



(19) Országkód:

HU



**MAGYAR
KÖZTÁRSASÁG**

**MAGYAR
SZABADALMI
HIVATAL**

SZABADALMI LEÍRÁS

(11) Lajstromszám:

214 297 B

(21) A bejelentés ügyszám: P 94 02020
(22) A bejelentés napja: 1993. 01. 21.
(30) Elsőbbségi adatok:
07/823,740 1992. 01. 22. US
(86) Nemzetközi bejelentési szám: PCT/US 93/00531
(87) Nemzetközi közzétételi szám: WO 93/14865

(51) Int. Cl.⁶

B 01 J 13/20

(40) A közzététel napja: 1995. 07. 28.
(45) A megadás meghirdetésének a dátuma a Szabadalmi
Közlönyben: 1998. 03. 02.

(72) Feltalálók:

Baker, Don E., Orinda, Kalifornia (US)
Davis, Richard W., Groveland, Kalifornia (US)
Kezerian, Charles, Orinda, Kalifornia (US)
Rodson, Marius, El Sobrante, Kalifornia (US)
Scher, Herbert B., Moraga, Kalifornia (US)

(73) Szabadalmas:

ZENECA Ltd., London (GB)

(74) Képvisező:

Gödölle, Kékes, Mészáros & Szabó Szabadalmi és
Védjegy Iroda, Budapest

(54) **Eljárás mikrokapszula-készítmények formaldehid-tartalmának csökkentésére**

(57) KIVONAT

A találmány tárgya eljárás pórusos amingyanta héjban levő, lényegében vízben oldhatatlan folyékony anyagból készített mikrokapszula-készítmény szabad formaldehid-tartalmának a csökkentésére, oly módon, hogy

(a) szerves oldatot készítenek, amely az említett anyagból és egy abban feloldott, éterezett amingyanta előpolimerből áll, ahol az említett előpolimer metilolcsoportjainak 50–90%-a 1–4 szénatomos alkohollal éterezett;

(b) a szerves oldatból folytonos fázisú vizes oldatban, amely vízből és felületaktív anyagból áll, emulziót állí-

tanak elő, ahol az emulzió a szerves oldatnak a folytonos fázisú vizes oldatban diszpergált diszkrét cseppecskéiből áll, így határfelület keletkezik a szerves oldat diszkrét cseppecskéi és a körülvevő folytonos fázisú vizes oldat között;

(c) az emulzió 20 °C és 100 °C közötti hőmérsékletre történő egyidejű felmelegítésével és savanyítószert hozzáadásával és a pH-érték 0 és 4 között tartásával az aminogyantra előpolimerek in situ önkondenzációját és keményedését hozzák létre; és

(d) az amingyanta mikrokapszulákból álló terméket 0,03–0,75 tömeg%-os ammóniával utókezelik.

A találmány tárgyát mikrokapszulák és mikrokapszulákat tartalmazó készítmények formaldehid tartalmának a csökkentésére szolgáló eljárás képezi. Közlebbről, a találmány olyan – vízben gyakorlatilag oldhatatlan – folyékony anyag kapszulázott cseppecskéire vonatkozik, ahol a kapszulázó anyag amingyantából előnyösen módosított karbamid-formaldehid előpolimerből készített film.

Az irodalomból jól ismert a folyékony anyagok szabályozott leadására szolgáló membránok, bevonatok és kapszulák felhasználása a mezőgazdaságban és nem mezőgazdaságban alkalmazott vegyszerekben. A mezőgazdaságban a szabályozott felszabadítás módszerei javították a gyomirtó szerek, rovarirtó szerek, gombaölő szerek, baktériumölőszerek és műtrágyák hatékonyságát. A nem mezőgazdasági felhasználások közé tartoznak a kapszulázott színezékek, tinták, gyógyszerek, aromaanyagok és illatanyagok.

A szabályozott hatóanyag-leadású anyagok legáltalánosabb formái a bevont cseppecskék vagy mikrokapszulák, bevont szilárd anyagok, beleértve mind a pórusos, mind a nem pórusos részecskéket és a szilárd részecskék bevont aggregátumai. Néhány esetben olyan vízdoldható kapszulázó film kívánatos, amely akkor szabadítja fel a kapszulázott anyagot, amikor a kapszula vízzel kerül érintkezésbe. Másféle bevonatokat készítenek a bezárt anyag felszabadítására, ha a bevonatot külső erővel szakítják fel.

Léteznek olyan további bevonatok is, amelyek eleve pórusosak és a bezárt anyag a körülvevő közegbe a pórusokon át lassú diffúziós sebességgel áramlik ki. Azon túlmenően, hogy ezek a bevonatok szabályozott felszabadítást tesznek lehetővé, arra is szolgálnak, hogy megkönnyítsék a vízzel nem elegyedő folyadékok vízben és víztartalmú közegben, mint például nedves talajban való diszpergálódását. Az így kapszulázott cseppecskék különösen hasznosak a mezőgazdaságban, ahol gyakran van jelen víz az öntözés, eső és vizes permetezés következtében. Számtalan eljárás ismert az ilyen kapszulák előállítására.

Az egyik eljárás szerint a kapszulákat vizes oldatból fázisválasztással állítják el hidrofíll kolloid talaj koacerválásán keresztül. Ezt az US 2.800.457 (Green és társai, 1957. július 23.) és az US 2.800.458 (Green, 1957. július 23.) számú szabadalmi leírásban ismertetik.

Az US 4.046.741 (Scher, 1977. szeptember 6.) és az US 4.140.516 (Scher, 1979. február 20.) számú szabadalmi leírásokban olyan határfelületi polimerizációs eljárást írnak le, amelyben a filmképző reagenseket vízben diszpergált hidrofób folyadékban oldják fel, a reakció a határfelületen megy végbe, amikor a fázisok emulzióként érintkeznek.

Az US 3.726.804 számú szabadalmi leírásban (Matsukawa és társai, 1973. április 10.) további határfelületi polimerizációs eljárást ismertetnek, ahol kezdetben az összes filmképző összetevő hidrofób cseppecskékben van, amelyek egy alacsony forráspontú vagy poláris oldószert is tartalmaznak a kapszulázandó anyagon kívül. Melegítéskor az oldószer felszabadul és átmeleg a vizes fázisba (az emulzió folytonos fázisába) és

a filmképző anyagok a határfelületen összegyűlnek és polimerizálódnak.

A JP 9168/1961 számon nyilvánosságra hozott szabadalmi bejelentésben olyan – peroxid katalizátort alkalmazó – olefin polimerizációt írnak le, amelyben olajban nem oldódó polimer képződik olaj cseppecskék felületén.

A GB 952.807 és 965.074 számú szabadalmi leírásokban olyan eljárást írnak le, ahol szilárd anyagot, így viaszt vagy hőre lágyuló gyantát megolvasztanak, diszpergálják és lehűtik, hogy folyékony cseppecskék körül kapszulázó filmet kapjanak.

Az US 3.111.407 számú szabadalmi leírásban (Lindquist és társai, 1963. november 19.) olyan porlasztva szárító eljárást írnak le, amelyben a porlasztás pillanatában kapszulázott cseppek keletkeznek.

Ezek az eljárások a berendezések költségeiben, energiaigényükben, a mikrokapszula-méret szabályozásának az egyszerűségében, különleges reagens-, így katalizátor- és kiüleptetőszerek-igényükben és a mikrokapszula fázis százalékos mennyiségében térnek el egymástól.

Az itt referenciaként közölt, US 4.956.129 számú szabadalmi leírás olyan eljárást mutat be, amellyel egy vízben lényegében oldhatatlan folyékony anyag pórusos poli(karbamid-formaldehid) héjba mikrokapszulázható. Azonban, amikor a karbamid-formaldehid gyantában levő metilolcsoportjai reakcióba lépnek egymással, formaldehid képződik. A formaldehid a gyanta polimerizáció mellékterméke.

A találmány feladata ezért az, hogy egyszerű, olcsó eljárást biztosítson a mikrokapszulázott készítmények formaldehid tartalmának a csökkentésére.

Felismertük, hogy egy vízben lényegében oldhatatlan folyadék az alábbi módon mikrokapszulázható egy pórusos amin-gyanta héjba, ahol a mikrokapszulázó eljárás melléktermékeként képződött formaldehid tartalom nem haladja meg a 0,1%-ot.

(a) Olyan szerves oldatot készítünk, amely az említett folyékony anyagból és egy abban feloldott, éterezett aminogyanta előpolimerből áll, ahol az említett előpolimer metilolcsoportjainak 50–90%-át 1–4 szénatomos alkohollal étereztük;

(b) az említett adott szerves oldatból folytonos fázisú vizes oldatban, amely vízből és felületaktív anyagból áll, emulziót állítunk elő, ahol az említett emulzió az említett szerves oldatnak az említett folytonos fázisú vizes oldatban diszpergált diszkrét cseppecskéiből áll, így határfelület keletkezik a szerves oldat diszkrét cseppecskéi és a körülvevő folytonos fázisú vizes oldat között;

(c) az emulzió 20 °C és 100 °C közötti hőmérsékletre történő egyidejű felmelegítésével és savanyítószert hozzáadásával és a pH-érték 0 és 4 között tartásával, amelyet annyi ideig végzünk, ami elegendő ahhoz, hogy a gyanta előpolimerek in situ kondenzációja teljessé váljon, hogy a szerves oldat folyékony cseppecskéi a folyékony anyagot bezáró, szilárd permeábilis polimer héjakból álló kapszulákká váljanak, az aminogyanta előpolimerek in situ önkondenzációját és keményedését hozzuk létre; és

(d) az aminogyanta kapszulákból álló terméket 0,03–0,75 tömeg%-os ammóniával utókezeljük.

A karbamid-formaldehid gyanta előpolimerrel végzett mikrokapszulázó eljárás során, így az US 4.956.129 számú szabadalmi leírásban ismertetett eljárásban, a karbamid-formaldehid előpolimer polimerizációs reakciójában melléktermékként formaldehid képződik. Általában a keletkezett mikrokapszulázott anyag 0,5% szabad formaldehidet tartalmaz.

A találmány szerinti eljárásban az aminogyanta mikrokapszulákat 0,03–0,75 tömeg%-os ammóniával utókezeljük, ezzel a mikrokapszulázott készítmény szabad formaldehid-tartalmát 0,1% alá csökkentjük.

A kezelést előnyösen úgy végezzük, hogy tömény ammóniaoldatot keverünk össze a mikrokapszulázott készítménnyel. Az ilyen eljárással nyert mikrokapszulák képesek arra, hogy lehetővé tegyék a kapszulázott folyadék diffúzióval történő lassú felszabadulását a héjon át a körülvevő közegbe. Felismertük azonban, hogy ha lényegesen nagyobb mennyiségű, 1,5 tömeg% ammóniát használunk, a mikrokapszulafal erősen károsodik és az ilyen mikrokapszulázott készítmény felszabadulási jellemzői módosulnak.

Amint azt az US 4.956.129 számú szabadalmi leírás is ismerteti, lényeges, hogy a mikrokapszulák belsejét képező szerves oldat (azaz a magfolyadék) vízben lényegében oldhatatlan legyen. A szerves oldat lehet egyetlen folyékony anyag vagy egy vagy több aktív folyadék vagy közömbös, vízben kismértékben oldódó oldószerben feloldott szilárd anyag. Az utóbbi esetben a folyadéknak vagy a szilárd oldott anyagnak előnyösen a szerves fázisban kell lennie, amikor a két fázis egyensúlyban van.

A találmány szerinti eljárással számos folyadék kapszulázható. Bármilyen folyadék alkalmas, amely nem lép reakcióba az amingyanta előpolimerrel és amely képes átdiffundálni a héjmembránon. A kapszulázásra alkalmas folyadékok közé tartoznak a kémiai-biológiai szerek, így a herbicidek, rovarölő szerek, gombaölőszerek, nematocidok, baktericidok, rodenticidek, molluszkicidek, akaricidek, larvicidek, állat-, rovar- és madárriasztó szerek, növényi növekedést szabályzó anyagok, műtrágyák, feromonok, nemi csalogató és vonzószerek, valamint íz- és illatanyagkompozíciók. A találmány szerinti mikrokapszulák különösen alkalmasak peszticidek, így tiokarbamátok, ditiokarbamátok, acetamidok, anilidek, szulfonamidok, triazinok, szerves foszfor-vegyületek és piretroidok előállításához. Ilyen vegyületek példáit írják le az US 4.956.129 számú szabadalmi leírásban.

A találmány szerinti készítmények sok eltérő típusú mag folyadéka közül előnyösek a peszticidek, bizonyos peszticid csoportok különösen előnyösek. Egy ilyen csoport a szubsztituált tiokarbamátok csoportja, különösen az alábbi tiokarbamátok:

molinát (S-etil-hexahidro-1H-azepin-1-karbotioát);
cikloát (S-etil-N-(etil-tio)-ciklohexánkarbamát);
EPTC (S-etil-dipropil-tiokarbamát);
butilát (S-etil-diizobutil-tiokarbamát);
diállát [S-(2,3-diklór-allil)-diizopropil-tiokarbamát]
és
veranolát (S-propil-dipropil-tiokarbamát).

Más, különösen előnyös peszticid csoport az anilid herbicidek csoportja, előnyösen az irodalomból alfa-halogén-acetanilidekként ismert csoport, különösen az alfa-klór-acetanilid herbicidek. Néhány, ebbe a csoportba tartozó vegyület:

- 5 metolaklór [2-klór-N-(2-etil-6-metil-fenil)-N-(2-metoxi-1-metil-etil)-acetamid];
butaklór (N-butoxi-metil-2-klór-2',6'-diethyl-acetanilid);
alaklór (2-klór-2',6'-diethyl-N-(metoxi-metil)-
10 acetanilid);
acetoklór [2-klór-N-(etoxi-metil)-6'-etil-O-aceto-toluidin];
metazoklór [2-klór-N-(2,6-dimetil-fenil)-N-(1H-pirazol-1-il-metil)-acetamid];
pretilaklór [2-klór-2',6'-diethyl-N-(2-propoxi-ethyl)-acetanilid];
15 dimetaklór [2-klór-N-(2-metoxi-ethyl)-acet-2',6'-xilidid];
és
propaklór (2-klór-N-izopropil-acetanimid).

Számos szabadalmi leírás tárgyal egyéb, ilyen típusú vegyületet.

- 20 Amint az az irodalomból is ismert, sok peszticid alkalmazhatósága szélesíthető antidotumok hozzáadásával (lásd az US 4.021.224 és 4.7708.735 számú szabadalmi leírást) és hatásnövelőkkel. Az antidotumok közé tartoznak az N,N-diszubsztituált halogén-acetamidok, oxazolidinek, tiazolidinek, szulfonamidok, különböző
25 halogénezett észterek, halogénezett ketonok, diszulfidok, imidazolinok, oximok és piridiloxi-alkánsav-amidok.

- 30 A találmányhoz felhasználható előpolimerek nem korlátozódnak az irodalomban leírt, éterezett karbamid-formaldehid előpolimerekre, hanem felölelik olyan egyéb amin-gyanta előpolimereket is, amelyek jól oldódnak a szerves fázisban és vízben való oldhatóságuk alacsony.

- 35 Az amingyanták a polimerek ismert osztályát alkotják, és például Albert J.Kirsch „50 Years of Amino Coating Resins” című szakkönyve, kiadja Winchell Co. (Philadelphia), 1986. ismerteteti ezeket. Ezeket amintartalmú vegyületek és formaldehid reakciójával állítják elő. Az amingyanták általában négy csoportba sorolhatók: karbamid-formaldehid, melamin-formaldehid, benzoguanamin-formaldehid és glikoluril-formaldehid
40 gyanták. A találmányhoz előnyösen az első két csoportba tartozókat használjuk, a legelőnyösebbek a karbamid-formaldehid előpolimerek.

- 45 A melamin-formaldehid, benzoguanamin-formaldehid és glikoluril-formaldehid gyantákat a kereskedelem-ben CYMEL néven forgalmazza az American Cyanamid Co. Magukat az amingyanta előpolimereket ismert mó-
50 dokon, amin és formaldehid reakciójával állíthatjuk elő.

- 55 A vizes fázisú szeparálással végzett mikrokapszulázó eljárásban polimerképző anyagként alkalmazhatunk víz-oldható karbamid-formaldehid vagy melamin-formaldehid előpolimert is. Az előpolimert vizes közeghez adjuk és savas körülmények között hajtjuk végre a polimerizációt. Mint azt az US 3.516.846 számú szabadalmi leírás is leírja, vízoldható karbamid-formaldehid vagy melamin-formaldehid polimer válik ki és kiüledik az olajcseppcscék felületére. A falképző eljárásban mel-
60 léktermékként formaldehid keletkezik. A fentiekben is-

mertettett, az amingyanta mikrokapszulák ammóniával végzett utókezelését magában foglaló eljárás hatásosan csökkenti a formaldehid-képződést, amikor polimerképző anyagként az előpolimert használjuk.

Az alábbi példák a találmány szerinti eljárást és terméket mutatják be, anélkül, hogy a találmányt a példákban ismertetett megoldásokra korlátoznánk.

Molinát kezelése

Mikrokapszula-készítmény – 1.A, 1.B és 1.C kezelés

Olyan szerves oldatot készítünk, amely 6,37 kg teljesen butilezett karbamid-formaldehid előpolimerből (Beetle 80, forgalomba hozza az American Cyanamid) és 0,64 kg Mercaptate Q-43 pentaeritriol tetrakis-ből (mercaptopropionát, forgalmazza a Cincinnati Milacron Chemicals), áll, az oldatot 84,2 kg technikai S-etil-hexahidro-1H-azepin-1-karbotioáttal (molínát) készítjük. Ezt az oldatot gyors keverőben 75,955 kg, 2,374 kg nátrium-ligninszulfonátot (Daxad 23), 0,798 kg nátrium-dialkil-naftalinszulfonátot (Petro BAF) tartalmazó vízben emulgeáljuk. A diszperzió pH-ját 1,0 kg tömény kénsavval 2,0-ra állítjuk be. A hőmérsékletet 50 °C-ra növeljük és a lassú keverést három órán át folytatjuk. Ezután a diszperziót hagyjuk szobahőmérsékletre hűlni. A kezeletlen minta (1.A kezelés) pH-ját 1,0 kg 50 t%-os nátrium-hidroxid oldattal 7,0-ra állítjuk be. A kezelt mintákhoz (1.B és 1.C kezelés) 30 t%-os vizes ammónia-oldat formájában ammóniát adunk.

A diszperziót mikroszkóppal vizsgálva teljesen kialakult, diszkrét, közelítőleg gömb alakú mikrokapszulákat figyelhetünk meg. A kapszulák átlagos átmérője 12 mikrométer.

A molínát kapszulák formaldehid tartalma és kioldási sebessége.

A készítmények formaldehid-tartalmát amperometriás érzékelővel ellátott kromatográfiás oszloppal mérjük. Az eredményeket az 1. táblázat tartalmazza.

1,67 g molínát mikrokapszula-készítmény 1000 g vízzel készített oldatát (1,67 g molínát/liter) termosztált, bedugaszolt lombikban 2 órán át keverjük 25 °C-on. A két óra elteltével 2 darab 10 ml-es mintát veszünk és a mikrokapszulák eltávolítása céljából egymás után átszűrjük egy 0,2 mikrométeres szűrőn. A második szűrlet 1 ml-et 20 ml toluóllal extraháljuk. Majd a toluolt gáz-kromatográffal elemezzük. Az eredményeket mint a vizes szűrletben levő, ppm-ben kifejezett molínát mennyiséget adjuk meg az 1. táblázatban.

1. táblázat

Kezelés	Utókezelés hozzáadott ammónia t(%)	Formaldehid tartalom t(%)	Molinát felszabadulás
1.A	0	0,44	98,0 ppm
1.B	0,73	0,09	103,5 ppm
1.C	1,50	0,03	543,3 ppm

Ha a mikrokapszula-készítményt 0,73 t% ammóniával (1.B kezelés) utókezeltük, a formaldehid-tartalom 0,09 t%-ra csökkent és a magfolyadék felszabadulásának a sebessége a kezeletlen készítményéhez hasonló (1.A kezelés). Az 1,50 t% ammóniával utókezelt készítmény formaldehid-tartalma

ezzel szemben csak 0,03 t% volt, a felszabadulás sebessége ötszöröse a 0,73 t%-kal utókezeltének.

Acetoklór kezelése

Mikrokapszulázott készítmény – 2.A, 2.B és 2.C kezelés

A szerves oldat 50,2 g Beetle 1050–10 gyantát és 378,8 g (96,1% tisztaságú) acetoklórt tartalmazott. A Beetle 1050–10 az American Cyanamid Company-tól beszerezhető, részlegesen (80%-ban) butilezett folyékony karbamid-formaldehid gyanta. A szerves oldatot gyors fordulatú keverőben 4,0 g nátrium-ligninszulfonát (Reax 100M) és 1,8 g nátrium-dialkil-naftalinszulfonát (PETRO BAF) 347,2 g vízzel készített oldatában diszpergáltuk. A keletkezett emulzió pH-ját 0,8 g tömény kénsavval 2,0-ra csökkentettük. Ezután az emulzió hőmérsékletét 50 °C-ra növeltük és az emulzió keverését ezen a hőmérsékleten folytattuk alacsony fordulaton 3 órán át. A képződött diszperziót lehűtöttük. A készítményt 0,32 g Xanthum gumi (Kelzan), 3,2 g attapulgit agyag (Attagel 40) és 0,8 g Proxel C XL (biocid) keverékéhez keverve utóformáltuk. A kezeletlen minta (2.A kezelés) pH-ját 50 t%-os nátrium-hidroxid oldattal 7,0-ra állítottuk be. Az ammóniával kezelt 2.B minta pH-értékét 0,3 g 30 t%-os ammónia-oldattal 7,0-ra, majd további 1,3 g 30 t%-os ammónia-oldattal 8,0-ra növeltük. Ezt követően a pH-t további 0,5 g 30 t%-os ammónia-oldat hozzáadásával 9,0-ra növeltük és ezen az értéken tartottuk. Az ammóniával kezelt 2.C mintánál a pH-t 1,5 g 30 t%-os ammónia-oldattal 10,0-ra növeltük és további 1,0 g 30 t%-os ammónia-oldattal 10,0 értéken tartottuk.

A mikroszkópos vizsgálat jól kialakult, diszkrét, gömbszerű mikrokapszulákat mutatott.

Az acetoklór kapszulák formaldehid-tartalma és felszabadulási sebessége:

Ezeknek a készítményeknek a formaldehid-tartalmát amperometriás érzékelővel ellátott kromatográfiás oszloppal mértük. Az eredményeket a 2. táblázat tartalmazza. 0,178 g acetoklór mikrokapszula-készítmény 1000 g vízzel készített oldatát (0,178 g acetoklór/liter) bedugaszolt, termosztált lombikban kevertük 25 °C-on két óra hosszat. A két óra elteltével 2 darab 10 ml-es mintát kivettünk és a mikrokapszulák eltávolítása céljából 0,2 mikrométeres szűrőn egymás után leszűrtek. A második szűrlet 1 ml-et 20 ml toluóllal extraháltuk, majd a toluolt gáz-kromatográffal elemeztük. Az eredményeket a vizes szűrletben levő, ppm-ben kifejezett acetoklór mennyiségként adjuk meg a 2. táblázatban.

2. táblázat

Kezelés	Utókezelés hozzáadott ammónia t(%)	Formaldehid-tartalom t(%)	Acetoklór felszabadulás
2.A	0,0	0,50	0,55 ppm
2.B	0,63	0,09	14,05 ppm
2.C	0,75	0,03	9,90 ppm

A készítmény formaldehid-tartalmát az ammónia utókezelésként történő hozzáadása lényegesen, a kezeletlen minta formaldehid-tartalma alá csökkentette. Ezen túl-

menően a megmaradt a mikrokapszulák integritása, amint azt az egyes kezelések után az acetoklór felszabadulási sebessége mutatja. Az egyes kezelések után mért felszabadulási sebesség a hibahatáron belül azonos volt.

SZABADALMI IGÉNYPONTOK

1. Eljárás pórusos amingyanta héjban levő, lényegében vízben oldhatatlan folyékony anyagból készített mikrokapszula-készítmény szabad formaldehid-tartalmának csökkentésére, *azzal jellemezve*, hogy

(a) szerves oldatot készítünk, amely az említett anyagból és egy abban feloldott, éterezett amingyanta előpolimerből áll, ahol az említett előpolimer metilolcsoportjainak 50 – 90%-a 1–4 szénatomos alkohollal éterezett;

(b) a szerves oldatból folytonos fázisú vizes oldatban, amely vízből és felületaktív anyagból áll, emulziót állítunk elő, ahol az emulzió a szerves oldatnak a folytonos fázisú vizes oldatban diszpergált diszkrét cseppecskéiből áll, így határfelület keletkezik a szerves oldat diszkrét cseppecskéi és a körülvevő folytonos fázisú vizes oldat között

(c) az emulzió 20 °C és 100 °C közötti hőmérsékletre történő egyidejű felmelegítésével és savanyítószer hozzáadásával és a pH-érték 0 és 4 között tartásával, amelyet annyi ideig végzünk, ami elegendő ahhoz, hogy a gyanta előpolimerek in situ kondenzációja teljessé váljon, hogy a szerves oldat folyékony cseppecskéi a folyékony anyagot bezáró, szilárd permeábilis polimer héjak-

ból álló mikrokapszulákká váljanak, az aminogyanta előpolimerek in situ önkondenzációját és keményedését hozzuk létre; és

(d) az amingyanta mikrokapszulákból álló terméket 0,03 – 0,75 tömeg%-os ammóniával utókezeljük.

2. Az 1. igénypont szerinti eljárás, *azzal jellemezve*, hogy az amingyanta előpolimer karbamid-formaldehid, melamin-formaldehid, benzoguanamin-formaldehid vagy glikoluril-formaldehid előpolimer.

3. Az 1. igénypont szerinti eljárás, *azzal jellemezve*, hogy az amingyanta előpolimer karbamid-formaldehid vagy melamin-formaldehid előpolimer.

4. Az 1. igénypont szerinti eljárás, *azzal jellemezve*, hogy az amingyanta előpolimer karbamid-formaldehid előpolimer.

5. Az 1. igénypont szerinti eljárás, *azzal jellemezve*, hogy a folyékony anyag acetoklór, metazoklór, pretilaklór, metolaklór, butaklór, alaklór, dimetaklór vagy propaklór herbicid.

6. Az 5. igénypont szerinti eljárás, *azzal jellemezve*, hogy a herbicid acetoklór.

7. Az 1. igénypont szerinti eljárás, *azzal jellemezve*, hogy a folyékony anyag tiokarbamát herbicid.

8. A 7. igénypont szerinti eljárás, *azzal jellemezve*, hogy a tiokarbamát EPTC.

9. A 7. igénypont szerinti eljárás, *azzal jellemezve*, hogy a tiokarbamát molinát.

10. Az 1. igénypont szerinti eljárás, *azzal jellemezve*, hogy a mikrokapszula-készítmény a tiokarbamát és halogén-acetanilid herbiciddel együtt használható herbicid antidotumot is tartalmaz.