
Octrooiraad



⑩ A **Terinzagelegging** ⑪ **8003995**

Nederland

⑲ NL

- ⑤4 **Systemisch insecticide preparaat met geregelde diffusie alsmede werkwijze voor het bereiden daarvan.**
- ⑤1 Int.CI³.: A01N47/24.
- ⑦1 Aanvrager: Airwick AG te Bazel, Zwitserland.
- ⑦4 Gem.: Ir. G.F. van der Beek c.s.
NEDERLANDSCH OCTROOIBUREAU
Joh. de Wittlaan 15
2517 JR 's-Gravenhage.

-
- ②1 Aanvraag Nr. 8003995.
- ②2 Ingediend 10 juli 1980.
- ③2 Voorrang vanaf 23 juli 1979.
- ③3 Land van voorrang: Luxemburg (LU).
- ③1 Nummer van de voorrangsaanvraag: 81543 .
- ②3 --
- ⑥1 --
- ⑥2 --

-
- ④3 Ter inzage gelegd 27 januari 1981.

De aan dit blad gehechte stukken zijn een afdruk van de oorspronkelijk ingediende beschrijving met conclusie(s) en eventuele tekening(en).

N.O. 29256

Systemisch insecticide preparaat met geregelde diffusie
alsmede werkwijze voor het bereiden daarvan.

De uitvinding heeft betrekking op systemische insecti-
cide preparaten, die het mogelijk maken een geregelde dif-
fusie van het werkzame bestanddeel in water of in de bodem
te bereiken, alsmede een werkwijze voor het bereiden van
5 dergelijke preparaten.

De volgens de uitvinding beoogde preparaten bevatten
een polymere drager en een systemisch insecticide behorende
tot de groep van de oxime-carbamaten.

Het is bekend werkzame stoffen op te sluiten in een
10 polymere matrix om zo een langzame diffusie in water of in
de bodem mogelijk te maken: op deze wijze vindt de berei-
ding plaats van algicide preparaten (ANON, Chem. Eng. News,
1972, 50, no. 23, 68; CARDARELLI & BILLE, Rep. 1, Proj.
121, Creative Biol. Lab., Baberton, 1976), fungicide prepa-
15 raten (Amerikaanse octrooischriften 3.269.900 en 3.278.371),
nematicide preparaten (CARDARELLI & FELDMESSER, Proc.
Control Rel. Pest. Symp., Dayton, 1975, 386), herbicide
preparaten (Amerikaanse octrooischriften 3.269.900 en
3.343.941; Brits octrooischrift 1.502.441; Canadees octrooi-
20 schrift 846.785; Frans octrooischrift 2.016.818; YOUNG &
NELSON, Sp. Study 31.004.69/70, Dept. Army, Env. Hyg. Ag.,
1969; BARNES & WHITLAW, Proj. 31.004.69/70, Dept. Army
Env. Hyg. Ag., 1970; HARRIS c.s., Weed Sci., 1973, 21, 318;
SINCLAIR, Env. Sci. Technol., 1973, 7, 955; CARDARELLI,
25 Control Rel. Pest. Formul., CRC Press., 1976), molluscicide
preparaten (CARDARELLI, Control Rel. Pest. Formul.,
CRC Press, 1976) en antibacteriële preparaten (Amerikaans
octrooischrift 4.007.258; Frans octrooischrift 2.016.818).

Met betrekking tot de insecticiden is deze methoden
30 minder gebruikelijk. Er zijn preparaten bekend, die een po-
lymeer en het dichloorvos bevatten (MILES c.s., J. Agr.
Food Chem., 1962, 10, 240), maar deze zijn bestemd voor een
afgifte in de atmosfeer van het insecticide, dat vluchtig
is.

35 Zij zijn onbruikbaar in water en in de bodem, omdat
deze werkzame stof zeer gemakkelijk en zeer snel hydroly-
seert. Eveneens zijn soortgelijke preparaten beschreven op

8003995

basis van andere organofosforverbindingen, zoals azuiphos, bromophos, chloorpyrifos, demeton, diazinon, dimefox, dimethoate, fenitrothion, fenthion, malathion, mevinphos, monocrotophos, naled, parathion, temephos en trichloorfon
5 of op basis van organochloorverbindingen, zoals aldrin, dieldrin, endrin, heptachlor, isodrin, lindane en methoxychlor (Amerikaanse octrooischriften 3.269.900 en 3.590.119; Canadees octrooischrift 846.785; Frans octrooischrift 2.016.818; CLEMENTS & ROGERS, Proc. 35th Ann. Conf. Calif. Mosq. Control. Ass., 1967, blz. 109; WHITLAW & EVANS, J. Econ. Entom., 1968, 61, 889; SCHULTZ c.s., Mosq. News, 1969, 29, 38; MILES & WOEHST, Pest. Formul. Res., Adv. Chem. Series, 1969, 86, 183; Mc DONALD & DICKENS, Mosq. News, 1970, 30, 563; NELSON c.s., J. Econ. Entom., 1970, 63,
15 1870 en 1973, 33, 403; MILLER c.s., Mosq. News, 1973, 33, 148; ROBERTS' c.s., Mosq. News, 1973, 33, 155 en 165).

Eveneens is gebruik gemaakt van aryl- of heteroaryl-carbamaten, zoals dioxacarb, isolan, dimetilan, carbofuran en diverse gesubstitueerde fenylcarbamaten (Amerikaans octrooischrift 3. 269.900; Brits octrooischrift 1.502. 441; Canadees octrooischrift 846.785; Franse octrooischriften 2.016.818 en 2.279.336).

Geen van deze stoffen vertoont het voordeel van oxime-carbamaten ten opzichte van planten en zij kunnen niet in
25 de preparaten volgens de uitvinding worden gebruikt, omdat de afgifte daarvan in water of in de bodem veel te gering is, zoals aan de hand van één van de proeven is aangetoond. De oxime-carbamaten diffunderen daarentegen zeer gemakkelijk uit de preparaten volgens de uitvinding, terwijl de
30 oxime-carbamaten bovendien werkzaam zijn via de wortels van de planten en zich over alle levende delen daarvan verspreiden en deze zo beschermen tegen aantasting door insecten.

Er zijn preparaten bekend, waarin aldicarb en een polymere drager worden toegepast (Frans octrooischrift
35 2.279.236; STOCKES c.s., J. Agr. Food Chem., 1973, 21, 103), maar deze stof is bijzonder toxisch ($DL_{50} = 0,9$ mg/kg), waardoor deze preparaten bijzonder gevaarlijk zijn en het voordeel daarvan grotendeels wordt weggenomen. Eveneens zijn preparaten op basis van aldicarb bekend, die een dra-
40 ger van papier en een omhulling van polyethyleenglycol be-

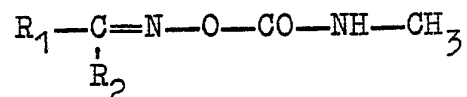
zitten (CIBA-GEIGY, Brits octrooischrift 1.477.261) maar afgezien van de grote toxiciteit daarvan is de industriële verwerking ervan niet zonder gevaar, is het gebruik ervan op verspreidingsmachines moeilijk en is het aanbrengen ervan op te behandelen plaatsen verre van gemakkelijk, in
5 het bijzonder indien het waait.

Eveneens zijn granulaten toegepast, die bestaan uit een polymere drager en een oxime-carbamaat, zoals methomyl (Frans octrooischrift 2.016.818) maar in dit heterogene
10 type korrels is de werking van het polymeer gebaseerd op absorptie en is de daarin op te nemen hoeveelheid werkzame stof afhankelijk van het specifieke oppervlak van het polymeer, dat dus poreus moet zijn, waardoor beperkingen met betrekking tot de concentratie en moeilijkheden bij het
15 regelen van de afgifte optreden.

Volgens de uitvinding werd nu gevonden, dat het mogelijk is homogene preparaten samen te stellen met een drager van vinylpolymeer, die een oxime-carbamaat bevat, dat veel minder toxisch is dan aldicarb, en dat deze preparaten het
20 mogelijk maken een diffusie van het carbamaat in water of in de grond met een geregelde snelheid te bereiken. De uitvinding is daarom gericht op systemische insecticide preparaten die bestaan uit een stijve of buigzame homogene vaste massa van

- 25 A - een insecticide stof,
B - een polyvinylchloride met een moleculaire massa van meer dan 10.000,
C - een regelend middel behorende tot de hydrofobe versnijdingsmiddelen,
30 D - eventueel een regelend hulpmiddel behorende tot de hydrofiele versnijdingsmiddelen en poedervormige vulstoffen,

welke preparaten het kenmerk bezitten, dat de insecticide stof A bestaat uit een oxime-carbamaat met de formule



35 waarin R_1 een éénwaardige rest $R'X-$ of $R'-X-C(R'')$ (R''')-voorstelt, waarbij X een zwavelatoom of een sulfonylgroep, R' een ethyl- of methylgroep, R'' een waterstofatoom of een

8003995

ethyl- of methylgroep, en R'' een waterstofatoom of een ethyl- of methylgroep aangeven, en R₂ een ethyl-, isopropyl-, methyl- of tert.butylgroep voorstelt.

De bovenstaand gedefinieerde systemische insecticide
5 stoffen zijn in het bijzonder beschreven in de octrooi-
schriften van CIBA-GEIGY (Frans octrooischrift 2.150.185;
Amerikaans octrooischrift 3.832.400), Consortium für
Elektrochemische Industrie (Amerikaans octrooischrift
3.816.532), Diamond Shamrock Corp. (Amerikaans octrooi-
10 schrift 3.875.232), Dupont de Nemours & Co (Amerikaanse
octrooischriften 3.576.834, 3.639.633 en 3.647.861) en
Kumiai Chemical Industry Co. (Japanse octrooipublikatie
72.17 993).

Hiervan kunnen bijvoorbeeld de volgende meest bekende
15 worden genoemd:

2-(N-methylcarbamoxyloxyimino)-2-methylthio-ethaan (METHOMYL)

2-(N-methylcarbamoxyloxyimino)-3-methylthiobutaan (BUTOCARB-
OXIME)

2-(N-methylcarbamoxyloxyimino)-3-methylsulfonylbutaan
20 (BUTOXYCARBOXIME)

2-(N-methylcarbamoxyloxyimino)-3,3-dimethyl-1-methylthio-
butaan (THIOFANOX).

De insecticide stof, die in de preparaten volgens de uit-
vinding de voorkeur verdient is het bovenvermelde BUTOCARB-
25 OXIME. De insecticide stof A is bij voorkeur aanwezig in
een hoeveelheid van 5 tot 50 gew.dln per 100 gew.dln van
het preparaat, welke hoeveelheid bij voorkeur tussen 10 en
40 gew.dln ligt.

Het polyvinylchloride B is bij voorkeur aanwezig in
30 een hoeveelheid van 20 tot 70 gew.dln per 100 gew.dln van
het preparaat, welke hoeveelheid bij voorkeur tussen 30 en
50 gew.dln ligt.

De toevoeging van een regelend middel behorende tot de
hydrofobe versnijdingsmiddelen maakt het mogelijk, afhanke-
35 lijk van de aard en de hoeveelheid daarvan, de afgiftesnel-
heid van de insecticide stof in te stellen, welk regelend
middel chemisch inert dient te zijn ten opzichte van de
insecticide stof. De hydrofobe versnijdingsmiddelen worden
gekozen uit de verbindingen, die vrij van een hydrofiele
40 functie zijn en in de kunststofindustrie bekend zijn als

stoffen met plastificerende eigenschappen. Deze verbindingen zijn bijvoorbeeld polymeren met een lage moleculaire massa, gechloreerde paraffinen en zware esters. Dit regelende middel wordt bij voorkeur opgenomen in een hoeveelheid van 15 tot 70 gew.dln per 100 gew.dln van het preparaat, welke hoeveelheid bij voorkeur tussen 20 en 55 gew.dln ligt.

Als voorbeelden van polymeren met een lage moleculaire massa kunnen de polymeren worden genoemd, die verkregen worden door homopolymerisatie of copolymerisatie van de volgende monomeren:

- (1) Homopolymerisatie: vinylacetaat, isobuteen en gechloreerd etheen.
- (2) Copolymerisatie: acrylonitrile/butadieen, diethylfumaaraat/butadieen, ethylacrylaat/butadieen, vinylacetaat/etheen, vinylacetaat/ethylacrylaat, vinylacetaat/dimethylmaleïnaat, vinylacetaat/allylacetaat, vinylchloride/styreen, vinylchloride/allylchloride en vinylchloride/vinylacetaat.

Eveneens kunnen polyesters worden genoemd, bij voorkeur polyesters, die geneutraliseerd zijn door verestering met een alkanol, zoals de polyesters, die verkregen worden door condensatie van de volgende componenten: glycerol/sebacinezuur, glycerol/azelaïnezuur, glycerol/ftaalzuur, propyleenglycol/adipinezuur en propyleenglycol/sebacinezuur.

Als voorbeelden van zware esters kunnen de volgende worden genoemd:

- (1) Monoesters van alkanolen en alkaan- en alkeencarbonzuren, zoals bijvoorbeeld ethyl-, isopropyl-, butyl- of isobutyl-lauraat, -myristaat, -palmitaat, -stearaat, -undecanoaat en -oleaat.
- (2) Diesters van alkanolen en dicarboxykoolwaterstoffen, zoals dialkyladipinaten, bijvoorbeeld dioctyladipinaat en dinonyladipinaat, dialkylsebaccinaten, bijvoorbeeld dibutylsebaccinaat, dipentylsebaccinaat en dioctylsebaccinaat, dialkylazelaïnaten, bijvoorbeeld dioctylazelaïnaat, dialkylftalaten, bijvoorbeeld dibutylftalaat, dioctylftalaat, didecylftalaat, bis (undecyl)ftalaat, bis (dodecyl)ftalaat, bis (tridecyl)ftalaat, bis (tetradecyl)ftalaat en dicetylftalaat.
- (3) Diesters van al dan niet door één of meer alkylgroepen

gesubstitueerde fenolen en dicarboxykoolwaterstoffen, zoals diarylftalaten, bijvoorbeeld difenylftalaat en dicresylftalaten.

5 (4) Diesters van al dan niet door één of meer alkylgroepen gesubstitueerde cycloalkanolen en dicarboxykoolwaterstoffen, zoals bijvoorbeeld dicyclohexylftalaat en bis (methylcyclohexyl)ftalaten.

(5) Diesters van fenylalkanolen en dicarboxykoolwaterstoffen, zoals bijvoorbeeld dibenzylsebaccinaat.

10 (6) Diesters van alkaandiolen en monocarboxykoolwaterstoffen, zoals bijvoorbeeld de diisoboterzuerester van 2,2,4-trimethylpentaan-1,3-diol.

(7) Triesters van al dan niet door één of meer alkylgroepen gesubstitueerde fenolen en fosforzuur, zoals bijvoorbeeld 15 trifenylfosfaat, tris (4-tert.butylfenyl)fosfaat en tricresylfosfaten.

(8) Triesters van alkanolen en fosforzuur, zoals bijvoorbeeld trioctylfosfaat.

De hydrofiele versnijdingsmiddelen, die als aanvullend 20 regelend middel fungeren, kunnen aanwezig zijn in een hoeveelheid van 0 tot 50 gew.dln per 100 gew.dln van het preparaat. Zij worden gekozen uit met water mengbare, in water oplosbare of dispergeerbare verbindingen, die fysisch verenigbaar zijn met de insecticide stof A, het polyvinylchloride en het hydrofobe versnijdingsmiddel. 25

Als voorbeelden van de hydrofiele versnijdingsmiddelen kunnen de volgende worden genoemd:

(1) Polymeren en copolymeren van vinylalcohol, zoals polyvinylalcohol en vinylalcohol/vinylacetaat-copolymeer.

30 (2) Polyvinylpyrrolidonen.

(3) Alkaandiolen, zoals 2,2-dimethylpropaan-1,3-diol, propyleenglycol, butyleenglycol en 2,2-diethylpropaan-1,3-diol.

(4) Polyalkaandiolen, zoals polyethyleenglycolen, polypropyleenglycolen en polybutyleenglycolen.

35 (5) Alkaantriolen, zoals glycerol en monoesters daarvan met alkaan- of alkeencarbonszuren.

(6) Esters van alifatische hydroxyzuren en alkanolen met een laag molecuulgewicht, zoals trimethyl-, triethyl-, tripropyl- en tributylcitraten.

40 (7) Condensatieprodukten van epoxypropaan of epoxyethaan op

starters, zoals alkylfenolen, bijvoorbeeld butyl-, hexyl-, heptyl-, octyl-, nonyl- en dodecylfenolen, vetalcoholen, zoals decanol, dodecanol, tetradecanol, hexadecanol, octadecanol en octadecenol en plantaardige oliën, zoals palm-
5 olie, grondnotenolie, cocosolie, raapolie, sojaolie en ricinusolie.

De poedervormige vulstoffen worden gekozen uit de ten opzichte water inerte vulstoffen of in tegenstelling daarmee uit de in water oplosbare of dispergeerbare vulstoffen
10 afhankelijk van het feit of men de diffusiesnelheid van de werkzame stof wenst te vertragen of te versnellen.

Als voorbeeld van poedervormige vulstoffen kunnen worden genoemd: roet, poeders van gesteenten, zoals leisteen, klei, marmer, kaolien, talk, kiezel of atapulgiet, organische zouten, zoals magnesium-, zink-, calcium- en natrium-
15 acetaten, -propionaten, -citraten, -adipinaten, -maleïnaten, -sebaccinaten, -palmitaten en -stearaten, anorganische zouten, zoals calcium- en magnesium-silcaten en -carbonaten alsmede natrium- of kaliumchloriden, natrium- of calcium-
20 sulfaten, kaliumnitraat en kalium- of ammoniumfosfaten, terwijl eveneens genoemd kunnen worden de natrium- en calciumzouten van alkylarylsulfonzuren, cellulose en derivaten daarvan, zoals methylcellulose, hydroxymethylcellulose, hydroxyethylcellulose, carboxymethylcellulose, glyciden,
25 zoals graanmelen, zetmeel, dextrine en suikers, aminozuren, zoals glutaminezuur, caseïne en eiwithydrolyseprodukten alsmede diverse organische en anorganische pigmenten, zoals voor de deskundigen bekend zijn.

De preparaten volgens de uitvinding hebben het voorkomen van stijve of buigzame compacte, homogene vaste massa's, waarvan de vorm niet kritisch is. De vorm kan bijvoorbeeld de vorm van een plaat, vel, band, buis, ring of korrel zijn.

De structuur van de massa, waaruit het preparaat bestaat, is evenmin kritisch, welke structuur bijvoorbeeld een compacte, vezelvormige, holtevormige of sponsachtige structuur kan zijn.

Wanneer de preparaten volgens de uitvinding in contact gebracht zijn met de bodem of met water geven zij 50 % van
40 de insecticide stof op zeer regelmatige wijze af in verloop

van een periode wisselend van ongeveer 2 tot 200 dagen.
Het rendement van de preparaten volgens de uitvinding be-
trokken op de totale hoeveelheid van de insecticide stof,
die in het preparaat is opgenomen, is uitmuntend, daar de
5 schijnbaar totale hoeveelheid van de insecticide stof na
verloop van een min of meer lange tijd wordt afgegeven.

De preparaten volgens de uitvinding kunnen volgens di-
verse methoden worden bereid.

10 Volgens een eerste methode wordt een mechanisch meng-
sel van de bestanddelen onder toepassing van poedervormig
polyvinylchloride bij kamertemperatuur verwerkt. Afhanke-
lijk van de mengverhoudingen van de bestanddelen verkrijgt
men een droog poeder of een vloeïende pasta, een zogenaamd
15 "plastisol". Het droge poeder wordt tot een homogene vaste
massa verwerkt door vormpersen, extrusie, spuitgieten of
gieten, zoals in het geval van een gewoonlijk in poedervorm
verkerend kunststofmateriaal. In het geval van een vloeien-
de pasta wordt deze verwarmd, totdat gelering optreedt en
20 waarbij door afkoeling een homogene vaste massa wordt ver-
kregen. De diffusiesnelheid van de werkzame stof wisselt
niet op merkbare wijze als functie van de temperatuur en/of
de duur van het verwarmen.

Volgens een tweede methode worden in een vluchtig op-
losmiddel de bestanddelen A, B en C van het preparaat opge-
25 lost, waarin tevens de poedervormige vulstoffen, indien
deze aanwezig zijn, worden opgenomen, indien zij door roe-
ren in gesuspendeerde toestand kunnen worden gehouden. Bij
het afdampen van het vluchtige oplosmiddel, dat kan plaats-
vinden bij een min of meer verhoogde temperatuur en onder
30 een min of meer verminderde druk, neemt het mengsel een
vaste toestand aan, waarbij een homogene massa wordt ver-
kregen, waarin slechts een geringe hoeveelheid van het op-
losmiddel achterblijft.

Volgens een derde methode wordt het polyvinylchloride
35 in de vorm van een sol gedispergeerd in het mengsel van de
bestanddelen B en C, dat tevoren is verwarmd. Door afkoe-
ling wordt dan een homogene vaste massa verkregen.

Volgens een vierde methode worden de bestanddelen A en
C in vinylchloride of in een vloeibaar voorpolymeer van
40 deze verbinding opgenomen. Na toevoeging van een katalysator

wordt dan een polymerisatie volgens voor de deskundigen op het onderhavige gebied bekende methoden uitgevoerd.

Volgens een vijfde methode wordt een vaste massa van het polyvinylchloride, dat eventueel de gewenste vorm van
5 het gereede preparaat bezit, in een vloeibaar mengsel van de bestanddelen A + C gebracht. Het bestanddeel C kan van het begin af geheel of gedeeltelijk in het polyvinylchloride aanwezig zijn. Indien het preparaat een poedervormige vulstof moet bevatten, kan deze vantevoren in het polyvinylchloride worden opgenomen. De werkzame stof A en het adjuvans C, wanneer dit adjuvans met de werkzame stof wordt gemengd, dringt in de massa van het polyvinylchloride binnen, welk binnendringen een tijd vergt, die omgekeerd evenredig is met de temperatuur, waarbij deze behandeling wordt uit-
10
15 gevoerd.

Volgens een variant van deze methode worden de massa van het polyvinylchloride en de bestanddelen A + C in een als verpakking dienende houder gebracht, die voor het genoemde mengsel ondoordringbaar is en waarvan het inwendige
20 volume op zodanige wijze is ingesteld, dat het vloeibare mengsel maximaal in contact komt met het oppervlak van de massa van het polyvinylchloride. Het binnendringen vindt dan plaats in verloop van de opslag, zodat de verpakking een samenstelling volgens de uitvinding bevat op het moment
25 dat deze voor het gebruik wordt geopend.

Het voordeel van de preparaten volgens de uitvinding wordt toegelicht aan de hand van de volgende proeven:

Proef 1: Er wordt gebruik gemaakt van een polyvinylchloride massa, die geplastificeerd is met dibutylftalaat, waarvan
30 het gehalte van de weekmaker ongeveer 36 gew.% bedraagt. Deze massa werd door extrusie gevormd tot een buis, waarvan de uitwendige en inwendige contouren in dwarsdoorsnede lensvormig waren. De uitwendige afmeting bedroeg 28 mm bij een grootste dikte van 3,2 mm en een lengte van 45 mm. De inwendige afmeting tussen de wanden bedroeg 20 mm. Een dergelijke massa bezat een gewicht van 7,65 g. Deze massa's vormden vóór het afsluiten een eenheid, waarin als luchtdichte zak afhankelijk van het geval één van de volgende vloeistoffen was opgesloten (uitgedrukt in grammen):

Tabel A

<u>Preparaat</u>	<u>IA</u>	<u>IB</u>	<u>IC</u>
zuiver butocarboxime	5	3,5	2,5
dibutylftalaat	-	1,5	2,5

Na het bewaren gedurende één maand bij een temperatuur van 40°C werden de afgesloten kussentjes geopend om in elk van de gevallen een massa vrij te maken, waarvan de homogene samenstelling als volgt was (uitgedrukt in gewichtsprocenten):

Tabel B

<u>Preparaat</u>	<u>IA</u>	<u>IB</u>	<u>IC</u>
butocarboxime	39,5	27,7	19,8
polyvinylchloride	38,7	38,7	38,7
dibutylftalaat	21,8	33,6	41,5

Proef 2: Er werd polyvinylchloride in fijne poedervorm bestemd voor het gebruik in plastisol toegepast, dat met technisch butocarboxime met een zuiverheid van 83 % en dioctylftalaat werd gemengd in de volgende mengverhoudingen:

10	technisch butocarboxime:	20 gew.%
	polyvinylchloride:	40 gew.%
	dioctylftalaat:	40 gew.%

De verkregen vloeïende pasta werd in petrischalen tot een dikte van 2 mm gegoten, welke petrischalen bij geregelde temperaturen in ovens werden gebracht gedurende perioden van 5 tot 30 minuten en bij temperaturen van 115 tot 135°C. In elk van de gevallen werd een homogene plastische massa verkregen, waarvan de gehalten aan werkzame stof, zoals bepaald door analyse, als volgt waren, uitgedrukt in het percentage zuivere werkzame stof:

Tabel C

<u>Duur van de verhitting</u>	<u>115°C</u>	<u>120°C</u>	<u>125°C</u>	<u>130°C</u>	<u>135°C</u>
5 minuten	16,6	16,6	16,6	16,6	16,7
10 minuten	16,6	16,7	16,7	16,7	16,7
15 minuten	16,7	16,7	16,7	16,7	16,7
20 minuten	16,7	16,7	16,7	16,7	16,7
30 minuten	16,7	16,7	16,8	16,8	16,8

Uit de bovenstaande analyses kan worden vastgesteld, dat alleen de vluchtige verontreinigingen bij de verwerkingstechniek verloren gaan in verloop van de verhit-
Proef 3: Er werden drie reeksen 3A, 3B en 3C van de prepa-
 5 raten volgens de uitvinding bereid onder toepassing van de voor proef 2 beschreven methode bij een temperatuur van 125°C gedurende een periode van 15 minuten.

De op deze wijze verkregen preparaten bezaten de vorm van schijven met een diameter van 32 mm en een dikte van
 10 12 mm en bezaten de volgende samenstelling (uitgedrukt in gewichtsprocenten):

Tabel D

<u>Preparaat</u>	<u>3A</u>	<u>3B</u>	<u>3C</u>
technisch butocarboxime	10	20	40
polyvinylchloride	45	40	30
dioctylftalaat	45	40	30
gewicht van elke schijf (gram)	8,53	9,19	7,80

De op deze wijze gevormde schijven werd elk in een met water gevuld vat opgehangen, waarna periodiek de hoeveelheid van de werkzame stof, die aan het water was afgegeven,
 15 werd gemeten.

In de onderstaande tabel zijn de op deze wijze vastgestelde hoeveelheden vermeld (percentage van de gediffundeerde werkzame stof betrokken op de opgenomen hoeveelheid werkzame stof in het preparaat, waarbij de gediffundeerde
 20 hoeveelheid werkzame stof is uitgedrukt in milligrammen):

Tabel E

<u>Moment van meting</u>	<u>3A</u>		<u>3B</u>		<u>3C</u>	
	<u>%</u>	<u>mg</u>	<u>%</u>	<u>mg</u>	<u>%</u>	<u>mg</u>
5de dag	12	102	13	211	19	593
9de dag	16	137	18	295	25	774
20ste dag	24	206	26	429	37	1160
51ste dag	36	309	41	676	53	1647
114de dag	49	417	54	881	56	2068
194ste dag	61	518	65	1068	77	2412

Proef 4: Er werden schijven 4A, 4B en 4C toegepast, zoals beschreven voor proef 3, welke schijven achtereenvolgens de-

zelfde samenstelling bezaten.

Deze schijven werden elk in zand gebracht, waarvan het watergehalte ongeveer 20 % bedroeg, terwijl periodiek de percentages gediffundeerde werkzame stof werden gemeten.

5 De resultaten van de metingen zijn in de onderstaande tabel samengevat.

Moment van meting	Tabel F					
	4A		4B		4C	
	%	mg	%	mg	%	mg
20ste dag	11	93	13	237	14	440
51ste dag	22	188	27	496	31	967
114de dag	34	292	38	695	42	1317
194ste dag	42	365	47	869	51	1604

Proef 5: Er werd een preparaat met de volgende samenstelling bereid:

technisch butocarboxime	20 gew.%
polyvinylchloride	40 gew.%
10 dioctylftalaat	40 gew.%

Het onder proef 2 beschreven proces werd toegepast (15 minuten bij 125°C), waarbij schijven met een diameter van 90 mm werden verkregen, waarvan de dikte echter verschillend was.

Preparaat	Tabel G				
	5A	5B	5C	5D	5E
dikte, mm	1	2	3	5	7
gewicht, gram	6,8	13,8	20,9	34,8	48,9

15 Deze schijven werden elk in zand aangebracht, waarvan het watergehalte ongeveer 20 % bedroeg, waarna periodiek de percentages gediffundeerde werkzame stof werden gemeten.

De resultaten van de metingen zijn in de onderstaande tabel samengevat.

Tabel H

Moment van meting	5A		5B		5C		5D		5E	
	%	mg	%	mg	%	mg	%	mg	%	mg
8ste dag	19,2	260	13,2	364	9,0	375	8,4	525	7,8	763
15de dag	37,1	505	25,7	709	19,7	824	16,8	1170	14,4	1407
22ste dag	54,5	741	37,1	1024	28,7	1200	24,5	1705	21,0	2054
29ste dag	65,2	887	46,7	1289	36,5	1526	30,5	2123	25,7	2515
60ste dag	80,8	1100	62,9	1736	51,5	2153	43,7	3040	35,1	3433
90ste dag	89,8	1220	76,6	2115	67,0	2800	55,9	3890	45,3	4430

Proef 6: Het voorschrift van proef 2 (15 minuten bij 125°C) werd gevolgd voor het bereiden van de volgende preparaten 6A tot 6D, die de vorm van schijven met een diameter van 90 mm en een dikte van 1,5 mm bezaten (de getallen geven 5 gewichtsprocenten aan):

Tabel I

Preparaat	6A	6B	6C	6D
technisch butocarboxime	20	20	20	20
polyvinylchloride	60	50	40	30
dioctylftalaat	20	30	40	50
gewicht, gram	13,83	13,75	13,76	13,56

De schijven werden elk in zand aangebracht, waarvan het watergehalte ongeveer 20 % bedroeg, waarna periodiek het percentage gediffundeerde werkzame stof werd gemeten alsmede het gewicht ervan.

10 De resultaten van de meting zijn in de onderstaande tabel samengevat.

Tabel J

Moment van de meting	6A		6B		6C		6D	
	%	mg	%	mg	%	mg	%	mg
8ste dag	0,4	11	8,4	231	18,0	495	19,8	537
15de dag	3,0	83	15,0	412	32,8	890	37,7	1023
22ste dag	6,6	183	22,8	628	45,5	1251	55,7	1512
29ste dag	9,0	249	26,9	740	54,5	1501	67,7	1835
60ste dag	17,9	495	41,3	1137	71,0	1954	86,8	2355
90ste dag	25,1	693	54,5	1497	81,1	2232	98,0	2659

Proef 7: Het voorschrift van proef 2 (15 minuten bij 125°C) werd gevolgd voor het bereiden van de volgende preparaten 7A en 7B, die de vorm van schijven met een diameter van 90 mm en een dikte van 2 mm bezaten (de getallen geven gewichtspercenten aan):

Tabel K

<u>Preparaat</u>	<u>7A</u>	<u>7B</u>
technisch butocarboxime	20	20
polyvinylchloride	40	40
dioctylftalaat	35	20
tris (2-butoxyethyl)fosfaat	5	20
gewicht, gram	13,63	13,52

De schijven werden elk opgehangen in een vat, dat met water was gevuld, terwijl periodiek de percentages gediffundeerde werkzame stof werden gemeten.

De resultaten van de metingen zijn in de onderstaande tabel samengevat.

Tabel L

<u>Moment van de metingen</u>	<u>7A</u>		<u>7B</u>	
	<u>%</u>	<u>mg</u>	<u>%</u>	<u>mg</u>
2de dag	12	323	20	512
5de dag	50	1330	53	1450
12de dag	74	2025	83	2273

Proef 8: Het voorschrift zoals aangegeven in proef 2 (15 minuten bij 125°C) werd gevolgd voor het bereiden van de volgende preparaten 8A en 8B, die de vorm van schijven met een diameter van 32 mm en een dikte van 12 mm bezaten (de getallen geven gewichtspercentages aan):

Tabel M

<u>Preparaat</u>	<u>8A</u>	<u>8B</u>
technisch butocarboxime	40	40
polyvinylchloride	25	25
dioctylftalaat	25	25
PVA copolymeer (a)	10	-
polyethyleenglycol 400	-	10
gewicht, gram	8,45	9,54

(a) Polyvinylacetaat, dat voor 30 % tot polyvinylalcohol was gehydrolyseerd en een viscositeit van 98 cP bezat in een

4-procents oplossing in water bij 20°C.

De schijven werden elk opgehangen in een met water gevuld vat, terwijl periodiek de percentages aan het water afgegeven werkzame stof werden gemeten.

5 De resultaten van de metingen zijn in de onderstaande tabel samengevat.

Tabel N

Moment van de metingen	8A		8B	
	%	mg	%	mg
5de dag	18,2	615	17,5	670
31ste dag	53,2	1800	46,4	1770
93ste dag	81,4	2750	66,3	2530
173ste dag	98,2	3320	82,4	3145

10 Proef 9: Het voorschrift, zoals aangegeven onder proef 2 (15 minuten bij 125°C) werd gevolgd voor het bereiden van de volgende preparaten 9A tot 9F, die de vorm van schijven met een diameter van 90 mm en een dikte van 2 mm bezaten (de getallen geven gewichtspercentages aan):

Tabel O

Preparaat	9A	9B	9C	9D	9E	9F
technisch butocarb-oxime	20	20	20	20	20	20
polyvinylchloride	37	37	34	34	30	30
dioctylftalaat	37	37	34	34	30	30
PVA copolymeer (a')	6	-	12	-	20	-
PVA copolymeer (a'')	-	6	-	12	-	20
gewicht, gram	13,60	13,57	13,58	13,60	13,63	13,63

(a') Polyvinylacetaat, dat voor 50 % tot polyvinylalcohol was gehydrolyseerd en een viscositeit van 98 cP in een 4-procents oplossing in water bij 20°C vertoonde.

15 (a'') Polyvinylacetaat, dat voor 70 % tot polyvinylalcohol was gehydrolyseerd en een viscositeit van 88 cP als een 4-procents oplossing in water bij 20°C vertoonde.

20 De schijven werden elk in een met water gevuld vat gebracht, terwijl periodiek de percentages gediffundeerde werkzame stof werden gemeten.

De resultaten van de metingen zijn in de onderstaande tabel samengevat.

Tabel P

Moment van de metingen	9A		9B		9C		9D		9E		9F	
	%	mg	%	mg	%	mg	%	mg	%	mg	%	mg
2de dag	15	410	22	590	16	440	27	736	18	496	33	897
5de dag	28	755	30	817	29	782	48	1314	34	924	61	1668
12de dag	49	1340	51	1390	53	1445	77	2090	63	1712	91	2473

5 Proef 10: Het voorschrift, zoals beschreven onder proef 2 (15 minuten bij 125°C) werd gevolgd voor het bereiden van de volgende preparaten 10A tot 10E, die de vorm van schijven met een diameter van 90 mm en een dikte van 2 mm bezaten (de getallen geven gewichtspercentages aan):

Tabel Q

<u>Preparaat</u>	<u>10A</u>	<u>10B</u>	<u>10C</u>	<u>10D</u>	<u>10E</u>
technisch butocarboxime	20	20	20	20	20
polyvinylchloride	40	40	40	40	40
dioctylftalaat	35	35	30	20	20
polyethyleenglycol 400	5	-	10	-	20
ethyltriethyleenglycol	-	5	-	20	-
gewicht, gram	13,57	13,51	13,61	13,32	13,50

De schijven werden elk in een met water gevuld vat opgehangen, terwijl periodiek de percentages gediffundeerde werkzame stof werd gemeten.

10 De resultaten van de metingen zijn in de onderstaande tabel samengevat.

Tabel R

Moment van de metingen	10A		10B		10C		10D		10E	
	%	mg	%	mg	%	mg	%	mg	%	mg
2de dag	11	295	13	353	13	354	13	341	40	1045
3de dag	17	466	-	-	19	512	-	-	87	2354
5de dag	26	714	43	1160	33	904	46	1230	100	2690
12de dag	48	1308	64	1707	56	1532	71	1886		

15 Proef 11: Het voorschrift, zoals aangegeven onder proef 2 (15 minuten bij 125°C) werd gevolgd voor het bereiden van de volgende preparaten 11A en 11B, die de vorm van schijven met een diameter van 90 mm en een dikte van 2 mm bezaten (de getallen geven gewichtspercentages aan).

Tabel S

<u>Preparaat</u>	<u>11A</u>	<u>11B</u>
technisch butocarboxime	20	20
polyvinylchloride	40	40
dioctylftalaat	35	20
tributylcitraat	5	20
gewicht, gram	13,68	13,59

De schijven werden elk in een met water gevuld vat opgehangen, terwijl periodiek de percentages gediffundeerde werkzame stof werden gemeten.

De resultaten van de metingen zijn in de onderstaande tabel samengevat.

Tabel T

<u>Moment van de metingen</u>	<u>11A</u>		<u>11B</u>	
	<u>%</u>	<u>mg</u>	<u>%</u>	<u>mg</u>
2de dag	13	350	20	550
5de dag	49	1350	52	1430
12de dag	74	2030	76	2080

Proef 12: Het voorschrift, zoals aangegeven onder proef 2 (15 minuten bij 125°C) werd gevolgd voor het bereiden van de volgende preparaten 12A tot 12F, die de vorm van schijven met een diameter van 90 mm en een dikte van 2 mm bezaten (de getallen geven gewichtspercentages aan):

Tabel U

<u>Preparaat</u>	<u>12A</u>	<u>12B</u>	<u>12C</u>	<u>12D</u>	<u>12E</u>	<u>12F</u>
technisch butocarboxime	20	20	20	20	20	20
polyvinylchloride	37	37	34	34	30	25
dioctylftalaat	37	37	34	34	30	25
maiskolven	6	-	12	-	20	-
graanmeel	-	6	-	12	-	30
gewicht, gram	13,55	13,60	13,64	13,56	13,70	13,52

De schijven werden elk in een met water gevuld vat opgehangen, terwijl periodiek de percentages gediffundeerde werkzame stof werden gemeten.

De resultaten van de metingen zijn in de onderstaande tabel samengevat.

Tabel V

Moment van de metingen	12A		12B		12C		12D		12E		12F	
	%	mg	%	mg	%	mg	%	mg	%	mg	%	mg
2de dag	16	427	17	467	16	431	19	512	16	436	43	1170
3de dag	-	-	20	545	-	-	26	703	-	-	52	1410
5de dag	36	980	30	822	43	1167	41	1117	52	1418	80	2158
12de dag	61	1660	53	1438	70	1914	79	2151	96	2636	100	2690

Proef 13: Het voorschrift, zoals aangegeven onder proef 2 (15 minuten bij 125°C) werd gevolgd voor het bereiden van de volgende preparaten 13A tot 13F, die de vorm van schijven met een diameter van 90 mm en een dikte van 2 mm bezaten
5 (de getallen geven gewichtspercentages aan):

Tabel W

Preparaat	13A	13B	13C	13D	13E	13F
technisch buto-carboxime	20	20	20	20	20	20
polyvinylchloride	37	37	34	34	30	30
dioctylftalaat	37	37	34	34	30	30
methylcellulose	6	-	12	-	20	-
natriumzout van carboxymethylcellulose	-	6	-	12	-	20
gewicht, gram	13,56	13,55	13,56	13,49	13,61	13,48

De schijven werd elk in een met water gevuld vat opgehangen, terwijl periodiek de percentages gediffundeerde werkzame stof werd gemeten.

De resultaten van de metingen zijn in de onderstaande
10 tabel samengevat:

Tabel X

Moment van de metingen	13A		13B		13C		13D		13E		13F	
	%	mg	%	mg	%	mg	%	mg	%	mg	%	mg
2de dag	13	347	15	412	15	400	25	680	17	463	43	1163
3de dag	-	-	22	602	-	-	33	888	-	-	54	1452
5de dag	37	1006	36	971	39	1052	43	1155	65	1772	87	2346
12de dag	60	1636	53	1432	70	1906	79	2126	100	2706	100	2679

Proef 14: Het voorschrift, zoals aangegeven onder proef 2 (15 minuten bij 125°C) werd gevolgd voor het bereiden van de volgende preparaten 14A en 14B, die in de vorm van schijven met een diameter van 90 mm en een dikte van 2 mm verkeren (de getallen geven gewichtspercentages aan):

Tabel Y

<u>Preparaat</u>	<u>14A</u>	<u>14B</u>
technisch butocarboxime	20	20
polyvinylchloride	37	25
dioctylftalaat	37	15
caseïne	6	40
gewicht, gram	13,56	13,76

De schijven werd elk in een met water gevuld vat opgehangen, terwijl periodiek de percentages gediffundeerde werkzame stof werden gemeten.

De resultaten van de metingen zijn in de onderstaande tabel samengevat.

Tabel Z

<u>Moment van de metingen</u>	<u>14A</u>		<u>14B</u>	
	<u>%</u>	<u>mg</u>	<u>%</u>	<u>mg</u>
2de dag	13	350	16	446
5de dag	35	943	43	1191
12de dag	56	1510	80	2213

Proef 15: Het voorschrift, zoals beschreven onder proef 2 (15 minuten bij 125°C) werd gevolgd voor het bereiden van de volgende preparaten 15A en 15B, die in de vorm van schijven met een diameter van 90 mm en een dikte van 2 mm verkeren (de getallen geven gewichtspercentages aan):

Tabel AA

<u>Preparaat</u>	<u>15A</u>	<u>15B</u>
technisch butocarboxime	20	20
polyvinylchloride	50	34
dioctylftalaat	30	34
PVA-copolymeer (a")	-	12

(a") Polyvinylacetaat dat voor 70 % tot polyvinylalcohol is gehydrolyseerd en een viscositeit van 88 cP in een 4-procents oplossing in water bij 20°C vertoonde.

De schijven werden in vier gelijke kwarten gesneden, die elk een gewicht van ongeveer 3,5 g bezaten. Elk kwart werd in het open veld in steenachtige natte kleigrond aan-
gebracht op een diepte van 7,5 cm. De gemiddelde regenval
5 gedurende de proefperiode bedroeg 3,15 mm per dag. Perio-
diek werd een kwart uit de bodem verwijderd, waarna de
resterende hoeveelheid butocarboxime door analyse werd ge-
meten om de in de bodem gediffundeerde hoeveelheid te bepa-
len.

10 De resultaten van de metingen zijn in de onderstaande
tabel samengevat.

Tabel BB

Moment van de metingen	15A		15B	
	<u>%</u>	<u>mg</u>	<u>%</u>	<u>mg</u>
8ste dag	5	36	21	150
15de dag	9	62	40	278
25ste dag	12	85	59	414
36ste dag	19	130	71	495
50ste dag	26	184	83	579
64ste dag	31	218	-	-
71ste dag	-	-	92	646
78ste dag	39	276	94	660

Proef 16: Er werden zeven reeksen preparaten 16A tot 16G
volgens de uitvinding bereid onder toepassing van de me-
thoden beschreven onder proef 2, dat wil zeggen gedurende
15 15 minuten bij 125°C.

De op deze wijze bereide preparaten bezaten de vorm
van schijven met een diameter van 19 mm en een dikte van
2 mm en vertoonden de volgende samenstelling (de getallen
geven gewichtspercentages aan):

Tabel CC

<u>Preparaat</u>	<u>16A</u>	<u>16B</u>	<u>16C</u>	<u>16D</u>	<u>16E</u>	<u>16F</u>	<u>16G</u>
technisch buto- carboxime	20	20	20	20	20	20	20
polyvinylchlo- ride	38	38	38	38	38	38	38
dioctylftalaat	42	-	-	-	-	-	-
dioctyladipinaat	-	42	-	-	10	10	-
dioctylsebacci- naat	-	-	42	-	-	-	-
tricresylfosfaat	-	-	-	42	-	-	-
triethylcitraat	-	-	-	-	32	-	-
tributylcitraat	-	-	-	-	-	32	-
tris (2-butoxy- ethyl) fosfaat	-	-	-	-	-	-	42
gemiddeld gewicht per schijf (gram)	13,29	13,16	13,25	13,45	13,42	13,57	13,03

De op deze wijze verkregen schijven werden elk in zand
aangebracht, waarvan het watergehalte ongeveer 16,7 % be-
droeg, waarna periodiek de percentages en het gewicht van
de gediffundeerde werkzame stof werden gemeten.

5 De resultaten van de metingen zijn in de onderstaande
tabel samengevat.

Tabel DD

	<u>9de dag</u>		<u>35ste dag</u>		<u>60ste dag</u>	
	<u>%</u>	<u>mg</u>	<u>%</u>	<u>mg</u>	<u>%</u>	<u>mg</u>
16A	18,1	480	52,1	1385	62,1	1650
16B	24,1	635	51,7	1360	65,0	1710
16C	26,4	700	48,1	1275	60,0	1590
16D	13,8	370	35,3	950	46,7	1255
16E	22,0	590	43,4	1165	47,1	1265
16F	25,1	680	54,9	1490	66,5	1805
16G	52,4	1365	82,3	2145	89,8	2340

10 Proef 17: Er werden drie reeksen preparaten 17A, 17B en
17C volgens de uitvinding bereid onder toepassing van het
voorschrift, zoals aangegeven onder proef 2 door gedurende
15 minuten op een temperatuur van 125°C te verhitten. De
op deze wijze bereide preparaten bezaten de vorm van schij-
ven met een diameter van 90 mm en een dikte van 2 mm en

vertoonden de volgende samenstellingen (de getallen geven gewichtspercentages aan):

Tabel EE

<u>Preparaat</u>	<u>17A</u>	<u>17B</u>	<u>17C</u>
butocarboxime	20	-	-
methomyl	-	20	-
thiofanox	-	-	20
polyvinylchloride	38	38	38
dioctylftalaat	42	42	42
gemiddeld gewicht per schijf (gram)	13,95	13,84	13,93

De op deze wijze verkregen schijven werden elk in zand
aangebracht, dat een watergehalte van ongeveer 16,7 % be-
5 zat, waarna periodiek de percentages en het gewicht van de
gediffundeerde werkzame stof werden gemeten.

De resultaten van deze metingen zijn in de onderstaan-
de tabel samengevat.

Tabel FF

	<u>9de dag</u>		<u>35ste dag</u>		<u>60ste dag</u>	
	<u>%</u>	<u>mg</u>	<u>%</u>	<u>mg</u>	<u>%</u>	<u>mg</u>
17A	0,6	17	2,3	64	5,1	142
17B	24,7	685	52,4	1450	65,6	1760
17C	4,5	125	17,0	475	21,7	605

Proef 18: Er werden zeven reeksen preparaten 18A tot 18G
10 bereid onder toepassing van het voorschrift, zoals aangege-
ven onder proef 2 (15 minuten bij 125°C), waarbij insecti-
cide stoffen buiten het kader van de uitvinding werden toe-
gepast.

De op deze wijze bereide preparaten bezaten de vorm
15 van schijven met een diameter van 90 mm en een dikte van
2 mm en vertoonden de volgende samenstellingen (de getallen
geven gewichtspercentages aan):

Tabel GG

<u>Preparaat</u>	<u>18A</u>	<u>18B</u>	<u>18C</u>	<u>18D</u>	<u>18E</u>	<u>18F</u>	<u>18G</u>
carbaryl (b)	20	-	-	-	-	-	-
chlorpyrifos (c)	-	20	-	-	-	-	-
diazinon (d)	-	-	20	-	-	-	-
fenthion (e)	-	-	-	20	-	-	-
malathion (f)	-	-	-	-	20	-	-
naled (g)	-	-	-	-	-	20	-
temephos (h)	-	-	-	-	-	-	20
polyvinyl- chloride	38	38	38	38	38	38	38
dioctylftalaat	42	42	42	42	42	42	42
gemiddeld ge- wicht per schijf (gram)	13,93	13,38	13,98	13,94	14,02	13,86	13,96

(b) α -naftyl N-methylcarbamaat

(c) O-(3,5,6-trichloor-2-pyridyl)-O,O-diethylthiofosfaat

(d) O-(2-n-propyl-6-methyl-4-pyrimidinyl)-O,O-diethylthiofosfaat

5 (e) O-(3-methyl-4-methylthiofenyl)-O,O-dimethylthiofosfaat

(f) S-1,2-bis (ethoxycarbonyl)ethyl 7-O,O-dimethyldithiofosfaat

(g) O-(1,2-dibroom-2,2-dichloorethyl)-O,O-dimethylfosfaat

10 (h) O,O'-(thiodifenyleen-4,4'-diyl)-O,O,O',O'-tetramethylbis (thiofosfaat); deze stof wordt dikwijls aangeduid met de naam "Abate".

De op deze wijze gevormde schijven werden elk in zand
aangebracht, dat een watergehalte van ongeveer 16,7 % be-
zat, waarna na verloop van 9 dagen, 35 dagen en 60 dagen de
15 hoeveelheden gediffundeerde werkzame stof werden gemeten.

In elk van de gevallen en op elk van de momenten van
meting was het niet mogelijk een afgifte van werkzame stof
van meer dan 0,05 % van de gebruikte hoeveelheid te vinden.

Proef 19: Er werd een preparaat volgens de uitvinding be-
20 reid onder toepassing van de methode beschreven onder proef
2 door gedurende 15 minuten op een temperatuur van 125°C te
verhitten onder toepassing van de volgende bestanddelen:

Butocarboxime	35,3 %
Polyvinylchloride	35,0 %
Diocetylftalaat	19,8 %
PVA-copolymeer (a''')	9,9 %

5 (a''') Polyvinylacetaat dat voor 88 % tot polyvinylalcohol was gehydrolyseerd en een viscositeit van 18 cP in een 4 %'s oplossing in water bij een temperatuur van 20°C vertoonde.

10 Dit preparaat werd tot platen met een dikte van 4 mm gevormd, die op zodanige wijze werden gesneden, dat dobbelsteenvormige korrels met een ribbe van 4 mm werden verkregen.

15 De korrels werden in de buurt van de voet van rozestruiken van de variëteit Red Favorite aangebracht, die zich in een kleiachtige kiezelhoudende grond bevonden in het departement Vienne in Frankrijk.

20 Er werden drie doseringen toegepast: 30 g, 45 g en 67 g per rozestruik. Per week werd elke rozestruik drie malen met telkens 6 liter water begoten. Na verloop van 15 dagen werden de bladeren van de rozestruiken aan een breken en extractie onderworpen om het gehalte aan insecticide stof te bepalen. Daarbij konden op deze wijze de volgende gehalten worden vastgesteld:

25	Dosis van 30 g	34 dpm
	Dosis van 45 g	60 dpm
	Dosis van 67 g	75 dpm

Bovendien werd vastgesteld, dat deze gehalten voldoende zijn om de proliferatie van bladluizen op de planten te voorkomen.

30 Proef 20: Er werden de volgende zes preparaten 20A tot 20F volgens de uitvinding bereid onder toepassing van het voorschrift, zoals aangegeven onder proef 2 door gedurende 15 minuten op een temperatuur van 125°C te verhitten onder toepassing van de volgende bestanddelen (de getallen geven 35 percentages aan):

Tabel HH

<u>Preparaat</u>	<u>20A</u>	<u>20B</u>	<u>20C</u>	<u>20D</u>	<u>20E</u>	<u>20F</u>
technisch buto- carboxime	35,3	23,5	14,7	35,3	23,5	14,7
polyvinylchloride	38,8	45,9	51,2	35,0	35,0	35,0
dioctylftalaat	35,9	30,6	34,1	19,8	27,7	33,5
gesolubiliseerd maiszetmeel (i)	-	-	-	9,9	13,8	16,8

(i) Door carboxymethylering en voorverstijfseling gemodificeerd zetmeel.

Deze preparaten werden tot platen met een dikte van 4 mm gevormd, die daarna op zodanige wijze werden gesneden, dat dobbelsteenvormige korrels met een ribbe van 4 mm werden verkregen.

De korrels van elk preparaat werden uitgespreid op het oppervlak van de grond in potten met een diameter van 11 cm, waarin telkens één plant van de soort Hibiscus rosasinensis groeide. Na het verspreiden werden de korrels enigszins met aarde bedekt en werd elke pot met 1 liter water begoten. Volgens de berekening kwam de hoeveelheid van elk preparaat overeen met 50 mg butocarboxime per pot:

20A en 20D : 167 mg
20B en 20E : 250 mg
20C en 20F : 400 mg

De planten waren besmet met bladluizen van de soort Myzus persicae, waarna de insecticide werkzaamheid periodiek gedurende 35 dagen werd gemeten. Er werden telkens 5 planten per preparaat toegepast.

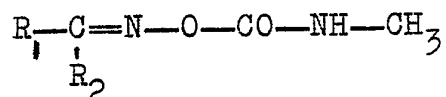
De geregistreeerde resultaten zijn in de onderstaande tabel samengevat en uitgedrukt in de percentages dode insecten betrokken op het op de eerste dag vastgestelde aantal. De vermelde waarden zijn gemiddelden, die voor elk geval aan een aantal van vijf planten werd vastgesteld.

Tabel II

<u>Moment van de metingen</u>	<u>20A</u>	<u>20B</u>	<u>20C</u>	<u>20D</u>	<u>20E</u>	<u>20F</u>
3de dag	55	59	49	57	86	69
7de dag	71	76	69	79	95	89
12de dag	76	75	62	82	91	90
16de dag	93	84	79	90	96	94
20ste dag	90	79	77	89	95	90
24ste dag	93	80	85	85	93	95
28ste dag	87	79	74	77	82	74
35ste dag	79	74	72	69	79	67

C o n c l u s i e s

1. Systemisch werkend insecticide preparaat bestaande uit een stijve of buigzame homogene vaste massa van
- A - een insecticide stof,
- 5 B - een polyvinylchloride met een molaire massa van meer dan 10.000,
- C - een regelend middel behorende tot de hydrofobe versnijdingsmiddelen,
- D - eventueel, een aanvullend regelend middel behorende tot
- 10 de hydrofiele versnijdingsmiddelen en poedervormige vulstoffen,
- m e t h e t k e n m e r k, dat de insecticide stof A bestaat uit een oxime-carbamaat met de formule



15 waarin R_1 een éénwaardige rest $R'X-$ of $R'-X-C(R'')(R''')$ - voorstelt, waarbij X een zwavelatoom of een sulfonylgroep, R' een methyl- of ethylgroep en R'' en R''' onafhankelijk van elkaar elk een waterstofatoom of een methyl- of ethylgroep aangeven en R een methyl-, ethyl-, isopropyl- of tert.butylgroep voorstelt.

20 2. Preparaat volgens conclusie 1, m e t h e t k e n m e r k, dat het de insecticide stof A in een hoeveelheid van 5 tot 50 gew.dln per 100 gew.dln van het preparaat bevat.

25 3. Preparaat volgens conclusie 1 of 2, m e t h e t k e n m e r k, dat het de insecticide stof A in een hoeveelheid van 10 tot 40 gew.dln per 100 gew.dln van het preparaat bevat.

30 4. Preparaat volgens een of meer der voorafgaande conclusies, m e t h e t k e n m e r k, dat het het polyvinylchloride B in een hoeveelheid van 20 tot 70 gew.dln per 100 gew.dln van het preparaat bevat.

35 5. Preparaat volgens een of meer der voorafgaande conclusies, m e t h e t k e n m e r k, dat het het polyvinylchloride B in een hoeveelheid van 30 tot 50 gew.dln per 100 gew.dln van het preparaat bevat.

6. Preparaat volgens een of meer der voorafgaande conclusies, m e t h e t k e n m e r k, dat het het regelende

middel C in een hoeveelheid van 15 tot 70 gew.dln per 100 gew.dln van het preparaat bevat.

7. Preparaat volgens een of meer der voorafgaande conclusies, m e t h e t k e n m e r k, dat het het regelende
5 middel C in een hoeveelheid van 20 tot 55 gew.dln per 100 gew.dln van het preparaat bevat.

8. Preparaat volgens een of meer der voorafgaande conclusies, m e t h e t k e n m e r k, dat de insecticide
stof A het 2-(N-methylcarbamoxyloxyimino)-2-methylthioethaan,
10 het 2-(N-methylcarbamoxyloxyimino)-3-methylthiobutaan, het 2-(N-methylcarbamoxyloxyimino)-2-methylsulfonylbutaan en/of het 2-(N-methylcarbamoxyloxyimino)-3,3-dimethyl-1-methylthiobutaan is.

9. Preparaat volgens een of meer der voorafgaande conclusies, m e t h e t k e n m e r k, dat de insecticide
15 stof het 2-(N-methylcarbamoxyloxyimino)-3-methylthiobutaan is.

10. Preparaat volgens een of meer der voorafgaande conclusies, m e t h e t k e n m e r k, dat het regelende
20 middel C uit één of meer polymeren met een kleine molaire massa, gechloreerde paraffinen en/of zware esters bestaat.

11. Preparaat volgens een of meer der voorafgaande conclusies, m e t h e t k e n m e r k, dat het een hydrofiel versnijdingsmiddel als aanvullend regelend middel be-
25 vat bestaande uit één of meer met water mengbare, in water oplosbare of dispergeerbare polymeren, polyolen en/of esters en/of uit één of meer polyoxalkyleringsprodukten.

12. Preparaat volgens een of meer der voorafgaande conclusies, m e t h e t k e n m e r k, dat het preparaat
30 in de vorm van een stijve of buigzame, compacte, homogene vaste massa een willekeurige vorm bezit.

13. Werkwijze voor het bereiden van een preparaat volgens een of meer der voorafgaande conclusies, m e t h e t k e n m e r k, dat men het polyvinylchloride B in poeder-
35 vorm mechanisch bij de omgevingstemperatuur mengt met de componenten A en C van het preparaat onder vorming van een droog poeder of een vloeiende pasta, die men vervolgens door vormpersen, spuitgieten of gieten of door verhitting tot de geleringstemperatuur van het mengsel omzet in een
40 homogene vaste massa.

8003995

14. Werkwijze voor het bereiden van een preparaat volgens een of meer der conclusies 1 tot 12, met het k e n m e r k, dat men de bestanddelen A, B en C in een vluchtig oplosmiddel oplost, dat men vervolgens bij een
5 meer of minder verhoogde temperatuur en/of onder verminderde druk afdamppt.

15. Werkwijze voor het bereiden van een preparaat volgens een of meer der conclusies 1 tot 12, met het k e n m e r k, dat men het polyvinylchloride in de vorm van
10 een sol dispergeert in het tevoren verhitte vloeibare mengsel van de bestanddelen B en C en dat men na het verkrijgen van een homogene dispersie het mengsel laat afkoelen.

16. Werkwijze voor het bereiden van een preparaat volgens een of meer der conclusies 1 tot 12, met het k e n m e r k, dat men de bestanddelen A en C in vinylchloride of een voorpolymeer van deze verbinding opneemt en vervolgens na toevoeging van een katalysator een polymerisatie van het mengsel teweeg brengt.

17. Werkwijze voor het bereiden van een preparaat volgens een of meer der conclusies 1 tot 12, met het k e n m e r k, dat men een vaste massa van polyvinylchloride in de gewenste vorm voor het gereede preparaat in het vloeibare bestanddeel A brengt, dat eventueel het bestanddeel C bevat, indien dit niet reeds in het polyvinylchloride aanwezig is en alle vloeistoffen in de polyvinylchloride-
25 massa laat binnendringen gedurende een periode, die omgekeerd evenredig is met de temperatuur.

18. Werkwijze volgens conclusie 17, met het k e n m e r k, dat men de bestanddelen A + C in een als
30 verpakking dienend vat brengt, dat ondoordringbaar is voor de genoemde bestanddelen A + C en waarvan het inwendige volume aangepast is om het vloeibare mengsel maximaal met het oppervlak van de vaste massa van het polyvinylchloride in aanraking te brengen, waarna men de verpakking afsluit en
35 vervolgens gedurende een voldoende periode bewaart zodat deze na afloop van de opslagperiode geen vrije vloeistof meer zal bevatten.

19. Werkwijze voor het bestrijden van insecten, met het k e n m e r k, dat men een preparaat volgens een of
40 meer der conclusies 1 tot 12 als systemisch werkend insect-

ticide preparaat gebruikt in water of in de bodem en zo een afgifte van de werkzame stof teweeg brengt door geregelde diffusie.

8003995