

[19] 中华人民共和国国家知识产权局

[51] Int. Cl.
A01N 53/12 (2006.01)



[12] 发明专利申请公布说明书

[21] 申请号 200580009463.3

[43] 公开日 2007年3月21日

[11] 公开号 CN 1933732A

[22] 申请日 2005.3.22

[21] 申请号 200580009463.3

[30] 优先权

[32] 2004.3.25 [33] US [31] 60/556,229

[86] 国际申请 PCT/US2005/009459 2005.3.22

[87] 国际公布 WO2005/096820 英 2005.10.20

[85] 进入国家阶段日期 2006.9.25

[71] 申请人 FMC 有限公司

地址 美国宾夕法尼亚州

[72] 发明人 J·B·巴拉德 C·L·帕尔马
K·沃森

[74] 专利代理机构 上海专利商标事务所有限公司
代理人 项丹

权利要求书3页 说明书7页

[54] 发明名称

拟除虫菊酯和灭虫碱的液体杀白蚁剂组合物

[57] 摘要

本发明涉及液体杀白蚁剂组合物，该组合物包含拟除虫菊酯和选自吡虫啉、硝虫噻嗪、噻虫嗪、呋虫胺、硝胺烯啶、噻虫啉和可尼丁的灭虫碱，该组合物在低应用比率下可增加白蚁死亡率，并在怀疑或已知存在白蚁的场所中、结构周围和结构下面的土壤中形成杀白蚁剂的连续化学屏障。

1. 一种液体杀白蚁剂组合物，所述组合物包含：
 - i) 拟除虫菊酯，和
 - ii) 选自吡虫啉、硝虫噻嗪、噻虫嗪、呋虫胺、硝胺烯啶、噻虫啉和可尼丁的灭虫碱。
2. 如权利要求 1 所述的组合物，其特征在于，所述拟除虫菊酯选自：氟氯菊酯、氯氰菊酯、己体氯氰菊酯、氯氟氰菊酯、乙体氯氰菊酯、甲体氯氰菊酯、四溴菊酯、溴氰菊酯、氟氯氰菊酯、 β -氟氯氰菊酯、高氰戊菊酯、氟胺氰菊酯、依芬普司和扑灭司林。
3. 如权利要求 2 所述的组合物，其特征在于，所述拟除虫菊酯是氟氯菊酯。
4. 如权利要求 1 所述的组合物，其特征在于，所述组合物包含氟氯菊酯和吡虫啉。
5. 如权利要求 4 所述的组合物，其特征在于，所述氟氯菊酯的量占所述组合物中所有组分的重量的 0.0005-0.50%，所述吡虫啉的量占所述组合物中所有组分的重量的 0.0005-0.50%。
6. 如权利要求 1 所述的组合物，其特征在于，所述组合物包含氟氯菊酯和可尼丁。
7. 如权利要求 6 所述的组合物，其特征在于，所述氟氯菊酯的量占所述组合物中所有组分的重量的 0.0005-0.50%，所述可尼丁的量占所述组合物中所有组分的重量的 0.0005-0.50%。
8. 如权利要求 1 所述的组合物，其特征在于，所述组合物包含氟氯菊酯和噻虫嗪。
9. 如权利要求 8 所述的组合物，其特征在于，所述氟氯菊酯的量占所述组合物中所有组分的重量的 0.0005-0.50%，所述噻虫嗪的量占所述组合物中所有组分重量的 0.0005-0.50%。
10. 一种控制白蚁的方法，所述方法包括将杀白蚁有效量的权利要求 1 的组合物施加到需要或预期需要控制白蚁的场所。
11. 一种控制白蚁的方法，所述方法包括将杀白蚁有效量的权利要求 2 的

组合物施加到需要或预期需要控制白蚁的场所。

12. 一种控制白蚁的方法，所述方法包括将杀白蚁有效量的权利要求 3 的组合物施加到需要或预期需要控制白蚁的场所。

13. 一种控制白蚁的方法，所述方法包括将杀白蚁有效量的权利要求 4 的组合物施加到需要或预期需要控制白蚁的场所。

14. 一种控制白蚁的方法，所述方法包括将杀白蚁有效量的权利要求 5 的组合物施加到需要或预期需要控制白蚁的场所。

15. 一种控制白蚁的方法，所述方法包括将杀白蚁有效量的权利要求 6 的组合物施加到需要或预期需要控制白蚁的场所。

16. 一种控制白蚁的方法，所述方法包括将杀白蚁有效量的权利要求 7 的组合物施加到需要或预期需要控制白蚁的场所。

17. 一种控制白蚁的方法，所述方法包括将杀白蚁有效量的权利要求 8 的组合物施加到需要或预期需要控制白蚁的场所。

18. 一种控制白蚁的方法，所述方法包括将杀白蚁有效量的权利要求 9 的组合物施加到需要或预期需要控制白蚁的场所。

19. 如权利要求 10 所述的方法，其特征在于，所述场所选自：白蚁-侵扰的结构、预期白蚁侵扰的结构、或邻近所述结构的地方。

20. 如权利要求 11 所述的方法，其特征在于，所述场所选自：白蚁-侵扰的结构、预期白蚁侵扰的结构、或邻近所述结构的地方。

21. 如权利要求 12 所述的方法，其特征在于，所述场所选自：白蚁-侵扰的结构、预期白蚁侵扰的结构、或邻近所述结构的地方。

22. 如权利要求 13 所述的方法，其特征在于，所述场所选自：白蚁-侵扰的结构、预期白蚁侵扰的结构、或邻近所述结构的地方。

23. 如权利要求 14 所述的方法，其特征在于，所述场所选自：白蚁-侵扰的结构、预期白蚁侵扰的结构、或邻近所述结构的地方。

24. 如权利要求 15 所述的方法，其特征在于，所述场所选自：白蚁-侵扰的结构、预期白蚁侵扰的结构、或邻近所述结构的地方。

25. 如权利要求 16 所述的方法，其特征在于，所述场所选自：白蚁-侵扰的结构、预期白蚁侵扰的结构、或邻近所述结构的地方。

26. 如权利要求 17 所述的方法，其特征在于，所述场所选自：白蚁-侵扰的结构、预期白蚁侵扰的结构、或邻近所述结构的地方。

27. 如权利要求 18 所述的方法，其特征在于，所述场所选自：白蚁-侵扰的结构、预期白蚁侵扰的结构、或邻近所述结构的地方。

拟除虫菊酯和灭虫碱的液体杀白蚁剂组合物

本申请要求 2004 年 3 月 25 日提交的美国临时申请 No. 60/556,229 的优先权。

技术领域

本发明一般涉及杀虫组合物。具体涉及用于控制土源性白蚁的液体杀白蚁剂组合物。

背景技术

白蚁毫无疑问是所有结构昆虫中最具破坏性的。估计每年白蚁导致结构 15 亿美元的损失，另外 10 亿化在处理上。根据白蚁的类型，一个集落可覆盖多达 22,000 平方英尺。这些勤劳的昆虫每天工作 24 小时，逐渐腐蚀木材以及环境中任何其它含纤维素的材料。由于它们隐藏在赖以生存的木材、泥管、或土壤中，通常它们造成的严重破坏而未被察觉。有两种类型的白蚁，称为 i) 干燥木材白蚁，和 ii) 地面下白蚁。在这两种类型中，地面下白蚁通常生活在土壤中（即土源性），它们从土壤构建泥管，然后通向结构木材进食。

可将杀白蚁剂策略地应用于白蚁侵扰的土壤，提供结构周围和结构下方土壤中连续的化学屏障，以实现对于土源性白蚁的控制。然而，液体杀白蚁剂在土壤中的最终分布是一系列变量的结果：土壤湿度、土壤类型、活性成分在水中的溶解度、制剂类型、应用变量如应用的体积、压力和喷嘴类型。控制土源性白蚁的优选方法是将杀白蚁剂直接应用于土壤表面，从而在杀白蚁剂浸入土壤时在土壤中产生化学屏障。具有直接应用于土壤表面潜在用途的杀白蚁剂可以液体杀白蚁剂的形式使用。“液体杀白蚁剂”被定义为包含至少一种杀白蚁剂的组合物，其中，在应用于需要控制白蚁的场所之前，所述组合物分散在水性介质中。

在配制用于土源性白蚁处理的液体杀白蚁剂的技术中，存在两个方面的问题。第一个问题是：当将含相对水不溶性、结合土壤的杀白蚁剂的液体杀白蚁

剂应用于土壤时，由土壤中杀白蚁剂的固定状态导致所需连续的化学屏障中可存在间隙、或薄处理区域。因此，白蚁可通过化学屏障中的这些间隙或薄处理区域到达食物源/结构。第二个问题是：以前已有的液体杀白蚁剂在低应用比率下白蚁死亡率较低。

因此，宜提供一种土壤处理用液体杀白蚁剂组合物，提供连续的化学屏障，且在低应用比率下白蚁死亡率增加。

发明内容

现在我们已经意外地发现，使用含有拟除虫菊酯如氟氯菊酯和灭虫碱(neonicitinoid)如吡虫啉、可尼丁或噻虫嗪(thiamethoxin)的组合物，可提供连续的化学屏障，且在低应用比率下白蚁死亡率增加。灭虫碱可提供优良的土壤迁移，产生非常有效的连续化学屏障。拟除虫菊酯和灭虫碱的组合在低应用比率下白蚁死亡率有意想不到的升高。具体地说，本发明是液体杀白蚁剂组合物，所述组合物包含拟除虫菊酯和选自吡虫啉、硝虫噻嗪(nithiazine)、噻虫嗪(thiamethoxam)、呋虫胺(dinotefuran)、硝胺烯啶、噻虫啉(thiacloprid)和可尼丁(clothianidin)的灭虫碱。本发明的其它方面也将显而易见。

具体实施方式

现在我们已经意外地发现，液体杀白蚁剂组合物包含拟除虫菊酯和选自吡虫啉、硝虫噻嗪、噻虫嗪、呋虫胺、硝胺烯啶、噻虫啉和可尼丁的灭虫碱。优选地，拟除虫菊酯选自：氟氯菊酯、氯氰菊酯、己体氯氰菊酯、氯氟氰菊酯、乙体氯氰菊酯、甲体氯氰菊酯、四溴菊酯、溴氰菊酯、氟氯氰菊酯、 β -氟氯氰菊酯、高氰戊菊酯、氟胺氰菊酯、依芬普司和扑灭司林。更优选地，拟除虫菊酯是氟氯菊酯。

优选的组合物是氟氯菊酯和吡虫啉的混合物。氟氯菊酯存在的量为组合物中所有组分重量的 0.0005-0.50 重量%。吡虫啉存在的量为组合物中所有组分重量的 0.0005-0.50 重量%。

另一个优选的实施方式是氟氯菊酯和可尼丁的混合物。氟氯菊酯存在的量为组合物中所有组分重量的 0.0005-0.50 重量%。可尼丁存在的量为组合物中所有组分重量的 0.0005-0.50 重量%。

又一个优选的实施方式是氟氯菊酯和噻虫嗪的混合物。氟氯菊酯存在的量

为组合物中所有组分重量的 0.0005-0.50 重量%。噻虫嗪存在的量为组合物中所有组分重量的 0.0005-0.50 重量%。

本发明另一个实施方式包括控制白蚁的方法，所述方法包括将杀白蚁有效量的组合物应用于需要或预期需要控制白蚁的场所。场所可选自：白蚁侵扰的结构、预期白蚁侵扰的结构，或与所述结构相邻的位置。

液体杀白蚁剂是含杀白蚁剂的任何组合物，其中，在应用于需要控制白蚁的场所之前，所述组合物分散在水性介质中。也就是说，液体杀白蚁剂由以下成分构成：1)杀白蚁剂，2)水性介质和3)常规应用于杀白蚁制剂的其它添加剂(例如，表面活性剂、润湿剂、冻/融剂)。因此，在使用之前被或者可被分散在水性介质中的所有杀白蚁剂组合物都包括在本发明范围之内(例如微乳、悬浮液浓缩物、可乳化浓缩物、可湿性粉末剂、可分散在水中的颗粒、胶囊悬浮液、可乳化的颗粒或其组合)。

本发明的组合物可来源于市售的杀白蚁剂配方。例如，可将 FMC 公司以商品名 TALSTAR® GC FLOWABLE INSECTICIDE/MITICIDE 或 TALSTAR® TERMITICIDE/INSECTICIDE，或 TALSTARONE®MULTI-INSECTIDE 出售的氟氯菊酯用于本发明。采用精通本领域的技术人员已知的方法可将上述杀白蚁剂配方分散在水性介质中，以得到含有杀白蚁有效量的杀白蚁剂组合物。

以下实施例进一步阐述了本发明，但是这当然不是要以任何方式限制本发明的范围。这些实施例列举了一些表示本发明组合物控制白蚁的功效的生物数据。除非另有说明，所有的份数、百分数等都是以组合物所有组分的重量表示的。

实施例 1

通过应用氟氯菊酯和吡虫啉的组合确定白蚁死亡率的试验

用以下方式测定本发明的组合物的杀白蚁活性：

制备用蒸馏水配制的由 TALSTAR® TERMITICIDE-INSECTICIDE 和可湿性吡虫啉粉末剂构成的测试组合物，像单独使用氟氯菊酯和吡虫啉一样，可以合适的比率使用氟氯菊酯和吡虫啉的组合。

将直径 13 毫米的玻璃管切割成 20 厘米的区段以足够的量进行试验。离开指定为底部的管的一端 5 厘米、8 厘米和 18 厘米的距离，标记每个 20 厘米的管段。通过先将一段直径 1 厘米的木销置入玻璃管的底部直到 8 厘米标记，然

后将约 2 厘米的土壤引入指定为顶部的管的另一端，用沙壤土(3%重量湿度含量)填充各管区段。然后，采用第二段直径 1 厘米的木销，将土壤从顶部慢慢地填充入管中。使用 2 厘米等分土壤重复该过程，直到土壤水平接近 18 厘米标记，从而提供高度 10 厘米的土壤柱。将在用于进行这些试验的直径 13 厘米玻璃管区段中形成的琼脂塞切割成 3 厘米区段。然后，将 3 厘米琼脂区段慢慢地推入含土壤的各管底部，直到琼脂塞在 8 厘米标记处牢固地接触土壤，从而在各管区段的底部形成 5 厘米的空隙。将琼脂塞放置入各管区段后，将切割成 6 厘米长的施加器棒的两个区段插入各管底端，从而迫使各棒进入琼脂塞约 1 厘米以使琼脂塞保持在适当位置。将内径 13 毫米的中心具有钻孔的塑料头置于管的各个区段的底端。然后，将尖锐的施加器棒插入各塑料头的孔中，通过琼脂塞到达琼脂塞与土壤的交界处。然后，以旋转的方式慢慢地除去施加器棒，提供通过土壤的液体自由流动方式。然后，直立管的各区段，将上述制备的 0.5 毫升等分的氟氯菊酯、吡虫啉或其组合的悬浮液滴加到土壤顶部。施加试验悬浮液后，用一小片铝箔覆盖玻璃管各区段的顶部上。然后，静置玻璃管约 20 小时，以使杀白蚁剂向下移动，进入土壤。然后，将内径 13 毫米的塑料头置于管的各区段的顶部。从玻璃管各区段的底部除去中心具有钻孔的塑料头，然后将一片 0.5 厘米×4 厘米的滤纸置于施加器棒的两个区段之间。然后，将 50 只白蚁(*Reticulitermes flavipes*)插入管各区段底部的 5 厘米空隙中。将中心无钻孔的新塑料头置于管的各区段的底部。然后，以直立位储存玻璃管区段，白蚁位于土壤下面。处理后 1 小时、2 小时、1 天、2 天和 7 天测定白蚁死亡率。记录了以下结果：

表 1

通过应用氟氯菊酯和吡虫啉的组合控制白蚁

处理	应用比率 (PPM)	应用比率 (重量%)	1 小时 处的 死亡率 (%)	2 小时处 的死亡 率(%)	1 天时的 死亡率 (%)	2 天时的 死亡率 (%)	7 天时的 死亡率 (%)
A	10	0.001	0	0	13	24	95
	50	0.005	0	0	21	78	100
B	100	0.01	0	0	0	4	100
	200	0.02	0	0	1	6	100
A+B	10/100	0.001/0.01	0	3	29	76	100
	10/200	0.001/0.02	3	3	34	68	100
	50/100	0.005/0.01	0	0	20	80	100
	50/200	0.005/0.02	0	0	28	75	100
未处理	0	0	0	0	0	0	5

A 是氟氯菊酯
B 是吡虫啉

实施例 2

通过应用氟氯菊酯和可尼丁的组合确定白蚁死亡率的试验

用以下方式测定本发明的组合物的杀白蚁活性：

制备用蒸馏水配制的由 TALSTAR[®] TERMITICIDE-INSECTICIDE 和可湿性可尼丁粉末剂构成的测试组合物，像单独使用氟氯菊酯和可尼丁一样，可以合适的比率使用氟氯菊酯和可尼丁的组合。

将直径 13 毫米的玻璃管切割成 20 厘米的区段以足够的量进行试验。离开指定为底部的管的一端 5 厘米、8 厘米和 18 厘米的距离，标记每个 20 厘米的管段。通过先将一段直径 1 厘米的木销置入玻璃管的底部直到 8 厘米标记，然后将约 2 厘米的土壤引入指定为顶部的管的另一端，用沙壤土(3%重量湿度含量)填充各管区段。然后，采用第二段直径 1 厘米的木销，将土壤从顶部慢慢地填充入管中。使用 2 厘米等分土壤重复该过程，直到土壤水平接近 18 厘米标记，从而提供高度 10 厘米的土壤柱。将在用于进行这些试验的直径 13 厘米玻璃管区段中形成的琼脂塞切割成 3 厘米区段。然后，将 3 厘米琼脂区段慢慢地推入含土壤的各管底部，直到琼脂塞在 8 厘米标记处牢固地接触土壤，从而在各管区段的底部形成 5 厘米的空隙。将琼脂塞放置入各管区段后，将切割成 6 厘米长的施加器棒的两个区段插入各管底端，从而迫使各棒进入琼脂塞约 1 厘米以使琼脂塞保持在适当位置。将内径 13 毫米的中心具有钻孔的塑料头置于管的各个区段的底端。然后，将尖锐的施加器棒插入各塑料头的孔中，通过琼脂塞到达琼脂塞与土壤的交界处。然后，以旋转的方式慢慢地除去施加器棒，提供通过土壤的液体自由流动方式。然后，直立管的各区段，将上述制备的 0.5 毫升等分的氟氯菊酯、可尼丁或其组合的悬浮液滴加到土壤顶部。施加试验悬浮液后，用一小片铝箔覆盖玻璃管各区段的顶部上。然后，静置玻璃管约 20 小时，以使杀白蚁剂向下移动，进入土壤。然后，将内径 13 毫米的塑料头置于管的各区段的顶部。从玻璃管各区段的底部除去中心具有钻孔的塑料头，然后将一片 0.5 厘米×4 厘米的滤纸置于施加器棒的两个区段之间。然后，将 50 只白蚁(*Reticulitermes flavipes*)插入管各区段底部的 5 厘米空隙中。将中心无钻孔的新塑料头置于管的各区段的底部。然后，以直立位储存玻璃管区段，白蚁位于土壤下面。处理后 1 小时、2 小时、1 天、2 天和 7 天测定白蚁死亡率。记录了以下结果：

表 2

通过应用氟氯菊酯和可尼丁的组合控制白蚁

处理	应用比率 (PPM)	应用比率 (重量%)	1 小时 处的 死亡 率(%)	2 小时处 的死亡 率(%)	1 天时的 死亡率 (%)	2 天时的 死亡率 (%)	7 天时的 死亡率 (%)
A	10	0.001	0	0	13	24	95
	50	0.005	0	0	21	78	100
B	100	0.01	0	0	0	23	100
	200	0.02	0	0	1	11	100
A+B	10/100	0.001/0.01	0	0	20	51	100
	10/200	0.001/0.02	0	0	26	76	100
	50/100	0.005/0.01	0	0	21	70	100
	50/200	0.005/0.02	0	0	10	81	100
未处理	0	0	0	0	0	0	5

A 是氟氯菊酯
B 是可尼丁

实施例 3

通过应用氟氯菊酯和噻虫嗪的组合确定白蚁死亡率的试验

用以下方式测定本发明的组合物的杀白蚁活性：

制备用蒸馏水配制的由 TALSTAR[®] TERMITICIDE-INSECTICIDE 和可湿性噻虫嗪粉末剂构成的测试组合物，像单独使用氟氯菊酯和噻虫嗪一样，可以合适的比率使用氟氯菊酯和噻虫嗪的组合。

将直径 13 毫米的玻璃管切割成 20 厘米的区段以足够的量进行试验。离开指定为底部的管的一端 5 厘米、8 厘米和 18 厘米的距离，标记每个 20 厘米的管段。通过先将一段直径 1 厘米的木销置入玻璃管的底部直到 8 厘米标记，然后将约 2 厘米的土壤引入指定为顶部的管的另一端，用沙壤土(3%重量湿度含量)填充各管区段。然后，采用第二段直径 1 厘米的木销，将土壤从顶部慢慢地填充入管中。使用 2 厘米等分土壤重复该过程，直到土壤水平接近 18 厘米标记，从而提供高度 10 厘米的土壤柱。将在用于进行这些试验的直径 13 厘米玻璃管区段中形成的琼脂塞切割成 3 厘米区段。然后，将 3 厘米琼脂区段慢慢地推入含土壤的各管底部，直到琼脂塞在 8 厘米标记处牢固地接触土壤，从而在各管区段的底部形成 5 厘米的空隙。将琼脂塞放置入各管区段后，将切割成 6 厘米长的施加器棒的两个区段插入各管底端，从而迫使各棒进入琼脂塞约 1 厘米以使琼脂塞保持在适当位置。将内径 13 毫米的中心具有钻孔的塑料头置于管的各个区段的底端。然后，将尖锐的施加器棒插入各塑料头的孔中，通过琼脂塞到达琼脂塞与土壤的交界处。然后，以旋转的方式慢慢地除去施加器棒，提供通过土壤的液体自由流动方式。然后，直立管的各区段，将上述制备的 0.5

毫升等分的氟氯菊酯、噻虫嗪或其组合的悬浮液滴加到土壤顶部。施加试验悬浮液后，用一小片铝箔覆盖玻璃管各区段的顶部上。然后，静置玻璃管约 20 小时，以使杀白蚁剂向下移动，进入土壤。然后，将内径 13 毫米的塑料头置于管的各区段的顶部。从玻璃管各区段的底部除去中心具有钻孔的塑料头，然后将一片 0.5 厘米×4 厘米的滤纸置于施加器棒的两个区段之间。然后，将 50 只白蚁(*Reticulitermes flavipes*)插入管各区段底部的 5 厘米空隙中。将中心无钻孔的新塑料头置于管的各区段的底部。然后，以直立位储存玻璃管区段，白蚁位于土壤下面。处理后 1 小时、2 小时、1 天、2 天和 7 天测定白蚁死亡率。记录了以下结果：

表 3

通过应用氟氯菊酯和噻虫嗪的组合控制白蚁

处理	应用比率 (PPM)	应用比率 (重量%)	1 小时 处的 死亡 率(%)	2 小时处 的死亡 率(%)	1 天时的 死亡率 (%)	2 天时的 死亡率 (%)	7 天时的 死亡率 (%)
A	10	0.001	0	0	3	5	100
	50	0.005	0	0	10	65	100
B	100	0.01	0	0	0	4	100
	200	0.02	0	0	1	20	100
A+B	10/100	0.001/0.01	0	0	21	68	100
	10/200	0.001/0.02	0	0	20	83	100
	50/100	0.005/0.01	0	0	21	84	100
	50/200	0.005/0.02	0	0	9	80	100
未处理	0	0	0	0	0	0	1

A 是氟氯菊酯
B 是噻虫嗪

在本发明文中，术语“杀白蚁剂”指杀死或击退白蚁的活性化合物或成分，如氟氯菊酯、吡虫啉、硝虫噻嗪、噻虫嗪、呋虫胺、硝胺烯啶、噻虫啉或可尼丁。术语“液体杀白蚁剂”指一种杀白蚁组合物，在应用于需要控制白蚁的场所之前，所述组合物分散在水性介质中。术语“场所”指任何需要控制或希望控制白蚁的地点。这些地点包括但不限于：建筑物、树木、立柱杆(posts poles)、栅栏以及邻近建筑物、树木、立柱杆和栅栏的地点和其它地点。术语“驱性”指通过使用白蚁屏障形式的杀白蚁剂，击退、逐退、或保持白蚁远离。术语“死亡”、“死亡率”、“控制”、“控制率”可互换使用，指杀死和/或击退白蚁。

那些精通本领域的技术人员将了解，可采用本发明的变化形式，这就是说在实践本发明时可采用以上具体描述之外的方式。因此，本发明包括所有修改，这些修改包括在由以下权利要求所限定的本发明的精神和范围之内。