agente humectante y dispersante. Otro concentrado útil para pulverización a fin de combatir pestes de insectos es una solución (preferentemente lo más concentrada posible) de uno o más de los compuestos activos especificados en un solvente orgánico conteniendo

308829



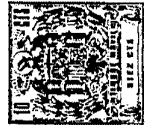
11 FEB 1951

una cantidad menor (por ejemplo un 0,5 hasta un 15 por ciento ponderal basado sobre el peso del o de los compuestos activos) de un agente emulsionante. Es ilustrativa de tal concentrado una solución de 1-(4-metoxifenil)-1-(4'-etoxifenil)-2,2-diclorociclopropano en nafta disolvente o xileno o una fracción de petróleo tal como querosén, conteniendo un agente emulsionante.

En todas las diversas dispersiones arriba descritas para fines insecticidas, dichos compuestos activos pueden ser empleados con provecho en combinación con otros pesticidas, inclusive, por ejemplo, otros insecticidas, nematocidas, bactericidas y herbicidas. De esta manera es posible obtener mezclas que son eficaces contra una gran variedad de pestes y otras formas de organismos vivientes perjudiciales.

La actividad insecticida de los nuevos compuestos arriba especificados quedó demostrada en ensayos con respecto a larvas de mosquito de la especie *Aedes aegypti*, de la familia Culicidae del orden Diptera; y con respecto a moscas domésticas hembras adultas, *Musca domestica*, de la siguiente manera:

Aedes aegypti: Un tubo de cultivo de 25 x 200 mm, sin reborde, se enjuagó con acetona y se colocó en un soporte. El tubo se llenó con 70 cm³ de agua destilada, y 0,1 cm³ del compuesto de ensayo líquido, ó 0,1 g. del sólido, se disolvió en acetona para formar un concentrado del producto químico de ensayo, al 1% ponderal. 0,007 ml de este concentrado se introdujo con pipeta en el tubo de cultivo que contenía el agua destilada. Luego el tubo se taponó con un tapón de goma lavado con acetona, y se agitó para facilitar



la mezcladura completa. Aproximadamente 25 larvas del mosquito *Aedes aegypti*, en un estado temprano de su desarrollo, se transfirieron al tubo con una pipeta. Las larvas se mantuvieron en el tubo a temperatura de ambiente durante 24 horas y al término de este período se efectuaron observaciones de la mortalidad. Todas las larvas capaces de cualquier movimiento se consideraron como vivas. En este ensayo, el 1-(4-metoxifenil)-1-(4'-etoxifenil)-2,2-diclorociclopropano, a una concentración de 0,2 p.p.m., mató el 80% de las larvas; y el 1-(4-tolil)-1-(4'-tolil)-2,2-diclorociclopropano a una concentración de 2. p.p.m. causó una mortalidad del 100%.

Musca domestica: Moscas domésticas hembras, de 2 a 3 días de edad, se anestesiaron con CO₂ gaseoso y se recogieron individualmente por un ala mediante un forceps. Una gota de 1 microlitro de solución de la sustancia química se aplicó a cada mosca (en el dorso del protórax). Se usaron por lo general 10 moscas por nivel de dosis, con repetición de los ensayos. El número de repeticiones variaba según la precisión deseada del ensayo. Las moscas tratadas se colocaron en pequeñas cajas de cartón recubiertas arriba con tejido de alambre. Se les dió alimento líquido durante el período de postratamiento. Las moscas se mantuvieron a la temperatura y humedad relativa existente en el laboratorio. 24 horas después del tratamiento se observó la mortalidad. Las moscas incapaces de movimientos normales, de volar y caminar, se consideraban como muertas. En este ensayo, el 1-(4-metoxifenil)-1-(4'-etoxifenil)-2,2-diclorociclopropano causó una mortalidad del 100% a 1 gamma/insecto; el 1-(4-tolil)-1-(4'-tolil)-2,2-diclorociclopropano causó una mortalidad del 60% a 1 gamma/insecto; y el 1-(4-metoxifenil)-1-(4'-

3 0 8 8 2 9



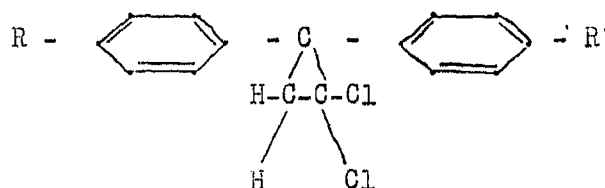
metoxifenil)-2,2-diclorociclopropano causó una mortalidad del 80% a 1 gamma/insecto.

Esta solicitud que corresponde a la presentada en Australia, el día 24 de Octubre de 1963, bajo el número 36877/63, se acoge a los beneficios del artículo 51 del vigente Estatuto sobre Propiedad Industrial.

- N O T A -

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:

1.- Mejoras introducidas en la fabricación de concentrados insecticidas, caracterizadas porque dichos concentrados comprenden un adyuvante insecticida y por lo menos un 1-(4-substituido fenil)-1-(4'-substituido fenil)-2,2-diclorociclopropano de la fórmula estructural:



en que R y R' son substituyentes simétricos y asimétricos elegidos de entre grupos alquilo conteniendo uno hasta cuatro átomos de carbono inclusive, grupos alcoxi conteniendo uno hasta tres átomos de carbono inclusive, y el grupo metiltio.

2.- Mejoras de acuerdo con la reivindicación 1, caracterizadas porque el adyuvante insecticida es un agente humectante y dispersante.



3.- Mejoras de acuerdo con la reivindicación 1, caracterizadas porque el adyuvante insecticida es un solvente orgánico conteniendo un agente emulsionante.

5 4.- Mejoras de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones 1 a 3, caracterizadas porque el 1-(4-substituído fenil)-1-(4'-substituído fenil)-2,2-diclorociclopropano es 1-(4-metoxifenil)-1-(4'-etoxifenil)-2,2-diclorociclopropano.

10 5.- Mejoras de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones 1 a 3, caracterizadas porque el 1-(4-substituído fenil)-1-(4'-substituído fenil)-2,2-diclorociclopropano es 1-(4-tolil)-1-(4'-tolil)-2,2-diclorociclopropano.

15 6.- Mejoras de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones 1 a 3, caracterizadas porque el 1-(4-substituído fenil)-1-(4'-substituído*fenil)-2,2-diclorociclopropano es 1-(4-metoxifenil)-1-(4'-metoxifenil)-2,2-diclorociclopropano.

20 7.- Mejoras de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones 1 a 3, caracterizadas porque el 1-(4-substituído fenil)-1-(4'-substituído fenil)-2,2-diclorociclopropano es 1-(4-propoxifenil)-1-(4'-propoxifenil)-2,2-diclorociclopropano.

25 8.- Mejoras de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones 1 a 3, caracterizadas porque el 1-(4-substituído fenil)-1-(4'-substituído fenil)-2,2-diclorociclopropano es 1-(4-etilfenil)-1-(4'-etilfenil)-2,2-diclorociclopropano.

30 9.- Mejoras de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones 1 a 3, caracterizadas porque el 1-(4-substituído fenil)-1-(4'-substituído fenil)-2,2-dicloroci-

3 08829



clopropano es 1-(4-metoxifenil)-1-(4'-tolil)-2,2-dicloroci-
clopropano.

10.- Mejoras introducidas en la fabricación
de concentrados insecticidas.

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

Esta Memoria consta de diecisiete hojas es-
critas a máquina por una sola cara.

10

Madrid, : 1 FEB. 1965

P.A.

Alberto de Euzkadi
Por Poder
Alberto de Euzkadi

f.b.