

19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 744 899**

51 Int. Cl.:

**C10L 1/00** (2006.01)

**C10L 1/185** (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

86 Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **05.11.2013 PCT/US2013/068476**

87 Fecha y número de publicación internacional: **30.05.2014 WO14081556**

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **05.11.2013 E 13792820 (6)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **17.07.2019 EP 2904072**

54 Título: **Marcadores de combustible destilable**

30 Prioridad:

**20.11.2012 US 201261728312 P**

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

**26.02.2020**

73 Titular/es:

**DOW GLOBAL TECHNOLOGIES LLC (100.0%)  
2040 Dow Center  
Midland, MI 48674, US**

72 Inventor/es:

**GREEN, GEORGE DAVID;  
SWEDO, RAYMOND;  
GRAS, RONDA L. y  
LUONG, JIM C.**

74 Agente/Representante:

**ELZABURU, S.L.P**

ES 2 744 899 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

Marcadores de combustible destilable

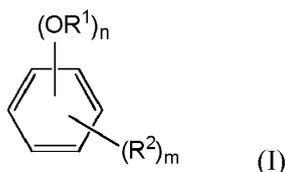
Esta invención se refiere a nuevos compuestos útiles en un método para marcar hidrocarburos líquidos y otros combustibles y aceites.

5 El marcado de hidrocarburos de petróleo y otros combustibles y aceites con varios tipos de marcadores químicos es bien conocido en la técnica. Se han utilizado una variedad de compuestos para este propósito, así como numerosas técnicas para la detección de los marcadores, por ejemplo, espectroscopía de absorción y espectrometría de masas. Por ejemplo, la patente de EE. UU. N° 7,858,373 describe el uso de una variedad de compuestos orgánicos para uso en el marcado de hidrocarburos líquidos y otros combustibles y aceites, el documento WO2012154646 describe compuestos de orto-fenilfenol como marcadores de combustible.

10 Las combinaciones de marcadores pueden usarse como sistemas de marcado digital, con las proporciones de cantidades que forman un código para el producto marcado. Los compuestos adicionales útiles como marcadores de combustible y lubricante serían deseables para maximizar los códigos disponibles. También existe la necesidad de compuestos marcadores adicionales para estos productos que son difíciles de eliminar por destilación del combustible marcado. El problema abordado por esta invención es encontrar marcadores adicionales útiles para marcar hidrocarburos líquidos y otros combustibles y aceites.

## Declaración de invención

La presente invención proporciona un método para marcar un hidrocarburo de petróleo o un combustible líquido derivado biológicamente; dicho método comprende añadir a dicho hidrocarburo de petróleo o combustible líquido derivado biológicamente al menos un compuesto que tiene la fórmula (I)



en donde R<sup>1</sup> es alquilo C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub> o alqueniilo C<sub>2</sub>-C<sub>12</sub>, R<sup>2</sup> es alquilo C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub> o alqueniilo C<sub>3</sub>-C<sub>12</sub>, m es un número entero de cero a cinco y n es un número entero de uno a tres; en donde cada compuesto de fórmula (I) está presente a un nivel de 0,01 ppm a 100 ppm.

## 25 Descripción detallada

Los porcentajes son porcentajes en peso (% en peso) y las temperaturas están en °C, a menos que se especifique lo contrario. Los puntos de ebullición mencionados en el presente documento se miden a presión atmosférica. Las concentraciones se expresan en partes por millón ("ppm") calculadas en peso/peso o en peso/volumen (mg/L); preferiblemente en peso/volumen. El término "hidrocarburo de petróleo" se refiere a productos que tienen una composición predominantemente de hidrocarburos, aunque pueden contener cantidades menores de oxígeno, nitrógeno, azufre o fósforo; los hidrocarburos de petróleo incluyen aceites crudos, así como productos derivados de procesos de refinación de petróleo; incluyen, por ejemplo, petróleo crudo, aceite lubricante, fluido hidráulico, líquido de frenos, gasolina, combustible diésel, queroseno, combustible para aviones y aceite para calefacción. Los compuestos marcadores de esta invención pueden añadirse a un hidrocarburo de petróleo o un combustible líquido derivado biológicamente; ejemplos de estos últimos son combustible biodiésel, etanol, butanol, etil terc-butil éter o mezclas de los mismos. Una sustancia se considera líquida si está en estado líquido a 20 °C. Un combustible biodiésel es un combustible derivado biológicamente que contiene una mezcla de alquilésteres de ácidos grasos, especialmente ésteres metílicos. El combustible biodiésel generalmente se produce por transesterificación de aceites vegetales vírgenes o reciclados, aunque también se pueden usar grasas animales. Un combustible de etanol es cualquier combustible que contiene etanol, en forma pura, o mezclado con hidrocarburos de petróleo, por ejemplo, "gasohol". Un grupo "alquilo" es un grupo hidrocarbilo saturado sustituido o no sustituido que tiene de uno a veintidós átomos de carbono en una disposición lineal, ramificada o cíclica. Se permite la sustitución en grupos alquilo de uno o más grupos OH o alcoxi; se pueden permitir otros grupos cuando se especifique en otra parte del presente documento. Preferiblemente, los grupos alquilo no están sustituidos. Preferiblemente, los grupos alquilo son lineales o ramificados.

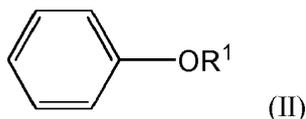
45 Un grupo "alqueniilo" es un grupo alquilo que tiene al menos un doble enlace carbono-carbono. Preferiblemente, los grupos alqueniilo tienen uno o dos dobles enlaces carbono-carbono, preferiblemente uno. Un grupo "arilo" es un sustituyente derivado de un compuesto hidrocarbonado aromático. Un grupo arilo tiene un total de seis a veinte átomos en el anillo, a menos que se especifique lo contrario, y tiene uno o más anillos que están separados o fusionados. Preferiblemente, los compuestos de esta invención contienen elementos en sus proporciones isotópicas naturales.

50 Preferiblemente, R<sup>1</sup> es lineal o ramificado. Preferiblemente, R<sup>2</sup> es lineal o ramificado. Preferiblemente, R<sup>1</sup> es alquilo C<sub>4</sub>-C<sub>12</sub> o alqueniilo C<sub>4</sub>-C<sub>12</sub>, preferiblemente alquilo C<sub>4</sub>-C<sub>12</sub>, preferiblemente alquilo C<sub>4</sub>-C<sub>10</sub>. Preferiblemente, R<sup>2</sup> es alquilo C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub> o alqueniilo, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub> preferiblemente alquilo C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>, preferiblemente alquilo C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>, preferiblemente metilo o etilo.

Preferiblemente, n es uno o dos, preferiblemente uno. Preferiblemente, m es de cero a dos, preferiblemente cero o uno, preferiblemente cero.

Preferiblemente, en la fórmula (I), R<sup>1</sup> es alquilo C<sub>4</sub>-C<sub>12</sub> o alquenilo C<sub>4</sub>-C<sub>12</sub>, preferiblemente alquilo C<sub>4</sub>-C<sub>12</sub>, preferiblemente alquilo C<sub>4</sub>-C<sub>10</sub>; preferiblemente R<sup>2</sup> es alquilo C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub> o alquenilo C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>, preferiblemente alquilo C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>, preferiblemente alquilo C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>, preferiblemente metilo o etilo. Preferiblemente, en la fórmula (I), m es de cero a dos, preferiblemente cero o uno, preferiblemente cero; preferiblemente, n es uno o dos, preferiblemente uno. En una realización preferida, en la fórmula (I), n es dos o tres, R<sup>1</sup> es metilo, R<sup>2</sup> es metilo o está ausente (m = 0) y m es cero o uno; preferiblemente n es dos o tres, R<sup>1</sup> es metilo y m es cero.

En una realización preferida, el compuesto de fórmula (I) se describe mediante la fórmula (II)



en el que R<sup>1</sup> es alquilo C<sub>4</sub>-C<sub>12</sub> o alquenilo C<sub>4</sub>-C<sub>12</sub>, preferiblemente alquilo C<sub>4</sub>-C<sub>12</sub>, preferiblemente alquilo C<sub>4</sub>-C<sub>10</sub>

Al usar los compuestos de esta invención como marcadores, preferiblemente la cantidad mínima de cada compuesto añadido a un líquido a marcar es al menos 0,05 ppm, preferiblemente al menos 0,1 ppm, preferiblemente al menos 0,2 ppm, preferiblemente al menos 0,3 ppm, preferiblemente al menos 0,4 ppm, preferiblemente al menos 0,5 ppm, preferiblemente al menos 1 ppm. Preferiblemente, la cantidad máxima de cada marcador es 50 ppm, preferiblemente 20 ppm, preferiblemente 15 ppm, preferiblemente 10 ppm, preferiblemente 8 ppm. Preferiblemente, la cantidad total máxima de compuestos marcadores es 100 ppm, preferiblemente 70 ppm, preferiblemente 60 ppm, preferiblemente 50 ppm, preferiblemente 40 ppm, preferiblemente 30 ppm, preferiblemente 20 ppm, preferiblemente 16 ppm, preferiblemente 12 ppm, preferiblemente 10 ppm. Preferiblemente, un compuesto marcador no es detectable por medios visuales en el hidrocarburo de petróleo marcado o combustible líquido derivado biológicamente, es decir, no es posible determinar mediante observación visual sin ayuda del color u otras características que contiene un compuesto marcador. Preferiblemente, un compuesto marcador es uno que no ocurre normalmente en el hidrocarburo de petróleo o combustible líquido derivado biológicamente al que se añade, ya sea como constituyente del hidrocarburo de petróleo o combustible líquido derivado biológicamente, o como un aditivo utilizado en el mismo.

Preferiblemente, los compuestos marcadores tienen un valor de log P de al menos 3, donde P es el coeficiente de partición 1-octanol/agua. Preferiblemente, los compuestos marcadores tienen un log P de al menos 4, preferiblemente al menos 5. Los valores de log P que no se han determinado y reportado experimentalmente en la bibliografía se pueden estimar usando el método descrito en Meylan, W.M & Howard, P.H., J. Pharm. Sci., Vol. 84, págs. 83-92 (1995). Preferiblemente, el hidrocarburo de petróleo o combustible líquido derivado biológicamente es un hidrocarburo de petróleo, combustible biodiésel o combustible de etanol; preferiblemente un hidrocarburo de petróleo o combustible biodiésel; preferiblemente un hidrocarburo de petróleo; preferiblemente aceite crudo, gasolina, combustible diésel, queroseno, combustible para aviones o aceite para calefacción; preferiblemente gasolina o combustible diésel; preferiblemente combustible diésel.

Preferiblemente, los compuestos marcadores se detectan separándolos al menos parcialmente de los constituyentes del hidrocarburo de petróleo o combustible líquido derivado biológicamente usando una técnica cromatográfica, por ejemplo, cromatografía de gases, cromatografía líquida, cromatografía de capa fina, cromatografía de papel, cromatografía de adsorción, cromatografía de afinidad, electroforesis capilar, intercambio iónico y cromatografía de exclusión molecular. La cromatografía es seguida por al menos uno de: (i) análisis espectral de masas, y (ii) FTIR. Las identidades de los compuestos marcadores se determinan preferiblemente mediante análisis espectral de masas. Preferiblemente, los compuestos se separan al menos parcialmente del líquido marcado usando cromatografía de gases bidimensional, preferiblemente con diferentes columnas en las dos separaciones de GC. Preferiblemente, el análisis espectral de masas se usa para detectar los compuestos marcadores en el hidrocarburo de petróleo o combustible líquido derivado biológicamente sin realizar ninguna separación. Alternativamente, los compuestos marcadores pueden concentrarse antes del análisis, por ejemplo, destilando algunos de los componentes más volátiles de un hidrocarburo de petróleo o combustible líquido derivado biológicamente.

Preferiblemente, está presente más de un compuesto marcador. El uso de compuestos marcadores múltiples facilita la incorporación en el hidrocarburo de petróleo o combustible líquido derivado biológicamente de información codificada que puede usarse para identificar el origen y otras características del hidrocarburo de petróleo o combustible líquido derivado biológicamente. El código comprende las identidades y cantidades relativas, por ejemplo, proporciones enteras fijas, de los compuestos marcadores. Se pueden usar uno, dos, tres o más compuestos marcadores para formar el código. Los compuestos marcadores según esta invención pueden combinarse con marcadores de otros tipos, por ejemplo, marcadores detectados por espectrometría de absorción, incluidos los descritos en la patente de EE. UU. N° 6,811,575; Publicación de solicitud de patente de EE. UU. N° 2004/0250469 y Publicación de solicitud de patente EP N° 1,479,749. Los compuestos marcadores se colocan en el hidrocarburo de petróleo o combustible líquido derivado biológicamente directamente, o alternativamente, se colocan en un paquete de aditivos que contiene otros compuestos, por ejemplo, aditivos antidesgaste para lubricantes, detergentes para

gasolina, etc., y el paquete de aditivos se añade al hidrocarburo de petróleo o combustible líquido derivado biológicamente. El uso de más de un marcador puede ser útil para evitar la eliminación de un marcador por destilación. Preferiblemente, se usan al menos dos marcadores que difieren en el punto de ebullición en al menos 50 °C, preferiblemente al menos 75 °C, preferiblemente al menos 100 °C, preferiblemente al menos 125 °C.

- 5 Los compuestos de esta invención pueden prepararse por métodos conocidos en la técnica, por ejemplo, permitiendo que una sal de arilóxido reaccione con un haluro de alquilo para formar un arilalquil éter.

### Ejemplos

#### Estudios analíticos

- 10 Separación de marcadores de combustible de la matriz de combustible utilizando metodologías de cromatografía de gases unidimensional:

15 Cromatografía de gases/espectrometría de masas (GC/MS): los tiempos de retención de GC de los tres isómeros de dimetoxibenceno, los 3 isómeros de trimetoxibenceno y el éter butílico de fenilo se compararon con el del destilado diésel al 50% en volumen utilizando las siguientes columnas de GC: DB-5, DB-35, DB-210 y DB-WAX. Con cada columna, el marcador coeluye con los componentes en la matriz, es decir, el tiempo de retención de cada marcador candidato estaba dentro del tiempo de retención de la matriz de combustible. Se obtuvo una separación insuficiente en cada caso.

20 Detección termiónica (TID): este detector es sensible a los compuestos que contienen nitrógeno (por ejemplo, aminas y nitro compuestos), y se utiliza para detectarlos en presencia de compuestos que no contienen nitrógeno. Fue posible detectar todos los marcadores candidatos en una matriz de combustible a altas concentraciones (% de nivel). Sin embargo, solo el 1,2,4-trimetoxibenceno se pudo detectar a niveles tan bajos como 10 ppm en la matriz de destilado de diésel. El nitrociclohexano no se pudo detectar a este nivel.

Separación de marcadores de combustible de la matriz de combustible mediante cromatografía de gases multidimensional y espectrometría de masas con GC-GC-MS o GC x GC-MS

- 25 La capacidad de identificar/separar 1,2-dimetoxibenceno (veratrol), 1,3,5-trimetoxibenceno y butilfenil éter en combustibles diésel de ESSO Canadá y FASTGAS se evaluó en el Centro de GC de Expertise Analytical Tech Center, Dow Chemical Canadá.

Se evaluaron tres métodos:

- 30 1) Cromatografía de gases bidimensional convencional (GC-GC/FID): Columna GC de primera dimensión: 30m x 0,25mm X 0,25µm DB-5ms UI (WCOT), Columna GC de segunda dimensión: 10m x 0,53mm id CP-Lowox (sorbente iónico/PLOT)

2) GC bidimensional integral de flujo pulsado modulado (PFM-GCxGC/FID): Columna GC de primera dimensión: 20m x 0,18mm x 0,4µm DB-1 (WCOT), Columna GC de segunda dimensión: 5m x 0,25mm x 0,15µm HP-Innowax (WCOT)

3) Cromatografía de gases bidimensional convencional con MS (GC-GC/MSD en modo SCAN/SIM)

Columna GC de primera dimensión: 15m X 0,25mm x 0,1µm DB-1HT (WCOT)

- 35 Columna GC de segunda dimensión: 23m X 0,25mm x 1µm VF-Wax ms (WCOT)

40 Si bien los tres métodos estudiados pueden separar los compuestos de la matriz, los mejores resultados se obtuvieron utilizando el método 3, que ofrece un alto grado de selectividad y sensibilidad, así como la capacidad de elucidación estructural. Los tres candidatos podrían separarse de las matrices de combustible diésel, con límites de detección en el rango de 100 ppb o mejor. Las estadísticas sobre un conjunto de datos preliminares que comprende 7 análisis indicaron una desviación estándar relativa de detección de menos del 4%.

#### D) Destilación/Detección en destilados de combustible

45 Una muestra de combustible diésel se marcó con 10 ppm de butilfenil éter, 10 ppm de 1,2-dimetoxibenceno y 2,5 ppm de marcador ACCUTRACE 3,4-10. El combustible se destiló de acuerdo con el procedimiento ASTM D-86, excepto que la destilación se detuvo después de que el 50% en volumen de la carga inicial se destiló de cabeza. La temperatura de destilación de cabeza alcanzó aproximadamente 280 °C al final del experimento. Cuatro muestras, como se muestra a continuación, se analizaron para la presencia/ausencia de los marcadores. Según las características de ebullición de los marcadores, anticipamos que la Muestra C contendrá la gran mayoría del butilfenil éter y 1,2-dimetoxibenceno, y esencialmente ningún marcador ACCUTRACE 3,4-10. También anticipamos que la Muestra D contiene muy poco butilfenil éter o 1,2-dimetoxibenceno, y debe contener esencialmente todo el marcador ACCUTRACE 3,4-10.

50

- Muestra A - combustible diésel virgen
- Muestra B - Combustible diésel virgen marcado con 10 ppm de butilfenil éter, 10 ppm de 1,2-dimetoxibenceno y 2,5 ppm de marcador ACCUTRACE 3,4-10

5 Una parte alícuota de 700 ml de la muestra B se destiló utilizando una variante de los procedimientos ASTM D-86 que dieron como resultado 2 fracciones casi iguales (en volumen), y estas son:

- Muestra C – destilado de cabeza, 1<sup>er</sup> 50% de los volátiles
- Muestra D - residuo destilado, 2<sup>o</sup> 50% de los volátiles (no tomados de cabeza en este experimento).

Quando las muestras se analizaron utilizando la técnica GC-GC/MSD en la monitorización selectiva de iones (SIM), se obtuvieron los siguientes resultados:

Resultados analíticos (ppm)	BPE	BPE2	DMB	DMB2
Diésel virgen (muestra A)	ND	ND	ND	ND
Diésel marcado (Muestra B)	10,0	10,0	10,0	10,0
50% OVHS, destilado (Muestra C)	20,2	20,6	20,7	20,6
Residuos destilados (muestra D)	0,1	0,1	ND	ND

BPE = butilfenil éter  
 DMB = 1,2-dimetoxibenceno  
 ND = no detectado, límite de detección:  
 ca 50 ppb

10

#### Estudio de blanqueo

El estudio se realizó con quince agentes de lavado a una concentración del 5%, a menos que se indique lo contrario, y 2000 mg/l de cada marcador en xilenos junto con 2000 mg/l de escualano como patrón interno. Las cuatro moléculas junto con el patrón interno se combinaron y se sometieron a un ensayo de blanqueo de 4 horas (muestra agitada con agente de blanqueo). Todas las muestras de marcadores de blanqueo se analizaron por GC/FID con xilenos en blanco entre cada muestra y los resultados se informaron como porcentaje de cambio en la concentración del marcador. El estudio de lavado de metanol está dando un aumento en la concentración probablemente debido a la pérdida del estándar interno.

15

Agente	DMB	1,4-DMB	BPE	TMB
5 % alúmina	-20,6	-2,4	0,3	-12,9
5% NaCl	3,8	11,6	4,2	0,8
5% peróxido <sup>1</sup>	3,9	5,2	3,9	2,7
5 % sílice	-53,3	-16,8	-1,1	-29,6
5% CH <sub>3</sub> CN	-1,0	-1,3	0,6	-1,3
5 % metanol	24,6	23,6	23,1	20,4
5% agente de blanqueo	5,4	13,3	4,1	-12,3
5 % tierra Fuller	-9,4	-3,5	-1,	-8,0
5% NaOH	4,6	6,9	5,4	5,4
5% H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	-0,8	0,0	-1,5	-2,9
5% Carbón activo	-9,6	-6,0	-2,9	-9,8
50% NaOH	-7,0	-5,1	-2,3	-4,2
limaduras de hierro	3,0	3,6	1,7	1,6
tamices moleculares, alúmina, 60Å	-9,1	6,2	-0,2	-5,4
98% H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	-100	-100	-32,7	-100

TMB = 1,3,5-trimetoxibenceno; 1,4-DMB = 1,4-dimetoxibenceno  
 1. 5% de peróxido de hidrógeno al 30% en agua

## ES 2 744 899 T3

Si bien no blanqueamos los marcadores de éter de hexil, octil o decilfenilo, según los principios químicos, es muy probable que estos se comporten de una manera muy similar al butilfenil éter.

Demostración de la destilación del marcador en el rango de ebullición del combustible diésel

- 5 Se preparó una mezcla equimolar de hexilfenil éter, octilfenil éter y decilfenil éter estándar a través de la técnica estándar de éter de Williamson. Se añadió combustible diésel con la mezcla anterior para obtener aproximadamente 10 ppm de cada marcador en el combustible. También se añadieron 10 ppm de butilfenil éter al combustible.

Siguiendo el protocolo ASTM D-86 modificado para el equipo de laboratorio disponible, el combustible diésel se destiló en 4 fracciones de aproximadamente la misma masa:

Fracción	Rango de ebullición
Primer 25% de cabeza	170 – 235 °C
2º 25% de cabeza	235 – 274 °C
3 <sup>er</sup> 25% de cabeza	274 – 303 °C
Residuos del recipiente	> 303 °C

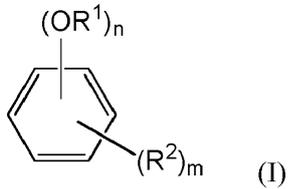
- 10 Estas 4 muestras de combustible se analizaron luego utilizando una técnica GC-GC-FID. Las áreas de pico para cada marcador se normalizaron al 100%, y se calculó la cantidad relativa de marcador que aparece en las diversas fracciones. Los resultados se recogen en la tabla:

Fracción #	butilfenil éter BP = 210 °C	hexilfenil éter BP = 240 °C	octilfenil éter BP = 285 °C	decilfenil éter BP = 318 °C
Fracción 1	62,4%	25,2%	9,3%	ND
Fracción 2	35,9%	49,6%	28,5%	29,3%
Fracción 3	1,7%	24,4%	46,4%	32,3%
Residuo del recipiente	ND	0,8%	15,9%	38,4%
ND significa <50ppb				

- 15 Como puede verse a partir de los datos, tanto el hexilfenil éter como el octilfenil éter estaban claramente presentes en todas las fracciones. El butilfenil éter se había eliminado completamente del residuo del recipiente (fondos) y el éter de decilfenilo no se destilaba en la fracción más ligera. Por lo tanto, cualquiera de los éteres de butilo, hexilo y octilfenilo podría añadirse al combustible diésel, junto con ACCUTRACE 3,4-6 o 10, y todas las fracciones de destilación podrían identificarse como que contienen nuestro sistema marcador. Alternativamente, se podría añadir hexil u octilfenil éter al combustible diésel (en ausencia de ACCUTRACE) y todas las posibles fracciones de destilación aún se podrían identificar como marcadas.
- 20

**REIVINDICACIONES**

1. Un método para marcar un hidrocarburo de petróleo o un combustible líquido derivado biológicamente; comprendiendo dicho método añadir a dicho hidrocarburo de petróleo o combustible líquido derivado biológicamente al menos un compuesto que tiene la fórmula (I)



en donde R<sup>1</sup> es alquilo C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub> o alqueno C<sub>2</sub>-C<sub>12</sub>, R<sup>2</sup> es C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub> alquilo o alqueno C<sub>3</sub>-C<sub>12</sub>, m es un número entero de cero a cinco y n es un número entero de uno a tres; en donde cada compuesto de fórmula (I) está presente a un nivel de 0,01 ppm a 100 ppm.

2. El método de la reivindicación 1 en el que m es de cero a dos.

10 3. El método de la reivindicación 2 en el que R<sup>2</sup> es alquilo C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>

4. El método de la reivindicación 3 en el que n es uno.

5. El método de la reivindicación 4 en el que m es cero o uno y R<sup>2</sup> es alquilo C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>

6. El método de la reivindicación 5 en el que cada compuesto de fórmula (I) está presente a un nivel de 0,05 ppm a 50 ppm.

7. El método de la reivindicación 3 en el que n es dos o tres, R<sup>1</sup> es metilo, R<sup>2</sup> es metilo y m es cero o uno.

15 8. El método de la reivindicación 7 en el que R<sup>1</sup> es metilo y m es cero

9. El método de la reivindicación 8 en el que cada compuesto de fórmula (I) está presente a un nivel de 0,05 ppm a 50 ppm.