

19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 379 928**

51 Int. Cl.:  
**C07D 493/04** (2006.01)  
**A01N 43/90** (2006.01)  
**A01P 7/04** (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

- 96 Número de solicitud europea: **07849939 .9**  
96 Fecha de presentación: **30.11.2007**  
97 Número de publicación de la solicitud: **2107060**  
97 Fecha de publicación de la solicitud: **07.10.2009**

54 Título: **Agente de control de plagas**

30 Prioridad:  
**30.11.2006 JP 2006324390**

45 Fecha de publicación de la mención BOPI:  
**07.05.2012**

45 Fecha de la publicación del folleto de la patente:  
**07.05.2012**

73 Titular/es:  
**MEIJI SEIKA KAISHA LTD.  
4-16, KYOBASHI 2-CHOME CHUO-KU  
TOKYO 104-8002, JP y  
THE KITASATO INSTITUTE (FORMERLY KNOWN  
AS SCHOOL JURIDICAL PERSON KITASATO  
GAKUEN)**

72 Inventor/es:  
**GOTO, Kimihiko;  
HORIKOSHI, Ryo;  
OYAMA, Kazuhiko;  
OMURA, Satoshi y  
SUNAZUKA, Toshiaki**

74 Agente/Representante:  
**Arias Sanz, Juan**

ES 2 379 928 T3

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín europeo de patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre concesión de Patentes Europeas).

**DESCRIPCIÓN**

Agente de control de plagas.

## 5 ANTECEDENTES DE LA INVENCION

Campo de la invención

10 La presente invención se refiere a un nuevo derivado de piriropeno y a una composición para uso como agente de control de plagas que comprende el derivado como principio activo.

Técnica anterior

15 El piriropeno A tiene actividad inhibitoria contra ACAT (acil-CoA:colesterol-aciltransferasa) y se espera que se administre, por ejemplo, para el tratamiento de enfermedades inducidas por la acumulación de colesterol, como se describe en la publicación de patente japonesa H04-360.895 A y en Journal of Antibiotics (1993), 46(7), 1168-9.

20 Además, algunos análogos y derivados de piriropeno y la actividad inhibitoria de ACAT de estos se describen en Journal of Synthetic Organic Chemistry, Japón (1998), vol. 56, n° 6, págs. 478-488, el documento WO 94/09417, la publicación de patente japonesa H08-259.569 A y la publicación de patente japonesa H08-269.062 A. Sin embargo, estos documentos no desvelan el compuesto que porta un grupo ciclopropilcarbonilo en las posiciones 1, 7 ó 11 como grupo aciloxi.

25 Además, en Applied and Environmental Microbiology (1995), 61(12), 4429-35, se describe que piriropeno A tiene actividad insecticida contra larvas de *Helicoverpa zea*. Además, el documento WO 2004/060065 describe que piriropeno A tiene actividad insecticida contra larvas de *Plutella xylostella* L. y contra *Tenebrio molitor* L. Sin embargo, en estos documentos no hay una descripción específica de la actividad insecticida de piriropeno A contra otras plagas.

30 Además, ninguno de los documentos anteriores describe la actividad insecticida de análogos y derivados de piriropeno.

35 Según el conocimiento de los presentes inventores, no existe ningún documento que desvele derivados de piriropeno con un grupo ciclopropilcarbonilo como se menciona anteriormente.

Hasta ahora se han descrito y se han usado como agentes de control de plagas muchos compuestos con actividad insecticida. Sin embargo, la presencia de especies de insectos que son resistentes o que apenas pueden controlarse con estos compuestos ha planteado un problema. Por consiguiente, todavía se deseaba el desarrollo de un nuevo agente de control de plagas con una excelente actividad insecticida.

## 40 RESUMEN DE LA INVENCION

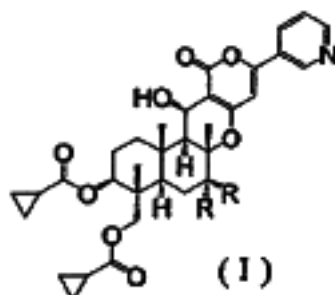
45 Hemos encontrado ahora un nuevo derivado de piriropeno que tiene una actividad insecticida significativa. La presente invención se basa en este resultado.

Por consiguiente, un objetivo de la presente invención es proporcionar un nuevo derivado de piriropeno con una actividad insecticida significativa.

50 Por consiguiente, otro objetivo de la presente invención es proporcionar una composición como agente de control de plagas que pueda mostrar de manera fiable el efecto contemplado y pueda usarse con seguridad y que comprenda los nuevos derivados de piriropeno o una sal de estos aceptable desde el punto de vista agrícola u hortícola y un vehículo aceptable desde el punto de vista agrícola u hortícola.

55 El nuevo derivado de piriropeno según la presente invención es un compuesto representado por la fórmula (I) o una sal de este aceptable desde el punto de vista agrícola u hortícola.

[Fórmula química 1]



en que las dos R representan un átomo de hidrógeno, respectivamente, o las dos R pueden combinarse entre sí para representar un grupo oxo.

Además, una composición que puede usarse como agente de control de plagas según la presente invención comprende los nuevos derivados de piriropeno representados por la fórmula (I) anterior o una sal de estos aceptable desde el punto de vista agrícola u hortícola y un vehículo aceptable desde el punto de vista agrícola u hortícola.

Además, otro objetivo de la presente invención es proporcionar un procedimiento para el control de una plaga. El procedimiento según la presente invención comprende la aplicación a una planta o al suelo de una cantidad eficaz del compuesto representado por la fórmula (I) anterior o de una sal de este aceptable desde el punto de vista agrícola u hortícola. Según otro aspecto de la presente invención, se proporciona el uso del compuesto representado por la fórmula (I) anterior o de una sal de este aceptable desde el punto de vista agrícola u hortícola como agente de control de plagas.

#### DESCRIPCIÓN DETALLADA DE LA INVENCION

Las sales de los compuestos representados por la fórmula (I) aceptables desde el punto de vista agrícola u hortícola incluyen, por ejemplo, sales de adición de ácido como clorhidratos, nitratos, sulfatos, fosfatos o acetatos.

Los compuestos representados por la fórmula (I) pueden sintetizarse a partir de piriropeno A como material de partida por el procedimiento descrito en la publicación de patente japonesa H08-259.569 A, la publicación de patente japonesa H08-269.062 A o en Journal of Antibiotics (1997), 50(3), págs. 229-36.

El piriropeno A como material de partida se produce por el procedimiento descrito en Journal of Synthetic Organic Chemistry, Japón (1998), vol. 56, n° 6, págs. 478-488 o en el documento WO 94/09417.

El compuesto representado por la fórmula (I) según la presente invención tiene una excelente actividad insecticida contra varias especies de insectos. Por lo tanto, según la presente invención, se proporciona una composición que puede usarse como agente de control de plagas que comprende el compuesto representado por la fórmula (I) anterior o una sal de este aceptable desde el punto de vista agrícola u hortícola y un vehículo aceptable desde el punto de vista agrícola u hortícola. La composición según la presente invención puede prepararse mediante la mezcla del compuesto representado por la fórmula (I) anterior como principio activo con un vehículo aceptable desde el punto de vista agrícola u hortícola.

Las especies de insectos contra las cuales el compuesto de la fórmula (I) según la presente invención tiene efecto de control incluyen: plagas de lepidóteros, por ejemplo *Spodoptera litura*, *Mamestra brassicae*, *Pseudaletia separata*, la oruga verde, *Plutella xylostella*, *Spodoptera exigua*, *Chilo suppressalis*, *Cnaphalocrocis medinalis*, tortricidos, carposinidos, lionétidos, limántridos, plagas que pertenecen al género *Agrotis spp.*, plagas que pertenecen al género *Helicoverpa spp.* y plagas que pertenecen al género *Heliothis spp.*; plagas de hemípteros, por ejemplo afidoideos, que incluyen afidos, adélgidos y filoxéridos como *Myzus persicae*, *Aphis gossypii*, *Aphis fabae*, *Aphis maidis* (pulgón de la hoja del maíz), *Acyrtosiphon pisum*, *Aulacorthum solani*, *Aphis craccivora*, *Macrosiphum euphorbiae*, *Macrosiphum avenae*, *Metopolophium dirhodum*, *Rhopalosiphum padi*, *Schizaphis graminum*, *Brevicoryne brassicae*, *Lipaphis erysimi*, *Aphis citricola*, el pulgón rosado de la manzana, *Eriosoma lanigerum*, *Toxoptera aurantii* y *Toxoptera citricidus*; deltocefálicos como *Nephotettix cincticeps*; delfácidos como *Laodelphax striatellus*, *Nilaparvata lugens* y *Sogatella furcifera*; pentatómidos como *Eysacoris ventralis*, *Nezara viridula* y *Trigonotylus caelestialium*; aleiródidos como *Bemisia argentifolii*, *Bemisia tabaci* y *Trialeurodes vaporariorum*; diaspididos, margaródidos, ortézidos, aclerdios, dactilópodos, kérridos, pseudocócidos, cócidos, eriocócidos, asterolecanidos, beesónidos, lecanodiaspididos o cercocócidos, como *Pseudococcus comstocki* y *Planococcus citri* Risso; plagas de coleópteros,

por ejemplo *Lissorhoptrus oryzophilus*, *Callosobruchus chienensis*, *Tenebrio molitor*, *Diabrotica virgifera virgifera*, *Diabrotica undecimipunctata howardi*, *Anomala cuprea*, *Anomala rufocuprea*, *Phyllotreta striolata*, *Aulacophora femoralis*, *Leptinotarsa decemlineata*, *Oulema oryzae*, carposínicos y cerambícidos; ácaros, por ejemplo *Tetranychus urticae*, *Tetranychus kanzawai* y *Panonychus citri*; plagas de himenópteros, por ejemplo tentredínidos; plagas de ortópteros, por ejemplo acrídidos; plagas de dípteros, por ejemplo múscidos y agromícidos; plagas de tisanópteros, por ejemplo *Thrips palmi* y *Frankliniella occidentalis*; nematodos fitoparásitos, por ejemplo *Meloidogyne hapla*, *Pratylenchus spp.*, *Aphelenchoides besseyi* y *Bursaphelenchus xylophilus*, y parásitos de animales, por ejemplo sifonápteros, anopluros, ácaros como *Boophilus microplus*, *Haemaphysalis longicornis*, *Rhipicephalus sanguineus* y *Scarcoptes scabiei*. Se prefieren las plagas de hemípteros.

Las plagas de hemípteros incluyen afidoideos como afídidos, adélgidos y filoxéridos, preferentemente en particular afídidos, y pentatómidos; y cocoideos como diaspídidos, margaródidos, ortézidos, acleridios, dactilópodos, kérridos, pseudocócidos, cócidos, eriocócidos, asterolecánidos, beesónidos, lecanodiaspídidos y cerocócidos. Los más preferidos son *Myzus persicae*, *Aphis gossypii*, *Trigonotylus caelestialium* y *Pseudococcus comstocki*.

Mientras que el compuesto representado por la fórmula (I) puede usarse de por sí como un agente de control de plagas, el compuesto de la fórmula (I) puede prescribirse en cualquier formulación adecuada, como concentrados emulsionables, formulaciones EW, formulaciones líquidas, suspensiones, polvos mojables, polvos granulados mojables, polvo, polvo DL, gránulos de polvo, gránulos, comprimidos, disoluciones oleosas, aerosoles, floables, floables secos o agentes microencapsulados, mediante el uso de un vehículo adecuado como vehículos sólidos, vehículos líquidos, vehículos gaseosos, tensioactivos, dispersantes y/u otros adyuvantes para formulaciones y similares.

Los vehículos sólidos que pueden usarse en este caso incluyen, por ejemplo, talco, bentonita, arcilla, caolín, tierra de diatomeas, vermiculita, carbón blanco y carbonato de calcio.

Algunos ejemplos de vehículos líquidos incluyen: alcoholes como metanol, n-hexanol y etilenglicol; cetonas como acetona, metilacetona y ciclohexanona; hidrocarburos alifáticos como n-hexano, querosina y queroseno; hidrocarburos aromáticos como tolueno, xileno y metilnaftaleno; éteres como dietiléter, dioxano y tetrahidrofurano, ésteres como acetato de etilo; nitrilos como acetonitrilo e isobutironitrilo; amidas de ácido como dimetilformamida y dimetilacetamida; aceites vegetales como aceite de soja y aceite de semillas de algodón; dimetilsulfóxido y agua.

Los vehículos gaseosos incluyen, por ejemplo, GLP, aire, nitrógeno, dióxido de carbono y dimetiléter.

Los tensioactivos o dispersantes que pueden usarse, por ejemplo, para emulsionar, dispersar o extender incluyen, por ejemplo, ésteres alquilsulfónicos, sales de ácidos alquil(aril)sulfónicos, alquil(aril)éteres de polioxilalquileo, ésteres de polioles y sales de ácidos lignosulfónicos. Los adyuvantes usados para mejorar las propiedades de las formulaciones incluyen, por ejemplo, carboximetilcelulosa, goma arábiga, polietilenglicol y estearato de calcio.

Los vehículos, tensioactivos, dispersantes y adyuvantes anteriores pueden usarse en solitario o en combinación según se necesite.

El contenido del principio activo en la formulación no está particularmente limitado. Sin embargo, en general el contenido del principio activo es del 1 al 75% en peso para concentrados emulsionables, del 0,3 al 25% en peso para el polvo, del 1 al 90% en peso para polvos mojables y del 0,5 al 10% en peso para gránulos.

El compuesto representado por la fórmula (I) o una sal de este aceptable desde el punto de vista agrícola u hortícola y las formulaciones anteriores que los comprenden pueden aplicarse a las plantas o al suelo como tales o después de su dilución. Por lo tanto, según otro aspecto de la presente invención, se proporciona un procedimiento para el control de plagas que comprende la aplicación a una planta o al suelo de una cantidad eficaz del compuesto representado por la fórmula (I) anterior o de una sal de este aceptable desde el punto de vista agrícola u hortícola.

Los procedimientos preferidos que pueden usarse para la aplicación del compuesto o la formulación a las plantas o al suelo incluyen tratamientos de extensión, tratamientos del suelo, tratamientos de superficie y tratamientos de fumigación. Los tratamientos de extensión incluyen, por ejemplo, extensión, pulverización, nebulización, atomización, aplicación de gránulos y aplicación por inmersión. Los tratamientos del suelo incluyen, por ejemplo, afusión del suelo o mezclado con el suelo. Algunos ejemplos de tratamientos de superficie incluyen, por ejemplo, revestimiento, revestimiento de polvo y cobertura. Los tratamientos de fumigación incluyen, por ejemplo, la cobertura del suelo con una lámina de plástico después de la inyección en el suelo. Por consiguiente, el procedimiento de control de la presente invención comprende un procedimiento en el que el compuesto representado por la fórmula (I) o una formulación que comprende dicho compuesto se aplica por fumigación en un espacio sellado.

La composición como agente de control de plagas según la presente invención puede usarse como mezcla o en combinación, por ejemplo, con otros insecticidas, fungicidas, acaricidas, herbicidas, fitorreguladores del crecimiento

o fertilizantes. Los agentes que pueden mezclarse o usarse en combinación incluyen aquellos descritos, por ejemplo, en *The Pesticide Manual*, 13<sup>a</sup>. edición, publicado por el British Crop Protection Council y en el SHIBUYA INDEX, 10<sup>a</sup>. edición, 2005, publicado por SHIBUYA INDEX RESEARCH GROUP. Más específicamente, los insecticidas que pueden usarse en este caso incluyen, por ejemplo, compuestos de ésteres organofosforados como acefato, diclorvós, EPN, fenitrotión, fenamifós, protiofós, profenofós, piraclófós, clorpirifós-metilo y diazinona; compuestos de carbamato como metomilo, tiodicarb, aldicarb, oxamilo, propoxur, carbarilo, fenobucarb, etiofencarb, fenotiocarb, pirimicarb, carbofurano y benfuracarb; derivados de la nereistoxina como cartap y tiociclam; compuestos organoclorados como dicofol y tetradifón; compuestos piretroides como permetrina, teflutrina, cipermetrina, deltametrina, cihalotrina, fenvalerato, fluvalinato, etofenprox y silafluofeno; compuestos de benzilurea como diflubenzurón, teflubenzurón, flufenoxurón y clorfluazurón; compuestos análogos de hormonas juveniles como metopreno y compuestos análogos de hormonas de la muda como cromafenozida. Otros compuestos que pueden usarse en este caso incluyen buprofezina, hexitiazox, amitraz, clordimeformo, piridabeno, fenpiroximato, pirimidifeno, tebufenpirad, fluacirpirim, acequinocilo, ciflumetofeno, flubendiamida, etiprol, fipronil, etoxazol, imidacloprid, clotianidina, pirmetrozina, bifenazato, espirodiclofeno, espiromesifeno, flonicamida, clorfenapir, piriproxifeno, indoxacarb, piridalilo o espinosad, avermectina, milbemicina, compuestos organometálicos, compuestos de dinitrógeno, compuestos organosulfurados, compuestos de urea, compuestos de triacina, compuestos de hidracina. La composición según la presente invención puede usarse también como mezcla o en combinación con plaguicidas microbianos como formulaciones de BT y agentes víricos entomopatógenos.

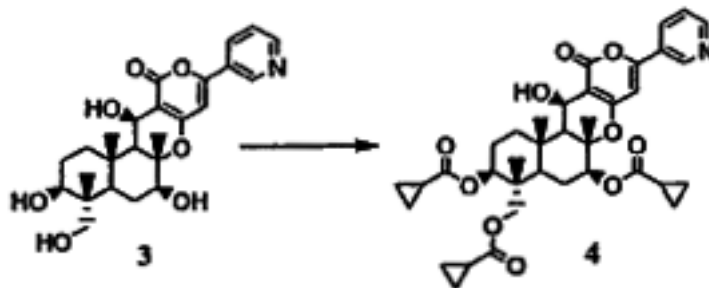
Los fungicidas que pueden usarse en este caso incluyen, por ejemplo, compuestos de estrobilurina como azoxistrobina, cresoxima-metilo y trifloxistrobina; compuestos de anilinoimidina como mepanipirima, pirimetanilo y ciprodinilo; compuestos de azol como triadimefón, bitertanol, triflumizol, etaconazol, propiconazol, penconazol, flusilazol, miclobutanilo, ciproconazol, tebuconazol, hexaconazol, procloraz y simeconazol; compuestos de quinoxalina como quinometionato; compuestos de ditiocarbamato como maneb, zineb, mancozeb, policarbamato y propineb; compuestos de fenilcarbamato como dietofencarb; compuestos organoclorados como clorotalonilo y quintoceno; compuestos de bencimidazol como benomilo, tiofanato de metilo y carbendazol; compuestos de fenilamida como metalaxilo, oxadixilo, ofurace, benalaxilo, furalaxilo y ciprofuram; compuestos de ácido sulfénico como diclofluanida; compuestos de cobre como hidróxido de cobre y oxina de cobre; compuestos de isoxazol como hidroxisoxazol; compuestos organofosforados como fosetil de aluminio y tolclofós-metilo; compuestos de *N*-halógenotioalquilo como captán, captafol y folpet; compuestos de dicarboximida como procimidona, iprodiona y vinclozolina; compuestos de benzanilida como flutolanilo y mepronilo; compuestos de morfolina como fenpropimorfo y dimetomorfo; compuestos de organoestaño como hidróxido de fentina y acetato de fentina; compuestos de cianopirrol como fludioxonilo y fenpiclonilo. Otros compuestos que pueden usarse en este caso incluyen ftalida, fluazinam, cimoxanilo, triforina, pirifenox, fenarimol, fenpropidina, pencicurrón, ciazofamida, iprovalicarb y bentiavalicarb-isopropilo y similares.

#### EJEMPLOS

La presente invención se ilustra adicionalmente mediante los ejemplos siguientes, con los que no se pretende limitar la invención.

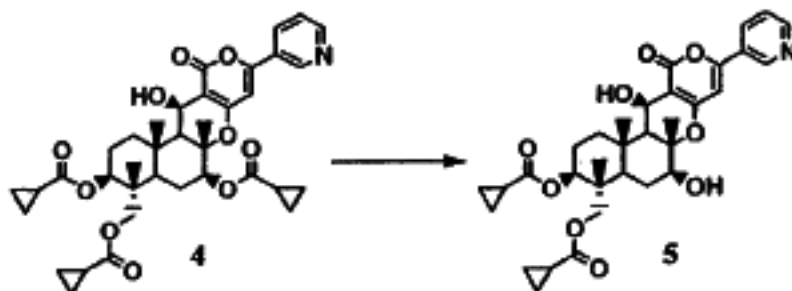
#### Ejemplo de síntesis 1: compuesto 1

[Fórmula química 2]



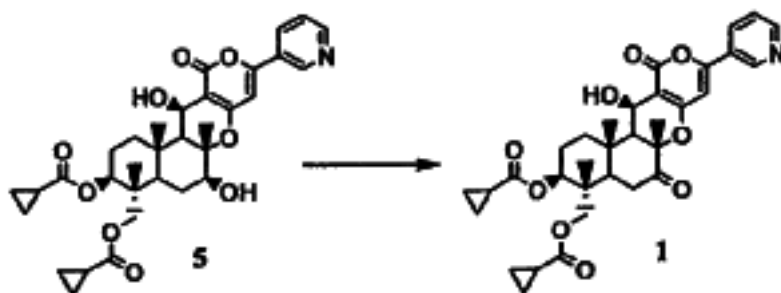
El compuesto 3 (1,12 g), sintetizado por el procedimiento descrito en la publicación de patente japonesa H08-259.569 A, y ácido ciclopropanocarboxílico (3,80 g) se disolvieron en *N,N*-dimetilformamida anhidra (10 ml) y a la disolución se añadió clorhidrato de 1-etil-3-(3-dimetilaminopropil)carbodiimida (4,70 g) y 4-(dimetilamino)piridina (300 mg). La disolución de reacción se agitó a temperatura ambiente durante 5 horas y 10 minutos y después se vertió en agua, a lo que siguió una extracción con acetato de etilo. La fase de acetato de etilo se lavó con salmuera saturada y se secó sobre sulfato de magnesio anhidro y el disolvente se eliminó por evaporación a presión reducida para dar un producto crudo. El producto crudo se purificó por cromatografía en gel de sílice (Mega Bond Elut (Varian), acetona:hexano = 1:1) para dar el compuesto 4 (1,54 g).

[Fórmula química 3]



El compuesto 4 (1,07 g) se disolvió en una disolución acuosa de metanol al 80%. A la disolución se le añadió 1,8-diazabicyclo[5.4.0]-undeca-7-eno (271 mg) y la mezcla se agitó a temperatura ambiente durante 24,5 horas. A la mezcla de reacción se le añadió ácido acético para parar la reacción y el disolvente se eliminó por evaporación a presión reducida. Se añadió agua al cristal precipitado y a continuación se realizó una extracción con cloroformo. La fase de cloroformo se lavó con salmuera saturada y se secó sobre sulfato de magnesio anhidro y el disolvente se eliminó por evaporación a presión reducida para dar un producto crudo del compuesto 5. El producto crudo se purificó por cromatografía en gel de sílice (Mega Bond Elut (Varian), acetona:hexano = 1:1) para dar el compuesto 5 (233 mg).

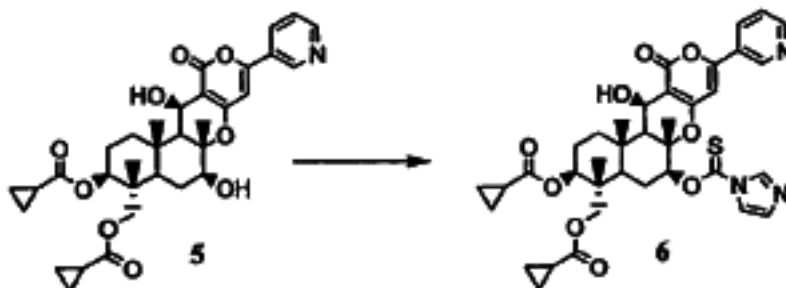
[Fórmula química 4]



El compuesto 5 (20 mg) se disolvió en diclorometano (1 ml). A la disolución se le añadió periodinano de Dess-Martin (21 mg) a 0°C y la mezcla se agitó durante 2 horas y 40 minutos. A la disolución se le añadió una disolución de tiosulfato de sodio saturada y a continuación se realizó una extracción con cloroformo. La fase de cloroformo se lavó con salmuera saturada y se secó sobre sulfato de magnesio anhidro y el disolvente se eliminó por evaporación a presión reducida para dar un producto crudo. El producto crudo se purificó por cromatografía preparativa en capa fina (gel de sílice Merck 60 F 0,5 mm, acetona:hexano = 1:1) para dar el compuesto 1 (5,4 mg).

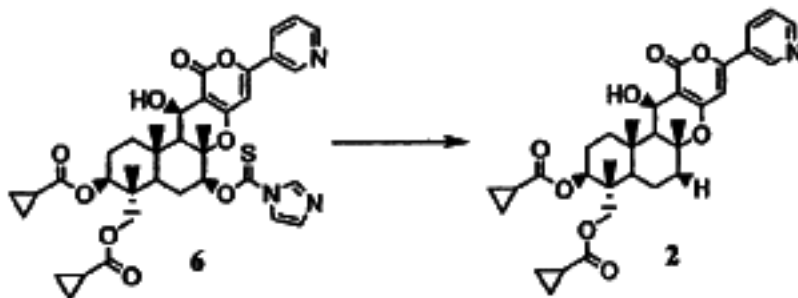
#### Ejemplo de síntesis 2: compuesto 2

[Fórmula química 5]



El compuesto 5 (50 mg) preparado en el ejemplo de síntesis 1 se disolvió en tolueno (3 ml). A la disolución se le añadió 1,1'-tiocarbonilimidazol (90 mg) a temperatura ambiente y la mezcla se calentó a reflujo durante 2,5 horas. La mezcla se enfrió a temperatura ambiente, se añadió agua a la disolución y a continuación se realizó una extracción con acetato de etilo. La fase de acetato de etilo se lavó con salmuera saturada y se secó sobre sulfato de magnesio anhidro y el disolvente se eliminó por evaporación a presión reducida para dar un producto crudo. El producto crudo se purificó por cromatografía preparativa en capa fina (gel de sílice Merck 60 F 0,5 mm, acetona:hexano = 1:1) para dar el compuesto 6 (41,1 mg).

[Fórmula química 6]



El compuesto 6 (41 mg) se disolvió en hidruro de tri-n-butilestaño (20 mg) se añadió a la disolución a temperatura ambiente y la mezcla se calentó a reflujo durante 2,5 horas. La mezcla se enfrió a temperatura ambiente, se añadió agua a la disolución y a continuación se realizó una extracción con acetato de etilo. La fase de acetato de etilo se lavó con salmuera saturada y se secó sobre sulfato de magnesio anhidro y el disolvente se eliminó por evaporación a presión reducida para dar un producto crudo. El producto crudo se purificó por cromatografía preparativa en capa fina (gel de sílice Merck 60 F 0,5 mm, acetona:hexano = 1:1) para dar el compuesto 2 (3,5 mg).

La tabla 1 a continuación muestra los datos de RMN  $^1\text{H}$  y los datos de espectrometría de masas de los compuestos 1 y 2.

Tabla 1

Compuesto n°	Disolvente	Datos de RMN	Análisis de masas	
		RMN $^1\text{H}$ $\delta$ (ppm)	Procedimiento	Datos
1	$\text{CDCl}_3$	0,83-1,00 (8H, m), 0,96 (3H, s), 1,44 (1H, m), 1,53-1,61 (2H, m), 1,63 (3H, s), 1,76 (1H, d, J = 3,7 Hz), 1,81 (3H, s), 1,87 (2H, m), 1,94-1,97 (1H, m), 2,21 (1H, m), 2,53 (1H, dd, J = 2,6, 14,9 Hz), 2,78 (1H, t, J = 14,9 Hz), 2,91 (1H, d, J = 1,5 Hz), 3,66 (1H, d, J = 12,0 Hz), 3,84 (1H, d, J = 12,0 Hz), 4,82 (1H, dd, J = 4,8, 11,7 Hz), 5,06 (1H, m), 6,71 (1H, s), 7,41 (1H, dd, J = 4,8, 8,0 Hz), 8,09 (1H, dt, J = 1,7, 8,0 Hz), 8,70 (1H, dd, J = 1,7, 4,8 Hz), 9,02 (1H, d, J = 1,7 Hz)	ESI	592 (M+H) <sup>+</sup>
2	$\text{CDCl}_3$	0,84-1,00 (8H, m), 0,90 (3H, s), 1,12-1,16 (1H, m), 1,25 (1H, s), 1,35-1,46 (1H, m), 1,41 (3H, s), 1,56-1,70 (5H, m), 1,66 (3H, s), 1,78-1,89 (2H, m), 2,12-2,17 (2H, m), 2,82 (1H, d, J = 1,4 Hz), 3,69 (1H, d, J = 11,9 Hz), 3,91 (1H, d, J = 11,9 Hz), 4,83 (1H, dd, J = 5,1, 11,5 Hz), 4,99 (1H, m), 6,46 (1H, s), 7,42 (1H, m), 8,11 (1H, dt, J = 1,7, 8,0 Hz), 8,69 (1H, m), 9,01 (1H, m)	ESI	578 (M+H) <sup>+</sup>

#### Preparación del ejemplo 1: polvos mojables

Compuesto 1	30% en peso
Arcilla	30% en peso
Tierra de diatomeas	35% en peso
Lignosulfonato de calcio	4% en peso
Laurilsulfato de sodio	1% en peso

Los ingredientes anteriores se mezclaron homogéneamente entre sí y la mezcla se molió para preparar polvos mojables.

#### Preparación del ejemplo 2: polvo

Compuesto 1	2% en peso
Arcilla	60% en peso
Talco	37% en peso
Estearato de calcio	1% en peso

Los ingredientes anteriores se mezclaron homogéneamente entre sí para preparar un polvo.

Preparación del ejemplo 3: concentrado emulsionable

5	Compuesto 1	20% en peso
	<i>N,N</i> -dimetilformamida	20% en peso
	Solvesso 150 (Exxon Mobil Corporation)	50% en peso
	Alquiariléter de polioxietileno	10% en peso

10 Los ingredientes anteriores se mezclaron homogéneamente y se disolvieron para preparar un concentrado emulsionable.

Preparación del ejemplo 4: gránulos

15	Compuesto 1	5% en peso
	Bentonita	40% en peso
	Talco	10% en peso
	Arcilla	43% en peso
20	Lignosulfonato de calcio	2% en peso

Los ingredientes anteriores se molieron homogéneamente y se mezclaron homogéneamente entre sí. Se añadió agua a la mezcla y a continuación esta se amasó a fondo. Después, el producto amasado se granuló y secó para preparar gránulos.

25 Preparación del ejemplo 5: floables

	Compuesto 1	25% en peso
	Étersulfato de POE y poliestirilfenilo	5% en peso
	Propilenglicol	6% en peso
30	Bentonita	1% en peso
	Disolución acuosa de goma de xantano al 1%	3% en peso
	PRONAL EX300 (Toho Chemical Industry Co., Ltd.)	0,05% en peso
35	ADDAC 827 (Toho Chemical Industry Co., Ltd.)	0,02% en peso
	Agua	hasta el 100% en peso

40 Todos los ingredientes anteriores con excepción de la disolución acuosa de goma de xantano al 1% y una cantidad adecuada de agua se mezclaron previamente entre sí y la mezcla se molió después mediante un molino de molienda en húmedo. A continuación, la disolución acuosa de goma de xantano al 1% y el agua restante se añadieron al producto molido para preparar el 100% en peso de floables.

45 Ejemplo de prueba 1: efecto plaguicida contra *Myzus persicae*

Un disco de hoja con un diámetro de 2,8 cm se cortó de una col cultivada en un tiesto y se colocó en una placa de Petri de 5,0 cm. Cuatro áfidos adultos de la especie *Myzus persicae* se liberaron en la placa. Un día después de la liberación de los áfidos adultos, estos se retiraron. El número de larvas en el primer estadio nacidas en el disco de hoja se ajustó a 10 y sobre el disco de hoja de col se extendió una disolución de prueba ajustada a una concentración predeterminada mediante la adición de una disolución acuosa de acetona al 50% (adición de Tween 20 al 0,05%). El disco de hoja de col se secó después al aire. A continuación, la placa se cubrió con la tapa y se dejó reposar en una cámara de temperatura controlada (período de luz de 16 h, período de oscuridad de 8 h) (25°C). Tres días después del inicio del reposo de la placa se observó la supervivencia o la muerte de las larvas y la tasa de muerte de estas se calculó mediante la ecuación descrita posteriormente.

55 Ejemplo de prueba 2: efecto plaguicida contra *Aphis gossypii*

60 Un disco de hoja con un diámetro de 2,0 cm se cortó de un pepino cultivado en un tiesto y se colocó en una placa de Petri de 5,0 cm. Una disolución de prueba que se había ajustado a una concentración predeterminada mediante la adición de una disolución acuosa de acetona al 50% (adición de Tween 20 al 0,05%) se extendió sobre el disco de hoja de pepino. Después del secado al aire se liberaron en la placa diez (10) larvas de *Aphis gossypii* en el primer estadio. A continuación, la placa se cubrió con la tapa y se dejó reposar en una cámara de temperatura controlada (período de luz de 16 h, período de oscuridad de 8 h) (25°C). Tres días después del inicio del reposo de la placa se observó la supervivencia o la muerte de las larvas y la tasa de muerte de estas se calculó mediante la ecuación



descrita posteriormente.

Ejemplo de prueba 3: efecto plaguicida contra *Pseudococcus comstocki*

5 Un disco de hoja con un diámetro de 2,8 cm se cortó de una hoja de *Phaseolus vulgaris* y se colocó sobre agar en un vaso de plástico en el que se habían liberado diez (10) larvas de *Pseudococcus comstocki* en el primer estadio. Se extendió una disolución de prueba ajustada a una concentración predeterminada mediante la adición de una disolución acuosa de acetona al 50% (adición de Tween 20 al 0,05%). Después secarse al aire, el disco se dejó reposar en una cámara de temperatura controlada (período de luz de 16 h, período de oscuridad de 8 h) (25°C).  
 10 Tres días después del inicio del reposo se observó la supervivencia o la muerte de las larvas y la tasa de muerte de estas se calculó mediante la ecuación descrita posteriormente.

Resultados de los ejemplos de prueba 1 a 3

15 La tasa de muerte de las larvas se calculó mediante la ecuación siguiente.

$$\text{Tasa de muerte (\%)} = \left\{ \frac{\text{número de larvas muertas}}{\text{número de larvas supervivientes} + \text{número de larvas muertas}} \right\} \times 100$$

20 Las concentraciones que dieron una tasa de muerte del 90% o superior se muestran en la tabla 2.

Pruebas comparativas

25 El compuesto PR-73 desvelado en la publicación de patente japonesa H08-259.569 A y el compuesto PR-98 desvelado en la publicación de patente japonesa H08-269.062 se sometieron también a las mismas pruebas descritas en los ejemplos de prueba 1 a 3. Los compuestos comparativos difieren de los compuestos presentes 1 y 2 en que portan sustituyentes AcO en las posiciones 1 y 11. Los resultados son según se muestran en la tabla 2.

Tabla 2. Concentración (ppm) para una tasa de muerte del 90% o superior

Compuesto n°	Ejemplo de prueba 1	Ejemplo de prueba 2	Ejemplo de prueba 3
1	0,010	0,078	0,156
2	0,039	0,078	0,625
PR-73 (comparativo)	5	5	>20
PR-98 (comparativo)	0,156	5	>20

Ejemplo de prueba 4: efecto plaguicida contra *Trigonotylus caelestialium*

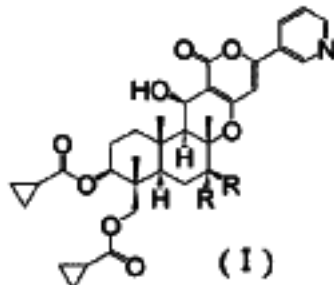
35 Una plántula de trigo se sumergió durante 30 segundos en una disolución en la que se había diluido cada uno de los compuestos de prueba a una concentración predeterminada mediante la adición de una disolución acuosa de acetona al 50% (adición de Tween 20 al 0,05%). La plántula de trigo se secó al aire y después se colocó en una probeta de vidrio. Además, en la probeta de vidrio se liberaron dos larvas de *Trigonotylus caelestialium* en el segundo estadio. La probeta de vidrio se cubrió con la tapa y las larvas se criaron en la cámara de temperatura controlada (25°C). Durante la prueba, la plántula de trigo recibió agua desde el fondo de la probeta de vidrio.  
 40 Tres días después del tratamiento se observó la supervivencia o la muerte de las larvas y la tasa de muerte de estas se calculó mediante la ecuación siguiente.

$$\text{Tasa de muerte (\%)} = \left\{ \frac{\text{número de larvas muertas}}{\text{número de larvas supervivientes} + \text{número de larvas muertas}} \right\} \times 100$$

45 Como resultado, se encontró que la tasa de muerte no fue inferior al 80% para los compuestos n° 1 y n° 2 a una concentración de 100 ppm.

## REIVINDICACIONES

1. Un compuesto representado por la fórmula (I) o una sal de este aceptable desde el punto de vista agrícola u hortícola:



5 en que las dos R representan un átomo de hidrógeno respectivamente o las dos R pueden combinarse entre sí para representar un grupo oxo.

10 2. Una composición que comprende un compuesto definido en la reivindicación 1 o una sal de este aceptable desde el punto de vista agrícola u hortícola como principio activo y un vehículo aceptable desde el punto de vista agrícola u hortícola.

3. La composición según la reivindicación 2 que se usa como agente de control de plagas.

15 4. La composición según la reivindicación 3 que se usa para el control de una plaga de hemípteros.

5. La composición según la reivindicación 4, en que dicha plaga de hemípteros se selecciona entre afidoideos, pentatómidos o cocoideos.

20 6. La composición según la reivindicación 4, en que dicha plaga de hemípteros es al menos una plaga seleccionada del grupo compuesto por *Myzus persicae*, *Aphis gossypii*, *Trigonotylus caelestialium* y *Pseudococcus comstocki*.

25 7. Un procedimiento para el control de una plaga que comprende la aplicación a una planta o al suelo de una cantidad eficaz de un compuesto representado por la fórmula (I) definida en la reivindicación 1 o de una sal de este aceptable desde el punto de vista agrícola u hortícola.

8. El procedimiento según la reivindicación 7, en que la plaga es una plaga de hemípteros.

30 9. El procedimiento según la reivindicación 8, en que dicha plaga de hemípteros se selecciona entre afidoideos, pentatómidos o cocoideos.

35 10. El procedimiento según la reivindicación 8, en que la plaga de hemípteros es al menos una plaga seleccionada del grupo compuesto por *Myzus persicae*, *Aphis gossypii*, *Trigonotylus caelestialium* y *Pseudococcus comstocki*.

40 11. Uso de un compuesto representado por la fórmula (I) definida en la reivindicación 1 o de una sal de este aceptable desde el punto de vista agrícola u hortícola como un agente de control de plagas para aplicar a una planta o al suelo.

12. Uso de una composición según una cualquiera de las reivindicaciones 2 a 6 como un agente de control de plagas para aplicar a una planta o al suelo.