



310287

P.- 28.602

A 81335
U.S. 363986 IJ(AMS)

15 ENE 1966

Rehecha I

MEMORIA DESCRIPTIVA

que se presenta para unir a la solicitud
d e

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

formulada el 9 de Marzo de 1965, con el número 310.287

e n

E S P A Ñ A

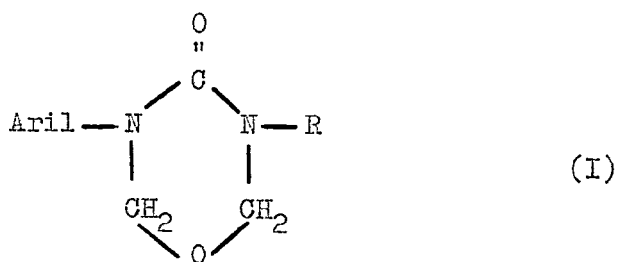
por VEINTE años

a nombre de ROHM & HAAS COMPANY, entidad norteamericana,
establecida en 222 West Washington Square, Filadelfia,
Pensilvania, Estados Unidos de América, por:

"UN METODO PARA PREPARAR UNA COMPOSICION DESTINADA PARA
USO COMO HERBICIDA O PESTICIDA"

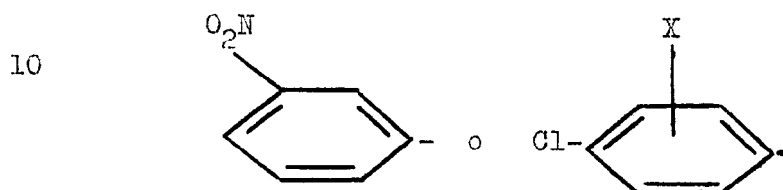
Este invento concierne a un método para preparar
una composición destinada a su utilización como herbicida
o pesticida.

Los compuestos utilizados en el método de este
5 invento son nuevas tetrahidro-3-(fenilo sustituido)-5-al-
cohol-1,3,5-oxadiazin-4-onas y pueden ser representados
por la fórmula:



5

en que R es un grupo alcoholo de 1 a 8 átomos de carbono, y Aril es el radical:



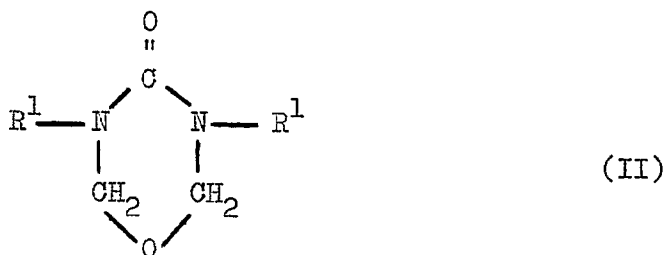
10

en las que X es hidrógeno, metilo o cloro.

15

En 1936, Kadowaki en Bull. Chem. Soc. Japan 11, 248 (1936) asignó el nombre "urona" a la tetrahidro-1,3,5-oxadiazin-4-ona básica. Beachem y otros, en J. Org. Chem. 28, 1876-1877 (1963) describieron la preparación de tres uronas de la estructura:

20



25

en que R¹ es hidrógeno, metilo o metoximetilo. La N,N'-bis-(metoximetil) urona se preparó haciendo reaccionar urea con formaldehído, en presencia de hidroxido de bario, seguido de subsiguiente reacción con metanol bajo condiciones acidas; la preparación de este compuesto está descri-

30

310287



ta también en la patente USA nº 3.059.027. La N,N'-bis
(metoximetil) urona, cuando fue sometida a hidrogenolisis,
produjo N,N'-dimetil urona y, cuando fue sometida a cuida-
dosa hidrolisis, dio la urona propiamente dicha. Lo ante-
5 rior describe los conocimientos previos sobre la síntesis
de tetrahidro-1,3,5-oxadiazin-4-onas. Hasta ahora no se
han descrito ni uronas no simétricas ni ninguna derivada
de fenil ureas.

Los compuestos usados en este invento poseen ex-
10 celentes propiedades herbicidas. Tienen a la vez actividad
herbicida antes del brote y después del brote, y pueden ser
también selectivos en su acción. Esta combinación de propie-
dades los hace particularmente valiosos para el control
práctico de malas hierbas y para el control selectivo del
15 crecimiento de malas hierbas en una variedad de cultivos
económicos.

Ilustrativos de los compuestos usados en este
invento son los siguientes:

Tetrahidro-3-(3-nitrofenil)-5-metil-1,3,5-oxadiazin-4-ona,
20 Tetrahidro-3-(3-nitrofenil)-5-octil-1,3,5-oxadiazin-4-ona
Tetrahidro-3-(4-clorofenil)-5-metil-1,3,5-oxadiazin-4-ona,
Tetrahidro-3-(4-clorofenil)-5-etil-1,3,5-oxadiazin-4-ona,
Tetrahidro-3-(4-clorofenil)-5-butil-1,3,5-oxadiazin-4-ona
Tetrahidro-3-(2,4-diclorofenil)-5-metil-1,3,5-oxadiazin-
25 4-ona
Tetrahidro-3-(2,4-diclorofenil)-5-pentil-1,3,5-oxadiazin-
4-ona
Tetrahidro-3-(3,4-diclorofenil)-5-metil-1,3,5-oxadiazin-
4-ona
30 Tetrahidro-3-(3,4-diclorofenil)-5-etil-1,3,5-oxadiazin-

310287



-4-ona

Tetrahidro-3-(3,4-diclorofenil)-5-isopropil-1,3,5-oxadiazin-4-ona

5 Tetrahidro-3-(3,4-diclorofenil)-5-butil-1,3,5-oxadiazin-4-ona

Tetrahidro-3-(3,4-diclorofenil)-5-sec-amil-1,3,5-oxadiazin-4-ona

Tetrahidro-3-(3,4-diclorofenil)-5-sec-octil-1,3,5-oxadiazin-4-ona

10 Tetrahidro-3-(3-metil-4-clorofenil)-5-metil-1,3,5-oxadiazin-4-ona y

Tetrahidro-3-(2-metil-4-clorofenil)-5-heptil-1,3,5-oxadiazin-4-ona.

15 De acuerdo con el presente invento, el método para preparar la composición destinada a su utilización como herbicida o pesticida está caracterizado por mezclar una tetrahidro-1,3,5-oxadiazin-4-ona de fórmula (I) tal como se define anteriormente y un vehículo o soporte.

20 Las tetrahidro-1,3,5-oxadiazin-4-onas utilizadas en este invento muestran una excelente actividad herbicida sobre una variedad de hierbas monocotiledóneas y dicotiledóneas. Pueden actuar como herbicidas antes del brote y después del brote. Al mismo tiempo, existe un cierto número de plantas de cosecha económicas que han

25 mostrado tolerancia para estos productos químicos. Desde luego, el compuesto activo es aplicado en una cantidad su suficiente para ejercer la acción herbicida deseada. Usualmente esta cantidad está dentro del margen de 0,6 a 24 Kg / Ha, aunque se pueden utilizar dosis superiores hasta

30 de 120 Kg / Ha cuando se desea la esterilización del sue-

310287



10. Para la represión selectiva de hierbas en plantas de cosecha, las dosis preferidas son de 1,2 a 6 Kg por Ha.

5 Para su utilización como pesticidas, los compuestos de este invento se recogen usualmente en un vehículo o soporte, o son formulados de manera que se hacen apropiados para su diseminación subsiguiente como pesticidas. Por ejemplo, las tetrahidro-1,3,5-oxadiazin-4-onas pueden ser formuladas como polvos humectables, concentra-
10 dos en emulsión, polvos, formulaciones granulares, aerosoles o concentrados en emulsión capaces de fluir.

Se preparan composiciones de los compuestos de este invento recogiendo en un vehículo agrónomicamente aceptable, añadiendo agentes tensioactivos u otros aditivos, si se desea, y mezclándolos para producir mezclas uni
15 formemente formuladas. Como "vehículo agrónomicamente aceptable" se entiende cualquier sustancia que pueda ser utilizada para disolver, distribuir o difundir el producto químico a ser utilizado en él sin perjudicar la efectividad del agente tóxico, y que no dañe de manera permanente los
20 alrededores tales como el suelo, los equipos y las cosechas agronómicas.

Los polvos humectables se preparan incorporando las tetrahidro-1,3,5-oxadiazin-4-onas en un vehículo sólido finamente dividido y en un agente tensioactivo que puede ser uno o más agentes emulsificadores, humectantes, dis
25 persantes o esparcidores, o mezclas de éstos. Vehículos sólidos apropiados para esta utilización se encuentran en las clases de arcillas, silicatos, sílices, carbonatos, cales y materiales orgánicos que aparecen en la naturaleza.
30 Características entre éstos son el caolín, la tierra de ba

tán, el talco, la tierra de diatomeas, la dolomita, la caliza maguesífera, la harina o polvo de cáscara de nuez, polvo de tabaco y serrín. Los agentes emulsificantes y humectantes comúnmente utilizados incluyen los alcohilfenoles sulfonatos de alcohilarileno polioxietilados, alcoholes grasos, ácidos grasos y alcohilaminas y sulfosuccinatos de dialcoholo. Los agentes esparcidores incluyen materiales tales como laurato de glicerolmanitán y un condensado de poliglicerina y ácido oléico modificado con anhídrido ftálico; y los agentes dispersantes incluyen materiales tales como la sal de sodio del copolímero del anhídrido málico y una olefina tal como diisobutileno, ligninsulfonato de sodio y formaldehído-naftalenosulfonatos de sodio.

Los polvos humectables característicos pueden contener, por ejemplo, 10 a 80% de la tetrahidro-1,3,5-oxadiazin-4-ona, y se desea usualmente añadir entre 1 y 10% en peso del agente tensioactivo, siendo, desde luego, el resto de la formulación el vehículo.

Los concentrados de polvo se preparan componiendo las tetrahidro-1,3,5-oxadiazin-4-onas de este invento con vehículos inertes empleados normalmente para la fabricación de polvos pesticidas de utilización agrícola, tales como talcos, arcillas de tamaño fino de partículas, pirofilita, tierra de diatomeas, carbonato de magnesio, azufre, o harinas botánicas tales como harina de soja, de madera, de trigo, de semilla de algodón y de cáscara de nuez. Los concentrados de polvo que contienen entre 20 y 80% del agente tóxico se preparan comúnmente pero, según se utilizan, los polvos preferiblemente contienen de 1 a 20% del ingrediente activo. Los concentrados de polvo pueden ser

310287



preparados convenientemente diluyendo una formulación de polvo humectable con los vehículos sólidos de tamaño fino de partículas, utilizados normalmente en polvos pesticidas.

5 Se preparan formulaciones granulares incorporando las tetrahidro-1,3,5-oxadiazin-4-onas en formas granulares de vehículos agrónomicamente aceptables, tales como arcillas granulares, vermiculita, carbón vegetal, tusas de maíz molidas, o salvado dentro de un margen de tamaños
10 de 250 a 2.380 micras. Dichas formulaciones granulares se pueden preparar de manera que contengan el compuesto entre 1 y 50% en peso.

 Un método conveniente de preparar una formulación sólida consiste en impregnar el agente tóxico sobre
15 el vehículo sólido por medio de un disolvente volátil, tal como acetona. De esta manera, se pueden incorporar también coadyuvantes tales como fertilizantes, activadores, agentes sinérgicos, adhesivos y diversos agentes tensioactivos. Además se pueden utilizar pesticidas, incluyendo insecticidas y fungicidas en unión con, o mezclados
20 con, los agentes herbicidas de este invento.

 Las formulaciones de concentrado en emulsión se pueden preparar disolviendo las tetrahidro-1,3,5-oxadiazin-4-onas de este invento en un disolvente orgánico agrónomicamente aceptable y añadiendo un agente emulsificador
25 soluble en el disolvente. Se encuentran disolventes apropiados para estos compuestos en las clases de hidrocarburos, hidrocarburos clorados, cetonas, ésteres, alcoholes y amidas, de entre los disolventes orgánicos, tales como
30 xilenos, naftalenos, dicloruro de etileno, ciclohexanona,



metil etil cetona, isoforona, hexanoato de metilo o dime-
tilformamida, siendo los disolventes preferidos las ceto-
nas o las mezclas de hidrocarburos y cetonas. Los agentes
emulsificantes pueden ser de carácter aniónico, catiónico
5 o no iónico. Agentes tensioactivos aniónicos incluyen al-
cohilsulfatos, o sulfonatos, alcoholarileno sulfonatos, o
sulfosuccinatos tales como dodecilbencenosulfonato de cal-
cio o dioctilsulfosuccinato de sodio. Los agentes tensio-
activos catiónicos incluyen sales de ácido graso y alcohil-
10 lamina y sales de ácido graso y alcoholamonio cuaternario,
tales como clorhidrato de laurilamina o cloruro de Lauril-
-dimetilbencilamonio. Agentes emulsificantes no iónicos
que se pueden utilizar incluyen productos de adición con
óxido de etileno de alcoholfenoles, alcoholes grasos, mer-
15 captanos o ácidos grasos, tales como ésteres de polietil-
lénglicol de ácido esteárico o éteres de polietilénglicol
de alcohol palmítico o de octilfenol, que tienen entre
aproximadamente 7 a 100 grupos éter. La concentración de
los ingredientes activos puede variar entre 10 y 80%, pe-
20 ro es preferiblemente de 25 a 50%, y la concentración de
los agentes emulsificantes es usualmente de 0,5 a 10% en
peso, siendo el resto de la formulación el vehículo.

Se utilizaron procedimientos normalizados de
invernadero para determinar la actividad herbicida de las
25 tetrahidro-1,3,5-oxadiazin-4-onas de este invento. Estos
métodos comprenden plantar semillas de plantas de cosecha
y malas hierbas en tierra en recipientes apropiados, de-
jar germinar las semillas y desarrollarse las plantícu-
las, y tratar las plantas resultantes con pulverizaciones
30 acuosas de los compuestos de ensayo dos semanas aproxima-

15 FNE



damente después de haber plantado las semillas. Las pulverizaciones se aplican con una dosis normalizada de vehículo de aproximadamente de 475 litros por Ha, y la concentración se varía para proporcionar dosificaciones deseadas, tales como de 1,2 a 12 Kg / Ha. Dos semanas aproximadamente después de la aplicación de los productos químicos, se evaluaron el estado de crecimiento y los efectos fitotóxicos. Este tipo de ensayos constituyen ensayos para después del brote; un ensayo similar en el que los compuestos de ensayo son aplicados inmediatamente después de que son plantadas las semillas constituye un ensayo para antes del brote.

En ensayos que comprenden las hierbas monocotiledóneas características, carricera (*Setaria glauca*) y avena silvestre (*Avena fatua*) y las hierbas dicotiledóneas características, hoja de terciopelo (*Abutilón thephrasti*) y rabo rizado (*Rumex crispus*), se obtuvieron los siguientes resultados

310287

T A B L A I

Fitotoxicidad por cien en un ensayo después del brote a razón de 120 Kg / Ha.

Compuesto	Setaria glauca	Avena fatua	Abutilon theophrasti	Rumex crispus
1) tetrahidro-3-(3,4-diclorofenil)-5-metil-1,3,5-oxadiazin-4-ona	100	80	100	100
2) tetrahidro-3-(3-nitrofenil)-5-metil-1,3,5-oxadiazin-4-ona	90	50	50	40
3) tetrahidro-3-(4-clorofenil)-5-metil-1,3,5-oxadiazin-4-ona	90	100	100	100
4) tetrahidro-3-(4-clorofenil)-5-etil-1,3,5-oxadiazin-4-ona	75	80	100	100
5) tetrahidro-3-(2,4-diclorofenil)-5-metil-1,3,5-oxadiazin-4-ona	100	85	100	90
6) tetrahidro-3-(3,4-diclorofenil)-5-etil-1,3,5-oxadiazin-4-ona	100	100	100	100
7) tetrahidro-3-(3,4-diclorofenil)-5-isopropil-1,3,5-oxadiazin-4-ona	100	100	95	100
8) tetrahidro-3-(3,4-diclorofenil)-5-butil-1,3,5-oxadiazin-4-ona	95	80	95	95
9) tetrahidro-3-(3,4-diclorofenil)-5-t-butil-1,3,5-oxadiazin-4-ona	90	70	100	90

1 HO 310207



T A B L A II

Fitotoxicidad por cien en un ensayo antes del brote a razón de 120 Kg / Ha.

Compuesto	Setaria glauca	Avena fatua	Abutilon theophrasti	Rumex crispus
1) tetrahidro-3-(3,4-diclorofenil)-5-metil-1,3,5-oxadiazin-4-ona	90	80	100	90
2) tetrahidro-3-(3-nitrofenil)-5-metil-1,3,5-oxadiazin-4-ona	20	20	60	--
3) tetrahidro-3-(4-clorofenil)-5-metil-1,3,5-oxadiazin-4-ona	100	30	100	80
4) tetrahidro-3-(4-clorofenil)-5-etil-1,3,5-oxadiazin-4-ona	20	20	60	10
5) tetrahidro-3-(2,4-diclorofenil)-5-metil-1,3,5-oxadiazin-4-ona	30	30	30	40
6) tetrahidro-3-(3,4-diclorofenil)-5-etil-1,3,5-oxadiazin-4-ona	40	20	70	30

111
50207





Otros ensayos comprenden las plantas monocotiledoneas (Mono), *Digitaria sanguinalis*, *Setaria glauca*, *Setaria italica*, *Oryza sativa*, *Lolium multiflorum*, *Sorghum sudanensis*, *Triticum vulgare* y *Avena fatua*, y las plantas
5 dicotiledoneas (Di), *Mollugo verticillata*, *Rumex crispus*.
Linum usitatissimum, *Abutilon theophrasti*, *Chenopodium album*, *Lespedeza stipuleacea*, *Brassica kaber* *Amaranthus retroflexus*, *Soja max*, *Lycopersicum esculentum* y *Daucus carota*.

10 Los resultados se registran como el promedio de destrucción en porcentaje para todas las plantas de ensayo comprendidas. La tabla III da los datos registrados, a 3,36 Kg / Ha.

T A B L A III

Datos herbicidas a 3,6 Kg / Ha.

Porcentaje promedio de destrucción

Compuesto	antes del brote mono	después del brote mono	antes del brote di	después del brote di
1) tetrahidro-3-(3,4-diclorofenil)-5-metil-1,3,5-oxadiazin-4-ona	33	73	45	100
3) tetrahidro-3-(4-clorofenil)-5-metil-1,3,5-oxadiazin-4-ona	27	64	42	99
4) tetrahidro-3-(4-clorofenil)-5-etil-1,3,5-oxadiazin-4-ona	--	33	--	74
5) tetrahidro-3-(2,4-diclorofenil)-5-metil-1,3,5-oxadiazin-4-ona	--	50	--	82
6) tetrahidro-3-(3,4-diclorofenil)-5-etil-1,3,5-oxadiazin-4-ona	--	61	--	85
7) tetrahidro-3-(3,4-diclorofenil)-5-isopropil-1,3,5-oxadiazin-4-ona	--	56	--	74
8) tetrahidro-3-(3,4-diclorofenil)-5-butil-1,3,5-oxadiazin-4-ona	--	50	--	71



151 310237



Los datos de las tablas I, II y III demuestran sobresalientes actividades después del brote y buenas actividades antes del brote para éstas tetrahidro-1,3,5-oxadiazín-4-onas.

5 En una combinación de ensayos antes del brote para determinar la actividad herbicida y la tolerancia de las plantas de cosecha, plantas de cosecha representativas consistentes en *Zea maize* *Gossypium Herbaceum*, *Avena sativa*, *Sorghum vulgare*, *Soja max*, *Lycopersicum esculentum* y
10 *Triticum vulgare* fueron plantadas en filas en cajones y fueron sembradas a voleo semillas de *Digitaria sanguinalis*, *Chenopodium album* y *Amaranthus retroflexus* sobre las áreas plantadas y se cubrieron ligeramente con tierra. Seguidamente los cajones fueron tratados con tetrahidro-3-
15 (3,4-diclorofenil)-5-metil-1,3,5-oxadiazín-4-ona (compuesto 1), tetrahidro-3(4-clorofenil)-5-metil-1,3,5-oxadiazín-4-ona (compuesto 3) y tetrahidro-3-(3,4-diclorofenil)-5-isopropil-1,3,5-oxadiazín-4-ona (compuesto 7) bien a 2,24, 3,36 ó 6,72 Kg / Ha y una dosis de aproximadamente 467,5
20 litros / Ha. Seguidamente los cajones fueron almacenados en el invernadero durante tres semanas, excepto la avena (*Avena Sativa*), que fue mantenida durante dos semanas, en cuyo momento se hicieron observaciones con relación al porcentaje de fitotoxicidad. La tabla IV da los resultados.
25

310287

TABLE IV

Porcentaje de fitotoxicidad

Especies	Compuesto tetrahidro-3-(3,4-diclorofenil)-5-metil-1,3,5-oxadiazin-4-ona 2,4 3,6 (Kg/Ha) 7,2	Compuesto tetrahidro-3-(4-clorofenil)-5-metil-1,3,5-oxadiazin-4-ona 2,4 3,6 (Kg/Ha.) 7,2	Compuesto tetrahidro-3-(3,4-diclorofenil)-5-oxadiazin-4-ona 2,4 3,6 (Kg/Ha.) 7,2
Zea Maize	- 0 0	- 0 0	- 0 0
Gossypium herbaceum	0 - -	0 - -	0 - -
Avena fatua	- 10 10	- 0 0	- 0 10
Sorghum vulgare	0 - -	0 - -	0 - -
Soja max	0 0 0	0 0 0	0 0 0
Lycopersicum esculentum	- 80 65	- 30 75	- 0 0
Triticum vulgare	- 0 0	- 0 0	- 0 0
Digitaria sanguinalis	90 100 100	75 50 80	40 - 80
Chenopodium album	- 100 100	- 80 80	- 60 70
Amaranthus retroflexus	100 95 95	100 80 80	60 60 70





Se efectuaron otros ensayos de tolerancia de plantas de cosecha, en los cuales se midió la tolerancia a las aplicaciones después del brote. En estos ensayos, las semillas sembradas germinaron y las plantas pequeñas se dejaron crecer durante 15 días antes del tratamiento con tetrahidro-3-(3,4-diclorofenil)-5-metil-1,3,5-oxadiazin-4-ona y tetrahidro-3-(4-clorofenil) 5-metil-1,3,5-oxadiazin-4-ona a 1,12-4,48 Kg/Ha. El algodón (*Gossypium herbaceum*), los guisantes (*Pisum arvense*) y el sorgo (*Sorghum*) mostraron una tolerancia aceptable. Similarmente el maíz (*Zea Maize*), algodón (*Gossypium herbaceum*), soja (*Soja max*) y trigo (*Triticum vulgare*) mostraron tolerancia a la tetrahidro-3-(3,4-diclorofenil)-5-isopropil-1,3,5-oxadiazin-4-ona.

Así, un cierto número de cultivos económicos valiosos han mostrado poseer tolerancia a dosis de control de malas hierbas de aplicaciones antes del brote y después del brote de composiciones representativas de este invento.

Composiciones que contenían compuestos representativos fueron evaluadas como herbicidas acuáticos. Para este ensayo fue cultivada *Lemna minor* en una cuba revestida de polietileno de 95 litros, que contenía agua y una pequeña cantidad de tierra. El pH fue mantenido a 6,0. Se prepararon soluciones o suspensiones acuosas del compuesto del ensayo, que contenían 1, 5 y 10 ppm. A porciones de 200 ml. de estas concentraciones del compuesto de ensayo se añadió una pizca de la *Lemna minor*. Muestras de control no tratadas y un herbicida acuático normalizado del tipo de amonio cuaternario fueron incluidos en el ensayo.

310267



Los ensayos fueron mantenidos en un invernadero bajo condiciones normalizadas de temperatura y humedad durante dos semanas y seguidamente fueron evaluados visualmente en cuanto a toxicidad y crecimiento. Se obtuvieron los siguientes resultados (tabla V).

T A B L A V

Porcentaje de fitotoxicidad frente a la Lemna minor

Compuesto	Concentración (ppm)		
	1	5	10
1) tetrahidro-3-(3-nitrofenil)-5-metil-1,3,5-oxadiazin-4-ona	40	100	100
7) Tetrahidro-3-(3,4-diclorofenil)-5-isopropil-1,3,5-oxadiazin-4-ona	50	90	100

La presente solicitud que corresponde a la presentada en los Estados Unidos de América, el 30 de Abril de 1.964, bajo el número 363986, se acoge a los beneficios del artículo 51 del vigente Estatuto sobre Propiedad Industrial.

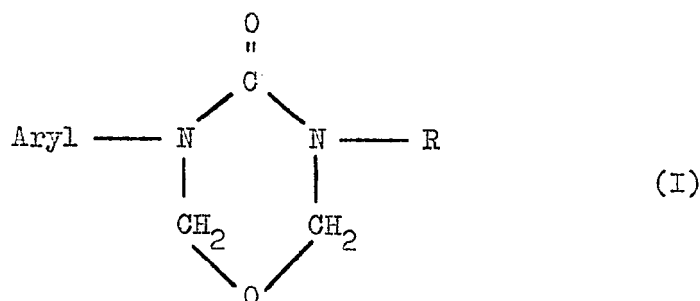
N O T A

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:

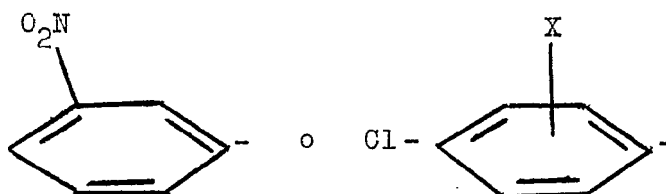
1.- Un método para preparar una composición des



tinada para uso como herbicida o pesticida, caracterizado por mezclar una tetrahidro-1,3,5-oxadiazin-4-ona con la fórmula



5 en que R es un grupo alcoholo de 1 a 8 átomos de carbono, y aril es el radical



en que X es hidrógeno, metilo, o cloro, y un vehículo.

2.- Un método según la reivindicación 1, caracterizado por mezclar una tetrahidro-1,3,5-oxadiazin-4-ona de fórmula (I), un vehículo sólido finamente dividido y un agente tensioactivo para obtener así una composición en la forma de un polvo humectable.

3.- Un método según la reivindicación 1, caracterizado por mezclar una tetrahidro-1,3,5-oxadiazin-4-ona de fórmula (I) y un vehículo inerte para obtener así una composición en forma de un concentrado en polvo para espolvorear.

4.- Un método según la reivindicación 1, caracterizado por mezclar una tetrahidro-1,3,5-oxadiazin-4-ona

15



de fórmula (I) y una forma granular o en píldoras de un vehículo agrícolamente aceptable para obtener así una composición en forma de una composición granular.

5 5.- Un método según la reivindicación 1, caracterizado por mezclar una tetrahidro-1,3,5-oxadiazin-4-ona de fórmula (I), un disolvente orgánico agrícolamente aceptable, y un agente emulsificante soluble en el disolvente para obtener así una composición en forma de un concentrado en emulsión.

10 6.- Un método para preparar una composición destinada para uso como herbicida o pesticida.

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

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

Madrid, 15 ENE 1966

P. A.

Alberto de Elzaburu
Por Poder

310287