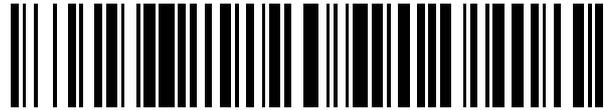


19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 445 871**

51 Int. Cl.:

C07D 319/12 (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **12.08.2009 E 09777838 (5)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **20.11.2013 EP 2315759**

54 Título: **Procedimiento para el almacenamiento y para el transporte de diésteres cíclicos**

30 Prioridad:

21.08.2008 EP 08014855

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:

05.03.2014

73 Titular/es:

**UHDE INVENTA-FISCHER GMBH (100.0%)
Holzhauser Strasse 157-159
13509 Berlin, DE**

72 Inventor/es:

**HAGEN, RAINER y
MÜHLBAUER, UDO**

74 Agente/Representante:

CARPINTERO LÓPEZ, Mario

ES 2 445 871 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

Procedimiento para el almacenamiento y para el transporte de diésteres cíclicos

La presente invención se refiere a un procedimiento para el almacenamiento y/o para el transporte de ésteres cíclicos intramoleculares (lactonas), en particular de lactida.

5 En la preparación de poliésteres biológicamente degradables, como por ejemplo polilactidas, se produce de manera normalizada el producto intermedio dilactida. La dilactida puede producirse como L,L-dilactida, D,D-dilactida, meso-dilactida o como mezcla de dos o tres de los isómeros mencionados. Las propiedades de los polímeros preparados a partir de esto mediante polimerización con apertura de anillo depende mucho de la pureza o de la proporción de mezcla de los isómeros mencionados. Para poder atender de manera flexible al mercado con tipos de PLA de
10 distintas propiedades y con ello fines de uso, es ventajoso almacenar provisionalmente los isómeros en forma fundida o transportarlos entre instalaciones más separadas una de otra. Sin embargo puede observarse en el almacenamiento que con almacenamiento normalizado por ejemplo bajo atmósfera normal que contiene agua y oxígeno pueden producirse reacciones de degradación y apertura de anillo de la dilactida, de modo que la dilactida se contamina mediante los productos de degradación producidos y ya no es adecuada para la reacción de
15 polimerización con apertura de anillo para la preparación de la polilactida debido al alto patrón de pureza que ha de cumplirse.

Los procedimientos de preparación de este tipo se conocen por ejemplo por los documentos US 2008/0125599 A1, DE 1 808 939 o el documento WO 2008/065132 A1.

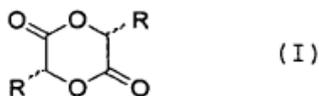
Además, el documento WO 2008/065132 A1 se refiere a partículas estables de lactida.

20 Por la bibliografía se sabe que no puede utilizarse el almacenamiento de dilactida en estado fundido (documento NL 2000454), mientras que para otras sustancias, tales como por ejemplo epsilon-caprolactama, esta forma de almacenamiento se describe como preferente (documento DE 101 00 752).

Por consiguiente es objetivo de la presente invención especificar un procedimiento para el almacenamiento y el transporte de diésteres cíclicos fundidos, en particular dilactida, con el que se eviten en su mayor parte reacciones
25 de degradación.

Este objetivo se soluciona con respecto al procedimiento para el almacenamiento y/o el transporte de un diéster cíclico con las características de la reivindicación 1. Las reivindicaciones dependientes representan a este respecto perfeccionamientos ventajosos.

30 De acuerdo con la invención se proporciona un procedimiento para el almacenamiento y/o para el transporte de un diéster cíclico de fórmula general I



35 en la que R se selecciona de hidrógeno o restos alifáticos lineales o ramificados con 1 a 6 átomos de carbono, en el que el diéster de fórmula general I se transfiere tras la preparación de manera ininterrumpida directamente en estado agregado líquido a un recipiente de almacenamiento inertizado y se almacena y/o se transporta al menos temporalmente a de 40 °C a 150 °C en el recipiente de almacenamiento. El almacenamiento y/o el transporte se realiza a este respecto a una presión de 10 kPa a 1000 kPa, ascendiendo el contenido en agua del diéster usado a como máximo 100 ppm, con respecto al peso.

40 Sorprendentemente pudo observarse que de acuerdo con el procedimiento de acuerdo con la invención es posible también un tiempo de almacenamiento o transporte más largo, de varias semanas, pudiéndose conservar esencialmente las propiedades originarias de la dilactida usada con respecto al contenido en ácido (concentración de grupos terminales carboxilo) o la pureza diastereomérica. De acuerdo con la invención se almacena o se transporta, por consiguiente, dilactida en el estado agregado líquido y en recipientes cerrados.

45 La fase líquida se designa generalmente también como "masa fundida". Ésta puede contener en el procedimiento de acuerdo con la invención también partículas sólidas, como por ejemplo diésteres cristalinos de fórmula I. Además pueden encontrarse partículas sólidas, como por ejemplo diésteres cristalinos de fórmula I, por ejemplo como sedimento. En el procedimiento de acuerdo con la invención se mantiene preferentemente la parte predominante del diéster de fórmula I que va a almacenarse o que va a transportarse en la fase líquida. De manera especialmente preferentemente se mantiene por encima del 90 % en peso, de manera muy especialmente preferente por encima del 99 % en peso y en particular todo el diéster de fórmula I en la fase líquida. En caso de que se permita la
50 congelación parcial o completa de la masa fundida en el recipiente, depende de que esto se realice sin entrada de O₂ y H₂O, es decir en particular con la exclusión del aire ambiente. Esto se aplica también para la nueva fusión del

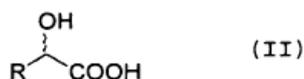
contenido del recipiente congelado. Si se cumplen estas condiciones, puede evitarse la degradación.

Para mantener el producto en fase líquida se emplea generalmente una temperatura que corresponde al punto de fusión o se encuentra por encima del punto de fusión. De acuerdo con la invención la temperatura de almacenamiento dependiendo de la sustancia usada a este respecto asciende a entre 40 °C y 150 °C, ascendiendo los intervalos de temperatura preferentes a entre 40 °C y 130 °C. La L-dilactida pura o su enantiómero D-dilactida presenta un punto de fusión de 98 °C. Los puntos de fusión de mezclas de los tres enantiómeros mencionados pueden encontrarse entre 40 °C y 125 °C. Como consecuencia de esto es especialmente preferente que el almacenamiento o el transporte del diéster, que puede ser de manera especialmente preferente dilactida, dependiendo del punto de fusión de la sustancia pura usada o de la mezcla usada de distintas dilactidas enantioméricas o diastereoméricas, se encuentre 20 °C por encima del punto de fusión de la sustancia o mezcla de sustancias usada respectivamente.

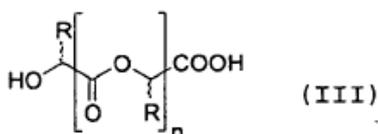
La duración para el almacenamiento y el transporte asciende en el procedimiento de acuerdo con la invención generalmente a de pocas horas a varias semanas. Ésta puede ser eventualmente también más corta o más larga. Especialmente la duración asciende a al menos tres días, de manera especialmente preferente al menos cinco días y de manera muy especialmente preferente al menos siete días.

Es especialmente ventajoso en el procedimiento que no tenga lugar ningún cambio del estado agregado del diéster usado, de modo que el diéster pueda extraerse directamente del procedimiento de preparación en forma líquida y pueda alimentarse al recipiente de almacenamiento. A este respecto es especialmente ventajoso que no se produzca completamente ninguna cristalización del producto en alimentaciones o conducciones de los aparatos de proceso. Preferentemente se extrae el diéster directamente del proceso de preparación a una temperatura de 90 °C a 160 °C en estado agregado líquido y se transfiere al recipiente de almacenamiento.

El diéster de fórmula I usado en el procedimiento de acuerdo con la invención tiene generalmente una pureza material preferente superior al 98 % en peso, más preferentemente superior al 99 % en peso y de manera especialmente preferente superior al 99,5 % en peso. En el caso de la proporción que queda hasta el 100 % en peso se trata por ejemplo de impurezas, como las que por ejemplo se producen en la preparación del producto o por ejemplo mediante descomposición, apertura de anillo, oligomerización o polimerización del diéster. Una medida para la pureza del diéster de fórmula I puede indicarse igualmente mediante la concentración de grupos terminales carboxilo. De la concentración de grupos terminales ácido en el diéster usado de fórmula I son responsables a este respecto en particular el ácido alfa-hidroxicarboxílico de fórmula II



que corresponde al éster y/o correspondientes oligómeros del ácido alfa-hidroxicarboxílico de fórmula III,



en la que es $n = 1$ a 10 y R se define en cada caso tal como anteriormente. El diéster se usa a este respecto preferentemente con una pureza tal que la concentración de grupos terminales carboxilo de fórmula I ascienda a como máximo 20 mmol/kg, preferentemente como máximo 10 mmol/kg, de manera especialmente preferente como máximo 5 mmol/kg, en particular como máximo 2 mmol/kg.

En el procedimiento de acuerdo con la invención puede observarse, dependiendo de la pureza usada del diéster, que la concentración de grupos terminales carboxilo permanece esencialmente constante, lo que puede equipararse con el hecho de que el diéster de fórmula I casi no se hidroliza ni se oligomeriza o polimeriza en las condiciones de almacenamiento de acuerdo con la invención.

Otro criterio de calidad del diéster usado, con el que se obtienen resultados excelentes en el almacenamiento, es el contenido en agua. Éste debe ascender, con respecto al diéster usado, a por debajo de 100 ppm (como proporciones en peso), preferentemente por debajo de 50 ppm, en particular como máximo 20 ppm.

El recipiente de almacenamiento presenta a este respecto preferentemente una atmósfera de gas inerte, habiéndose de entender el gas inerte de modo que éste no puede contraer ninguna reacción química con el diéster usado. Por regla general pueden usarse para ello gases inertes conocidos generalmente por el experto, tales como por ejemplo nitrógeno y/o argón. Preferentemente, los gases usados a este respecto están esencialmente libres de oxígeno y agua, por tanto presentan únicamente una presión parcial de oxígeno o un contenido en agua bajos que pueden desprejarse.

La presión de almacenamiento de acuerdo con la invención se encuentra entre 10 kPa y 1000 kPa, prefiriéndose presiones entre la presión ambiente y sobrepresión moderada, o sea de 100 kPa a 500 kPa.

5 Como diéster preferente de fórmula I citada anteriormente se usa en particular dilactida, no siendo esencial de acuerdo con la invención si se usa en este caso la forma D, L o la forma meso de la lactida. Igualmente puede emplearse el procedimiento también en mezclas discretivas de las distintas lactidas enantioméricas o diastereoméricas mencionadas anteriormente. En particular es adecuado el procedimiento de acuerdo con la invención para el almacenamiento estable de estructura de meso-dilactida pura o mezclas de distintas formas de lactida con alto contenido en meso, o sea por ejemplo un contenido en meso-lactida superior al 60 % en mol.

10 Para el almacenamiento y el transporte se usan generalmente recipientes que pueden cerrarse de manera hermética. Su tamaño es generalmente irrelevante para el procedimiento de acuerdo con la invención. Por regla general se usan recipientes en el intervalo de dm^3 y m^3 . También la forma geométrica de los recipientes es generalmente irrelevante para el procedimiento de acuerdo con la invención. Para minimizar las pérdidas de calor, los recipientes deben tener una baja proporción de superficie con respecto a volumen. Ciertos ejemplos preferentes son: (i) recipientes esencialmente en forma de esfera (por ejemplo los denominados tanques en forma de esfera) y (ii) recipientes esencialmente de forma cilíndrica (por ejemplo botellas, barriles, los denominados tanques cilíndricos o vagones cisternas).

15 La pared del recipiente debe ser químicamente inerte con respecto al éster de fórmula I e impermeables con respecto a gases y vapores, en particular oxígeno y vapor de agua. Son materiales adecuados por ejemplo acero, acero inoxidable, aluminio o recipiente metálico lacado en el interior. En caso del lacado interno o revestimiento ha de tenerse en cuenta que éste no se hinche ni se disuelva con el diéster cíclico. Es importante igualmente que ni se adsorban ni se absorban oxígeno y agua. Ciertos materiales de revestimiento adecuados son por ejemplo PTFE o PFA.

20 Preferentemente en el procedimiento de acuerdo con la invención el diéster de fórmula I se almacena y se transporta en un recipiente térmicamente aislado. Por esto ha de entenderse recipientes que en el lado externo presenten una capa térmicamente aislante. Como capa térmicamente aislante adecuada pueden nombrarse por ejemplo capas intermedias de vacío, de un gas poco conductor térmico, o de materiales aislantes sólidos, tal como por ejemplo poliestireno espumado (por ejemplo Styropor[®]), lana de vidrio o mineral o una combinación de estas capas.

25 En el almacenamiento y el transporte del diéster de fórmula I en un recipiente térmicamente aislado puede encontrarse el diéster de fórmula I (i) directamente sin otros recipientes o (ii) envasado en otros recipientes. Como ejemplos adecuados con respecto a (i) se mencionan tanques térmicamente aislados (por ejemplo tanques en forma de esfera, cilíndricos o vagones cisternas) o barriles térmicamente aislados. Como ejemplos adecuados con respecto a (ii) se mencionan contenedores térmicamente aislados (por ejemplo iso-contenedores), que contienen el diéster de fórmula I en forma de otros recipientes (por ejemplo barriles o botellas).

30 De manera especialmente preferentemente en el procedimiento de acuerdo con la invención el diéster de fórmula I se almacena y se transporta en un recipiente térmicamente aislado y que puede calentarse. Por esto ha de entenderse recipientes que además del aislamiento térmico mencionado anteriormente contengan una calefacción. En recipientes térmicamente aislados en los que se encuentra el diéster de fórmula I (i) directamente sin otros recipientes, puede encontrarse la calefacción por ejemplo en forma de elementos de calefacción directamente en el diéster de fórmula I que va a almacenarse o que va a transportarse. Otra posibilidad consiste por ejemplo en que la calefacción se encuentre entre el aislamiento térmico y la pared del recipiente que se encuentra en el interior. Como ejemplos con respecto a esto se mencionan tanques o barriles dotados de un revestimiento de calefacción. En recipientes térmicamente aislados en los que se encuentra el diéster de fórmula I (ii) envasado en otros recipientes, se encuentra la calefacción habitualmente en el interior de estos recipientes.

35 En una forma de realización preferente del procedimiento de acuerdo con la invención se almacenan o se transportan barriles de 220 l en un iso-contenedor que puede calentarse.

Los recipientes pueden estar aislados y pueden calentarse, o bien mediante un revestimiento doble o mediante un serpentín de calefacción que se encuentra en el interior o ambos. El transporte puede realizarse en camiones cisternas por carretera o en vagones cisternas por ferrocarril. El tamaño y la forma de los recipientes sin embargo no es decisivo.

40 Los recipientes más pequeños, no calentados, por ejemplo barriles de 220 l, pueden almacenarse y transportarse en contenedores que pueden calentarse o bien el transporte y almacenamiento se realizan sin calentamiento, con la consecuencia de que con tiempo de transporte y almacenamiento más largo se congela el contenido. Esto es irrelevante para la calidad del producto, siempre que los barriles permanezcan herméticamente cerrados. Para hacer que el contenido pueda usarse de nuevo tras el almacenamiento y transporte, pueden usarse los barriles en una cámara calentada con aire caliente templado hasta la fusión completa del contenido. A este respecto ha de tenerse en cuenta que el contenido de los barriles no supere el punto de fusión en más de 20 °C. La temperatura del producto en la pared calentada no debería ascender a más de 150 °C; cada entrada de aire debe excluirse también durante el ciclo de fusión.

Con tiempos de transporte y almacenamiento cortos (< 7 días) y recipientes grandes (a partir de aproximadamente 20 m³) puede prescindirse de un calentamiento permanente.

5 Un buen aislamiento del recipiente es suficiente (dependiendo de la región y clima) para impedir una congelación del contenido. Las partes que se han vuelto eventualmente sólidas del contenido se funden de nuevo mediante recirculación por bombeo del líquido en la estación de descarga.

El procedimiento de acuerdo con la invención para el almacenamiento y para el transporte de diésteres de fórmula I es especialmente sorprendente, dado que según el conocimiento técnico general precisamente en la fase líquida y por consiguiente móvil por difusión ha de esperarse una reactividad esencialmente más grande.

10 El procedimiento preferente de acuerdo con la invención, en el que se mantiene el diéster de fórmula I a la temperatura de fusión del diéster de fórmula I o por encima de ésta, es en particular sorprendente, dado que según el conocimiento técnico general la reactividad aumenta por regla general con la temperatura.

15 Es decisivo para la estabilidad del producto, sin embargo, la evitación del contacto con medios que contengan agua y oxígeno y no una temperatura de almacenamiento y transporte lo más baja posible. Este conocimiento no puede deducirse del conocimiento técnico general. De esto resulta que el almacenamiento y transporte deben realizarse en estado líquido, dado que a este respecto y con llenado previo y vaciado posterior de los recipientes de almacenamiento y transporte puede minimizarse el contacto con agua y oxígeno.

El procedimiento de acuerdo con la invención permite el almacenamiento y el transporte de diésteres de fórmula I, conduciendo el procedimiento también tras tiempo de almacenamiento y transporte prolongado, de varias semanas, únicamente a una baja modificación química del producto.

20 La presente invención se ilustra adicionalmente por medio de los siguientes ejemplos, sin limitar la invención a los siguientes parámetros, en particular las proporciones especiales de las lactidas individuales una con respecto a otra.

Ejemplos

25 En una planta piloto se prepararon mediante rectificación de lactida bruta con un contenido en L-dilactida del 12,2 % de la despolimerización de un prepolímero de ácido láctico dos fracciones de dilactida (fracción A y B). La fracción A' se purificó en otra columna de rectificación. El producto purificado se desvía como flujo lateral (fracción C). Las fracciones se extrajeron durante un funcionamiento continuo de las columnas de rectificación a una temperatura de 145 °C (fracción A), 152 °C (fracción B) y 148 °C (fracción C) y respectivamente se introdujeron en un vial con cámara de aire de 10 ml que se secó previamente durante 1 hora a 110 °C y a continuación se lavó durante 20 minutos con argón. Al mismo tiempo se extrajo respectivamente una muestra para el análisis para determinar la concentración de grupos carboxilo y el contenido en meso-dilactida.

Ejemplo 1

35 Un vial relleno con fracción B se cerró con un tapón de caucho butílico revestido con PTFE así como con los discos de obturación y cápsulas de cierre habituales y se colocó durante 24 h en un horno precalentado a 110 °C. La concentración de COOH ascendía antes y después respectivamente a 2 mmol/kg. El contenido en meso-dilactida ascendía antes del ensayo al 4,1 % y después al 3,9 %, estando constituida la diferencia hasta el 100 % por L-dilactida.

Ejemplo 2

40 Se repitió el procedimiento del ejemplo 1, únicamente que esta vez no se cerró el vial. Tras 24 horas en el horno aumentó la concentración de COOH de 2 mmol/kg a 69 mmol/kg. El contenido en meso-dilactida ascendía antes al 4,1 % y después al 3,5 %.

Los ejemplos 1 y 2 muestran que pueden impedirse pérdidas de calidad durante el almacenamiento líquido únicamente con la exclusión de agua y oxígeno.

Ejemplo 3

45 El procedimiento del ejemplo 1 se repitió. Esta vez se colocó respectivamente un vial de las fracciones A, B y C durante tres días en un horno calentado a 110 °C. El contenido de los viales era a este respecto líquido en cada momento. El contenido en grupos terminales carboxilo se midió por medio de titulación y la proporción de meso-dilactida con HPLC.

Los resultados están representados en la siguiente tabla:

	COOH	antes	después
Fracción A		217 mmol/kg	298 mmol/kg
Fracción B		18 mmol/kg	18 mmol/kg
Fracción C		25 mmol/kg	31 mmol/kg

Contenido en meso-dilactida	antes	después *
Fracción A	78,5 %	75,9 %
Fracción B	5,9 %	4,9 %
Fracción C	95,2 %	94,1 %

* la diferencia es en un 100% L-dilactida

Ejemplo 4

El ensayo del ejemplo 3 se repitió, siendo mayor la pureza de fracción B y fracción C con respecto a los grupos terminales carboxilo.

COOH	antes	después
Fracción A	197 mmol/kg	278 mmol/kg
Fracción B	2 mmol/kg	2 mmol/kg
Fracción C	1 mmol/kg	1 mmol/kg

5

Contenido en meso-dilactida	antes	después *
Fracción A	68,7 %	64,5 %
Fracción B	4,1 %	4,1 %
Fracción C	92,0 %	92,1 %

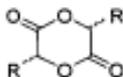
* la diferencia es en un 100% L-dilactida

10

En particular con altas concentraciones de meso-dilactida y COOH ha de apreciarse que la meso-dilactida se disocia más levemente que la L,L-dilactida. Mientras que la concentración de COOH aumenta, se reduce la proporción de meso-dilactida. Se aprecia también que con un contenido alto en L,L-dilactida la propia dilactida es aún estable a una concentración de COOH de 18 mmol/kg, mientras que no lo es una fracción rica en meso-dilactida con 25 mmol/kg de COOH (ejemplo 3). El ejemplo 4 muestra que con concentraciones de COOH por debajo de 2 mmol/kg la meso-dilactida tiene también la estabilidad necesaria.

REIVINDICACIONES

1. Procedimiento para el almacenamiento y/o transporte de un diéster cíclico de fórmula general I



Fórmula I

5 en la que R se selecciona de hidrógeno o restos alifáticos lineales o ramificados con 1 a 6 átomos de carbono, **caracterizado porque** el diéster de fórmula general I se transfiere tras la preparación de manera ininterrumpida directamente en estado agregado líquido a un recipiente de almacenamiento inertizado y se almacena y/o se transporta al menos temporalmente a de 40 °C a 150 °C en el recipiente de almacenamiento, siendo el almacenamiento y/o el transporte a una presión de 10 kPa a 1000 kPa y ascendiendo el contenido en agua del diéster usado de fórmula I a como máximo 100 ppm con respecto al peso.

2. Procedimiento según la reivindicación 1, **caracterizado porque** se mantiene al menos temporalmente una temperatura de almacenamiento de 40 °C a 130 °C, preferentemente de como máximo 20 °C por encima del punto de fusión del diéster de fórmula I.

15 3. Procedimiento según una de las reivindicaciones anteriores, **caracterizado porque** el diéster se extrae directamente del proceso de preparación a una temperatura de 90 °C a 160 °C en estado agregado líquido y se transfiere al recipiente de almacenamiento.

4. Procedimiento según una de las reivindicaciones anteriores, **caracterizado porque** el almacenamiento y/o el transporte se realiza a una presión de 100 kPa a 500 kPa bajo gas inerte.

20 5. Procedimiento según una de las reivindicaciones anteriores, **caracterizado porque** la inertización del recipiente de almacenamiento se realiza mediante barrido con al menos un gas esencialmente libre de agua y oxígeno, preferentemente un gas químicamente inerte con respecto al diéster de fórmula general I, de manera especialmente preferente nitrógeno y/o argón.

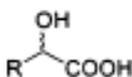
6. Procedimiento según una de las reivindicaciones anteriores, **caracterizado porque** como diéster de fórmula general I se usa dilactida.

25 7. Procedimiento según la reivindicación anterior, **caracterizado porque** la dilactida se prepara mediante las siguientes etapas de procedimiento:

- a) policondensación de ácido láctico para dar un prepolímero,
- b) despolimerización con ciclación y
- c) purificación de la dilactida.

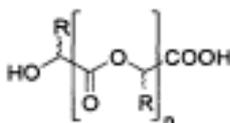
30 8. Procedimiento según una de las dos reivindicaciones anteriores, **caracterizado porque** se almacenan y/o se transportan L,L-dilactida, D,D-dilactida, meso-dilactida y/o mezclas de las mismas.

9. Procedimiento según una de las reivindicaciones anteriores, **caracterizado porque** la concentración de grupos terminales carboxilo del diéster usado de fórmula I, que procede esencialmente de impurezas mediante ácido alfa-hidroxicarboxílico de fórmula II



Fórmula II

35 que corresponde al diéster de fórmula I y/o correspondientes oligómeros del ácido alfa-hidroxicarboxílico de fórmula III,



Fórmula III

40 en la que es $n = 1$ a 10 y R se define en cada caso como anteriormente, asciende a como máximo 20 mmol/kg,

preferentemente como máximo 10 mmol/kg, de manera especialmente preferente como máximo 5 mmol/kg, en particular como máximo 2 mmol/kg.

- 5 10. Procedimiento según una de las reivindicaciones anteriores, **caracterizado porque** el contenido en agua del diéster usado de fórmula I con respecto al peso asciende a como máximo 50 ppm, preferentemente como máximo 20 ppm.