

19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 371 063**

51 Int. Cl.:  
**C07C 45/66** (2006.01)  
**C07C 45/67** (2006.01)  
**C07C 49/647** (2006.01)  
**C07C 49/597** (2006.01)  
**C07C 49/603** (2006.01)  
**C07C 67/343** (2006.01)  
**C07C 69/716** (2006.01)  
**C07D 315/00** (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

96 Número de solicitud europea: **03029207 .2**  
96 Fecha de presentación: **18.12.2003**  
97 Número de publicación de la solicitud: **1433772**  
97 Fecha de publicación de la solicitud: **30.06.2004**

54 Título: **MÉTODO PARA PRODUCIR 2-(ALQUIL)CICLOALQUENONA.**

30 Prioridad:  
**26.12.2002 JP 2002378006**

45 Fecha de publicación de la mención BOPI:  
**27.12.2011**

45 Fecha de la publicación del folleto de la patente:  
**27.12.2011**

73 Titular/es:  
**KAO CORPORATION**  
**14-10, NIHONBASHI-KAYABA-CHO 1-CHOME,**  
**CHUO-KU**  
**TOKYO 103-8210, JP**

72 Inventor/es:  
**Nishimura, Hirotsugu y**  
**Mine, Koji**

74 Agente: **Arias Sanz, Juan**

ES 2 371 063 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

Método para producir 2-(alquil)cicloalquenona

**Campo técnico**

5 La presente invención se refiere a un método para producir 2-(alquil)cicloalquenona que es un producto intermedio para la síntesis de dihidrojasmonato de metilo,  $\delta$ -lactona y similares que son útiles como materiales aromatizantes, y a un método para producir (3-oxo-2-alquilcicloalquil)acetato de alquilo y 5-alquil-5-alcanolida usando el mismo compuesto.

**Antecedentes de la técnica**

10 Convencionalmente, como método para producir 2-(alquil)cicloalquenona a partir de 2-(1-hidroxialquil)cicloalcanona, por ejemplo, el documento JP-A 56-147740 da a conocer un método en el que tras deshidratar un compuesto condensado de aldol con ácido oxálico, se permite la reacción de isomerización usando bromuro de hidrógeno y ácido clorhídrico, o un método en el que la reacción de deshidratación y la reacción de isomerización posterior se realizan simultáneamente con el uso de bromuro de hidrógeno y cloruro de hidrógeno. Cuando se usan ácidos fuertes tales como bromuro de hidrógeno y cloruro de hidrógeno, la reacción avanza hacia la reacción de isomerización así como a la reacción de deshidratación. Sin embargo, puesto que la 2-(1-hidroxialquil)cicloalcanona, que es un material de partida, y la 2-(alquil)cicloalquenona, que es un producto, se polimerizan y descomponen, es inevitable la disminución en el rendimiento.

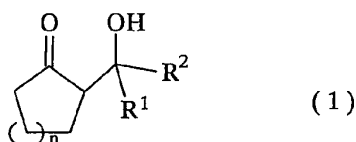
15 Adicionalmente, en comparación con la reacción en la que la reacción de deshidratación y la reacción de isomerización anteriores tienen lugar simultáneamente, un método de dos etapas en el que la reacción de isomerización tiene lugar tras la reacción de deshidratación usando un ácido débil tal como ácido oxálico algunas veces provoca un empeoramiento en el rendimiento debido a la polimerización y descomposición de la 2-(alquil)cicloalquenona cuando se fuerza a la reacción de deshidratación a avanzar a una alta razón de conversión.

20 Por otro lado, el documento JP-A 2001-328965 da a conocer un método para realizar simultáneamente la reacción de deshidratación y la reacción de isomerización dejando actuar un catalizador que contiene amina y haluro de hidrógeno sobre la 2-(1-hidroxialquil)cicloalcanona. Sin embargo, la temperatura que permite una reacción de isomerización eficaz está en el intervalo de 80 a 200°C en la producción industrial.

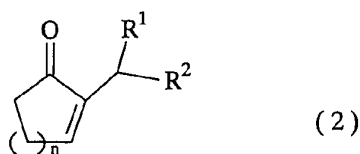
**Sumario de la invención**

25 La presente invención se refiere a un método para producir 2-(alquil)cicloalquenona con eficacia y con alto rendimiento en condiciones suaves, y a un método para producir (3-oxo-2-alquilcicloalquil)acetato de alquilo y 5-alquil-5-alcanolida que son útiles como materiales aromatizantes o sustancias fisiológicamente activas que usan la misma.

30 La presente invención proporciona un método para producir 2-(alquil)cicloalquenona (denominada a continuación en el presente documento compuesto (2)) representada mediante la fórmula (2) tal como se muestra a continuación, usando como material de partida 2-(1-hidroxialquil)cicloalcanona (denominada a continuación en el presente documento compuesto (1)) representada mediante la siguiente fórmula (1):

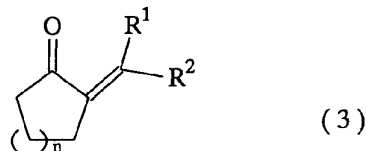


35 (en la que n representa un número entero de 1 ó 2,  $R^1$  y  $R^2$  representan cada uno un átomo de hidrógeno o un grupo alquilo de cadena lineal o ramificada que tiene de 1 a 8 carbono(s), o  $R^1$  y  $R^2$  pueden formar junto con átomos de carbono adyacentes un anillo de ciclopentano o un anillo de ciclohexano), incluyendo el método una etapa de deshidratación tal como se describe a continuación seguida por una etapa de isomerización;



(en la que n,  $R^1$  y  $R^2$  representan los significados que se definieron anteriormente).

Etapa de deshidratación: usando un catalizador ácido, se permite que la reacción avance hasta que una razón de conversión de la reacción de deshidratación basada en el compuesto (1) alcanza del 20 al 90%, para obtener una mezcla que contiene el compuesto (1) y 2-(alquiliden)cicloalcanona (denominada a continuación en el presente documento compuesto (3)) representada mediante la fórmula (3):



5

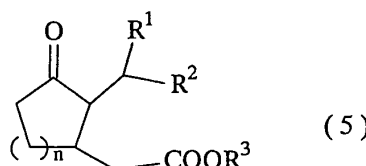
(en la que n, R<sup>1</sup> y R<sup>2</sup> representan los significados que se definieron anteriormente).

Etapa de isomerización: se permite la isomerización del compuesto (3) mientras que se permite la reacción de deshidratación del compuesto (1) restante.

10 Además, la presente invención proporciona un método para producir (3-oxo-2-alquilcicloalquil)acetato de alquilo (denominado a continuación en el presente documento compuesto (5)) representado mediante la fórmula (5) tal como se muestra a continuación, incluyendo el método las etapas de dejar reaccionar el compuesto (2) obtenido en el método anterior con diéster de ácido malónico (denominado a continuación en el presente documento compuesto (4)) representado mediante la fórmula (4):

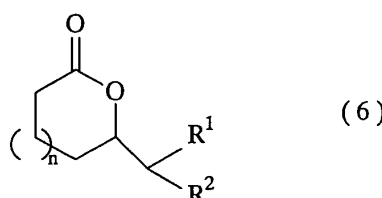


15 (en la que R<sup>3</sup> representa un grupo alquilo de cadena lineal o ramificada que tiene de 1 a 3 carbono(s), y los dos R<sup>3</sup> pueden ser iguales o diferentes);



(en la que n, R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> y R<sup>3</sup> representan los mismos significados que se definieron anteriormente).

20 Además, la presente invención proporciona un método para producir 5-alquil-5-alcanolida (denominada a continuación en el presente documento compuesto (6)) representada mediante la fórmula (6):



(en la que n, R<sup>1</sup> y R<sup>2</sup> representan los mismos significados que se definieron anteriormente), incluyendo el método las etapas de someter a reducción por hidrógeno el compuesto (2) obtenido mediante el método de producción anterior y someter a oxidación de Bayer-Villiger.

## 25 Explicación detallada de la invención

En el estado de la técnica se desea un método para obtener de manera eficaz 2-(alquil)cicloalquenona en condiciones más suaves.

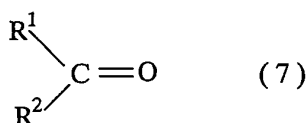
Según el método de la presente invención, es posible producir 2-(alquil)cicloalquenona con alto rendimiento y alta productividad. Además, usando la 2-(alquil)cicloalquenona obtenida, es posible producir (3-oxo-2-

alquilcicloalquil)acetato de alquilo y 5-alquil-5-alcanolida que son útiles como materiales aromatizantes y sustancias fisiológicamente activas con alto rendimiento y alta pureza.

[Método de producción del compuesto (2)]

5 En el compuesto (1) usado como material de partida de la presente invención, los ejemplos del grupo alquilo que constituyen el grupo 1-hidroxialquilo incluyen un grupo metilo, grupo etilo, grupo propilo, grupo isopropilo, grupo butilo, grupo isobutilo, grupo amilo, grupo isoamilo, grupo hexilo, grupo heptilo.

Este compuesto (1) puede producirse de una manera generalmente conocida, y por ejemplo, puede obtenerse haciendo reaccionar una cicloalcanona que tiene 5 ó 6 carbonos con un aldehído o una cetona representada mediante la siguiente fórmula (7):



10

(en la que R<sup>1</sup> y R<sup>2</sup> representan los mismos significados que se definieron anteriormente).

En la presente invención, el compuesto (1) obtenido de la manera descrita anteriormente puede usarse directamente sin someterse a destilación, sin embargo, puede usarse tras purificarse mediante destilación; en tal caso la actividad del catalizador ácido disminuye.

15 En la etapa de deshidratación de la presente invención, como catalizador para la reacción de deshidratación, se usan catalizadores ácidos que tienen preferiblemente un pKa (exponente de disociación ácida en disolución acuosa) no inferior a 0, más preferiblemente en el intervalo de 0,5 a 7. Además, el catalizador puede ser un catalizador de sistema homogéneo o un catalizador sólido. Entre otros, se prefieren el ácido fosfórico, ácido fosfórico condensado, ácido oxálico y ácido sulfúrico, y se prefieren más el ácido fosfórico, ácido fosfórico condensado y ácido sulfúrico.

20 Desde el punto de vista de la reactividad y el punto de vista económico, la cantidad usada del catalizador es preferiblemente de desde el 0,01 hasta el 20% en peso, más preferiblemente del 0,1 al 10% en peso, mucho más preferiblemente de desde el 0,5 hasta el 10% en peso, con respecto al compuesto (1) que es un material de partida.

25 En la etapa de deshidratación de la presente invención, si la razón de conversión de la reacción de deshidratación es demasiado pequeña, la carga térmica asociada con la reacción de deshidratación realizada en la etapa de isomerización aumenta, haciendo difícil mantener la temperatura de reacción que permite una reacción de isomerización eficaz (de 80 a 200°C), aunque por otro lado, si la razón de conversión de la reacción de deshidratación es demasiado grande, el compuesto (1) que es un material de partida y el compuesto (3) que es un producto de la reacción de deshidratación se polimerizarán y descompondrán, conduciendo al empeoramiento en el rendimiento. Por este motivo, la razón de conversión de la reacción de deshidratación es preferiblemente de desde el 20 hasta el 90%, más preferiblemente de desde el 40 hasta el 90%, y todavía preferiblemente de desde el 50 hasta el 80%. En el presente documento la razón de conversión de la reacción de deshidratación es un valor definido mediante la siguiente expresión (I).

30 Razón de conversión de la reacción de deshidratación [%] = 100 –

$$\frac{\text{cantidad del compuesto (1) (mol) en la reacción}}{\text{cantidad del compuesto (1) cargado (mol)}} \times 100$$

(I)

35 La temperatura de reacción de la etapa de deshidratación es preferiblemente de desde 70 hasta 150°C, y más preferiblemente de desde 90 hasta 120°C desde el punto de vista de terminar la reacción en un tiempo corto y de impedir la polimerización y descomposición del compuesto (3) para evitar el empeoramiento en el rendimiento. En cuanto a la presión de reacción, la reacción puede avanzar incluso a presión atmosférica, sin embargo, con el fin de lograr una reacción eficaz separando eficazmente mediante destilación el agua que se genera pero no el material de partida y el producto de reacción del sistema, se realiza la reacción preferiblemente a presiones reducidas que oscilan desde 20 hasta 80 kPa.

40 En la etapa de isomerización de la presente invención, cuando el catalizador ácido permanece en el producto de reacción tras la finalización de la reacción de deshidratación, se prefiere neutralizarlo debido a que podría disminuir posiblemente la actividad del catalizador para la reacción de isomerización. La reacción de isomerización puede realizarse usando un método conocido, y por ejemplo, tal como se da a conocer en la publicación de patente japonesa sin examinar JP-A 2001-328965, se prefiere realizar simultáneamente la reacción de deshidratación y la

45

reacción de isomerización dejando actuar un catalizador que contiene una amina y un haluro de hidrógeno sobre una mezcla que contiene el compuesto (1) y el compuesto (3), porque esto proporciona el compuesto (2) con alto rendimiento.

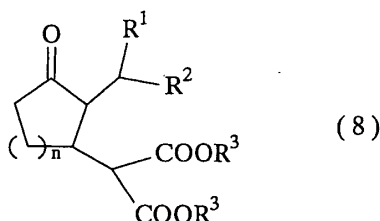
- 5 Como la amina usada en el presente documento, se prefieren aminas aromáticas o aminas heteroaromáticas tales como anilina, difenilamina, piridina, picolina, quinolina, polivinilpiridina, prefiriéndose particularmente piridina, picolina y quinolina. Como el haluro de hidrógeno, se mencionan cloruro de hidrógeno, bromuro de hidrógeno o yoduro de hidrógeno, y se prefiere particularmente cloruro de hidrógeno o bromuro de hidrógeno. La razón molar de amina con respecto al haluro de hidrógeno es preferiblemente amina/haluro de hidrógeno (razón molar) = de 1,1/1 a 5/1.

- 10 La reacción se realiza preferiblemente en un disolvente alcohólico o en ausencia de disolvente. Los ejemplos de disolvente alcohólico incluyen metanol, etanol, 1-propanol, 2-propanol, butanol, pentanol, hexanol, 2-etilhexanol, ciclohexanol, etilenglicol, 1,8-octanodiol, glicerina, polietilenglicol, y se prefieren particularmente los alcoholes inferiores que tienen de 1 a 8 carbono(s). La temperatura de reacción es preferiblemente de desde 80 hasta 200°C, y particularmente de desde 100 hasta 180°C.

[Método de producción del compuesto (5)]

- 15 Usando el compuesto (2) obtenido en el método de producción anterior como material de partida, puede obtenerse el compuesto (5) que es útil como material aromatizante o sustancia fisiológicamente activa de la manera dada a conocer en el documento JP-A 56-147740, por ejemplo.

- 20 Más específicamente, se permite que reaccionen el compuesto (2) y el compuesto (4) en presencia de un catalizador básico, para obtener el compuesto representado mediante la siguiente fórmula (8) (denominado a continuación en el presente documento compuesto (8)):



(en la que n, R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> y R<sup>3</sup> tienen los mismos significados que se definieron anteriormente).

Se permite que reaccione el compuesto (4) en una cantidad de preferiblemente de 1 a 5 veces por mol, más preferiblemente de 1,2 a 2 veces por mol, con respecto al compuesto (2).

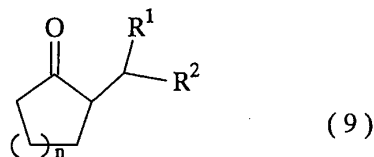
- 25 Como el catalizador básico, pueden mencionarse a modo de ejemplo metales alcalinos tales como sodio y potasio, alcóxidos de metal alcalino tales como alcóxido de sodio y alcóxido de potasio. La cantidad usada del catalizador es preferiblemente de desde 0,02 hasta 0,2 veces por mol, con respecto al compuesto (2). Como el disolvente, se prefieren los disolventes polares tales como alcoholes. La temperatura de reacción es preferiblemente de desde -10 hasta 30°C, y más preferiblemente de desde 0 hasta 20°C.

- 30 A continuación, haciendo reaccionar el compuesto (8), así obtenido, con agua, es posible producir el compuesto (5). Se prefiere dejar que el agua reaccione de una manera tal, que ésta se añade por goteo al sistema de reacción en una cantidad de 1 a 3 veces por mol, con respecto al compuesto (8). La temperatura de reacción está preferiblemente en el intervalo de 150 a 220°C.

[Método de producción del compuesto (6)]

- 35 Usando el compuesto (2) obtenido en el método de producción anterior como material de partida, puede obtenerse el compuesto (6) que es útil como material aromatizante o sustancia fisiológicamente activa de una manera generalmente conocida.

- 40 Por ejemplo, se somete a reducción por hidrógeno el compuesto (2) en presencia de un catalizador tal como Pd/C, para proporcionar el compuesto representado mediante la siguiente fórmula (9) (denominado a continuación en el presente documento compuesto (9)):



(en la que n, R<sup>1</sup> y R<sup>2</sup> tienen los mismos significados que se definieron anteriormente).

El compuesto (9), así obtenido, se somete a oxidación de Bayer-Villiger usando ácido peracético como oxidante tal como se describió, por ejemplo, en el documento JP-A 9-104681, para proporcionar el compuesto (6).

## 5 Ejemplos

En los siguientes ejemplos, se llevó a cabo la cuantificación del producto mediante un método de patrón interno usando cromatografía de gases (como patrón interno, se usó carbitol para la reacción de deshidratación y se usó undecano para la reacción de isomerización). El rendimiento de la reacción de deshidratación se define mediante la expresión (II), y el rendimiento de la reacción de isomerización se define mediante la expresión (III).

10 Rendimiento de la reacción de deshidratación [%] =

(cantidad total (mol) de compuesto (1) y compuesto (3) en la reacción/cantidad total (mol) de compuesto (1) cargado y compuesto (3)) x 100

(II)

Rendimiento de la reacción de isomerización [%] =

15 (cantidad (mol) de compuesto (2) en la reacción/cantidad total (mol) de compuesto (1) cargado y compuesto (3)) x 100

(III)

### Ejemplo de producción 1

20 Se cargó un tanque de reacción de 6 m<sup>3</sup> equipado con un tanque de alimentación con 2241 kg (26,6 kmol) de ciclopentanona, 1007 kg de agua y 11 kg de NaOH al 48%, se enfrió hasta 15°C con agitación, y luego se le añadieron de manera continua 985 kg (11,4 kmol) de valeraldehído a lo largo de 5 horas a la misma temperatura. Tras la finalización del goteo, se agitó la mezcla de reacción a la misma temperatura durante una hora. Tras la finalización de la reacción, se neutralizó la mezcla de reacción y se recogió el exceso de ciclopentanona mediante destilación. Luego se analizó la fase orgánica para encontrar que 1868 kg del producto final contenían 1658 kg de 2-

25 (1-hidroxipentil)-ciclopentanona y 40 kg de 2-pentilidenciclopentanona.

### Ejemplo 1

30 A un recipiente de reacción de 6 m<sup>3</sup> equipado con un tubo de destilación simple (tubería) que contenía 1893 kg de una materia orgánica líquida que contenía 1677 kg (9,8 kmol) de 2-(1-hidroxipentil)-ciclopentanona y 52 kg (0,3 kmol) de 2-pentilidenciclopentanona obtenida de la misma manera que el ejemplo de producción 1, se le añadieron 17 kg de catalizador de ácido fosfórico al 105%, y se calentó y agitó para alcanzar los 100°C y 40 kPa. Tras permitir que reaccionara durante 1,5 horas, se enfrió la mezcla de reacción hasta temperatura ambiente y se analizó el producto terminado de la reacción para encontrar que éste contenía 464,5 kg (2,7 kmol) de 2-(1-hidroxipentil)-ciclopentanona sin reaccionar y 1058,2 kg (7,0 kmol) de 2-pentilidenciclopentanona que es un producto deshidratado. La razón de conversión de la reacción de deshidratación era del 72,3%, y el rendimiento de la

35 reacción de deshidratación era del 95,0%.

Se neutralizó una parte del producto terminado de la reacción con NaOH al 48%, y se extrajeron 300,2 g de la fase orgánica. Se cargó un matraz de cuatro bocas de 1000 ml equipado con un tubo de deshidratación con una mezcla de 300,0 g de 2-etilhexanol, 17,4 g de 3-picolina y 17,7 g de HCl al 35%, se calentó hasta 140°C y se le añadió gota a gota la fase orgánica anterior a lo largo de 2 horas. Tras la finalización del goteo, se calentó y agitó la mezcla de

40 reacción durante 5 horas a la misma temperatura. Tras la finalización de la reacción, se enfrió la mezcla hasta temperatura ambiente y se analizó la fase orgánica para encontrar que el producto terminado de la reacción contenía 198,5 g de 2-pentil-2-ciclopentanona. El rendimiento de la reacción de isomerización era del 78,6%. El rendimiento general obtenido mediante el rendimiento de la reacción de deshidratación por el rendimiento de la reacción de isomerización era del 74,7%.

### 45 Ejemplo 2

5 A un recipiente de reacción de 2 l equipado con una columna de destilación simple que contenía 1000 g de una materia orgánica líquida que contenía 860,2 g (5,05 mol) de 2-(1-hidroxipentil)-ciclopentanona y 32,0 g (0,21 mol) de 2-pentilidenciclopentanona obtenida de la misma manera que el ejemplo de producción 1, se le añadieron 8,7 g de ácido fosfórico al 105%, y se calentó y agitó para alcanzar los 100°C y 40 kPa. Tras permitir que reaccionara durante 0,5 horas, se enfrió la mezcla de reacción hasta temperatura ambiente y se analizó el producto terminado de la reacción para encontrar que éste contenía 390,6 g (2,29 mol) de 2-(1-hidroxipentil)-ciclopentanona sin reaccionar y 426,3 g (2,80 mol) de 2-pentilidenciclopentanona que es un producto deshidratado. La razón de conversión de la reacción de deshidratación era del 54,6%, y el rendimiento de la reacción de deshidratación era del 96,8%.

10 Se neutralizó una parte del producto terminado de la reacción con NaOH al 48%, y se extrajeron 100 g de la fase orgánica. En un matraz de cuatro bocas de 1000 ml equipado con un tubo de deshidratación se vertió una mezcla de 100 g de 2-etilhexanol, 5,3 g de 3-picolina y 5,4 g de HCl al 35%, se calentó hasta 140°C y se le añadió gota a gota la fase orgánica anterior a lo largo de 2 horas. Tras la finalización del goteo, se calienta la mezcla de reacción con agitación durante 4 horas a la misma temperatura. Tras la finalización de la reacción, se enfría la mezcla hasta temperatura ambiente y se analiza la fase orgánica para encontrar que el producto terminado de la reacción contenía 63,5 g de 2-pentil-2-ciclopentenona. El rendimiento de la reacción de isomerización será del 80%. El rendimiento general obtenido mediante el rendimiento de la reacción de deshidratación por el rendimiento de la reacción de isomerización será del 77%.

### Ejemplo comparativo 1

20 A un recipiente similar al descrito en el ejemplo 1 que contenía 1791 kg de una materia orgánica líquida que contenía 1361 kg (8,0 kmol) de 2-(1-hidroxipentil)-ciclopentanona y 65 kg (0,4 kmol) de 2-pentilidenciclopentanona obtenida de la misma manera que el ejemplo de producción 1, se le añadieron 14 kg de catalizador de ácido fosfórico al 105%, y se calentó y agitó para alcanzar los 100°C y 40 kPa. Tras permitir que reaccionara durante 4 horas, se enfrió la mezcla de reacción hasta temperatura ambiente y se analizó el producto terminado de la reacción para encontrar que éste contenía 19 kg (0,1 kmol) de 2-(1-hidroxipentil)-ciclopentanona sin reaccionar y 1128 kg (7,4 kmol) de 2-pentilidenciclopentanona que es un producto deshidratado. La razón de conversión de la reacción de deshidratación era del 98,6%, y el rendimiento de la reacción de deshidratación era del 89,4%.

30 Se neutralizó una parte del producto terminado de la reacción con NaOH al 48%, y se extrajeron 1551 kg de la fase orgánica. Se cargó un recipiente de reacción de 6 m<sup>3</sup> equipado con una columna de destilación simple con una mezcla de 1551 kg de 2-etilhexanol, 76 kg de 3-picolina y 84 kg de HCl al 35%, se calentó hasta 140°C, y se le añadió gota a gota la fase orgánica anterior a lo largo de 1,8 horas. Tras la finalización del goteo, se calentó y agitó la mezcla de reacción durante 5 horas a la misma temperatura. Tras la finalización de la reacción, se enfrió la mezcla hasta temperatura ambiente y se analizó la fase orgánica para encontrar que el producto terminado de la reacción contenía 811 kg de 2-pentil-2-ciclopentenona. El rendimiento de la reacción de isomerización fue del 71,9%. El rendimiento general obtenido mediante el rendimiento de la reacción de deshidratación por el rendimiento de la reacción de isomerización era del 64,2%.

### Ejemplo 3

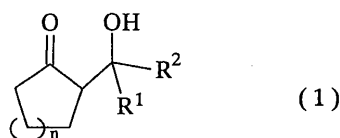
40 Se rectificó el producto terminado de la reacción sintetizado de manera similar al ejemplo 1, para obtener 190 g (1,2 mol) de 2-pentil-2-ciclopenteno. Luego, a una mezcla obtenida disolviendo 236 g (1,8 mol) de malonato de dimetilo en 76 g de metanol anhidro bajo atmósfera de nitrógeno, enfriando hasta 0°C y añadiendo 12,9 g (0,072 mmol) de metóxido de sodio (al 30% en metanol), se le añadieron gota a gota 190 g (1,2 mol) del 2-pentil-2-ciclopenteno obtenido anteriormente a 0°C a lo largo de 2 horas. Tras la finalización del goteo, se agitó la mezcla resultante a la misma temperatura durante 3 horas. Se separó mediante destilación el malonato de dimetilo a presión reducida, para proporcionar 320 g de un producto de adición de Michael.

45 A un aparato de reacción equipado con un tubo de salida de destilación se le añadió el producto de adición de Michael obtenido anteriormente y se calentó hasta 215°C, y luego se añadió gota a gota agua a una tasa de 6,4 g/h (2%/h). Mientras se separaba por destilación el metanol y el dióxido de carbono generado, se realizó la reacción de goteo durante 4 horas a 215°C. Tras la finalización de la reacción, se obtuvieron 245 g de 3-oxo-2-pentilciclopentil-acetato de metilo en 251 g del producto bruto.

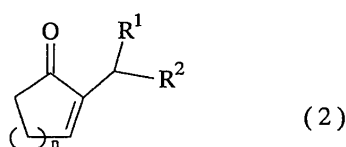
50 El 3-oxo-2-pentilciclopentil-acetato de metilo obtenido mediante rectificación del producto bruto tenía aroma similar a jazmín y afrutado, y era excelente como material aromatizante.

## REIVINDICACIONES

1. Método para producir 2-(alquil)cicloalquenona, denominada compuesto (2), representada mediante la fórmula (2) tal como se muestra a continuación, usando como material de partida 2-(1-hidroxialquil)cicloalcanona, denominada compuesto (1), representada mediante la siguiente fórmula (1):

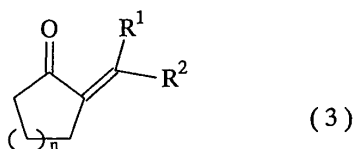


5 en la que n representa un número entero de 1 ó 2, R<sup>1</sup> y R<sup>2</sup> representan cada uno un átomo de hidrógeno o un grupo alquilo de cadena lineal o ramificada que tiene de 1 a 8 carbono(s), o R<sup>1</sup> y R<sup>2</sup> pueden formar junto con átomos de carbono adyacentes un anillo de ciclopentano o un anillo de ciclohexano,



10 en el que n, R<sup>1</sup> y R<sup>2</sup> representan los significados que se definieron anteriormente, comprendiendo el método una etapa de deshidratación y una etapa de isomerización posterior tal como sigue:

15 Etapa de deshidratación: usando un catalizador ácido, se permite que la reacción avance hasta que una razón de conversión de la reacción de deshidratación basada en el compuesto (1) alcanza del 20 al 90%, para obtener una mezcla que contiene el compuesto (1) y 2-(alquiliden)cicloalcanona, denominada compuesto (3), representada mediante la fórmula (3):



en la que n, R<sup>1</sup> y R<sup>2</sup> representan los significados que se definieron anteriormente;

Etapa de isomerización: se permite la isomerización del compuesto (3) mientras que se permite la reacción de deshidratación del compuesto (1) restante.

- 20 2. Método según la reivindicación 1, en el que el pKa del catalizador ácido usado en la etapa de deshidratación no es inferior a 0.
3. Método según la reivindicación 1 ó 2, en el que el catalizador ácido usado en la etapa de deshidratación es al menos uno seleccionado de ácido fosfórico, ácido fosfórico condensado y ácido sulfúrico.
- 25 4. Método según una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 3, comprendiendo el método adicionalmente las etapas de:

hacer reaccionar la 2-(alquil)cicloalquenona obtenida mediante el método según una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 3 con diéster de ácido malónico representado mediante la fórmula (4):

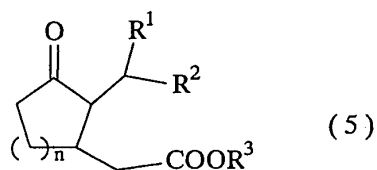


30 en la que R<sup>3</sup> representa un grupo alquilo de cadena lineal o ramificada que tiene de 1 a 3 carbono(s), y los dos R<sup>3</sup> pueden ser iguales o diferentes, y

hacer reaccionar con agua, para producir de este modo el (3-oxo-2-alquilcicloalquil)acetato de alquilo



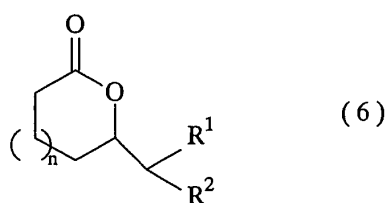
representado mediante la fórmula (5):



en la que n, R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> y R<sup>3</sup> tienen los mismos significados que se definieron anteriormente.

5. Método según una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 3, comprendiendo el método las etapas de:

5 someter a reducción por hidrógeno la 2-(alquil)cicloalquenona obtenida en el método según una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 3, y someter el compuesto resultante a oxidación de Bayer-Villiger, para producir de este modo 5-alquil-alcanolida representada mediante la fórmula (6):



en la que n, R<sup>1</sup> y R<sup>2</sup> tienen los mismos significados que se definieron anteriormente.