



NUMERO DE PUBLICATION : 1004726A3

NUMERO DE DEPOT : 9100352

MINISTERE DES AFFAIRES ECONOMIQUES

Classif. Internat.: A01N

Date de délivrance : 19 Janvier 1993

Le Ministre des Affaires Economiques,

Vu la Convention de Paris du 20 Mars 1883 pour la Protection de la propriété industrielle;

Vu la loi du 28 Mars 1984 sur les brevets d' invention, notamment l' article 22;

Vu l' arrêté royal du 2 Décembre 1986 relatif à la demande, à la délivrance et au maintien en vigueur des brevets d' invention, notamment l' article 28;

Vu le procès verbal dressé le 17 Avril 1991 à 10h40
à l' Office de la Propriété Industrielle

ARRETE :

ARTICLE 1.- Il est délivré à : SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LIMITED
5-33, Kitahama-4-chome, Chuo-ku, OSAKA(JAPON)

représenté(e)s par : KEUTERICKX Joseph, OFFICE PARETTE (Fred. Maes), Boulevard
Paepsem 18 E - B 1070 BRUXELLES.

un brevet d' invention d' une durée de 20 ans, sous réserve du paiement des taxes
annuelles, pour : COMPOSITIONS INSECTICIDES A BASE DE CHRYSANTHEMATE DE
2,4-DIOXO-1-(2-PROPYNYL) IMIDAZOLIDINE-3-YLMETHYLE.

Priorité(s) 24.04.90 JP JPA02109840

ARTICLE 2.- Ce brevet est délivré sans examen préalable de la brevetabilité
de l' invention, sans garantie du mérite de l' invention ou de l' exactitude de
la description de celle-ci et aux risques et périls du(des) demandeur(s).

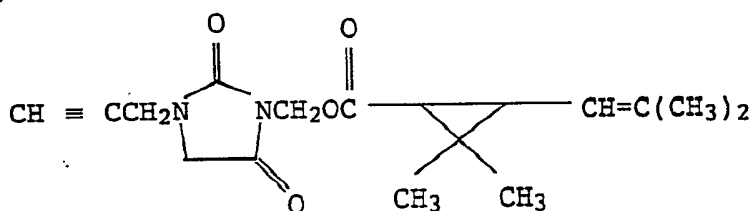
Bruxelles, le 19 Janvier 1993
PAR DELEGATION SPECIALE :


WUYTS
Directeur.

"Compositions insecticides à base de chrysanthémate de 2,4-dioxo-1-(2-propynyl)imidazolidine-3-ylméthyle".

La présente invention concerne une composition insecticide.

Le chrysanthémate de 2,4-dioxo-1-(2-propynyl)imidazolidine-3-ylméthyle de formule (ci-après composé A)



est un composé décrit dans US-A-4 176 189 et on sait qu'il est utilisable comme ingrédient actif pour des insecticides. Cependant, le composé ne présente pas d'activité insecticide suffisamment élevée quand il est utilisé seul.

Les présents inventeurs ont étudié de façon importante la manière de renforcer l'activité insecticide du composé A et ont par suite trouvé que, lorsque (b) au moins un ester d'acide carboxylique choisi dans le groupe comprenant les esters d'acides monocarboxyliques ayant de 16 à 19 atomes de carbone et les esters d'acides dicarboxyliques ayant de 16 à 19 atomes de carbone est ajouté (a) au composé A de sorte que le rapport pondéral de (a) à (b) soit de 3:1 à 1:100, l'activité insecticide du composé A est remarquablement renforcée. La présente invention résulte de cette découverte.

Selon la présente invention, il est fourni une composition insecticide comprenant :

(a) du chrysanthémate de 2,4-dioxo-1-(2-propynyl)imidazolidine-3-ylméthyle (composé A),

5 (b) au moins un composé choisi dans le groupe comprenant les esters d'acides monocarboxyliques ayant de 16 à 19 atomes de carbone et les esters d'acides dicarboxyliques ayant de 16 à 19 atomes de carbone, le rapport pondéral de (a) à (b) étant de 3:1 à 1:100, et
10 éventuellement

(c) au moins un support inerte.

Le composé A comprend divers isomères optiques et géométriques. Parmi les isomères, on peut incorporer dans la composition insecticide de la présente invention
15 un isomère présentant une activité insecticide et ses mélanges. La teneur du composé A dans la composition de la présente invention est généralement de 0,001% à 75% en poids.

Des exemples particuliers des esters d'acides monocarboxyliques ayant de 16 à 19 atomes de carbone et
20 des esters d'acides dicarboxyliques ayant de 16 à 19 atomes de carbone sont le phtalate de dibutyle, le palmitate d'isopropyle, le myristate d'isopropyle, le laurate d'hexyle, etc. Ces composés peuvent également
25 être utilisés en mélange. Un ou plusieurs composés choisis parmi eux sont généralement mélangés dans la composition de la présente invention à raison de 0,0003% à 75% en poids.

Dans la composition de la présente invention, on peut
30 incorporer un ou plusieurs autres insecticides, agents de synergie, parfums, fongicides, solvants, agents propulsifs, supports solides, etc.

Des exemples particuliers d'autres insecticides sont:

(1RS)-cis,trans-chrysanthémate de (RS)-3-allyl-2-
35 méthyl-4-oxocyclopent-2-ényle [alléthrine];

- (1RS)-cis,trans-chrysanthémate de 3,4,5,6-tétrahydro-phtalimidométhyle [tétraméthrinel];
- (1R)-cis,trans-chrysanthémate de (S)-2-méthyl-4-oxo-3-(2-propynyl)cyclopent-2-ényle [pralléthrinel];
- 5 (1RS)-cis,trans-chrysanthémate de 3-phénoxybenzyle [phénothrinel];
- (1RS)-cis,trans-chrysanthémate de 5-benzyl-3-furylméthyle [resméthrinel];
- (1R)-cis,trans-chrysanthémate de (RS)- α -cyano-3-phénoxybenzyle [cyphénothrinel];
- 10 (1RS)-cis,trans-3-(2,2-dichlorovinyl)-2,2-diméthyl-cyclopropanecarboxylate de 3-phénoxybenzyle [perméthrinel];
- (1RS)-cis,trans-3-(2,2-dichlorovinyl)-2,2-diméthyl-cyclopropanecarboxylate de (RS)- α -cyano-3-phénoxybenzyle [cyperméthrinel];
- 15 (1R)-cis-3-(2,2-dibromovinyl)-2,2-diméthylcyclopropanecarboxylate de (S)- α -cyano-3-phénoxybenzyle [deltaméthrinel];
- 20 (1RS)-cis,trans-3-(2,2-dichlorovinyl)-2,2-diméthyl-cyclopropanecarboxylate de (RS)- α -cyano-4-fluoro-3-phénoxybenzyle [cyfluthrinel];
- (1RS)-cis,trans-chrysanthémate de 5-(2-propynyl)-furfuryle [furaméthrinel];
- 25 oxyde de 2-(4-éthoxyphényle)-2-méthylpropyle et de 3-phénoxybenzyle [éthofenprox];
- phosphate de 2,2-dichlorovinyle et de diméthyle [dichlorvos];
- phosphorothioate de O,O-diméthyle et de O-(3-méthyl-4-nitrophényle) [fénitrothion];
- 30 méthylcarbamate de 2-(1-méthyléthoxy)phényle [propoxur];
- oxyde de 4-phénoxyphényle et de (RS)-2-(2-pyridyloxy)propyle [pyriproxyfen];
- 35 (2E,4E)-11-méthoxy-3,7,11-triméthyl-2,4-dodéca-diénoate d'isopropyle [méthoprène];

(2E,4E)-3,7,11-triméthyl dodéca-2,4-diène cate d'éthyle
[hydroprène];

1-(4-chlorophényl)-3-(2,6-difluorobenzoyl)urée
[diflubenzuron]; et

5 N-cyclopropyl-1,3,5-triazine-2,4,6-triamine
[cyromazine].

Des exemples particuliers des agents de synergie sont
l' α -[2-(2-butoxyéthoxy)éthoxyl-4,5-méthylènedioxy-2-
propyltoluène (butylate de pipéronyle), le N-(2-
10 éthylhexyl)-bicyclo[2,2,1]hept-5-ène-2,3-dicarboximide
(MGK-264), l'éther octachlorodipropylique (S-421), etc.

Des exemples particuliers des solvants sont l'alcool
isopropylique, le kérosène, le dodécylbenzène, etc.

Des exemples particuliers des agents de propulsion
15 sont le propane/butane, l'éther diméthylique, les gaz
Fréon® (hydrocarbures fluorés), etc.

On prépare la composition de la présente invention,
par exemple, en mélangeant une quantité prescrite de
composé A et une quantité prescrite d'au moins un ester
20 d'acide carboxylique décrit précédemment et, si
nécessaire, d'autres insecticides, agents de synergie,
parfums, fongicides, solvants, agents de propulsion,
supports solides, etc., à la température ambiante ou
sous chauffage.

25 Les insectes et les acariens contre lesquels la
composition de la présente invention ainsi préparée est
efficace sont indiqués ci-dessous:

Lépidoptères

Tinea pellionella, *Tineola bisselliella*, etc.

30 Diptères

Culex spp. comme (*Culex pipiens pallens*) et
Culex tritaeniorhynchus; *Aedes* spp. comme
Aedes aegypti; et *Aedes albopictus*; *Anopheles*
spp. comme *Anopheles sinensis* (Chironomidés);

35 Muscidés comme *Musca domestica* et *Muscina
stabulans*;

Calliphoridés; Sarcophagidés; *Fannia canicularis*; Anthomyiidés comme *Delia platura* et *Delia antiqua*; Tephritidés; Drosophilidés; Psychodidés; Simuliidés; Tabanidés; Stomoxiidés, etc.

5 Dictyoptères

Blattella germanica, *Periplaneta fuliginosa*, *Periplaneta americana*, *Periplaneta brunnea*, *Blatta orientalis*, etc.

10 Hyménoptères

Formicidés, Vespidés, Béthylidés, Tenthredinidés comme *Athalia rosae ruficornis*, etc.

Isoptères

15 *Reticulitermes speratus*, *Coptodermes formosanus*, etc.

Ixodidés

Boophilus microplus, etc.

Acariens de poussières ménagères

20 Acaridés comme *Tyrophagus putrescentiae*, Pyroalyphidés comme *Dermatophagoides farinae*, Cheylétidés comme *Chelacaropsis moorei*, Macronyssidés comme *Ornithonyssus bacoti*, etc.

25 La composition de la présente invention peut être utilisée telle quelle pour détruire les insectes nuisibles; cependant, elle est souvent utilisée sous forme de préparation comme des aérosols, des pulvérisations huileuses, etc. Dans le dernier cas, la teneur en composé A dans les aérosols ou les pulvérisations huileuses est de préférence de 0,001% à 5% en poids.

30 La présente invention est illustrée plus en détail avec référence aux exemples suivants, aux exemples comparatifs et à l'exemple d'essai; cependant, la

présente invention ne doit pas être considérée comme leur étant limitée.

Dans les exemples, les exemples comparatifs et l'exemple d'essai, les parties sont en poids.

5 Exemple 1

On mélange en chauffant (environ 40-50°C) 50,0 parties du composé A (partie acide : configuration d-trans) et 50,0 parties de myristate d'isopropyle pour obtenir une composition insecticide liquide.

10 Le tableau 1 donne la liste des compositions insecticides obtenues de la même manière que précédemment.

TABLEAU 1

		Composition (parties en poids)							
		Composé A (partie acide configuration d-trans)	Ester d'acide carboxylique						
	Myristate d'isopro- pyle		Palmitate d'isopro- pyle	Laurate d'hexyle	Phtalate de dibuty- le	Adipate de diiso- propyle	Stéarate de butyle	Acétate d'éthyle	
Exemple	1	1	99	0	0	0	0	0	0
	2	10	90	0	0	0	0	0	0
	3	50	50	0	0	0	0	0	0
	4	70	30	0	0	0	0	0	0
	5	50	0	50	0	0	0	0	0
	6	50	0	0	50	0	0	0	0
	7	50	0	0	0	50	0	0	0
Exemple comparatif	1	100	0	0	0	0	0	0	0
	2	50	0	0	0	0	50	0	0
	3	50	0	0	0	0	0	50	0
	4	50	0	0	0	0	0	0	50

Exemple 8

On dissout 0,1 partie de composé A, 0,1 partie de myristate d'isopropyle et 0,3 partie de cyphénothrine dans un mélange de 20,0 parties de dodécylbenzène et de 5 39,5 parties de kérosène. On introduit le mélange résultant dans un conteneur. On prévoit sur le conteneur une buse de pulvérisation. On comprime dans la composition insecticide par l'intermédiaire de la buse 10 40,0 parties d'un mélange propulsif de propane et de butane pour obtenir un aérosol.

Exemple 9

On dissout 1,0 partie de composé A et 1,0 partie de myristate d'isopropyle dans un mélange de 20,0 parties d'alcool isopropylique et de 28,0 parties de kérosène. 15 On introduit le mélange résultant dans un récipient. On prévoit sur le conteneur une buse de pulvérisation. On comprime dans la composition insecticide par l'intermédiaire de la buse 50,0 parties d'un mélange propulsif de propane, de butane et d'éther diméthylque 20 pour obtenir un aérosol.

Exemple 10

On dissout dans 18,0 parties de kérosène 1,0 partie de composé A et 31,0 parties de myristate d'isopropyle. On introduit le mélange résultant dans un récipient. On 25 fixe au récipient une buse de pulvérisation. On comprime dans la composition insecticide par l'intermédiaire de la buse 50,0 parties d'un mélange propulsif de propane, de butane et d'éther diméthylque pour obtenir un aérosol.

30 Exemple 11

On dissout 1,0 partie de composé A et 1,0 partie de phtalate de dibutyle dans un mélange de 2,5 parties d'alcool isopropylique et de 45,5 parties de dodécylbenzène. On introduit le mélange résultant dans 35 un récipient. On prévoit sur le récipient une buse de pulvérisation. On comprime dans la composition

insecticide par l'intermédiaire de la buse 50,0 parties d'un mélange propulsif de propane, de butane et d'éther diméthylque pour obtenir un aérosol.

Exemple d'essai

- 5 Chacune des compositions insecticides obtenues dans les exemples 1 à 7 et les exemples comparatifs 1 à 4 est diluée avec de l'acétone pour obtenir une solution contenant 0,189 g/l de composé A. On dépose 0,3 ml de la solution dans une boîte de Petri de 8,5 cm de diamètre
- 10 de telle sorte qu'une quantité de 0,0567 mg de composé A est fixée à la boîte de Petri. De ce fait, le composé A est fixé à la boîte de Petri à raison de 10 mg/m². Après séchage de la boîte de Petri par évaporation de l'acétone, on y libère 10 blattes (*Blattella germanica*).
- 15 On détermine l'effet d'abrutissement (KT50, temps nécessaire pour abrutir 50% des blattes).

Le tableau 2 montre les résultats

TABLEAU 2

		KT50 (mn) pour <i>Blattella germanica</i>
Exemple	1	0,8
	2	0,9
	3	1,0
	4	0,9
	5	1,1
	6	0,9
	7	1,2
Exemple comparatif	1	3,0
	2	2,8
	3	4,1
	4	3,3

REVENDEICATIONS

1.- Composition insecticide qui contient :

(a) du chrysanthémate de 2,4-dioxo-1-(2-propynyl)imidazolidine-3-ylméthyle,

(b) au moins un ester d'acide carboxylique choisi
5 dans le groupe comprenant les esters d'acides monocarboxyliques ayant de 16 à 19 atomes de carbone et les esters d'acides dicarboxyliques ayant de 16 à 19 atomes de carbone, et éventuellement

c) au moins un support inerte,

10 le rapport pondéral de (a) à (b) étant de 3:1 à 1:100.

2.- Composition insecticide selon la revendication 1, dans laquelle l'ester d'acide carboxylique est choisi dans le groupe comprenant le phtalate de dibutyle, le
15 palmitate d'isopropyle, le myristate d'isopropyle et le laurate d'hexyle.

3.- Composition insecticide selon la revendication 1, dans laquelle l'ester d'acide carboxylique est le phtalate de dibutyle.

20 4.- Composition insecticide selon la revendication 1, dans laquelle l'ester d'acide carboxylique est le palmitate d'isopropyle.

5.- Composition insecticide selon la revendication 1, dans laquelle l'ester d'acide carboxylique est le
25 myristate d'isopropyle.

6.- Composition insecticide selon la revendication 1, dans laquelle l'ester d'acide carboxylique est le laurate d'hexyle.

7.- Procédé de lutte contre des insectes, qui consiste :

à appliquer aux insectes une composition insecticide comprenant:

5 (a) du chrysanthémate de 2,4-dioxo-1-(2-propynyl)imidazolidine-3-ylméthyle et

(b) au moins un ester d'acide carboxylique choisi dans le groupe comprenant les esters d'acides monocarboxyliques ayant de 16 à 19 atomes de carbone et
10 les esters d'acides dicarboxyliques ayant de 16 à 19 atomes de carbone,

le rapport pondéral de (a) à (b) étant de 3:1 à 1:100.

8.- Procédé de préparation d'une composition
15 insecticide qui consiste:

à mélanger sous chauffage

(a) du chrysanthémate de 2,4-dioxo-1-(2-propynyl)imidazolidine-3-ylméthyle et

(b) au moins un ester carboxylique choisi dans le
20 groupe comprenant les esters d'acides monocarboxyliques ayant de 16 à 19 atomes de carbone et les esters d'acides dicarboxyliques ayant de 16 à 19 atomes de carbone,

dans un rapport pondéral de (a) à (b) de 3:1 à 1:100.

25 9.- Procédé de préparation d'un aérosol insecticide, qui consiste :

à introduire une composition insecticide comprenant :

(a) du chrysanthémate de 2,4-dioxo-1-(2-propynyl)imidazolidine-3-ylméthyle et

30 (b) au moins un ester carboxylique choisi dans le groupe comprenant les esters d'acides monocarboxyliques ayant de 16 à 19 atomes de carbone et les esters d'acides dicarboxyliques ayant de 16 à 19 atomes de carbone, avec un rapport pondéral de (a) à (b) de 3:1 à
35 1:100, dans un récipient, à monter une buse de pulvérisation sur le récipient, et à comprimer un agent

propulsif par l'intermédiaire de la buse dans la composition insecticide contenue dans le récipient.



Office européen
des brevets

RAPPORT DE RECHERCHE

établi en vertu de l'article 21 § 1 et 2
de la loi belge sur les brevets d'invention
du 28 mars 1984

Numero de la demande
nationale

BE 9100352
BO 2931

DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS			
Catégorie	Citation du document avec indication, en cas de besoin, des parties pertinentes	Revendication concernée	CLASSEMENT DE LA DEMANDE (Int. Cl.5)
Y	EP-A-0 128 351 (BAYER) * Page 1, lignes 1-6; page 2, ligne 9 - page 6, ligne 17; page 7, lignes 8-17; page 11, ligne 7 - page 11, ligne 25; revendications * ---	1,2,5,7 -9	A 01 N 53/00 // (A 01 N 53/00 A 01 N 37:10 A 01 N 37:04 A 01 N 37:02)
Y	DE-A-2 826 864 (SUMITOMO) * Revendication 4; page 4, lignes 5-10; page 17, exemple 7; page 24, lignes 14-25 * & US-A-4 176 189 (Cat. D) ---	1-9	
Y	DE-A-2 738 878 (G. BERNABE) * Revendications 1,3,8; page 4, lignes 1-10; page 6, lignes 8-23; page 7, ligne 9 * ---	3	
Y	EP-A-0 045 424 (BAYER) * Page 1, lignes 1-4; page 2, paragraphe 4; page 3, paragraphe 6; page 5, paragraphes 1,5; page 9, paragraphe 3 * ---	4,6	
			DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHES (Int. Cl.5)
A	GB-A-2 002 635 (FUMAKILLA) * Page 1, lignes 3-8; page 1, ligne 18 - page 2, ligne 49; revendications 1,2 * ---	1-9	A 01 N
A	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 81, no. 3, 22 juillet 1974, page 95, résumé no. 10477x, Columbus, Ohio, US; & JP-A-73 99 337 (SUMITOMO) 15-12-1973 * Résumé * ---	1-9	
A	EP-A-0 148 625 (SUMITOMO) * Page 1, lignes 1-7; page 20, exemple 4 * --- -/-	1-9	
Date d'achèvement de la recherche		Examineur	
26-08-1991		LAMERS W.	
CATEGORIE DES DOCUMENTS CITES			
X : particulièrement pertinent à lui seul		T : théorie ou principe à la base de l'invention	
Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un autre document de la même catégorie		E : document de brevet antérieur, mais publié à la date de dépôt ou après cette date	
A : arrière-plan technologique		D : cité dans la demande	
O : divulgation non-écrite		L : cité pour d'autres raisons	
P : document intercalaire		& : membre de la même famille, document correspondant	

ABSENCE D'UNITE D'INVENTION

La présente demande ne satisfait pas à l'exigence relative à l'unité d'invention et concerne plusieurs inventions ou pluralités d'inventions, à savoir

1. Revendications :

2. Revendications :

3. Revendications :

4. Revendications :

Le présent rapport de recherche a été établi de façon complète pour les parties de la demande qui se rapportent à l'invention ou pluralité d'inventions mentionnée dans les revendications:

ETENDUE DE LA RECHERCHE

Compte tenu des documents considérés comme pertinents, le présent rapport de recherche a été établi de façon complète pour les parties de la demande qui se rapportent à l'invention ou pluralité d'inventions mentionnée en premier lieu dans les revendications, à savoir les revendications :

Les éléments figurant dans les

1. Revendications :

2. Revendications :

3. Revendications :

4. Revendications :

n'ont pas été pris en considération que dans le cadre de la recherche relative aux caractéristiques de l'invention ou de la pluralité d'inventions mentionnée en premier lieu dans les revendications



Office européen
des brevets

RAPPORT DE RECHERCHE
établi en vertu de l'article 21 § 1 et 2
de la loi belge sur les brevets d'invention
du 28 mars 1984

Numero de la demande
nationale
Page 2

BE 9100352
BO 2931

DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS			
Catégorie	Citation du document avec indication, en cas de besoin, des parties pertinentes	Revendication concernée	CLASSEMENT DE LA DEMANDE (Int. Cl.5)
A	FR-A-2 373 230 (SUMITOMO) * Page 1, ligne 1 - page 6, ligne 11; revendication 1 * -----	9	
			DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHES (Int. Cl.5)
		Date d'achèvement de la recherche 26-08-1991	Examineur LAMERS W.
CATEGORIE DES DOCUMENTS CITES X : particulièrement pertinent à lui seul Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un autre document de la même catégorie A : arrière-plan technologique O : divulgation non-écrite P : document intercalaire		T : théorie ou principe à la base de l'invention E : document de brevet antérieur, mais publié à la date de dépôt ou après cette date D : cité dans la demande L : cité pour d'autres raisons & : membre de la même famille, document correspondant	

EPO FORM 1503 01.82 (P0448)