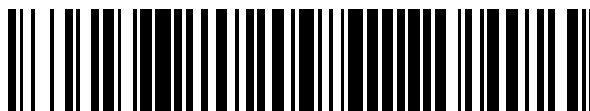


19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 618 867**

51 Int. Cl.:

**C07C 45/66** (2006.01)

**C07C 49/395** (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

86 Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **08.10.2010 PCT/JP2010/067799**

87 Fecha y número de publicación internacional: **14.04.2011 WO2011043478**

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **08.10.2010 E 10822148 (2)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **28.12.2016 EP 2487150**

54 Título: **Procedimiento para la producción de una lactona**

30 Prioridad:

**09.10.2009 JP 2009235127**

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

**22.06.2017**

73 Titular/es:

**KAO CORPORATION (100.0%)  
14-10, Nihonbashi-Kayabacho, 1-chome Chuo-Ku  
Tokyo 103-8210, JP**

72 Inventor/es:

**MATSUMOTO, KUNSHI;  
NAGASAWA, ATSUSHI y  
ATAKA, YOSHIHARU**

74 Agente/Representante:

**FÚSTER OLAGUIBEL, Gustavo Nicolás**

ES 2 618 867 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 la producción de una lactona

**5 Campo de la invención**

La presente invención se refiere a un procedimiento para la producción de lactonas a partir de 2-alquilocicloalcanonas.

**10 Antecedentes de la invención**

Las 2-alquilocicloalcanonas son sustancias útiles como producto intermedio para la síntesis de principios fisiológicamente activos o materiales de perfume. Hasta ahora, las 2-alquilocicloalcanonas se han producido sometiendo en primer lugar las 2-(1-hidroxialquil)-cicloalcanonas a una reacción de deshidratación para sintetizar 2-(alquiliden)-cicloalcanonas, y sometiendo luego las 2-(alquiliden)-cicloalcanonas a una reacción de hidrogenación.

Se sabe generalmente que la reacción de deshidratación anterior se lleva a cabo en presencia de un ácido. Por ejemplo, los documentos de patente 1 y 2 divulgan la reacción de deshidratación usando ácido oxálico o ácido fosfórico. También, el documento de patente 3 divulga la reacción de deshidratación usando un ácido sólido.

Además, como la reacción de hidrogenación es posterior a la reacción de deshidratación, se ha informado de un ejemplo de la reacción usando un catalizador de metal. Por ejemplo, el documento no de patente 1 divulga la reacción de hidrogenación usando un catalizador de metal del grupo del platino.

Por otro lado, se conoce el procedimiento en el que la reacción de deshidratación y la reacción de hidrogenación se llevan a cabo solo en una etapa. Por ejemplo, el documento de patente 4 divulga el procedimiento en el que se pone en contacto alcohol de diacetona con gas hidrógeno a presión en presencia de un catalizador ácido y un catalizador reductor para llevar a cabo la reacción de reacción de deshidratación e hidrogenación del mismo en una etapa y de este modo convertir directamente el alcohol de diacetona en metil-isobutil-cetona.

Documento de patente 1: JP 56-147740A

Documento de patente 2: JP 2004-217620A

Documento de patente 3: JP 2004-203844A

Documento de patente 4: JP 61-5038A

Documento no de patente 1: Warren, "Organic Chemistry", Tokyo Kagaku Dojin K.K., pág. 626

El documento GB 745 946 describe un procedimiento para la producción de cetonas saturadas que comprende hidrogenar un cetol en presencia de un catalizador de hidrogenación y un ácido libre que permanece como ácido libre en presencia de hidrógeno a temperatura elevada.

El documento EP 2 266 943 A1 representa un derecho anterior según el artículo 54(3) del EPC y se refiere a un procedimiento para la producción de una 2-alquil-2-cicloalquen-1-ona, que incluye la etapa de someter una 2-(1-hidroxialquil)cicloalcan-1-ona a deshidratación e isomerización en coexistencia de un ácido y un catalizador de metal del grupo del platino, y a un procedimiento para la producción de un acetato de alquil(3-oxo-alquilocicloalquilo) que es útil como material de perfume.

May *et al.*, Journal of Food Science 43(4), 1248-1252 (1978) describe la síntesis de siete lactonas insaturadas, es decir, las lactonas del ácido 4-hidroxi-nonenoico, con el doble enlace en las posiciones 2 y 3, respectivamente, del ácido 4-hidroxi-octenoico con el doble enlace en las posiciones 2 y 3, respectivamente, del ácido 5-hidroxi-4-nonenoico, del ácido 5-hidroxi-2-octenoico y del ácido 5-hidroxi-2-undecenoico. Se confirmaron sus estructuras químicas por sus espectros de masa e infrarrojo.

Xu *et al.*, Jingxi Yu Zhuanyong Huaxuepin (Fine and Specialty Chemicals), vol. 12, n.º 21, 12-14 (2004) divulga una síntesis de  $\delta$ -decalactona y  $\delta$ -dodecalactona a partir de 2-(1-hidroxialquil)cicloalcanonas y 2-alquilocicloalcanonas como productos intermedios.

**60 Sumario de la invención**

En los procedimientos en los que se someten las 2-(1-hidroxialquil)-cicloalcanonas a una reacción de deshidratación y luego a una reacción de hidrogenación, la reacción de deshidratación puede llevarse a cabo en presencia de un ácido tal como se describe en los documentos de patente 1 a 3, y luego puede llevarse a cabo la reacción de hidrogenación en presencia de un catalizador de metal tal como se describe en el documento no de patente 1. Sin

embargo, estos procedimientos no solo tienden a tener una mala productividad debido al mayor número de etapas, sino que también tienden a ser insatisfactorios en términos de rendimiento del producto deseado.

Por otro lado, en el procedimiento tal como se describe en el documento de patente 4 en el que la reacción de deshidratación y la reacción de hidrogenación se llevan a cabo en una etapa, hay que tener en cuenta que la velocidad de reacción varía dependiendo de la presión de hidrógeno en la que se realiza la reacción y tiende a ser muy lenta en condiciones de baja presión. Por tanto, la reacción se lleva a cabo habitualmente en condiciones de presión relativamente alta tal como a una presión de aproximadamente 1,08 MPa (presión absoluta). Sin embargo, cuando se aplica el procedimiento anterior a las 2-(1-hidroxi)alquil)-cicloalcanonas, se produce un compuesto formado por reducción de un grupo carbonilo de las 2-alkilcicloalcanonas, que son el producto deseado, como subproducto. Dicho subproducto tiende a ser difícil de separar de las 2-alkilcicloalcanonas, que son el producto deseado, cuando se somete a una etapa de purificación.

La presente invención se refiere a un procedimiento para la producción de lactonas como material de perfume útil para cosméticos, aromas, etc., en el que se producen 2-alkilcicloalcanonas con alto rendimiento y alta pureza, y se someten posteriormente a una reacción de oxidación.

Los presentes inventores han encontrado que cuando se someten las 2-(1-hidroxi)alquil)-cicloalcanonas a una reacción de deshidratación e hidrogenación con un flujo de gas hidrógeno a baja presión en presencia de un ácido y un catalizador de metal del grupo del platino, es posible sintetizar 2-alkilcicloalcanonas con un alto rendimiento y una alta pureza.

Por tanto, la presente invención se refiere a [1] un procedimiento para la producción de una lactona mediante una 2-alkilcicloalcanona representada por la siguiente fórmula general (2), que incluye la etapa de someter una 2-(1-hidroxi)alquil)-cicloalcanona representada por la siguiente fórmula general (1) a una reacción de deshidratación e hidrogenación en una corriente de gas hidrógeno a una presión de entre 20 y 200 kPa (presión absoluta) en presencia de un ácido y un catalizador de metal del grupo del platino; y someter luego la 2-alkilcicloalcanona a una reacción de oxidación usando un ácido percarboxílico.



en la que n es un número entero de 1 ó 2; y R<sup>1</sup> y R<sup>2</sup> son cada uno independientemente un átomo de hidrógeno o un grupo alquilo que tiene de 1 a 8 átomos de carbono con la condición de que R<sup>1</sup> y R<sup>2</sup> puedan formar un anillo de ciclopentano o un anillo de ciclohexano a través de un átomo de carbono adyacente a los mismos.

### Efecto de la invención

De acuerdo con la presente invención, se proporciona un procedimiento para la producción de lactonas como material de perfume útil para cosméticos, aromas, etc., de manera eficiente y a bajo coste.

### Descripción detallada de la invención

El procedimiento para la producción de una 2-alkilcicloalcanona representada por la siguiente fórmula general (2) (en lo sucesivo denominada también simplemente "compuesto (2)") de acuerdo con la primera etapa del procedimiento de la invención, se caracteriza porque una 2-(1-hidroxi)alquil)-cicloalcanona representada por la siguiente fórmula general (1) (en lo sucesivo denominada también simplemente "compuesto (1)") se somete a reacción de deshidratación e hidrogenación en una corriente de gas hidrógeno a una presión de entre 20 y 200 kPa (presión absoluta) en presencia de un ácido y un catalizador de metal del grupo del platino.



en la que n es un número entero de 1 ó 2; y R<sup>1</sup> y R<sup>2</sup> son cada uno independientemente un átomo de hidrógeno o un grupo alquilo que tiene de 1 a 8 átomos de carbono con la condición de que R<sup>1</sup> y R<sup>2</sup> puedan formar un anillo de ciclopentano o un anillo de ciclohexano a través de un átomo de carbono adyacente a los mismos.

[Compuestos (1) y (2)]

En el procedimiento para la producción del compuesto (2) como producto deseado de acuerdo con la presente invención, se usa el compuesto (1) como materia prima del mismo.

5 En las fórmulas generales anteriores (1) y (2),  $R^1$  y  $R^2$  son cada uno independientemente un átomo de hidrógeno o un grupo alquilo que tiene de 1 a 8 átomos de carbono con la condición de que  $R^1$  y  $R^2$  puedan formar un anillo de ciclopentano o un anillo de ciclohexano a través de un átomo de carbono adyacente a los mismos.  $R^1$  y  $R^2$  son cada uno preferentemente un átomo de hidrógeno o un grupo alquilo lineal o ramificado, y más preferentemente un átomo de hidrógeno o un grupo alquilo lineal.

10 Los ejemplos del grupo alquilo  $R^1$  y  $R^2$  incluyen un grupo metilo, un grupo etilo, un grupo n-propilo, un grupo isopropilo, diversos grupos butilo, diversos grupos pentilo, diversos grupos hexilo, diversos grupos heptilo y diversos grupos octilo. El término "diversos" tal como se usa en el presente documento significa "lineal" o "ramificado".

15 La oración " $R^1$  y  $R^2$  pueden formar un anillo de ciclopentano o un anillo de ciclohexano a través de un átomo de carbono adyacente a los mismos" tal como se usa en el presente documento significa que " $R^1$  puede unirse a  $R^2$  a través del átomo de carbono, o  $R^2$  puede unirse a  $R^1$  a través del átomo de carbono, para formar un anillo de 5 elementos o un anillo de 6 elementos". Ahora bien, los átomos de hidrógeno unidos a los átomos de carbono que constituyen el anillo de 5 elementos o el anillo de 6 elementos pueden sustituirse por un grupo hidrocarburo tal como un grupo alquilo o grupo alqueno que tiene de 1 a 5 átomos de carbono.

20 Los ejemplos específicos del compuesto (1) incluyen

2-(1-hidroxiopropil)-ciclopentanona, 2-(1-hidroxibutil)-ciclopentanona,

25 2-(1-hidroxipentil)-ciclopentanona, 2-(1-hidroxihexil)-ciclopentanona,

2-(1-hidroxiheptil)-ciclopentanona,

30 2-(1-hidroxi-1-metilbutil)-ciclopentanona,

2-(1-hidroxi-2-metilbutil)-ciclopentanona,

2-(1-hidroxiciclopentil)-ciclopentanona,

35 2-(1-hidroxiciclohexil)-ciclopentanona, 2-(1-hidroxiopropil)-ciclohexanona,

2-(1-hidroxibutil)-ciclohexanona, 2-(1-hidroxipentil)-ciclohexanona,

40 2-(1-hidroxihexil)-ciclohexanona, 2-(1-hidroxiheptil)-ciclohexanona,

2-(1-hidroxi-1-metilbutil)-ciclohexanona,

2-(1-hidroxi-2-metilbutil)-ciclohexanona,

45 2-(1-hidroxiciclopentil)-ciclohexanona y

2-(1-hidroxiciclohexil)-ciclohexanona.

50 Entre estos compuestos (1), se prefieren

2-(1-hidroxiopropil)-ciclopentanona, 2-(1-hidroxibutil)-ciclopentanona,

2-(1-hidroxipentil)-ciclopentanona y 2-(1-hidroxihexil)-ciclopentanona,

55 y se prefiere especialmente 2-(1-hidroxipentil)-ciclopentanona.

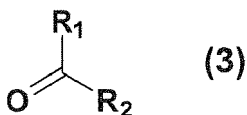
Los ejemplos específicos del compuesto (2) incluyen 2-propilciclopentanona, 2-butilciclopentanona, 2-pentilciclopentanona, 2-hexilciclopentanona, 2-heptilciclopentanona, 2-(1-metilbutil)-ciclopentanona, 2-(2-metilbutil)-ciclopentanona, 2-ciclopentilciclopentanona, 2-ciclohexilciclopentanona, 2-propilciclohexanona, 2-butilciclohexanona, 2-pentilciclohexanona, 2-hexilciclohexanona, 2-heptilciclohexanona, 2-(1-metilbutil)-ciclohexanona, 2-(2-metilbutil)-ciclohexanona, 2-ciclopentilciclohexanona y 2-ciclohexilciclohexanona.

60 Entre estos compuestos (2), se prefieren 2-propilciclopentanona, 2-butilciclopentanona, 2-pentilciclopentanona y 2-hexilciclopentanona, y se prefiere especialmente 2-pentilciclopentanona.

65 [Procedimiento para la producción del compuesto (1)]

El compuesto (1) puede producirse por procedimientos conocidos. Por ejemplo, el compuesto (1) puede producirse haciendo reaccionar una cicloalcanona que tiene 5 ó 6 átomos de carbono con un aldehído o una cetona representada por la siguiente fórmula (3).

En la presente invención, el compuesto (1) producido por el procedimiento anterior puede usarse tal cual sin purificar, pero también puede purificarse antes de su uso por destilación, etc.



en la que  $\text{R}^1$  y  $\text{R}^2$  son los definidos anteriormente.

[Procedimiento para la producción del compuesto (2)]

En la presente invención, se produce el compuesto (2), que es el producto deseado, sometiendo el compuesto (1) a una reacción de deshidratación e hidrogenación en una corriente de gas hidrógeno a una presión de entre 20 y 200 kPa (presión absoluta) en presencia de un ácido y un catalizador de metal del grupo del platino.

<Ácido>

En la presente invención, como ácido, puede usarse un ácido inorgánico, un ácido orgánico y un ácido sólido, etc.

(Ácido inorgánico y ácido orgánico)

El ácido inorgánico y el ácido orgánico usados en la presente invención pueden ser ácidos inorgánicos y orgánicos habituales. Los ejemplos específicos del ácido incluyen ácidos inorgánicos tales como ácido clorhídrico, ácido sulfúrico, ácido fosfórico, ácido ortofosfórico, y ácidos fosfóricos condensados tales como ácido metafosfórico, ácido pirofosfórico y ácido tripolifosfórico; y ácidos orgánicos tales como ácido acético, ácido oxálico, ácido cítrico, ácido maleico, ácido fumárico, ácido málico, ácido p-toluenosulfónico y ácido metanosulfónico.

Entre estos ácidos, desde el punto de vista de suprimir una reacción de polimerización como reacción secundaria y reducir la carga del coste de las instalaciones, se prefieren aquellos ácidos que tienen una primera constante de disociación del ácido (pKa) de 0 o más y preferentemente de 0,5 o más, medida a 25°C. Más específicamente, como ácidos preferidos, pueden mencionarse el ácido fosfórico (primera pKa: 2,15), los ácidos fosfóricos condensados tales como ácido pirofosfórico (primera pKa: 0,8) y ácido tripolifosfórico, y los ácidos orgánicos que incluyen, por ejemplo, los ácidos monocarboxílicos alifáticos que tienen de 2 a 8 átomos de carbono tales como ácido acético (pKa: 4,56), ácido láctico (pKa: 3,66), ácido valérico (pKa: 4,64) y ácido octanoico (pKa: 4,89), los ácidos tricarboxílicos o dicarboxílicos alifáticos que tienen de 2 a 8 átomos de carbono tales como ácido oxálico (primera pKa: 1,04), ácido cítrico (primera pKa: 2,87), ácido maleico (primera pKa: 1,75), ácido fumárico (primera pKa: 2,85), ácido málico (primera pKa: 3,24) y ácido adípico (primera pKa: 4,26), y los ácidos carboxílicos aromáticos tales como ácido benzoico (pKa: 4,20) y ácido ftálico (primera pKa: 2,95).

Además, desde el punto de vista del punto de la ebullición, los más preferidos son el ácido fosfórico, los ácidos fosfóricos condensados tales como ácido pirofosfórico y ácido tripolifosfórico, y los ácidos orgánicos tales como ácido oxálico, ácido cítrico, ácido maleico, ácido fumárico y ácido málico, y se prefieren especialmente el ácido fosfórico y el ácido oxálico.

La constante de disociación del ácido (pKa) tal como se usa en la presente invención se describe, por ejemplo, en "Chemical Handbook", The Chemical Society of Japan (3ª edición revisada, publicado por Maruzen K.K. el 25 de junio de 1984).

Estos ácidos pueden incluirse sobre un portador. Los ejemplos del portador incluyen sílice y carbón activado. Entre estos portadores, se prefiere el carbón activado. El ácido puede incluirse sobre el portador por el procedimiento en el que se impregna el portador con el ácido, o por el procedimiento en el que se añade ácido fosfórico que penetra en un material de madera (tal como serrín y virutas de madera) a una alta temperatura mientras se suprime la generación de alquitrán para permeabilizar las fibras del material de madera, y entonces se somete el material de madera así tratado a reacción de carbonización a una temperatura de entre 500 y 700 °C al aire libre para obtener un carbón activado que porta ácido fosfórico (también denominado "carbón activado con ácido fosfórico"). Entre estos portadores que portan ácidos, se prefiere especialmente el carbón activado que porta ácido fosfórico.

Un ácido de este tipo incluido sobre el portador puede manejarse de la misma manera que los ácidos sólidos mencionados a continuación, y se separa y elimina fácilmente de la mezcla de reacción.

Estos ácidos pueden usarse solos o combinando dos o más cualesquiera de los mismos.

(Ácido sólido)

- 5 Como ácido sólido, pueden usarse ácidos sólidos conocidos convencionalmente. Los ejemplos específicos de ácido sólido incluyen sólidos metálicos inorgánicos tales como alumina activada, sulfato de circonio, fosfatos metálicos, dihidrotrifosfato de aluminio y óxido de titanio; resinas de intercambio catiónico; y óxido compuesto de titanio-sílice, óxido compuesto de óxido de calcio-sílice, zeolita y óxido compuesto de magnesio-sílice y zeolita.
- 10 El ácido sólido usado en la presente invención satisface preferentemente una condición de este tipo, en la que la cantidad (mmol/g) de sitios ácidos del ácido sólido de los que se desorbe el amoníaco (NH<sub>3</sub>) a una temperatura de entre 100 y 250 °C es mayor que la cantidad (mmol/g) de sitios ácidos del ácido sólido de los que se desorbe el NH<sub>3</sub> a una temperatura superior a 250 °C, medidas por un procedimiento de desorción a temperatura programada (TPD) del amoníaco. La cantidad de sitios ácidos del ácido sólido de los que se desorbe NH<sub>3</sub> a una temperatura de entre 100 y 250 °C es preferentemente de 0,3 mmol/g o más, mientras que la cantidad de sitios ácidos del ácido sólido de los que se desorbe NH<sub>3</sub> a una temperatura mayor de 250 °C es preferentemente menor de 0,3 mmol/g.

20 En el procedimiento de TPD anterior, la cantidad de sitios ácidos del ácido sólido se determina en términos de cantidad relativa basada en la cantidad (0,99 mmol/g) de sitios ácidos de la zeolita "JRC-Z5-25H" como catalizador de referencia recomendado por la Sociedad de Catálisis de Japón que se mide a un pico alto (pico en el lado de alta temperatura entre dos tipos de picos observados). El pico se detecta mediante determinación cuantitativa del amoníaco usando un fragmento m/e=16 del espectro de masas del amoníaco.

25 Puede medirse la TPD (desorción a temperatura programada de amoníaco) mediante un procedimiento habitual usado generalmente para esto. Por ejemplo, puede llevarse a cabo la medición de la TPD tras someter secuencialmente el ácido a un pretratamiento, un tratamiento de absorción de NH<sub>3</sub> y un tratamiento a vacío en las siguientes condiciones.

30 Pretratamiento: se aumenta la temperatura hasta 200 °C en helio durante 20 min, y se mantiene a la misma temperatura durante 1 h;

tratamiento de absorción de NH<sub>3</sub>: se absorbe el NH<sub>3</sub> a 50 °C y 2,7 kPa durante 10 min;

35 tratamiento a vacío: tratado a 50 °C durante 4 h; y

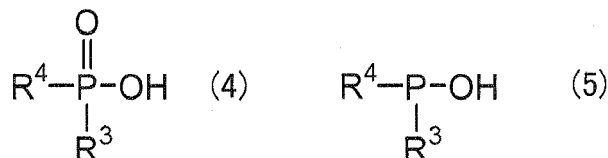
medición de la TPD: mientras se hace circular gas helio con un caudal de 50 ml/min, se aumenta la temperatura hasta 600 °C a una velocidad de 5 °C/min.

40 Como ácido sólido que tiene una distribución de sitios ácidos de este tipo, se usan preferentemente, por ejemplo, aquellos ácidos sólidos que tienen al menos una de las siguientes estructura (A), estructura (B) y átomo de metal (C). Entre estos ácidos sólidos, se prefieren los ácidos sólidos que tienen la estructura (A) y el átomo de metal (C), los ácidos sólidos que tienen la estructura (B) y el átomo de metal (C), y los ácidos sólidos que tienen la estructura (A), la estructura (B) y el átomo de metal (C).

45 • Estructura (A): estructura en la que se elimina un átomo de hidrógeno de al menos un grupo OH contenido en un ácido fosfórico inorgánico.

50 • Estructura (B): estructura en la que se elimina un átomo de hidrógeno de al menos un grupo OH contenido en un ácido fosfórico orgánico representada por la siguiente fórmula general (4) o (5).

• Átomo de metal (C): uno o más átomos de metal seleccionados del grupo que consiste en aluminio, galio y hierro.



55 en las que R<sup>3</sup> y R<sup>4</sup> se seleccionan cada uno de R<sup>6</sup>, OR<sup>6</sup>, OH y H con la condición de que al menos uno de R<sup>3</sup> y R<sup>4</sup> sea R<sup>6</sup> u OR<sup>6</sup> en los que R<sup>6</sup> es un grupo orgánico tenga de 1 a 22 átomos de carbono.

60 Como estructura (A), pueden mencionarse las estructuras derivadas del ácido ortofosfórico, de ácidos fosfóricos condensados tales como ácido metafosfórico y ácido pirofosfórico, etc. Entre estas estructuras, desde el punto de vista de buena realización, se prefiere la estructura (A) derivada del ácido ortofosfórico.

Los ejemplos del ácido fosfórico orgánico representado por la fórmula general (4) o (5) en la estructura (B) incluyen ácido fosfónico, monoésteres de ácido fosfónico, ácido fosfínico, monoésteres de ácido fosfórico, diésteres de ácido fosfórico, monoésteres de ácido fosforoso y diésteres de ácido fosforoso. Entre estas estructuras, se prefiere la estructura (B) derivada de ácido fosfónico.

R<sup>6</sup> es preferentemente un grupo orgánico que tiene preferentemente de 1 a 15 átomos de carbono y más preferentemente de 1 a 8 átomos de carbono. Los ejemplos del grupo orgánico R<sup>6</sup> incluyen grupos alquilo tales como un grupo metilo, un grupo etilo, un grupo propilo, un grupo isopropilo, diversos grupos butilo, diversos grupos pentilo, diversos grupos hexilo y diversos grupos octilo; y grupos arilo tales como un grupo fenilo y un grupo 3-metilfenilo.

Como átomo de metal (C), se prefiere aluminio desde por su buen resultado y/o bajo coste.

Ahora bien, para mejorar la selectividad y otras características, el átomo de metal (C) puede contener una pequeña cantidad de otro átomo de metal aparte de aluminio, galio y hierro. Además, no se requiere necesariamente que todo el átomo de metal (C) contenido en el catalizador esté unido a la estructura (A) o (B), y solo una parte del átomo de metal (C) puede estar presente en forma de un óxido de metal o un hidróxido de metal.

El ácido sólido puede producirse por un procedimiento de precipitación, un procedimiento de impregnar un óxido de metal o un hidróxido de metal con un ácido fosfórico inorgánico y un ácido fosfórico orgánico, un procedimiento de sustituir un grupo de ácido fosfórico inorgánico contenido en un gel de fosfato de aluminio inorgánico con un grupo ácido fosfórico orgánico, etc. Entre estos procedimientos, se prefiere el procedimiento de precipitación.

Tras la producción de ácido sólido, puede permitirse que un portador que tiene una gran área superficial coexista con el mismo para obtener un catalizador soportado. Los ejemplos de portador incluyen sílice, alúmina, sílice/alúmina, titanio, circonio, tierra de diatomeas y carbón activado. Cuando se usa el portador en una cantidad excesiva, la actividad catalítica del catalizador soportado resultante tiende a deteriorarse debido al bajo contenido del componente activo. Por tanto, el contenido del portador en el catalizador es preferentemente del 90 % en masa o menos.

El ácido sólido puede estar en forma de o bien un polvo o bien un producto moldeado. Además, los ácidos sólidos pueden tener respectivamente la misma composición o pueden usarse combinando dos o más tipos de los mismos que tienen diferente composición entre sí.

Los ácidos inorgánicos, ácidos orgánicos y ácidos sólidos anteriores pueden usarse respectivamente solos o combinando dos o más cualesquiera de los mismos. Cuando se usa el ácido sólido solo, puede omitirse la etapa de neutralización.

La cantidad de ácido usada es preferentemente del 0,0001 % en masa o más en base al compuesto (1) como materia prima para conseguir una buena reactividad. Por otro lado, para suprimir la aparición de polimerización y de este modo potenciar el rendimiento del producto deseado, la cantidad de ácido usada es preferentemente del 25 % en masa o menos. Teniendo en cuenta estos dos factores anteriores, la cantidad de ácido usada es más preferentemente desde entre el 0,001 y el 12 % en masa y todavía más preferentemente entre el 0,01 y el 6 % en masa.

<Catalizador de metal del grupo del platino>

El catalizador de metal del grupo del platino usado en la presente invención contiene uno o más componentes de metal que se seleccionan del grupo que consiste en osmio (Os), rutenio (Ru), iridio (Ir), rodio (Rh), platino (Pt) y paladio (Pd) que pertenecen a los elementos de los grupos de 8 a 10 en los periodos 5<sup>o</sup> y 6<sup>o</sup> de la tabla periódica como componentes principales. Entre estos componentes de metal, se prefieren Pt y Pd por su actividad catalítica, etc.. Estos componentes de metal pueden usarse solos o combinando dos o más cualesquiera de los mismos. La expresión "que contiene los componentes de metal como componentes principales" tal como se usa en el presente documento significa que los componentes de metal están contenidos preferentemente en una cantidad del 50 % en moles o más, más preferentemente del 70 % en moles o más, todavía más preferentemente del 90 % en moles o más, y además todavía más preferentemente el 95 % en moles o más basándose en todos los componentes del catalizador de metal.

El catalizador de metal del grupo del platino puede contener también otros componentes de metal o puede contener un cocatalizador solo en una cantidad auxiliar. Los ejemplos de otros componentes de metal incluyen elementos de los grupos de 4 a 11 del periodo 4<sup>o</sup> de la tabla periódica tales como Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni y Cu, así como W, Ag y Au.

El catalizador puede formarse en una configuración apropiada tal como de tipo soportado, de tipo Raney, de tipo disolución, de tipo polvo y de tipo gránulo cuando se usa en el procedimiento.

- 5 El catalizador de tipo soportado es un catalizador del tipo en el que los componentes de metal se incluyen en un portador con el propósito de mejorar las propiedades físicas del mismo como la durabilidad. El catalizador de tipo soportado puede prepararse por procedimientos conocidos tales como un procedimiento de precipitación, un procedimiento de intercambio iónico, un procedimiento de evaporación hasta sequedad, un procedimiento de secado por pulverización y un procedimiento de amasado. Los ejemplos de portador incluyen carbono (carbón activado), alúmina, sílice, sílice-alúmina, sulfato de bario y carbonato de calcio. Entre estos portadores, se prefieren carbono (carbón activado), sílice, alúmina y sílice-alúmina.
- 10 Los ejemplos específicos del catalizador de paladio o catalizador de platino usados como catalizador de tipo soportado incluyen paladio sobre carbono, paladio sobre alúmina, paladio sobre sulfato de bario, paladio sobre carbonato de calcio, platino sobre carbono, platino sobre alúmina, platino sobre sulfato de bario y platino sobre carbonato de calcio. Entre estos catalizadores de tipo soportado, se prefieren paladio sobre carbono y paladio sobre alúmina porque estos catalizadores tienen una reactividad alta y pueden recuperarse fácilmente de la mezcla de reacción cuando se ha completado la reacción, y se prefiere especialmente paladio sobre carbono por su buena disponibilidad, facilidad de manejo y reactividad alta.
- 15 La cantidad de los componentes de metal incluida en el portador del catalizador de tipo soportado es habitualmente de entre aproximadamente el 0,1 y aproximadamente el 70 % en masa basándose en la cantidad total de portador y componentes de metal soportados del mismo para conseguir una buena actividad catalítica.
- 20 El catalizador de tipo Raney es un catalizador de metal esponjoso poroso, y puede prepararse, por ejemplo, por el procedimiento descrito en Teruo KUBOMATSU y Shinichiro KOMATSU "Raney Catalysts", Kyoritsu-Shuppan (1971), etc.
- 25 Cuando se usa el catalizador de tipo disolución, puede añadirse una disolución acuosa que contiene una sal metálica de un ácido inorgánico tal como, por ejemplo, ácido nítrico y ácido clorhídrico, o una disolución acuosa mezcla de diversas sales metálicas, gota a gota al sistema de reacción.
- 30 Sin embargo, para este tipo de catalizador pueden usarse también productos disponibles comercialmente.
- 35 La cantidad de catalizador de metal del grupo del platino que se usa en el procedimiento anterior puede optimizarse según el tipo de reacción.
- 40 En el caso de una reacción de tipo discontinuo, para conseguir una buena reactividad y rentabilidad, el catalizador de metal del grupo del platino se usa preferentemente en una cantidad de entre el 0,0002 y el 3 % en masa, más preferentemente desde el 0,002 hasta el 2 % en masa y todavía más preferentemente desde el 0,005 hasta el 1 % en masa en términos de cantidad de metal basada en el compuesto (1) como materia prima.
- 45 El ácido y el catalizador de metal del grupo del platino pueden usarse respectivamente en formas separadas o pueden usarse como catalizador integrado que tiene una configuración. Por ejemplo, si el catalizador de metal del grupo del platino está incluido en un portador ácido, no es necesario añadir otro ácido por separado.
- 50 El ácido y el catalizador de metal del grupo del platino pueden usarse también o bien en un lecho suspendido o bien en un lecho fijo.
- 55 La reacción en lecho fijo usando el ácido incluido en el portador o el ácido sólido es eficaz para la producción en masa del compuesto deseado porque no se requiere la etapa de separar el catalizador, etc., del producto de reacción final.
- 60 Incluso en la reacción de lecho suspendido, siempre que se use el ácido sólido en la misma, puede separarse fácilmente el catalizador, etc., por filtración, etc., de la disolución de reacción, y el catalizador así separado puede reciclarse adecuadamente.
- <Reacción de deshidratación e hidrogenación>
- 65 La reacción de deshidratación e hidrogenación puede llevarse a cabo usando el ácido y catalizador de metal del grupo del platino anteriores con un flujo de gas hidrógeno a una presión de entre 20 y 200 kPa (presión absoluta).
- El gas hidrógeno puede usarse en forma de gas hidrógeno solo o en una mezcla gaseosa de gas hidrógeno y un gas inerte, y se usa preferentemente en forma de gas hidrógeno solo. Cuando se usa la mezcla gaseosa de gas hidrógeno y un gas inerte, la concentración de gas hidrógeno presente en la misma es preferentemente del 45 % o más, más preferentemente del 60 % o más, y todavía más preferentemente del 80 % o más. Como gas inerte, se prefieren el gas nitrógeno, el gas argón y el gas helio, y se prefiere más el gas nitrógeno.
- La frase "en una corriente de gas hidrógeno" tal como se usa en el presente documento significa una condición de este tipo, en la que se introduce un gas que contiene hidrógeno de manera continua o intermitente en la mezcla de

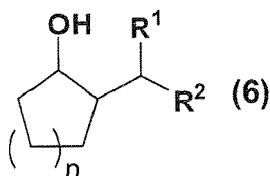


reacción, y el excedente de gas hidrógeno que no se consume en la reacción y/o el gas que contiene vapor de agua producido durante la reacción se descarga de manera continua o intermitente de la mezcla de reacción y a su vez del aparato de reacción.

5 La temperatura de reacción usada en la reacción de deshidratación e hidrogenación es preferentemente de entre 70 y 300 °C, más preferentemente de entre 90 y 200 °C, todavía más preferentemente de entre 100 y 170 °C, y de manera especialmente preferente de entre 130 y 160 °C con el objetivo de completar la reacción en un periodo de tiempo corto y evitar la aparición de polimerización o descomposición de la materia prima y del producto intermedio para mejorar el rendimiento del producto deseado.

10 En la reacción de deshidratación e hidrogenación, puede producirse como subproducto el compuesto representado por la siguiente fórmula general (6) que se forma por reducción de un grupo carbonilo del compuesto deseado (2) (en lo sucesivo también denominado simplemente "compuesto (6)").

15 Por tanto, con el fin de inhibir la producción del compuesto (6) y de mejorar el rendimiento del compuesto deseado, la reacción se lleva a cabo preferentemente en el intervalo de presión de entre presión reducida y presión aplicada baja. La presión de reacción puede variar dependiendo de la temperatura de reacción, y está preferentemente en el intervalo de entre 20 y 200 kPa (presión absoluta), más preferentemente entre 50 y 150 kPa (presión absoluta), todavía más preferentemente entre 70 y 120 kPa (presión absoluta), y de manera especialmente preferente a  
20 presión atmosférica.



25 en la que n, R<sup>1</sup> y R<sup>2</sup> son los definidos anteriormente.

30 En el procedimiento de la presente invención, se produce agua en la reacción de deshidratación e hidrogenación y está contenida en el sistema de reacción. Haciendo circular gas hidrógeno a través del sistema de reacción, es posible descargar el agua producida durante la reacción fuera del sistema de reacción de manera eficaz. Además, realizando la reacción en una corriente de gas hidrógeno para extraer el agua producida durante la reacción del sistema de reacción, se consigue que la reacción de deshidratación e hidrogenación tenga lugar incluso a presiones casi normales como 200 kPa (presión absoluta) o menos, incluso aunque la reacción no se lleve a cabo en condiciones de alta presión (1,08 MPa (presión absoluta)) tal como se describe en los ejemplos del documento de patente 4 (JP 61-5038A), de manera que puede evitarse que se produzca el compuesto (6) como subproducto debido a la presión tan baja.

35 La cantidad de gas hidrógeno introducido en el sistema de reacción es preferentemente de desde 1 hasta 1000 N-ml/h, más preferentemente desde 5 hasta 500 N-ml/h, y todavía más preferentemente desde 10 hasta 100 N-ml/h por 1 g del compuesto (1) para conseguir una correcta velocidad de consumo de hidrógeno durante la reacción y buena rentabilidad. Sin embargo, cuando la cantidad de hidrógeno introducida en el sistema de reacción sea menor que la cantidad de hidrógeno consumida durante la reacción, puede darse el caso en el que el gas descargado del sistema de reacción no contenga hidrógeno.

(Aparato de reacción)

45 El aparato de reacción usado en el procedimiento de la presente invención no está particularmente limitado siempre que cuando vaya avanzando la reacción, el excedente de gas hidrógeno y/o el vapor de agua producido puedan eliminarse del sistema de reacción y a la vez se pueda introducir gas hidrógeno en el sistema de reacción, y además puedan aplicarse las otras condiciones de reacción definidas en la presente invención al mismo. El aparato de reacción puede ser o bien un aparato de reacción de tipo discontinuo o bien un aparato de reacción de tipo tubular  
50 continuo. Para reducir el coste de los aparatos, se usa preferentemente el aparato de reacción de tipo discontinuo.

<Disolvente>

55 El procedimiento de la presente invención puede llevarse a cabo o bien en presencia de un disolvente o bien en condiciones libres de disolvente. El procedimiento de la presente invención se lleva a cabo ventajosamente en condiciones libres de disolvente para una mejor productividad y rentabilidad.

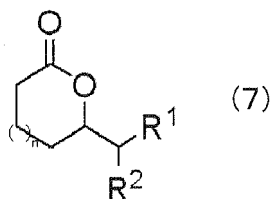
60 El disolvente usado en el procedimiento de la presente invención no está particularmente limitado, y puede ser un disolvente orgánico inerte. Los ejemplos de disolvente orgánico inerte incluyen alcoholes tales como metanol, etanol, propanol, isopropanol, isobutanol, terc-butanol, n-butanol, 2-butanol, isopentanol, pentanol, hexanol, 2-etilbutanol,

heptanol, 2-heptanol, octanol, 2-octanol, ciclopentanol, ciclohexanol, etilenglicol, propilenglicol, monoetil éter de etilenglicol, monopropil éter de etilenglicol, monoetil éter de propilenglicol, dietilenglicol, monometil éter de dietilenglicol, alcohol bencílico y feniletanol; cetonas tales como metil etil cetona, metil isopropil cetona, metil propil cetona, metil isobutil cetona, metil n-butil cetona, metil n-amil cetona, metil isoamil cetona, etil butil cetona, metil n-hexil cetona, dipropil cetona, diisobutil cetona, ciclopentanona y ciclohexanona; éteres tales como isopropil éter, n-butil éter, 1,4-dioxano, isoamil éter, n-hexil éter, tetrahidropiran-2-metilfurano, dietil éter de dietilenglicol, metil fenil éter y etil fenil éter; ésteres tales como formiato de n-metilo, formiato de n-propilo, formiato de n-butilo, acetato de metilo, acetato de isopropilo, acetato de n-butilo, acetato de n-amilo, acetato de n-hexilo, acetato de ciclohexilo, propionato de etilo, propionato de n-butilo, butirato de metilo, butirato de n-butilo, isovalerato de metilo, lactato de etilo, benzoato de metilo, benzoato de propilo, ftalato de dimetilo, oxalato de dietilo, succinato de dimetilo, glutarato de dimetilo y adipato de dimetilo; e hidrocarburos tales como n-hexano, n-octano, n-decano, éter de petróleo, ciclohexano, benceno, tolueno, xileno, etilbenceno, isopropilbenceno, amilbenceno, t-butilbenceno, p-cimeno, tetralina y decalina.

Estos disolventes pueden usarse solos o combinando dos o más cualesquiera de los mismos.

La cantidad de disolvente usada en el procedimiento de la presente invención es preferentemente de entre 0,1 y 5 veces en masa y más preferentemente entre 0,3 y 2 veces en masa basándose en el compuesto (1) como materia prima.

El compuesto (2) obtenido en la primera etapa del procedimiento de la invención se somete además a la reacción de oxidación de Baeyer-Villiger usando un ácido peracético o similar como agente oxidante (es decir, una reacción de oxidación de este tipo en la que se hacen reaccionar una cetona y un ácido percarboxílico para insertar un átomo de oxígeno en una posición adyacente a un grupo carbonilo de la cetona y obteniendo de este modo un éster de ácido carboxílico), por ejemplo, tal como se describe en el documento JP 9-104681A, produciendo de este modo una lactona representada por la siguiente fórmula general (7) (5-alkuil-5-alkanólido o 6-alkuil-6-alkanólido) que es útil como material de perfume.



en la que n, R<sup>1</sup> y R<sup>2</sup> son los definidos anteriormente.

La etapa de reacción de oxidación se llevó a cabo posteriormente a la anterior etapa de reacción de deshidratación e hidrogenación como etapa de reacción previa. El compuesto (2) puede someterse a tratamiento de purificación antes de someterse a la etapa de reacción de oxidación. Sin embargo, la etapa de reacción de oxidación se lleva a cabo preferentemente tras eliminar solo el catalizador de la mezcla de reacción obtenida en la etapa de reacción de deshidratación e hidrogenación para una mayor conveniencia y control de la reacción. Cuando se usa catalizador de metal noble soluble en la etapa de reacción previa, puede añadirse un absorbente para eliminar el catalizador de la mezcla de reacción. También, cuando se usa el catalizador de ácido soluble en la etapa de reacción previa, puede añadirse una base para neutralizar el catalizador o puede añadirse un absorbente para eliminar el catalizador de la mezcla de reacción. Además, cuando se usa el catalizador sólido en la etapa de reacción previa, puede eliminarse el catalizador de la mezcla de reacción mediante un procedimiento de separación sólido-líquido tal como filtración y separación por centrifugación.

La 2-alkuilcicloalcanona como sustrato de la reacción de oxidación anterior tiene preferentemente una estructura de anillo que corresponde a la representada por la fórmula general (7) en la que n es 1 ó 2, es decir, tiene un anillo de ciclopentanona o un anillo de ciclohexanona que puede proporcionar el correspondiente 5-alkuil-5-alkanólido o 6-alkuil-6-alkanólido.

El grupo alquilo como R<sup>1</sup> o R<sup>2</sup> en la 2-alkuilcicloalcanona es preferentemente hidrógeno o un grupo alquilo lineal o ramificado que tiene de 1 a 8 átomos de carbono. Se prefiere especialmente que uno de R<sup>1</sup> y R<sup>2</sup> sea hidrógeno y el otro de R<sup>1</sup> y R<sup>2</sup> sea un grupo alquilo que tiene de 4 a 7 átomos de carbono.

Como agente oxidante, pueden usarse diversos tipos de ácidos percarboxílicos. Para conseguir una alta reactividad y facilitar la etapa de purificación, pueden usarse de manera adecuada ácido metacloroperbenzoico y ácido peracético como agente oxidante. Además, en lugar de usar el ácido percarboxílico en sí, puede usarse también una mezcla de un ácido carboxílico y peróxido de hidrógeno para generar posteriormente el ácido percarboxílico en el sistema de reacción.

La cantidad de ácido percarboxílico usada en la reacción de oxidación no está particularmente limitada, y es

preferentemente de entre 0,9 y 2,0 mol por 1 mol de la 2-alkilcicloalcanona como sustrato.

La etapa de reacción de oxidación puede llevarse a cabo sin usar ningún disolvente. Sin embargo, para facilitar el mezclado y controlar la velocidad de reacción, se usa preferentemente el disolvente en la etapa de reacción de oxidación. Como disolvente, pueden usarse los disolventes habituales excepto las cetonas que son susceptibles a la reacción de oxidación. Cuando se usa un disolvente en la etapa de reacción de deshidratación e hidrogenación como etapa de reacción previa, puede usarse el disolvente tal cual en la etapa de reacción de oxidación posterior. Cuando se usa peróxido de hidrógeno y ácido carboxílico, estos compuestos pueden hacerse reaccionar en un sistema de dos fases que incluye una fase acuosa y una fase oleosa.

La temperatura de la reacción de oxidación es preferentemente de entre 10 y 90 °C y más preferentemente entre 40 y 80 °C para conseguir obtener un producto de reacción de alta pureza.

Cuando se ha completado la reacción de oxidación, se somete el producto de reacción resultante a un tratamiento de purificación para obtener de este modo una lactona útil para aromas, materiales de perfume para cosméticos, etc.

### Ejemplos

En los siguientes ejemplos y ejemplos comparativos, el término “%” representa “% en masa” a no ser que se especifique lo contrario. Además, todas las presiones de reacción usadas a continuación en el presente documento representan la presión atmosférica (101 kPa; presión absoluta).

Se llevó a cabo la determinación cuantitativa de los respectivos productos de reacción mediante cromatografía de gases (CG) (“6890N” con una columna “DB-1” (30 m x 0,25 mm x 0,25 µm) disponible de Agilent Technology Corp.; horno: 100 °C → 5 °C/min → 210 °C → 20 °C/min → 280 °C (mantenido durante 4,5 min) (total 30 min); vehículo: He; caudal: 1,6 ml/min; temperatura de entrada: 200 °C; temperatura del detector (FID) : 280 °C; cantidad cargada: 1 µl; fraccionamiento: 100:1) de acuerdo con un procedimiento interno convencional (patrón interno: undecano (pureza: 99 %; disponible de Nacalai Tesque, Inc.)).

#### Ejemplo de síntesis 1 (síntesis de 2-(1-hidroxipentil)-ciclopentanona)

Se cargó un recipiente de reacción de 6 m<sup>3</sup> equipado con un tanque de adición con 2241 kg (26,6 kmol) de ciclopentanona, 1007 kg de agua y 11 kg de NaOH al 48%. Se enfrió el contenido del recipiente de reacción hasta 15 °C mientras se agitaba, y luego le se añadieron 985 kg (11,4 kmol) de valeraldehído gota a gota a la misma temperatura durante 5 h, seguido por la agitación de la mezcla resultante durante 1 h. Una vez completada la reacción, se neutralizó la mezcla de reacción resultante, y se recuperó la cantidad en exceso de ciclopentanona por destilación. Como resultado, se confirmó que 1868 kg del producto de reacción final obtenido de la capa orgánica de la mezcla de reacción contenía 1706 kg de 2-(1-hidroxipentil)-ciclopentanona.

#### Ejemplo 1

Se cargó un matraz separable de tres bocas de 200 ml (de vidrio) equipado con un tubo de deshidratación con 93,5 g (0,51 mol) de 2-(1-hidroxipentil)-ciclopentanona (pureza: 91 %) obtenida en el ejemplo de síntesis 1, 1,93 g de carbón activado que porta ácido fosfórico (H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>/C; disponible de Taihei Chemical Industrial Co., Ltd.; polvo, producto hidratado al 22,1 %; contenido en fósforo: 0,012 (obtenido por análisis elemental)), y 7,42 g (peso en seco: 4,35 g) de Pd/C al 5 %/C (disponible de Evonik Degussa Japan Co., Ltd.; polvo, producto hidratado al 58,6 %). Se calentó el contenido del matraz hasta 140 °C mientras se mezclaba a una presión de 101 kPa (presión absoluta) mientras se hacía circular gas hidrógeno (soplando el gas hidrógeno en la disolución de reacción a un caudal de 12 N-ml/h por 1 g de contenido puro de 2-(1-hidroxipentil)-ciclopentanona como materia prima). Tras alcanzar 140 °C, se hizo reaccionar la disolución de reacción durante 20 h. Cuando se completó la reacción, se sometió el producto de reacción final a determinación cuantitativa por CG. Así se confirmó que se produjeron 0,50 mol de 2-pentil-2-ciclopentanona con un rendimiento del 98 %. Sin embargo, no se detectó 2-pentilciclopentanol como subproducto con un grupo carbonilo reducido.

#### Ejemplo comparativo de referencia 1

Se cargó un autoclave SUS de 200 ml con 100 g de alcohol de diacetona, 1 g de Pd al 5 %/C y 1 g de una resina de intercambio iónico de ácido fuerte “AMBERLYST (marca registrada) 15” disponible de Rohm & Haas Co., y se hizo reaccionar el contenido del autoclave a una temperatura de 120 °C a una presión de hidrógeno de 1,08 MPa (presión absoluta). Tras el transcurso de aproximadamente 80 min, se observó la absorción de una cantidad predeterminada de hidrógeno. Al analizar la disolución de reacción mediante cromatografía de gases, se confirmó que la tasa de conversión del alcohol de diacetona fue del 94,9 %, y la selectividad de la metil isobutil cetona como producto deseado fue del 92,8 %, mientras que la selectividad del metil isobutil carbinol como subproducto con un grupo carbonilo reducido fue del 2,6 %.

#### Ejemplo 2

5 Se cargó un matraz de cuatro bocas de 1 l con 543 g (3,45 mol) de pentilciclopentanona obtenida por el mismo procedimiento que en el ejemplo 1, y luego se sometió el contenido del matraz a destilación usando un recipiente de destilación equipado con una columna Vigreux de 8 cm (temperatura interna del recipiente: 89 °C (alcanzada finalmente); temperatura máxima del recipiente: 80 °C; presión reducida: 500 Pa, 3,8 Torr), obteniendo de este modo una fracción que tiene una pureza del 97,9 %.

10 Se cargó un matraz de cuatro bocas de 2 l equipado con un tubo de enfriamiento, un termómetro y un embudo de adición con 200 g de la pentilciclopentanona obtenida anteriormente, 800 g de tolueno, 1,0 eq. de ácido acético (basándose en el contenido puro de materia prima) y 16 g de agua, y se calentó el contenido del matraz hasta 65 °C. Tras alcanzar 65 °C, se añadieron 173 g (1,4 eq.) de solución acuosa de peróxido de hidrógeno al 35 % gota a gota al matraz durante 1,5 h. Cuando se completó la adición, se calentó el contenido del matraz a 70 °C y se maduró tal cual durante 48 h.

15 Al completar la maduración, se paró la agitación, y se dejó reposar el contenido del matraz y se separó en una capa inferior y una capa superior para extraer y desechar la capa inferior del mismo. Se lavó dos veces la capa superior con 165 g de una disolución acuosa de sulfito de sodio al 10 % para descomponer el perácido que quedaba en la capa superior y eliminar el producto descompuesto del mismo, y posteriormente se lavo dos veces con 100 g de una disolución acuosa de sulfato de sodio al 10 %.

20 La capa superior así lavada se secó con sulfato de magnesio y se filtró, y luego se eliminó el disolvente por destilación del mismo usando un evaporador (alcanzado finalmente los 70 °C /2,7 kPa (20 Torr)). Se confirmó que la tasa de conversión de la materia prima fue del 92 %, y la selectividad de la  $\delta$ -decalactona en el material convertido fue del 86 %. Tras eliminar el disolvente por destilación, se eliminó el componente de alto punto de ebullición de la disolución de reacción por destilación simple, y se sometió la disolución de reacción a tratamiento de rectificación y purificación usando una columna de rectificación de 20 etapas, obteniendo de este modo la  $\delta$ -decalactona con una pureza del 99 %.

30 Aplicabilidad industrial

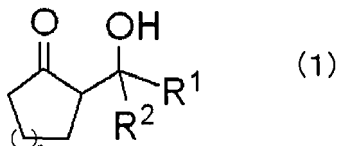
De acuerdo con la presente invención, se proporciona un procedimiento para la producción de lactonas que son útiles como material de perfume para perfumes/cosméticos, aromas o similares de manera eficaz y a bajo coste.

## REIVINDICACIONES

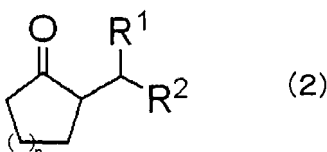
1. Procedimiento para la producción de una lactona, que comprende las etapas de:

5 producir una 2-alkilcicloalcanona representada por la siguiente fórmula general (2) mediante un procedimiento que comprende la etapa de someter una 2-(1-hidroxialquil)-cicloalcanona representada por la siguiente fórmula general (1) a una reacción de deshidratación e hidrogenación en una corriente de gas hidrógeno a una presión de entre 20 y 200 kPa (presión absoluta) en presencia de un ácido y un catalizador de metal del grupo del platino; y luego

10 someter la 2-alkilcicloalcanona a una reacción de oxidación usando un ácido percarboxílico:



15 en la que n es un número entero de 1 ó 2; y R<sup>1</sup> y R<sup>2</sup> son cada uno independientemente un átomo de hidrógeno o un grupo alquilo que tiene de 1 a 8 átomos de carbono con la condición de que R<sup>1</sup> y R<sup>2</sup> puedan formar un anillo de ciclopentano o un anillo de ciclohexano a través de un átomo de carbono adyacente a los mismos, en el que el/los átomo(s) de hidrógeno unido(s) a los átomos de carbono que constituyen dicho anillo de ciclopentano o dicho anillo de ciclohexano puede(n) sustituirse por un grupo hidrocarburo que tiene de 1 a 5 átomos de carbono; y



en la que n, R<sup>1</sup> y R<sup>2</sup> son los definidos anteriormente.

- 25
2. Procedimiento para la producción de una lactona de acuerdo con la reivindicación 1, en el que el ácido tiene una primera constante de disociación del ácido (pKa) de 0 o más, medida a 25°C.
  3. Procedimiento para la producción de una lactona de acuerdo con la reivindicación 1 ó 2, en el que el ácido es ácido fosfórico soportado sobre carbón activado.
  - 30 4. Procedimiento para la producción de una lactona de acuerdo con la reivindicación 1, en el que el ácido es un ácido sólido.
  - 35 5. Procedimiento para la producción de una lactona de acuerdo con la reivindicación 4, en el que la cantidad (mmol/g) de sitios ácidos del ácido sólido de los que se desorbe el NH<sub>3</sub> a una temperatura de entre 100 y 250 °C es mayor que la cantidad (mmol/g) de sitios ácidos del ácido sólido de los que se desorbe NH<sub>3</sub> a una temperatura superior a 250 °C, medidas por el procedimiento de desorción a temperatura programada (TPD) del amoníaco.
  - 40 6. Procedimiento para la producción de una lactona de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 5, en el que el catalizador de metal del grupo del platino es un catalizador que contiene Pd y/o Pt.
  - 45 7. Procedimiento para la producción de una lactona de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 6, en el que la reacción se lleva a cabo a una presión de entre 50 y 150 kPa (presión absoluta).