

19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 821 890**

51 Int. Cl.:

C07C 45/54 (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

86 Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **04.05.2016 PCT/EP2016/060062**

87 Fecha y número de publicación internacional: **10.11.2016 WO16177814**

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **04.05.2016 E 16722841 (0)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **22.07.2020 EP 3292099**

54 Título: **Procedimiento de preparación de melonal**

30 Prioridad:

04.05.2015 EP 15166260

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

28.04.2021

73 Titular/es:

**BASF SE (100.0%)
Carl-Bosch-Str. 38
67056 Ludwigshafen, DE**

72 Inventor/es:

**VAUTRAVERS, NICOLAS;
TELES, JOAQUIM HENRIQUE;
PELZER, RALF;
SCHNEIDER, DANIEL;
GARLICH, FLORIAN;
KELLER, ANDREAS;
PARVULESCU, ANDREI-NICOLAE y
MÜLLER, ULRICH**

74 Agente/Representante:

GONZÁLEZ PECES, Gustavo Adolfo

ES 2 821 890 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 de preparación de melonal

5 La presente invención se refiere a un procedimiento para la oxidación de citral, en particular una oxidación de tipo Baeyer-Villiger de citral con peróxido de hidrógeno, en presencia de un catalizador que comprende un tamiz molecular que contiene estaño como catalizador para la oxidación de Baeyer-Villiger.

Las reacciones de oxidación de compuestos orgánicos y, en particular, la reacción de Baeyer-Villiger, son de considerable interés para convertir compuestos de carbonilo fácilmente disponibles en productos más complejos y valiosos.

10 La oxidación quimioselectiva de citral (3,7-dimetilocta-2,6-dienal) con peróxido de hidrógeno y material poroso que contiene estaño se desarrolló tal como se describe en Corma et al., Journal of Catalysis 234 (2005) 96-100. Cabe señalar que la síntesis del catalizador es muy compleja, ilustrada, por ejemplo, por el largo tiempo de síntesis, la necesidad de emplear auxiliares de cristalización tales como HF, agentes de plantillas costosos, etc., dificultando todos ellos el paso a una escala mayor. Además, en particular, se establece explícitamente en Corma et al. que el citral usado para llevar a cabo los experimentos era un producto comercial, en particular un producto adquirido a Aldrich. Cabe señalar que todos los productos de citral ofrecidos por Aldrich son una mezcla 1:1 de geranial (trans-citral; el isómero E de citral) y neral (cis-citral; el isómero Z de citral). Por consiguiente, independientemente de la fórmula que se muestra en el documento, la enseñanza directa e inequívoca de Corma et al. para la persona experta en la técnica está restringida inequívocamente a solo una mezcla 1:1 de geranial y neral, y cada fórmula es interpretada por la persona experta en la materia como representativa de dicha mezcla 1:1 de geranial y neral.

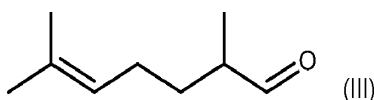
20 El documento WO 2014/068134 describe la oxidación de citral con peróxido de hidrógeno y un material zeolítico que contiene estaño como catalizador. Se usa una mezcla 1:1 de geranial (trans-citral) y neral (cis-citral) como el material citral de partida.

25 Debido a que el producto de la oxidación de Baeyer-Villiger obtenido a partir de la oxidación de citral, 2,6-dimetil-5-heptenal (conocido también como melonal), es un producto comercialmente interesante, existe una necesidad constante de mejorar el procedimiento de preparación. En particular, existe una necesidad constante de proporcionar procedimientos que exhiban una alta selectividad. Además, el tiempo de reacción es de interés en procedimientos a escala industrial.

30 De esta manera, un objeto de la presente invención es proporcionar un procedimiento para la oxidación Baeyer-Villiger de citral con peróxido de hidrógeno que no exhiba las desventajas de los procedimientos según la técnica anterior y en el que se consiga una alta selectividad al producto de la oxidación de Baeyer-villiger.

35 Un objeto adicional de la presente invención es proporcionar un procedimiento para la oxidación Baeyer-Villiger de citral con peróxido de hidrógeno que no exhiba las desventajas de los procedimientos según la técnica anterior y en el que pueda realizarse un tiempo de reacción corto. Sorprendentemente, se ha encontrado que si se emplea un citral que contiene más del 50% del trans-citral, es decir, geranial, como material de partida, pueden resolverse las objeciones indicadas anteriormente.

Por lo tanto, la presente invención se refiere a un procedimiento, preferentemente un procedimiento en fase líquida, de preparación de un compuesto de fórmula (III)

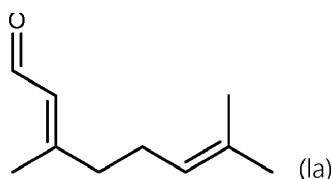


comprendiendo dicho procedimiento

(i) oxidar un compuesto de fórmula (I)

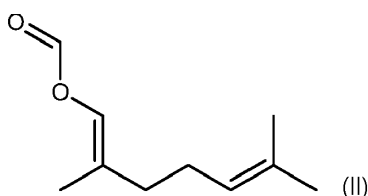


más del 50% del cual está presente como compuesto de fórmula (Ia)



5

con peróxido de hidrógeno en presencia de un catalizador que comprende un tamiz molecular que contiene estaño, obteniendo una mezcla de reacción que comprende un compuesto de fórmula (II)



10

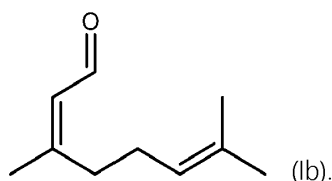
y opcionalmente el compuesto de fórmula (III).

Procedimiento

15

El citral disponible comercialmente es una mezcla de geranial y neral con una relación molar de 1:1. Según la presente invención, se emplea el compuesto de fórmula (I) que comprende más del 50% del isómero trans, es decir, más del 50% del compuesto de fórmula (I) está presente como compuesto de fórmula (Ia), y menos del 50% está presente como compuesto de fórmula (Ib)

20



25

Estas mezclas que comprenden más del 50% del compuesto de fórmula (I) como compuesto de fórmula (Ia) pueden prepararse según cualquier procedimiento concebible en el que puede ser preferente la destilación, tal como una destilación fraccionada, de una mezcla 1:1 de geranial y neral.

30

Según (i), es preferente que al menos el 55%, más preferentemente al menos el 60%, más preferentemente al menos el 65%, más preferentemente al menos el 70%, más preferentemente al menos el 75%, más preferentemente al menos el 80%, más preferentemente al menos el 85%, más preferentemente al menos el 90% del compuesto de fórmula (I) esté presente como compuesto de fórmula (Ia). Más preferentemente, al menos el 95%, más preferentemente al menos el 96%, más preferentemente al menos el 97%, más preferentemente al menos el 98% del compuesto de fórmula (I) está presente como compuesto de fórmula (Ia). Por lo tanto, es preferente que al menos el 98% del compuesto de fórmula (I) empleado en (i) consista en el compuesto de fórmula (Ia) y como máximo el 2% del compuesto de fórmula (I) empleado en (i) consista en el compuesto de fórmula (Ib). Según realizaciones concebibles, al menos el 99% del compuesto de fórmula (I) empleado en (i) consiste en el compuesto de fórmula (Ia) y como máximo el 1% del compuesto de fórmula (I) empleado en (i) consiste en el compuesto de fórmula (Ib), o al menos el 99,5% del compuesto de fórmula (I) empleado en (i) consiste en el compuesto de fórmula (Ia) y como máximo el 0,5% del compuesto de fórmula (I) empleado en (i) consiste en el compuesto de fórmula (Ib), o al menos el 99,9% del compuesto de fórmula (I) empleado en (i) consiste en el compuesto de fórmula (Ia) y como máximo el 0,01% del compuesto de fórmula (I) empleado en (i) consiste en el compuesto de fórmula (Ib).

40

Como catalizador de la oxidación de Baeyer-Villiger, preferentemente se emplea un tamiz molecular que contiene estaño. Con relación a la composición química y a las características físicas, tales como el área superficial específica BET, el volumen de los poros, la distribución del volumen de poros, los canales, la cristalinidad y similares, no existen restricciones específicas siempre y cuando pueda realizarse el procedimiento de la invención. Preferentemente, el tamiz molecular que contiene estaño comprende microporos, o mesoporos, o microporos y mesoporos. Además de los microporos y/o mesoporos, el tamiz molecular que contiene estaño puede comprender también macroporos. En el contexto de la presente invención, el término "microporos" se refiere a poros que tienen un diámetro menor de 2 nm, el

45

término "mesoporos" se refiere a poros que tienen un diámetro de 2 a 50 nanómetros, y el término "macroporos" se refiere a poros que tienen un diámetro mayor de 50 nanómetros.

5 En el caso en el que el tamiz molecular que contiene estaño comprende o consiste en un tamiz molecular mesoporoso, es preferente que el tamiz molecular que contiene estaño exhiba una isoterma de adsorción de N₂ de tipo IV tal como se define, por ejemplo, en K.S.W. Sing, D.H. Everett, R.A.W. Haul, L. Moscou, R.A. Pierotti, J. Rouquerol, T. Siemieniowska, Reporting Physisorption Data for Gas/Solid Systems with Special Reference to the Determination of Surface Area and Porosity (Recommendations 1984) Pure & Appl. Chem. 57 (1985) 603-619. En el caso en el que el tamiz molecular que contiene estaño comprende o consiste en un tamiz molecular mesoporoso, puede ser preferente que el tamiz molecular que contiene estaño comprenda, preferentemente consista en, MCM-41.

10 Preferentemente, el tamiz molecular que contiene estaño comprende, preferentemente consiste en, un tamiz molecular microporoso. Dicho tamiz molecular microporoso puede comprender, por ejemplo, un material de estructura organometálica (MOF) que contiene estaño o un material zeolítico que contiene estaño. Más preferentemente, el tamiz molecular que contiene estaño comprende, preferentemente consiste en, un material zeolítico que contiene estaño.

15 El tipo de estructura del material zeolítico que contiene estaño no está sujeto a ninguna restricción específica, siempre y cuando pueda realizarse el procedimiento de la invención. Generalmente, el tipo de estructura del material zeolítico que contiene estaño puede seleccionarse de entre el grupo que consiste en ABW, ACO, AEI, AEL, AEN, AET, AFG, AFI, AFN, AFO, AFR, AFS, AFT, AFV, AFX, AFY, AHT, ANA, APC, APD, AST, ASV, ATN, ATO, ATS, ATT, ATV, AVL, AWO, AWW, BCT, BEA, BEC, BIK, BOF, BOG, BOZ, BPH, BRE, BSV, CAN, CAS, CDO, CFI, CGF, CGS, CHA, CHI, CLO, CON, CZP, DAC, DDR, DFO, DFT, DOH, DON, EAB, EDI, EEI, EMT, EON, EPI, ERI, ESV, ETR, EUO, EZT, FAR, FAU, FER, FRA, GIS, GIU, GME, GON, GOO, HEU, IFO, IFR, IFW, IFY, IHW, IMF, IRN, IRR, ITY, ISV, ITE, ITG, ITH, ITN, ITR, ITT, ITV, ITW, IWR, IWS, IWV, IWW, JBW, JOZ, JRY, JSN, JSR, JST, JSW, KFI, LAU, LEV, LIO, LIT, LOS, LOV, LTA, LTF, LTJ, LTL, LTN, MAR, MAZ, MEI, MEL, MEP, MER, MFI, MFS, MON, MOR, MOZ, MRE, MSE, MSO, MTF, MTN, MTT, MTW, MVY, MWW, NAB, NAT, NES, NON, NPO, NPT, NSI, OBW, OFF, OKO, OSI, OSO, OWE, PAR, PAU, PCR, PHI, PON, PUN, RHO, RON, RRO, RSN, RTE, RTH, RUT, RWR, RWY, SAF, SAO, SAS, SAT, SAV, SBE, SBN, SBS, SBT, SEW, SFE, SFF, SFG, SFH, SFN, SFO, SFS, SFV, SFW, SGT, SIV, SOD, SOF, SOS, SSF, SSO, SSV, STF, STI, STT, STW, SVR, SVV, SZR, TER, THO, TON, TSC, TUN, UEI, UFI, UOS, UOV, UOZ, USI, UTL, UWY, VET, VFI, VNI, VSV, WEI, WEN, YUG, ZON, mezclas de dos o más de los mismos y tipos mixtos de dos o más de los mismos.

25 Preferentemente, el tipo de estructura del material zeolítico que contiene estaño se selecciona de entre el grupo que consiste en BEA, MWW, MFI, mezclas de dos o más de los mismos y tipos mixtos de dos o más de los mismos. Más preferentemente, el tipo de estructura del material zeolítico que contiene estaño se selecciona de entre el grupo que consiste en BEA, MWW, mezclas de los mismos y tipos mixtos de los mismos. Más preferentemente, el tipo de estructura del material zeolítico que contiene estaño comprende, más preferentemente consiste en, el tipo de estructura BEA. Con relación a la definición de las estructuras, en particular la estructura de tipo BEA, se hace referencia a la definición respectiva en Baerlocher et al., Atlas of Zeolite Framework Structures, Sexta edición revisada, Elsevier, Amsterdam (2007), en particular, páginas 72-73.

30 Por lo tanto, la presente invención se refiere al procedimiento según se ha definido anteriormente, que comprende

(i) oxidar un compuesto de fórmula (I) más del 50% del cual está presente como compuesto de fórmula (Ia)



con peróxido de hidrógeno en presencia de un catalizador que comprende un material zeolítico que contiene estaño con estructura de tipo BEA, obteniendo una mezcla de reacción que comprende un compuesto de fórmula (II) y opcionalmente el compuesto de fórmula (III).

45 Preferentemente, al menos el 90% en peso, más preferentemente al menos el 95% en peso, más preferentemente al menos el 97% en peso, más preferentemente al menos el 98% en peso de la estructura del tamiz molecular que contiene estaño consiste en Sn, O, H, un elemento Y tetravalente y, opcionalmente, un elemento X trivalente. Más preferentemente, al menos el 99% en peso, más preferentemente al menos el 99,5% en peso, más preferentemente al menos el 99,9% en peso de la estructura del tamiz molecular que contiene estaño consiste en Sn, O, H, un elemento Y tetravalente, y opcionalmente un elemento X trivalente.

Con relación al elemento Y tetravalente, a cuya presencia en la estructura del tamiz molecular se hace referencia como presencia de YO₂, no existen restricciones específicas. Preferentemente, Y comprende, más preferentemente es, uno o

más de entre Si, Ge, Ti y Zr. Más preferentemente, Y comprende, más preferentemente es, Si. Con relación al elemento X trivalente, a cuya presencia en la estructura del tamiz molecular se hace referencia también como presencia de X_2O_3 , no existen restricciones específicas. Preferentemente, X no es Al. Preferentemente, X comprende, más preferentemente es, uno o más de entre B, In, Ga y Fe. Más preferentemente, Y comprende, más preferentemente es, B.

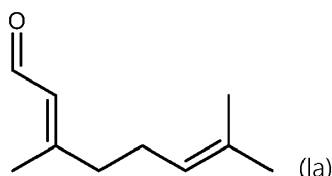
5 Preferentemente, el tamiz molecular que contiene estaño está libre de Al, en el que la expresión "libre de Al" se refiere a una composición química del tamiz molecular que contiene estaño que comprende Al solo en trazas que están presentes debido a las impurezas de los materiales de partida a partir de los cuales se prepara el tamiz molecular que contiene estaño o debido a una eliminación incompleta del Al desde un tamiz molecular que contiene Al que se usa para la preparación del tamiz molecular que contiene estaño.

10 Con relación al contenido de estaño del tamiz molecular que contiene estaño, es preferente que este contenido esté comprendido en el intervalo del 0,1 al 20% en peso, más preferentemente en el intervalo del 0,5 al 18% en peso, más preferentemente en el intervalo del 0,75 al 17% en peso, más preferentemente en el intervalo del 1 al 16% en peso, más preferentemente en el intervalo del 1,5 al 15% en peso, más preferentemente en el intervalo del 2 al 14% en peso. Los intervalos preferentes son, por ejemplo, del 8 al 14% en peso, más preferentemente del 10 al 14% en peso.

15 Por lo tanto, la presente invención se refiere también al procedimiento según se ha definido anteriormente, que comprende

(i) oxidar un compuesto de fórmula (I) más del 50% del cual está presente como compuesto de fórmula (Ia)

20



con peróxido de hidrógeno en presencia de un catalizador que comprende un material zeolítico que contiene estaño con estructura de tipo BEA que tiene un contenido de estaño comprendido en el intervalo del 2 al 14% en peso en base al peso total del material zeolítico molecular que contiene estaño, obteniendo una mezcla de reacción.

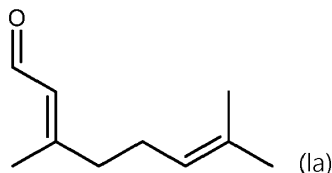
25 Preferentemente, al menos el 90% en peso, más preferentemente al menos el 95% en peso, más preferentemente al menos el 97% en peso, más preferentemente al menos el 98% en peso de la estructura del material zeolítico que contiene estaño con estructura de tipo BEA consiste en Sn, O, H, Si y opcionalmente B. Más preferentemente, al menos el 99% en peso, más preferentemente al menos el 99,5% en peso, más preferentemente al menos el 99,9% en peso del material zeolítico que contiene estaño con estructura de tipo BEA consiste en Sn, O, H, Si y opcionalmente B.

30 Preferentemente, en la estructura del tamiz molecular que contiene estaño, preferentemente del material zeolítico que contiene estaño, más preferentemente del material zeolítico que contiene estaño con estructura de tipo BEA, la relación molar $B_2O_3:SiO_2$ es como máximo 0,01:1, preferentemente está comprendida en el intervalo de 0,001:1 a 0,01:1, más preferentemente está comprendida en el intervalo de 0,001:1 a 0,003:1.

35 Por lo tanto, la presente invención se refiere también al procedimiento según se ha definido anteriormente, que comprende

(i) oxidar un compuesto de fórmula (I) más del 50% del cual está presente como compuesto de fórmula (Ia)

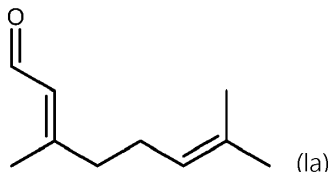
40



45 con peróxido de hidrógeno en presencia de un catalizador que comprende un material zeolítico que contiene estaño con estructura de tipo BEA que tiene un contenido de estaño comprendido en el intervalo del 2 al 14% en peso en base al peso total del material zeolítico molecular que contiene estaño, en el que al menos el 99% en peso de la estructura del material zeolítico que contiene estaño con estructura de tipo BEA consiste en Sn, O, H, Si y opcionalmente B, obteniendo una mezcla de reacción.

Por lo tanto, la presente invención se refiere también al procedimiento según se ha definido anteriormente, que comprende

(i) oxidar un compuesto de fórmula (I) más del 50% del cual está presente como compuesto de fórmula (Ia)



5

con peróxido de hidrógeno en presencia de un catalizador que comprende un material zeolítico que contiene estaño con estructura de tipo BEA que tiene un contenido de estaño comprendido en el intervalo del 2 al 14% en peso en base al peso total del material zeolítico molecular que contiene estaño, en el que al menos el 99% en peso de la estructura del material zeolítico que contiene estaño con estructura de tipo BEA consiste en Sn, O, H, Si y B, en el que en la estructura del material zeolítico que contiene estaño con estructura de tipo BEA, la relación molar $B_2O_3:SiO_2$ está comprendida en el intervalo de 0,001:1 a 0,01:1, obteniendo una mezcla de reacción.

10

Con relación al procedimiento de preparación según el cual puede prepararse el tamiz molecular que contiene estaño, preferentemente el material zeolítico que contiene estaño, más preferentemente el material zeolítico que contiene estaño con estructura de tipo BEA, no existen restricciones específicas. En particular, con relación al material zeolítico que contiene estaño con estructura de tipo BEA, es preferente que el procedimiento de preparación del material zeolítico comprenda incorporar el estaño en un material de partida de material zeolítico adecuado mediante un procedimiento de intercambio iónico en estado sólido. Dicho material de partida de material zeolítico adecuado de este tipo puede ser, por ejemplo, un material zeolítico que tiene sitios huecos de estructura tetraédrica, en cuyos sitios se incorpora el estaño, preferentemente mediante un procedimiento de intercambio iónico en estado sólido.

15

20

Un procedimiento preferente para preparar el material zeolítico que contiene estaño que tiene una estructura BEA y un material zeolítico que contiene estaño y que tiene una estructura BEA preferente se describen a continuación mediante las siguientes realizaciones y combinaciones de realizaciones según las dependencias y las referencias indicadas:

1. Un procedimiento de preparación de un material zeolítico que contiene estaño que tiene una estructura BEA que comprende

25

(a) proporcionar un material zeolítico que tiene una estructura BEA que comprende X_2O_3 e YO_2 , en el que Y es un elemento tetravalente seleccionado de entre el grupo que consiste en Si, Ti, Zr, Ge y combinaciones de dos o más de los mismos, y X es un elemento trivalente seleccionado de entre el grupo que consiste en Al, B, In, Ga, Fe y combinaciones de dos o más de los mismos, teniendo dicha estructura BEA sitios huecos de estructura tetraédrica;

30

(b) proporcionar una fuente de iones de estaño en forma sólida;

(c) incorporar estaño al material zeolítico proporcionado en (a) poniendo el material zeolítico proporcionado en (a) en contacto con la fuente de iones de estaño proporcionada en (b) bajo condiciones de intercambio iónico en estado sólido, obteniendo un material zeolítico que contiene estaño que tiene una estructura BEA;

(d) someter el material zeolítico obtenido en (c) a un tratamiento térmico;

35

(e) tratar opcionalmente el material zeolítico tratado térmicamente obtenido en (d) con una solución acuosa que tiene como máximo un pH de 5.

2. El procedimiento de la realización 1, en el que Y es Si y X es B.

3. El procedimiento de la realización 1 o 2, en el que según (a), el material zeolítico que tiene una estructura BEA que tiene sitios huecos de estructura tetraédrica se proporciona mediante un procedimiento que comprende

40

(a.1) proporcionar un material zeolítico de partida que tiene una estructura BEA, en el que la estructura del material zeolítico de partida comprende X_2O_3 e YO_2 y la relación molar $X_2O_3:YO_2$ es mayor de 0,02:1, preferentemente al menos 0,03:1, más preferentemente en el intervalo de 0,03:1 a 0,07:1, más preferentemente de 0,03:1 a 0,06:1, más preferentemente de 0,03:1 a 0,05:1;

45

(a.2) crear sitios huecos de estructura tetraédrica tratando el material zeolítico de partida proporcionado en (a.1) con un sistema de disolvente líquido, preferentemente bajo reflujo, obteniendo un material zeolítico que tiene una relación molar $X_2O_3:YO_2$ de como máximo 0,02:1, en el que el sistema de disolvente líquido se selecciona preferentemente de entre el grupo que consiste en agua, metanol, etanol, propanol, etano-1,2-diol, propano-1,2-diol, propano-1,3-diol, propano-1,2,3-triol y mezclas de dos o más de los mismos, siendo el sistema de disolvente líquido más preferentemente agua, en el que más preferentemente, el sistema de disolvente líquido no contiene

un ácido inorgánico u orgánico, o una sal del mismo y en el que el tratamiento se realiza preferentemente a una temperatura comprendida en el intervalo de 50 a 125°C, más preferentemente de 90 a 115°C, más preferentemente de 95 a 105°C, preferentemente durante un período comprendido en el intervalo de 6 a 20 horas, más preferentemente de 7 a 17 horas, más preferentemente de 8 a 12 horas;

- 5 (a.3) separar al menos parcialmente el material zeolítico obtenido en (a.2) del sistema de disolvente líquido, incluyendo opcionalmente el secado;
- (a.4) opcionalmente calcinar el material zeolítico separado obtenido en (a.3), preferentemente a una temperatura comprendida en el intervalo de 400 a 700°C, más preferentemente de 450 a 550°C, y preferentemente durante un período de tiempo comprendido en el intervalo de 1 a 10 horas, más preferentemente de 3 a 6 horas.
- 10 4. El procedimiento de cualquiera de las realizaciones 1 a 3, en el que en la estructura del material zeolítico proporcionado en (a), la relación molar $X_2O_3:YO_2$ es como máximo 0,02:1, preferentemente como máximo 0,01:1, más preferentemente en el intervalo de 0,0005:1 a 0,01:1, más preferentemente de 0,0009:1 a 0,003:1.
- 15 5. El procedimiento de cualquiera de las realizaciones 1 a 4, en el que al menos el 95% en peso, preferentemente al menos el 98% en peso, más preferentemente al menos el 99% en peso de la estructura del material zeolítico proporcionado en (a) consiste en X_2O_3 e YO_2 .
- 20 6. El procedimiento de cualquiera de las realizaciones 1 a 5, en el que la fuente de iones de estaño proporcionada en (b) se selecciona de entre el grupo que consiste en alcóxidos de estaño (II), alcóxidos de estaño (IV), sales de estaño (II) de ácidos orgánicos, sales de estaño (IV) de ácidos orgánicos, y una mezcla de dos o más de los mismos, preferentemente de entre el grupo que consiste en alcóxidos de estaño (II) que tienen de 1 a 4 átomos de carbono, alcóxidos de estaño (IV) que tienen de 1 a 4 átomos de carbono, sales de estaño (II) de ácidos orgánicos que tienen de 1 a 6, sales de estaño (IV) de ácidos orgánicos que tienen de 1 a 6 átomos de carbono, y una mezcla de dos o más de los mismos, en el que más preferentemente, la fuente de iones de estaño proporcionada en (ii) es acetato de estaño (II).
- 25 7. El procedimiento de cualquiera de las realizaciones 1 a 6, en el que según (c), la relación molar de estaño contenido en la fuente de iones de estaño puesta en contacto con el material zeolítico con relación a los sitios huecos de estructura tetraédrica del material zeolítico es como máximo 1:1.
- 30 8. El procedimiento de cualquiera de las realizaciones 1 a 7, en el que en (c), la puesta en contacto del material zeolítico proporcionado en (a) con la fuente de iones de estaño proporcionada en (b) bajo condiciones de intercambio iónico en estado sólido comprende mezclar el material zeolítico proporcionado en (a) con la fuente de iones de estaño.
- 35 9. El procedimiento de la realización 8, en el que en (c), el material zeolítico se mezcla con la fuente de iones de estaño durante un período de tiempo comprendido en el intervalo de 2 minutos a 5 horas, preferentemente de 5 minutos a 3 horas, más preferentemente de 10 minutos a 2 horas.
- 40 10. El procedimiento de la realización 8 o 9, en el que el mezclado se realiza bajo agitación con una entrada de energía de agitación mínima comprendida en el intervalo de 100 a 1.000 W, preferentemente de 200 a 800 W, más preferentemente de 300 a 600 W.
- 45 11. El procedimiento de cualquiera de las realizaciones 8 a 10, que comprende triturar y/o moler el material zeolítico antes de moler el material zeolítico junto con la fuente de iones de estaño, o triturar y/o moler la fuente de iones de estaño antes de moler el material zeolítico junto con la fuente de iones de estaño, o triturar y/o moler el material zeolítico antes de moler el material zeolítico junto con la fuente de iones de estaño y triturar y/o moler la fuente de iones de estaño antes de moler el material zeolítico junto con la fuente de iones de estaño.
- 50 12. El procedimiento de cualquiera de las realizaciones 8 a 10, que comprende amasar el material zeolítico y la fuente de iones de estaño, opcionalmente en la forma de suspensión.
13. El procedimiento de cualquiera de las realizaciones 1 a 11, en el que el tratamiento térmico según (d) comprende calcinación, en el que la calcinación se realiza preferentemente a una temperatura comprendida en el intervalo de 400 a 700°C, más preferentemente de 450 a 650°C, más preferentemente de 500 a 600°C, preferentemente durante un período de tiempo comprendido en el intervalo de 1 a 10 horas, más preferentemente de 2 a 8 horas, más preferentemente de 3 a 6 horas, preferentemente al menos parcialmente en un atmósfera que comprende oxígeno, en la que el tratamiento térmico según (d) se realiza preferentemente parcialmente en una atmósfera de gas inerte.
14. El procedimiento de cualquiera de las realizaciones 1 a 13, en el que en (e), la solución acuosa comprende un ácido orgánico, preferentemente seleccionado de entre el grupo que consiste en ácido oxálico, ácido acético, ácido cítrico, ácido metanosulfónico y una mezcla de dos o más de los mismos, y/o comprende un ácido inorgánico,

preferentemente seleccionado de entre el grupo que consiste en ácido fosfórico, ácido sulfúrico, ácido clorhídrico, ácido nítrico y una mezcla de dos o más de los mismos, siendo el ácido inorgánico más preferentemente ácido nítrico.

5 15. El procedimiento de cualquiera de las realizaciones 1 a 14, en el que en (e), la solución acuosa tiene un pH comprendido en el intervalo de 0 a 5, preferentemente de 0 a 3,5, más preferentemente de 0 a 2.

16. El procedimiento de cualquiera de las realizaciones 1 a 15, en el que en (d), el material tratado térmicamente se trata con la solución acuosa a una temperatura comprendida en el intervalo de 20 a 130°C, preferentemente de 50 a 120°C, más preferentemente de 90 a 110°C.

10 17. El procedimiento de cualquiera de las realizaciones 1 a 16, en el que en (d), el material zeolítico tratado térmicamente se trata con la solución acuosa durante un período de tiempo comprendido en el intervalo de 10 minutos a 40 horas, preferentemente de 30 minutos a 30 horas, más preferentemente de 1 hora a 25 horas.

15 18. El procedimiento de cualquiera de las realizaciones 1 a 17, en el que en (d), el material zeolítico tratado térmicamente se trata con la solución acuosa en una relación en peso de la solución acuosa con relación al material zeolítico tratado térmicamente comprendida en el intervalo de 2:1 a 50:1, preferentemente de 8:1 a 40:1, más preferentemente de 10:1 a 35:1.

19. El procedimiento de cualquiera de las realizaciones 1 a 18, que comprende, además

20 (f) secar y/o calcinar el material zeolítico obtenido en (e), opcionalmente en (e), opcionalmente después de un lavado, en el que el secado se realiza preferentemente a una temperatura comprendida en el intervalo de 100 a 180°C, preferentemente de 120 a 150°C, durante un período comprendido en el intervalo de 10 a 70 horas, preferentemente de 15 a 25 horas, y la calcinación se realiza preferentemente a una temperatura comprendida en el intervalo de 550 a 700°C, preferentemente de 600 a 680°C, durante un período comprendido en el intervalo de 1 a 10 horas, preferentemente de 2 a 5 horas.

20. El procedimiento de cualquiera de las realizaciones 1 a 19, que comprende, además

25 (g) conformar el material zeolítico que contiene estaño y que tiene una estructura BEA obtenido en (d) o (e) o (f), preferentemente en (f), obteniendo una pieza moldeada;

(h) secar y/o calcinar la pieza moldeada obtenida en (g);

(j) opcionalmente someter la pieza moldeada obtenida en (g) o (h), preferentemente en (h), a un tratamiento con agua, en el que el tratamiento con agua comprende tratar la pieza moldeada con agua líquida en un autoclave bajo presión autógena a una temperatura comprendida en el intervalo de 100 a 200°C;

30 (k) opcionalmente, secar y/o calcinar la pieza moldeada tratada con agua obtenida en (j).

21. El procedimiento de la realización 20, en el que (j) comprende

(j.1) preparar una mezcla que comprende el material zeolítico que contiene estaño y que tiene una estructura BEA y una solución acuosa que tiene un pH de como máximo 5;

35 (j.2) añadir un aglutinante o un precursor del mismo, preferentemente un aglutinante de sílice o un precursor del mismo, preferentemente un agente formador de poros y opcionalmente un agente plastificante a la mezcla obtenida en (j.1);

(j.3) someter la mezcla obtenida en (j.2) a conformación.

22. El procedimiento de la realización 20 o 21, en el que (k) comprende

40 (k.1) secar la pieza moldeada obtenida en (j) a una temperatura comprendida en el intervalo de 75 a 200°C, preferentemente de 90 a 170°C, más preferentemente de 100 a 150°C;

(k.2) calcinar la pieza moldeada seca obtenida en (k.1) a una temperatura comprendida en el intervalo de 400 a 650°C, preferentemente de 450 a 600°C, más preferentemente de 475 a 550°C.

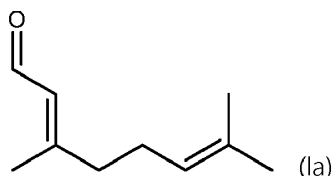
23. Un material zeolítico que contiene estaño que tiene una estructura BEA, obtenible u obtenido mediante un procedimiento según cualquiera de las realizaciones 1 a 19 o 20 a 22.

45 24. Un material zeolítico que contiene estaño y que tiene una estructura BEA que comprende X_2O_3 e YO_2 , en el que Y es un elemento tetravalente seleccionado de entre el grupo que consiste en Si, Ti, Zr, Ge, y combinaciones de dos

- o más de los mismos, siendo Y preferentemente Si, X es un elemento trivalente seleccionado de entre el grupo que consiste en B, In, Ga, Fe, y combinaciones de dos o más de los mismos, siendo X preferentemente B, en el que la estructura comprende adicionalmente estaño, en el que, en la estructura del material zeolítico, la relación molar $X_2O_3:YO_2$, preferentemente $B_2O_3:SiO_2$, es como máximo 0,02:1, preferentemente como máximo 0.01:1, más preferentemente en el intervalo de 0,0005:1 a 0,01:1, más preferentemente de 0,0009:1 a 0,003:1, en el que al menos el 95% en peso, preferentemente al menos el 98% en peso, más preferentemente al menos el 99% en peso de la estructura del material zeolítico consiste en X, Y, O, H y estaño, preferentemente B, Si, O y estaño, y en el que el material zeolítico que contiene estaño tiene una adsorción de agua de como máximo el 12% en peso, preferentemente como máximo el 10% en peso.
25. El material zeolítico que contiene estaño de la realización 24, que tiene un contenido de estaño comprendido en el intervalo del 0,1 al 20% en peso, preferentemente del 0,5 al 18% en peso, más preferentemente del 1 al 16% en peso, más preferentemente del 2 al 14% en peso, en base al peso total del material zeolítico que contiene estaño.
26. El material zeolítico que contiene estaño de la realización 24 o 25, que tiene un espectro UV/Vis que exhibe un máximo en el intervalo de 200 a 220 nm.
27. El material zeolítico que contiene estaño de cualquiera de las realizaciones 24 a 26, que tiene un espectro XRD que exhibe picos en valores de 2 theta en $(21,5 \pm 0,2)^\circ$, $(22,6 \pm 0,2)^\circ$, $(25,5 \pm 0,2)^\circ$, $(26,6 \pm 0,2)^\circ$, $(28,8 \pm 0,2)^\circ$, $(29,7 \pm 0,2)^\circ$, $(32,2 \pm 0,2)^\circ$, $(34,0 \pm 0,2)^\circ$, $(37,9 \pm 0,2)^\circ$.
28. El material zeolítico que contiene estaño de cualquiera de las realizaciones 24 a 27, obtenible u obtenido mediante un procedimiento según cualquiera de las reivindicaciones 1 a 19.
29. El material zeolítico que contiene estaño de cualquiera de las realizaciones 24 a 28, comprendido en una pieza moldeada, comprendiendo preferentemente dicha pieza moldeada además un aglutinante, preferentemente un aglutinante de sílice.

Por lo tanto, la presente invención se refiere también al procedimiento de preparación de un compuesto de fórmula (III), que comprende

- (i) oxidar un compuesto de fórmula (I) más del 50% del cual está presente como compuesto de fórmula (Ia)



- con peróxido de hidrógeno en presencia de un catalizador que comprende un material zeolítico que contiene estaño con estructura de tipo BEA, pudiendo obtenerse u obteniéndose dicho catalizador que contiene un material zeolítico que contiene estaño con estructura de tipo BEA mediante un procedimiento que comprende incorporar el estaño en un material zeolítico que tiene una estructura BEA y que tiene sitios huecos de estructura tetraédrica mediante un procedimiento de intercambio iónico en estado sólido, en el que el material zeolítico que contiene estaño con estructura tipo BEA tiene preferentemente un contenido de estaño comprendido en el intervalo del 2 al 14% en peso en base al peso total del material zeolítico molecular que contiene estaño, en el que preferentemente al menos el 99% en peso de la estructura del material zeolítico que contiene estaño con estructura de tipo BEA consiste en Sn, O, H, Si y B, y en el que, en la estructura del material zeolítico que contiene estaño con estructura de tipo BEA, la relación molar $B_2O_3:SiO_2$ está comprendida preferentemente en el intervalo de 0,001:1 a 0,01:1, obteniendo una mezcla de reacción.

De esta manera, la presente invención se refiere también al procedimiento de preparación de un compuesto de fórmula (III), en el que el material zeolítico que contiene estaño que comprende, preferentemente que consiste en, el tipo de estructura BEA, puede obtenerse u se obtiene mediante un procedimiento que comprende

- (a) proporcionar un material zeolítico que tiene una estructura BEA que comprende X_2O_3 e YO_2 , en el que Y es un elemento tetravalente seleccionado de entre el grupo que consiste en Si, Ti, Zr, Ge, y combinaciones de dos o más de los mismos, preferentemente Si, y X es un elemento trivalente seleccionado de entre el grupo que consiste en B, In, Ga, Fe, y combinaciones de dos o más de los mismos, preferentemente B, teniendo dicha estructura BEA sitios huecos de estructura tetraédrica;
- (b) proporcionar una fuente de iones de estaño en forma sólida, preferentemente acetato de estaño (II);

5 (c) incorporar estaño en el material zeolítico proporcionado en (a) poniendo el material zeolítico proporcionado en (a) en contacto con la fuente de iones de estaño proporcionada en (b) bajo condiciones de intercambio iónico en estado sólido, que comprende preferentemente mezclar el material zeolítico material proporcionado en (a) con la fuente de iones de estaño y triturar y/o moler la mezcla del material zeolítico proporcionado en (a) y la fuente de iones de estaño, obteniendo un material zeolítico que contiene estaño que tiene una estructura BEA;

(d) someter el material zeolítico obtenido en (c) a un tratamiento térmico, que preferentemente comprende calcinar el material zeolítico obtenido en (c), preferentemente a una temperatura comprendida en el intervalo de 400 a 700°C;

10 (e) tratar opcionalmente el material zeolítico tratado térmicamente obtenido en (d) con una solución acuosa que tiene un pH de como máximo 5, más preferentemente un pH comprendido en el intervalo de 0 a 2;

comprendiendo opcionalmente dicho procedimiento, además

(f) secar y/o calcinar el material zeolítico obtenido en (e), opcionalmente después de un lavado, en el que el secado se realiza preferentemente a una temperatura comprendida en el intervalo de 100 a 180°C durante un período comprendido en el intervalo de 10 a 70 horas, y la calcinación se realiza preferentemente a una temperatura comprendida en el intervalo de 550 a 700°C durante un período comprendido en el intervalo de 1 a 10 horas;

15 en el que según (a), el material zeolítico que tiene una estructura BEA que tiene sitios huecos de estructura tetraédrica se proporciona preferentemente mediante un procedimiento que comprende

(a.1) proporcionar un material zeolítico de partida que tiene una estructura BEA, en el que la estructura del material zeolítico de partida comprende X_2O_3 e YO_2 y la relación molar $X_2O_3:YO_2$ es mayor de 0,02:1, preferentemente está comprendida en el intervalo de 0,03:1 a 0,05:1;

20 (a.2) crear sitios huecos de estructura tetraédrica tratando el material zeolítico de partida proporcionado en (a.1) con un sistema de disolvente líquido, preferentemente bajo reflujo, obteniendo un material zeolítico que tiene una relación molar $X_2O_3:YO_2$ de como máximo 0,02:1, en el que el sistema de disolvente líquido es preferentemente agua, en el que más preferentemente, el sistema de disolvente líquido no contiene un ácido inorgánico u orgánico, o una sal del mismo, y en el que el tratamiento se realiza preferentemente a una temperatura comprendida en el intervalo de 50 a 125°C, preferentemente durante un período comprendido en el intervalo de 6 a 20 horas;

25 (a.3) separar al menos parcialmente el material zeolítico obtenido en (a.2) del sistema de disolvente líquido, incluyendo opcionalmente un secado;

30 (a.4) opcionalmente calcinar el material zeolítico separado obtenido en (a.3), preferentemente a una temperatura comprendida en el intervalo de 400 a 700°C, y preferentemente durante un período de tiempo comprendido en el intervalo de 1 a 10 horas.

Según (i), el compuesto de fórmula (I) se oxida con peróxido de hidrógeno. Generalmente, puede concebirse el empleo de una fuente de peróxido de hidrógeno adecuada. De esta manera, puede concebirse que, en la mezcla de reacción según (i), el peróxido de hidrógeno se forme de manera adecuada in situ. Preferentemente, el peróxido de hidrógeno se emplea como una solución acuosa que contiene peróxido de hidrógeno. Preferentemente, la solución acuosa contiene el peróxido de hidrógeno en una cantidad comprendida en el intervalo del 25 al 85% en peso, más preferentemente en el intervalo del 25 al 80% en peso, más preferentemente en el intervalo del 25 al 75% en peso, en base al peso total de la solución acuosa. Dependiendo del disolvente que está contenido preferentemente en la mezcla de reacción, se ha encontrado que hay presente más de una fase líquida cuando la concentración de peróxido de hidrógeno en la solución acuosa es comparativamente baja, tal como en el intervalo del 25 al 55% en peso o en el intervalo del 25 al 45% en peso o en el intervalo del 25 al 35% en peso. Debido a que la presencia de más de una fase líquida normalmente tiende a complicar el diseño del procedimiento, es preferente que la solución acuosa contenga el peróxido de hidrógeno en una cantidad comprendida en el intervalo del 65 al 75% en peso, en base al peso total de la solución acuosa.

Preferentemente, al inicio de la oxidación en (i), la relación molar del compuesto de fórmula (I) con relación al peróxido de hidrógeno es al menos 1:1, más preferentemente en el intervalo de 10:1 a 1:1, más preferentemente en el intervalo de 9:1 a 1:1, más preferentemente en el intervalo de 8:1 a 1:1, más preferentemente en el intervalo de 7:1 a 1:1, más preferentemente en el intervalo de 6:1 a 1:1, más preferentemente en el intervalo de 5:1 a 1:1, más preferentemente en el intervalo de 4:1 a 1:1, más preferentemente en el intervalo de 3:1 a 1:1. Más preferentemente, al inicio de la oxidación en (i), la relación molar del compuesto de fórmula (I) con relación al peróxido de hidrógeno está comprendida en el intervalo de 2:1 a 1:1, más preferentemente en el intervalo de 1,5:1 a 1:1, más preferentemente en el intervalo de 1,3:1 a 1:1, tal como en el intervalo de 1,3:1 a 1,2:1 o de 1,2:1 a 1,1:1 o de 1,1:1 a 1:1.

Preferentemente, la oxidación en (i) se realiza en un disolvente. Con relación a la naturaleza química del disolvente, no existen restricciones específicas, siempre y cuando pueda realizarse el presente procedimiento. Preferentemente, el

disolvente comprende, más preferentemente es, un disolvente orgánico. Más preferentemente, el disolvente comprende, más preferentemente es, uno o más de entre alcoholes, ésteres, éteres, opcionalmente alcanos sustituidos de manera adecuada, nitrilos.

5 Puede ser preferente que el disolvente comprenda, preferentemente consista en, uno o más alcoholes, preferentemente uno o más alcoholes C4, uno o más alcoholes C5, uno o más alcoholes C6, uno o más alcoholes C7, uno o más alcoholes C8, uno o más alcoholes C9, o una mezcla de dos o más de los mismos. Preferentemente, los uno o más alcoholes comprenden, preferentemente consisten en, uno o más de entre tert-butanol, 2-metil-2-butanol, n-pentanol, 3-metil-1-butanol, n-hexanol, 2-metil-1-pentanol, 3-heptanol, 2-etil-1-hexanol, 2-octanol, 1-octanol, 2,4,4-trimetil-1-hexanol, 2,6-dimetil-4-heptanol, 2-propil-1-heptanol y 2-propil-5-metil-1-hexanol. Más preferentemente, los uno o más alcoholes comprenden, preferentemente consisten en, uno o más de 2-etil-1-hexanol y 3-heptanol.

10 Por lo tanto, la presente invención se refiere también al procedimiento de preparación de un compuesto de fórmula (III), que comprende

(i) oxidar un compuesto de fórmula (I) más del 50% del cual está presente como compuesto de fórmula (Ia)



20 con peróxido de hidrógeno en presencia de un catalizador que comprende un material zeolítico que contiene estaño con estructura tipo BEA en un disolvente que comprende, preferentemente que consiste en, uno o más de entre 2-etil-1-hexanol y 3-heptanol, obteniendo una mezcla de reacción.

Por lo tanto, la presente invención se refiere también al procedimiento de preparación de un compuesto de fórmula (III), que comprende

(i) oxidar un compuesto de fórmula (I) más del 50% del cual está presente como compuesto de fórmula (Ia)



30 con peróxido de hidrógeno en presencia de un catalizador que comprende un material zeolítico que contiene estaño con estructura de tipo BEA en un disolvente que comprende, preferentemente que consiste en, uno o más de entre 2-etil-1-hexanol y 3-heptanol, comprendiendo dicho catalizador un material zeolítico que contiene estaño con estructura de tipo BEA que puede obtenerse o que se obtiene mediante un procedimiento que comprende incorporar el estaño en un material zeolítico que tiene una estructura BEA y que tiene sitios huecos de estructura tetraédrica mediante un procedimiento de intercambio iónico en estado sólido, en el que el material zeolítico que contiene estaño con estructura de tipo BEA tiene preferentemente un contenido de estaño comprendido en el intervalo del 2 al 14% en peso en base al peso total del material zeolítico molecular que contiene estaño, en el que preferentemente al menos 99% en peso de la estructura del material zeolítico que contiene estaño con estructura de tipo BEA consiste en Sn, O, H, Si y B, y en el que, en la estructura de la zeolita que contiene material zeolítico que contiene estaño con estructura de tipo BEA, la relación molar $B_2O_3:SiO_2$ está comprendida preferentemente en el intervalo de 0,001:1 a 0,01:1, obteniendo una mezcla de reacción.

40 Con relación a la cantidad de disolvente usado en (i), no hay restricciones específicas siempre y cuando pueda realizarse el procedimiento de la invención. Preferentemente, al inicio de la oxidación en (i), la relación en peso del compuesto de fórmula (I) con relación al disolvente es como máximo 1:2. Más preferentemente, al inicio de la oxidación en (i), la relación en peso del compuesto de fórmula (I) con relación al disolvente está comprendida en el intervalo de 1:10 a 1:2, más preferentemente en el intervalo de 1:9 a 1:2, más preferentemente en el intervalo de 1:8 a 1:2, más preferentemente en el intervalo de 1:7 a 1:2, más preferentemente en el intervalo de 1:6 a 1:2, más preferentemente en el intervalo de 1:5 a 1:2, más preferentemente en el intervalo de 1:4 a 1:2, tal como en el intervalo de 1:4 a 1:3,5 o de 1:3,5 a 1:3 o de 1:3 a 1:2,5 o de 1:2,5 a 1:2.

La temperatura a la que se realiza la oxidación en (i) puede depender del disolvente suado en (i). Preferentemente, el disolvente se elegirá de manera que la oxidación en (i) pueda realizarse a una temperatura de la mezcla de reacción

comprendida en el intervalo de 30 a 90°C, más preferentemente en el intervalo de 35 a 85°C, más preferentemente en el intervalo de 40 a 80°C, más preferentemente en el intervalo de 45 a 70°C, más preferentemente en el intervalo de 50 a 60°C. Por lo tanto, la oxidación en (i) se realiza preferentemente a una temperatura de la mezcla de reacción comprendida en el intervalo de 30 a 90°C, más preferentemente en el intervalo de 35 a 85°C, más preferentemente en el intervalo de 40°C a 80°C, más preferentemente en el intervalo de 45 a 70°C, más preferentemente en el intervalo de 50 a 60°C, tal como en el intervalo de 50 a 55°C o de 55 a 60°C.

Puede ser preferente que, en una primera etapa de reacción en (i), el compuesto de fórmula (I) y el catalizador, preferentemente junto con el disolvente, se calienten a la temperatura indicada anteriormente y, una vez alcanzada esta temperatura de la mezcla, el peróxido de hidrógeno, preferentemente en forma de solución acuosa, se añade a la mezcla a esta temperatura. La oxidación en (i) puede realizarse a más de dos temperaturas de reacción.

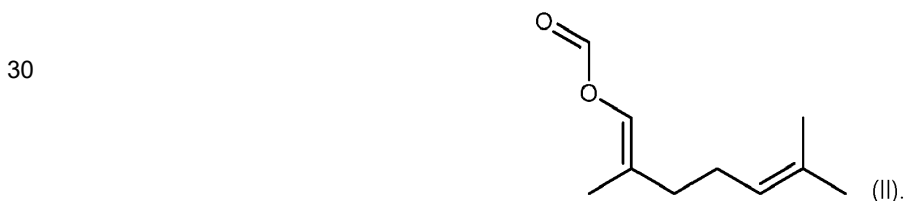
Según una realización preferente de la presente invención, la oxidación en (i) se realiza en modo por lotes. Con relación a esta realización, el catalizador usado en (i) se emplea preferentemente como polvo o como polvo de pulverización o como granulado de pulverización. Durante la pulverización, es posible añadir al menos un aglutinante y/o con al menos un precursor de aglutinante que, entonces, están comprendidos en el polvo de pulverización o el granulado de pulverización. Los aglutinantes adecuados se describen a continuación en el contexto de las piezas moldeadas que se usan preferentemente en una reacción continua. Es preferente además que, según esta realización de modo por lotes, al menos el 90% en peso, más preferentemente al menos el 91% en peso, más preferentemente al menos el 92% en peso, más preferentemente al menos el 93% en peso, más preferentemente al menos el 94% en peso, más preferentemente al menos el 95% en peso, más preferentemente al menos el 96% en peso, más preferentemente al menos el 97% en peso, más preferentemente al menos el 98% en peso, más preferentemente al menos el 99% en peso del catalizador consiste en el tamiz molecular que contiene estaño. Además, es preferente que, según esta realización, la oxidación en (i) se realice durante un período de tiempo comprendido en el intervalo de 3 a 600 minutos, preferentemente en el intervalo de 30 a 500 minutos, más preferentemente en el intervalo en el intervalo de 60 a 400 minutos. Además, puede ser preferente que, según esta realización, la oxidación en (i) se realice durante un período de tiempo comprendido en el intervalo de 1 a 25 minutos, preferentemente en el intervalo de 2 a 20 minutos, más preferentemente en el intervalo de 3 a 15 minutos.

Según una realización concebible de la presente invención, la oxidación en (i) se realiza en modo continuo. Según esta realización, es preferente el empleo de un molde preparado en base al tamiz molecular que contiene estaño. En dicho procedimiento de preparación de dicha pieza moldeada, el tamiz molecular que contiene estaño, opcionalmente después de una modificación adicional, se conforma de manera adecuada y opcionalmente se trata posteriormente. Para la conformación, por ejemplo, indicada anteriormente en las realizaciones en (g), el tamiz molecular que contiene estaño puede mezclarse con al menos un aglutinante y/o con al menos un precursor de aglutinante, y opcionalmente con al menos un agente formador de poros y/o al menos un agente plastificante. Los ejemplos de dichos aglutinantes son óxidos metálicos, tales como, por ejemplo, SiO₂, Al₂O₃, TiO₂, ZrO₂ o MgO o arcillas o mezclas de dos o más de estos óxidos u óxidos mixtos de al menos dos de entre Si, Al, Ti, Zr y Mg. Los minerales de arcilla y alúmina de origen natural o producida sintéticamente, tal como, por ejemplo, alfa-, beta-, gamma-, delta-, eta-, kappa-, qui- o theta-alúmina y sus compuestos precursores inorgánicos u organometálicos, tales como, por ejemplo, gibbsita, bayerita, boehmita o pseudoboehmita o triaalcóxialuminatos, tales como, por ejemplo, trisopropilato de aluminio, son particularmente preferentes como aglutinantes Al₂O₃. Otros aglutinantes concebibles podrían ser compuestos anfífilos que tienen una fracción polar y no polar y grafito. Otros aglutinantes pueden ser, por ejemplo, arcillas, tales como, por ejemplo, montmorillonitas, caolines, metacaolina, hectorita, bentonitas, halloisitas, dickitas, nacritas o anaxitas. Estos aglutinantes pueden usarse como tales o en forma de compuestos precursores adecuados que, durante el secado por pulverización o la granulación por pulverización y/o la calcinación, forman el aglutinante deseado. Los ejemplos de dichos precursores de aglutinante son tetraalcóxisilanos, tetraalcóxítitanatos, tetraalcóxícirconatos o una mezcla de dos o más tetraalcóxisilanos diferentes o una mezcla de dos o más tetraalcóxítitanatos diferentes o una mezcla de dos o más tetraalcóxícirconatos diferentes o una mezcla de al menos un tetraalcóxisilano y al menos un tetraalcóxítitanato o de al menos un tetraalcóxisilano y al menos un tetraalcóxícirconato o de al menos un tetraalcóxítitanato y al menos un tetraalcóxícirconato o una mezcla de al menos un tetraalcóxisilano y al menos un tetraalcóxítitanato y al menos un tetraalcóxícirconato. En el contexto de la presente invención, pueden ser preferentes aglutinantes que comprenden total o parcialmente SiO₂, o que son un precursor de SiO₂, a partir del cual se forma SiO₂. En este contexto, pueden usarse tanto sílice coloidal como la denominada sílice de "procedimiento húmedo" y la denominada sílice de "procedimiento seco". De manera particularmente preferente, esta sílice es sílice amorfa, estando comprendido el tamaño de las partículas de sílice, por ejemplo, en el intervalo de 5 a 100 nm y estando comprendido el área superficial de las partículas de sílice en el intervalo de 50 a 500 m²/gramo. La sílice coloidal, preferentemente como una solución alcalina y/o amoniacal, más preferentemente como una solución amoniacal, está disponible comercialmente, entre otros, por ejemplo, como Ludox®, Syton®, Nalco® o Snowtex®. Snowtexodoca, preferentemente como alcalino y/o amoniacal, por ejemplo, como Hi-Sil®, Ultrasil®, Vulcasil®, Santocel®, Valron-Estersil®, Tokusil® o Nipsil®. r Nipsilstersille como Hi-Silas con capacidad alcalina, entre otros, por ejemplo, tal como Aerosil®, Reolosil®, Cab-O-Sil®, Fransil® o ArcSilica®. Entre otras cosas, una solución amoniacal de sílice coloidal es preferente en la presente invención. Los agentes formadores de poros

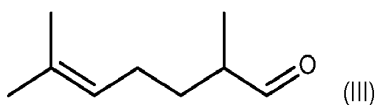
5 incluyen, pero no se limitan a, polímeros tales como compuestos vinílicos poliméricos, tales como óxidos de polialqueno tales como óxidos de polietileno, poliestireno, poliacrilatos, polimetacrilatos, poliolefinas, poliamidas y poliésteres, carbohidratos, tales como celulosa o derivados de celulosa tales como metilcelulosa, o azúcares o fibras naturales. Otros agentes formadores de poros adecuados pueden ser, por ejemplo, pulpa o grafito. Si se desea, con vistas a conseguir las características de poro, puede usarse una mezcla de dos o más agentes formadores de poros. En una realización particularmente preferente, los agentes formadores de poros se eliminan mediante calcinación según (h) y/o (k), tal como se ha indicado anteriormente. En lo que se refiere a la relación de la cantidad de tamiz molecular que contiene estaño con relación a la cantidad de aglutinante en la pieza moldeada, generalmente puede elegirse libremente. Generalmente, la relación en peso del tamiz molecular que contiene estaño con relación al aglutinante está comprendida en el intervalo de 20:1 a 1:20, preferentemente de 10:1 a 1:10, más preferentemente de 1:1 a 1:10. Para preparar una pieza moldeada basada en el tamiz molecular que contiene estaño, finalmente puede usarse un agente de pasta para permitir una procesabilidad mejorada de la mezcla moldeable. Los agentes de pasta concebibles son, entre otros, polímeros orgánicos, en particular hidrófilos, tales como por ejemplo carbohidratos tales como celulosa, derivados de celulosa tales como por ejemplo metilcelulosa y almidón tales como, por ejemplo, almidón de patata, yeso papel pintado, poliacrilatos, polimetacrilatos, alcohol polivinílico, polivinilpirrolidona, poliisobuteno o politetrahydrofurano. Puede mencionarse el uso de agua, alcoholes o glicoles o mezclas de los mismos, tales como mezclas de agua y alcohol, o agua y glicol, tales como por ejemplo agua y metanol, o agua y etanol, o agua y propanol, o agua y propilenglicol, como agentes de pasta. Preferentemente, se usan carbohidratos tales como celulosa, derivados de celulosa, agua y mezclas de dos o más de estos compuestos, tales como agua y celulosa o agua y derivados de celulosa como agente de pasta. En una realización particularmente preferente del procedimiento según la invención, el al menos un agente de pasta se elimina mediante secado y/o calcinación.

25 Generalmente, las condiciones del procedimiento se eligen preferentemente de manera que la oxidación en (i) se realice de manera que, durante la oxidación, la conversión de peróxido de hidrógeno esté comprendida al menos en el intervalo del 60 al 80%, tal como al menos el 60% o al menos el 70% o al menos el 80%. En particular, durante la oxidación en (i), la temperatura de la mezcla de reacción y el tiempo de reacción se eligen preferentemente de manera que, durante la oxidación, la conversión de peróxido de hidrógeno esté comprendida al menos en el intervalo del 60 al 80%.

A partir de la oxidación en (i) se obtiene una mezcla de reacción que comprende, como producto principal de la oxidación de Baeyer-Villiger, el compuesto de fórmula (II)



35 Además, la mezcla de reacción obtenida en (i), puede comprender también el compuesto de fórmula (III). Debido a que el compuesto de fórmula de fórmula (III)



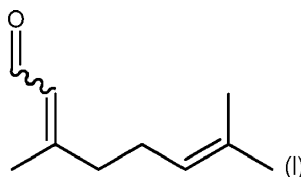
40 puede formarse a partir del formiato de enol de fórmula (II) mediante hidrólisis directa, los valores de selectividad para melonal descritos en el contexto de la presente invención se refieren a los valores de selectividad para la suma del compuesto de fórmula (II) y el compuesto de fórmula (III) contenido en la mezcla de reacción obtenida en (i).

Debido a que el melonal es el producto principal, es preferente que después de (i), el compuesto de fórmula (II) se hidrolice de manera adecuada, obteniendo una mezcla que contiene el compuesto de fórmula (III). Por lo tanto, la presente invención se refiere también al procedimiento de preparación de un compuesto de fórmula (III)



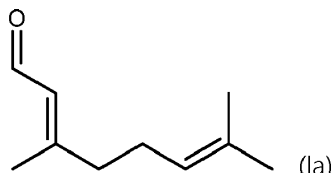
comprendiendo dicho procedimiento

(i) oxidar un compuesto de fórmula (I)



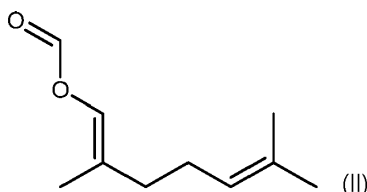
5

más del 50% del cual está presente como compuesto de fórmula (Ia)



10

con peróxido de hidrógeno en presencia de un catalizador que comprende un tamiz molecular que contiene estaño, obteniendo una mezcla de reacción que comprende un compuesto de fórmula (II)



15

y opcionalmente el compuesto de fórmula (III),

en el que después de (i), la mezcla que comprende el compuesto de fórmula (II) y opcionalmente el compuesto de fórmula (III) se somete a condiciones de hidrolización, hidrolizando de esta manera el compuesto de fórmula (II), obteniendo una mezcla que contiene el compuesto de fórmula (III). Preferentemente, antes de someter la mezcla que comprende el compuesto de fórmula (II) y opcionalmente el compuesto de fórmula (III) a condiciones de hidrolización, el catalizador que comprende un tamiz molecular que contiene estaño se separa de manera adecuada desde dicha mezcla. Preferentemente, antes de someter la mezcla que comprende el compuesto de fórmula (II) y opcionalmente el compuesto de fórmula (III) a condiciones de hidrolización, más preferentemente antes de separar de manera adecuada el catalizador que comprende un tamiz molecular que contiene estaño desde dicha mezcla, la mezcla de reacción obtenida en (i) se enfría, preferentemente a una temperatura comprendida en el intervalo de 5 a 40°C, más preferentemente en el intervalo de 8 a 20°C, más preferentemente en el intervalo de 10 a 15°C. Preferentemente, después de hidrolizar el compuesto de fórmula (II), el compuesto de fórmula (III) se separa de manera adecuada desde la mezcla obtenida a partir de dicha hidrolización.

20

25

Por lo tanto, la presente invención se refiere también al procedimiento definido anteriormente, que comprende, además

(ii) preferentemente separar el catalizador de Baeyer-Villiger, preferentemente un catalizador que comprende un tamiz molecular que contiene estaño, desde la mezcla obtenida en (i);

(iii) hidrolizar el compuesto de fórmula (II), obteniendo una mezcla que contiene el compuesto de fórmula (III);

(iv) preferentemente separar el compuesto de fórmula (III) desde la mezcla obtenida en (iii).

De esta manera, la presente invención se refiere también al procedimiento definido anteriormente, que comprende, además

(ii) separar el catalizador de Baeyer-Villiger, preferentemente un catalizador que comprende un tamiz molecular que contiene estaño, desde la mezcla obtenida en (i);

(iii) hidrolizar el compuesto de fórmula (II), obteniendo una mezcla que contiene el compuesto de fórmula (III);

(iv) separar el compuesto de fórmula (III) desde la mezcla obtenida en (iii).

40

En lo referente a la separación según (ii), no existen restricciones específicas. Si, por ejemplo, el procedimiento de la invención se realiza en modo por lotes, es preferente que la separación comprenda, preferentemente consista en,

someter la mezcla obtenida en (i) a filtración. Otros procedimientos de separación, tales como los procedimientos de separación de fases, son también una opción. Generalmente, es concebible que el catalizador contenido en la torta de filtración obtenida respectivamente sea reutilizado, después de haber sido opcionalmente regenerado de manera adecuada, como catalizador en (i).

5 La hidrolización en (iii) puede realizarse mediante cualquier procedimiento que conduzca al compuesto de fórmula (III). Preferentemente, para la hidrolización en (iii), se añade una base acuosa a la mezcla obtenida en (i), preferentemente en (ii). Preferentemente, la base acuosa es una solución acuosa de una base inorgánica, más preferentemente una solución acuosa de un hidróxido, más preferentemente una solución acuosa de un hidróxido de metal alcalino, más preferentemente una solución acuosa de hidróxido de sodio. Preferentemente, la solución acuosa de hidróxido de sodio
10 contiene el hidróxido de sodio en una cantidad comprendida en el intervalo del 1 al 25% en peso, preferentemente en el intervalo del 2 al 20% en peso, más preferentemente en el intervalo del 5 al 15% en peso, en base al peso total de la solución acuosa de hidróxido de sodio. Preferentemente, la base acuosa se añade a la mezcla de reacción a una temperatura de la mezcla de reacción comprendida en el intervalo de 5 a 40°C, preferentemente en el intervalo de 8 a 20°C, más preferentemente en el intervalo de 10 a 15°C.

15 Con la adición de la base acuosa a la mezcla de reacción obtenida a partir de la oxidación en (i) y preferentemente de la separación en (ii), se obtienen una fase orgánica que contiene el compuesto de fórmula (III) y una fase acuosa. Por lo tanto, es preferente que la separación del compuesto de fórmula (III) desde la mezcla obtenida a partir de (iii) comprenda separar la fase orgánica desde la fase acuosa, en la que la fase orgánica que comprende el compuesto de fórmula (III) preferentemente se lava de manera adecuada, preferentemente con un agente de lavado que comprende agua. Más preferentemente, al menos el 95% en peso, preferentemente al menos el 99% en peso, más preferentemente al menos el 99,9% en peso del agente de lavado consiste en agua. Dicho lavado puede realizarse a cualquier temperatura adecuada, en el que la temperatura del agente de lavado está comprendida preferentemente en el intervalo de 5 a 40°C, más preferentemente en el intervalo de 10 a 30°C, más preferentemente en el intervalo de 15 a 25°C.

20 Aunque es generalmente concebible que la fase orgánica separada desde la fase acuosa y preferentemente lavada se use como tal, es preferente que el compuesto de fórmula (III) se separe de manera adecuada desde la fase orgánica. Con relación a esta separación, no existen restricciones específicas, siempre y cuando el compuesto de fórmula (III) se obtenga en forma separada. Preferentemente, dicha separación del compuesto de fórmula (III) desde la fase orgánica comprende destilación, preferentemente destilación fraccionada.

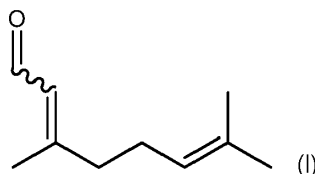
Mezclas

30 Generalmente, la presente invención se refiere también a una mezcla, obtenible u obtenida mediante un procedimiento según la presente invención, preferentemente la mezcla de reacción obtenible u obtenida desde la etapa (i) del procedimiento de la presente invención.

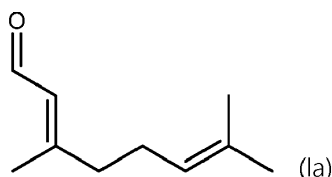
Según la presente invención, se ha encontrado que el uso del compuesto de fórmula (I) en el que más del 50% del compuesto de fórmula (I) está presente como compuesto de fórmula (Ia) exhibe una ventaja con relación a las enseñanzas de la técnica anterior que se refiere exclusivamente al uso de una mezcla 1:1 del compuesto de fórmula (Ia) y de fórmula (Ib). El material de partida del procedimiento novedoso e inventivo es la mezcla que se emplea como
35 mezcla de partida para la oxidación de Baeyer-Villiger en (i).

Por lo tanto, la presente invención se refiere también a esta mezcla, en particular a una mezcla que comprende un compuesto de fórmula (I)

40



45 en la que más del 50%, preferentemente al menos el 55%, más preferentemente al menos el 60%, más preferentemente al menos el 65%, más preferentemente al menos el 70%, más preferentemente al menos el 75%, más preferentemente al menos el 80%, más preferentemente al menos el 85%, más preferentemente al menos el 90%, más preferentemente al menos el 95%, más preferentemente al menos el 96%, más preferentemente al menos el 97%, más preferentemente al menos el 98% del compuesto de fórmula (I) está presente como compuesto de fórmula (Ia)



5

y un catalizador de oxidación de Baeyer-Villiger que preferentemente comprende un tamiz molecular que contiene estaño, preferentemente un tamiz molecular que contiene estaño tal como se ha definido anteriormente, más preferentemente un material zeolítico que contiene estaño tal como se ha definido anteriormente, más preferentemente un material zeolítico que tiene estructura tipo de estructura BEA tal como se ha definido en la presente memoria anteriormente, más preferentemente un material zeolítico que contiene estaño que tiene una estructura de tipo BEA obtenible u obtenido mediante un procedimiento que comprende incorporar estaño en un material zeolítico que tiene una estructura de tipo BEA mediante un procedimiento de intercambio iónico en estado sólido tal como se ha definido anteriormente en la presente memoria. Preferentemente, esta mezcla comprende además un disolvente, más preferentemente un disolvente tal como se ha descrito en la presente memoria anteriormente. En dicha mezcla, la relación en peso del compuesto de fórmula (I) con relación al disolvente está comprendida preferentemente en el intervalo de 1:10 a 1:2, preferentemente en el intervalo de 1:5 a 1:2, más preferentemente en el intervalo de 1:4 a 1:2.

10

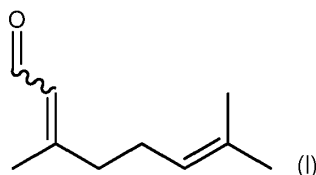
15

Usos

Tal como se ha indicado anteriormente, se ha encontrado que el uso del compuesto de fórmula (I) en el que más del 50% del compuesto de fórmula (I) está presente como compuesto de fórmula (la) exhibe una ventaja con relación a las enseñanzas de la técnica anterior relacionadas exclusivamente con el uso de una mezcla 1:1 del compuesto de fórmula (la) y de fórmula (Ib).

20

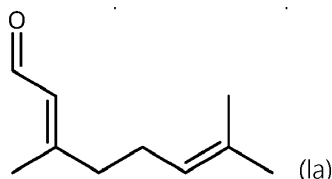
Por lo tanto, la presente invención se refiere también al uso de un compuesto de fórmula (I)



25

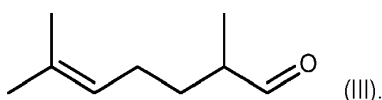
más del 50% del cual, preferentemente al menos el 55%, más preferentemente al menos el 60%, más preferentemente al menos el 65%, más preferentemente al menos el 70%, más preferentemente al menos el 75%, más preferentemente al menos el 80%, más preferentemente al menos el 85%, más preferentemente al menos el 90%, más preferentemente al menos el 95%, más preferentemente al menos el 96%, más preferentemente al menos el 97%, más preferentemente al menos el 98% está presente como compuesto de fórmula (la)

30



35

para preparar un compuesto de fórmula (III)

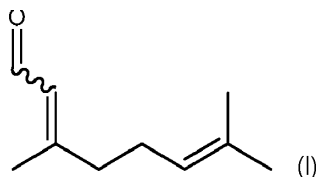


40

Aumenta la selectividad y/o reduce el tiempo de reacción de la oxidación de Baeyer-Villiger del compuesto de fórmula (I) en comparación con la oxidación de Baeyer-Villiger respectiva del compuesto de fórmula (I) como máximo el 50% del cual está presente como compuesto de fórmula (la), en condiciones de oxidación por lo demás idénticas.

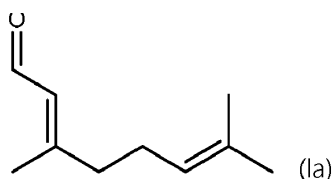
Además, la presente invención se refiere también al uso de la mezcla de partida descrita anteriormente, en particular una mezcla que comprende un compuesto de fórmula (I)

5



10

en la que más del 50%, preferentemente al menos el 55%, más preferentemente al menos el 60%, más preferentemente al menos el 65%, más preferentemente al menos el 70%, más preferentemente al menos el 75%, más preferentemente al menos el 80%, más preferentemente al menos el 85%, más preferentemente al menos el 90%, más preferentemente al menos el 95%, más preferentemente al menos el 96%, más preferentemente al menos el 97%, más preferentemente al menos el 98% del compuesto de fórmula (I) está presente como compuesto de fórmula (Ia)

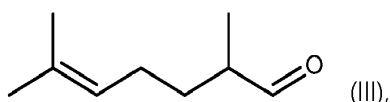


15

y un catalizador de oxidación de Baeyer-Villiger que preferentemente comprende un tamiz molecular que contiene estaño, preferentemente un tamiz molecular que contiene estaño tal como se ha definido anteriormente, más preferentemente un material zeolítico que contiene estaño tal como se ha definido anteriormente, más preferentemente un material zeolítico que contiene estaño que tiene estructura de tipo BEA tal como se ha definido anteriormente en la presente memoria, más preferentemente un material zeolítico que contiene estaño que tiene una estructura de tipo BEA obtenible u obtenido mediante un procedimiento que comprende incorporar estaño en un material zeolítico que tiene una estructura de tipo BEA mediante un procedimiento de intercambio iónico en estado sólido tal como ha definido anteriormente en la presente memoria. Preferentemente, esta mezcla comprende además un disolvente, más preferentemente un disolvente tal como se ha descrito anteriormente en la presente memoria. En dicha mezcla, la relación en peso del compuesto de fórmula (I) con relación al disolvente está comprendida preferentemente en el intervalo de 1:10 a 1:2, preferentemente en el intervalo de 1:5 a 1:2, más preferentemente en el intervalo de 1:4 a 1:2, bien para aumentar la selectividad y/o bien para disminuir el tiempo de reacción de la oxidación de Baeyer-Villiger del compuesto de fórmula (I) para preparar un compuesto de fórmula (III)

20

25

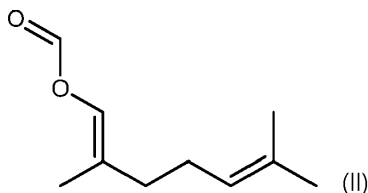


30

en comparación con la oxidación de Baeyer-Villiger respectiva del compuesto de fórmula (I) del cual como máximo el 50% está presente como compuesto de fórmula (Ia), bajo condiciones de oxidación por lo demás idénticas.

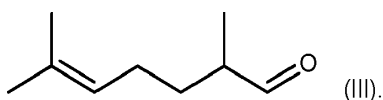
Además, la presente invención se refiere también al uso de dicha mezcla de partida para preparar un compuesto de fórmula (II)

35



y/o para preparar un compuesto de fórmula (III)

40

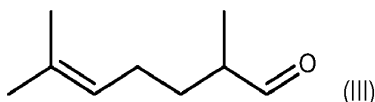


La presente invención se ilustra además mediante las siguientes realizaciones y combinaciones de realizaciones según

las dependencias y referencias indicadas:

1. Un procedimiento, preferentemente un procedimiento en fase líquida, de preparación de un compuesto de fórmula (III)

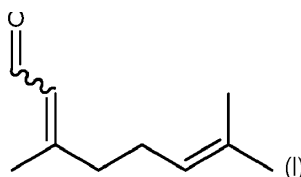
5



comprendiendo dicho procedimiento

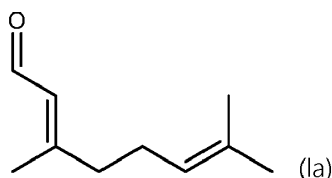
- (i) oxidar un compuesto de fórmula (I)

10



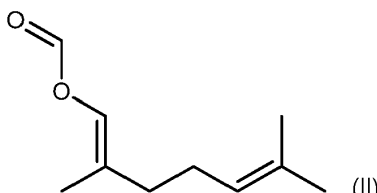
más del 50% del cual está presente como compuesto de fórmula (Ia)

15



con peróxido de hidrógeno en presencia de un catalizador Baeyer-Villiger, preferentemente un catalizador que comprende un tamiz molecular que contiene estaño, obteniendo una mezcla de reacción que comprende un compuesto de fórmula (II)

20



25

y opcionalmente el compuesto de fórmula (III).

2. El procedimiento de la realización 1, en el que en (i), al menos el 55%, preferentemente al menos el 65%, más preferentemente al menos el 75%, más preferentemente al menos el 80%, más preferentemente al menos el 90% del compuesto de fórmula (I) está presente como compuesto de fórmula (Ia).

30

3. El procedimiento de la realización 1 o 2, en el que en (i), al menos el 95%, preferentemente al menos el 96%, más preferentemente al menos el 97%, más preferentemente al menos el 98% del compuesto de fórmula (I) está presente como compuesto de fórmula (Ia).

4. El procedimiento de una cualquiera de las realizaciones 1 a 3, en el que en (i), el tamiz molecular que contiene estaño comprende microporos, o mesoporos, o microporos y mesoporos.

35

5. El procedimiento de una cualquiera de las realizaciones 1 a 4, en el que en (i), el tamiz molecular que contiene estaño comprende, preferentemente consiste en, un tamiz molecular mesoporoso.

6. El procedimiento de la realización 5, en el que el tamiz molecular que contiene estaño comprende, preferentemente consiste en, MCM-41.

40

7. El procedimiento de una cualquiera de las realizaciones 1 a 4, en el que en (i), el tamiz molecular que contiene estaño comprende, preferentemente consiste en, un tamiz molecular microporoso que contiene estaño.

8. El procedimiento de las realizaciones 7, en el que el tamiz molecular microporoso que contiene estaño es un material zeolítico que contiene estaño.
9. El procedimiento de la realización 8, en el que en (i), el tipo de estructura del material zeolítico que contiene estaño se selecciona de entre el grupo que consiste en ABW, ACO, AEI, AEL, AEN, AET, AFG, AFI, AFN, AFO, AFR, AFS, AFT, AFV, AFX, AFY, AHT, ANA, APC, APD, AST, ASV, ATN, ATO, ATS, ATT, ATV, AVL, AWO, AWW, BCT, BEA, BEC, BIK, BOF, BOG, BOZ, BPH, BRE, BSV, CAN, CAS, CDO, CFI, CGF, CGS, CHA, CHI, CLO, CON, CZP, DAC, DDR, DFO, DFT, DOH, DON, EAB, EDI, EEI, EMT, EON, EPI, ERI, ESV, ETR, EUO, EZT, FAR, FAU, FER, FRA, GIS, GIU, GME, GON, GOO, HEU, IFO, IFR, IFW, IFY, IHW, IMF, IRN, IRR, ITY, ISV, ITE, ITG, ITH, ITN, ITR, ITT, ITV, ITW, IWR, IWS, IWW, IWW, JBW, JOZ, JRY, JSN, JSR, JST, JSW, KFI, LAU, LEV, LIO, LIT, LOS, LOV, LTA, LTF, LTJ, LTL, LTN, MAR, MAZ, MEI, MEL, MEP, MER, MFI, MFS, MON, MOR, MOZ, MRE, MSE, MSO, MTF, MTN, MTT, MTW, MVY, MWW, NAB, NAT, NES, NON, NPO, NPT, NSI, OBW, OFF, OKO, OSI, OSO, OWE, PAR, PAU, PCR, PHI, PON, PUN, RHO, RON, RRO, RSN, RTE, RTH, RUT, RWR, RWY, SAF, SAO, SAS, SAT, SAV, SBE, SBN, SBS, SBT, SEW, SFE, SFF, SFG, SFH, SFN, SFO, SFS, SFV, SFW, SGT, SIV, SOD, SOF, SOS, SSF, SSO, SSY, STF, STI, STT, STW, SVR, SVV, SZR, TER, THO, TON, TSC, TUN, UEI, UFI, UOS, UOV, UOZ, USI, UTL, UWY, VET, VFI, VNI, VSV, WEI, WEN, YUG, ZON, mezclas de dos o más de los mismos y tipos mixtos de dos o más de ellos.
10. El procedimiento de una cualquiera de las realizaciones 7 a 9, en el que en (i), el tipo de estructura del material zeolítico que contiene estaño se selecciona de entre el grupo que consiste en BEA, MWW, MFI, mezclas de dos o más de los mismos, y tipos mixtos de dos o más de los mismos.
11. El procedimiento de una cualquiera de las realizaciones 7 a 10, en el que en (i), el tipo de estructura del material zeolítico que contiene estaño comprende, preferentemente consiste en, el tipo de estructura BEA.
12. El procedimiento de una cualquiera de las realizaciones 1 a 11, en el que al menos el 95% en peso, preferentemente al menos el 97% en peso, más preferentemente al menos el 98% en peso de la estructura del tamiz molecular que contiene estaño consiste en Sn, O, H, un elemento Y tetravalente y opcionalmente un elemento X trivalente.
13. El procedimiento de una cualquiera de las realizaciones 1 a 12, en el que al menos el 99% en peso, preferentemente al menos el 99,5% en peso, más preferentemente al menos el 99,9% en peso de la estructura del tamiz molecular que contiene estaño consiste en Sn, O, H, un elemento Y tetravalente y opcionalmente un elemento X trivalente.
14. El procedimiento de la realización 13, en el que Y comprende, preferentemente es, uno o más de entre Si, Ge, Ti y Zr, en el que más preferentemente Y comprende, más preferentemente es, Si.
15. El procedimiento de la realización 13 o 14, en el que X comprende, preferentemente es, uno o más de entre B, In, Ga y Fe, en el que más preferentemente Y comprende, más preferentemente es, B.
16. El procedimiento de una cualquiera de las realizaciones 13 a 15, en el que X no es Al.
17. El procedimiento de una cualquiera de las realizaciones 1 a 16, en el que el tamiz molecular que contiene estaño tiene un contenido de estaño comprendido en el intervalo del 0,1 al 20% en peso, preferentemente del 0,5 al 18% en peso, más preferentemente del 2 al 14% en peso, en base al peso total del tamiz molecular que contiene estaño.
18. El procedimiento de una cualquiera de las realizaciones 1 a 16, en el que el tamiz molecular que contiene estaño tiene un contenido de estaño comprendido en el intervalo del 8 al 14% en peso, preferentemente del 10 al 14% en peso, en base al peso total del tamiz molecular que contiene estaño.
19. El procedimiento de la realización 18, en el que el tamiz molecular que contiene estaño comprende, preferentemente consiste en, un material zeolítico que contiene estaño y el tipo de estructura del material zeolítico que contiene estaño comprende, preferentemente consiste en, el tipo de estructura BEA.
20. El procedimiento de la realización 19, en el que al menos el 99% en peso, preferentemente al menos el 99,5% en peso, más preferentemente al menos el 99,9% en peso de la estructura del material zeolítico que contiene estaño consiste en Sn, O, H, Si y opcionalmente B.
21. El procedimiento de la realización 20, en el que en la estructura del material zeolítico que contiene estaño, la relación molar $B_2O_3:SiO_2$ es como máximo 0,01:1, preferentemente en el intervalo de 0,001:1 a 0,01:1, más preferentemente en el intervalo de 0,001:1 a 0,003:1.
22. El procedimiento de una cualquiera de las realizaciones 19 a 21, en el que el material zeolítico que contiene estaño que comprende, preferentemente que consiste en, el tipo de estructura BEA, es obtenible o se obtiene

mediante un procedimiento que comprende

5 (a) proporcionar un material zeolítico que tiene una estructura BEA que comprende X_2O_3 e YO_2 , en la que Y es un elemento tetravalente seleccionado de entre el grupo que consiste en Si, Ti, Zr, Ge, y combinaciones de dos o más de los mismos, preferentemente Si, y X es un elemento trivalente seleccionado de entre el grupo que consiste en B, In, Ga, Fe, y combinaciones de dos o más de los mismos, preferentemente B, teniendo dicha estructura BEA sitios huecos de estructura tetraédrica;

(b) proporcionar una fuente de iones de estaño en forma sólida, preferentemente acetato de estaño (II);

10 (c) incorporar estaño en el material zeolítico proporcionado en (a) poniendo el material zeolítico proporcionado en (a) en contacto con la fuente de iones de estaño proporcionada en (b) bajo condiciones de intercambio iónico en estado sólido, comprendiendo preferentemente mezclar el material zeolítico proporcionado en (a) con la fuente de iones de estaño y triturar y/o moler la mezcla del material zeolítico proporcionado en (a) y la fuente de iones de estaño, obteniendo un material zeolítico que contiene estaño que tiene una estructura BEA;

15 (d) someter el material zeolítico obtenido en (c) a un tratamiento térmico, que comprende preferentemente calcinar el material zeolítico obtenido en (c), preferentemente a una temperatura comprendida en el intervalo de 400 a 700°C;

(e) opcionalmente tratar el material zeolítico tratado térmicamente obtenido en (d) con una solución acuosa que tiene un pH de como máximo 5, más preferentemente un pH comprendido en el intervalo de 0 a 2;

opcionalmente comprendiendo además dicho procedimiento

20 (f) secar y/o calcinar el material zeolítico obtenido en (e), opcionalmente después de un lavado, en el que el secado se realiza preferentemente a una temperatura comprendida en el intervalo de 100 a 180°C durante un período comprendido en el intervalo de 10 a 70 horas, y la calcinación se realiza preferentemente a una temperatura comprendida en el intervalo de 550 a 700 en el intervalo de 100 a 180°C durante un peri;

en el que según (a), el material zeolítico que tiene una estructura BEA que tiene sitios huecos de estructura tetraédrica se proporciona preferentemente mediante un procedimiento que comprende

25 (a.1) proporcionar un material de partida zeolítico que tiene una estructura BEA, en el que la estructura del material de partida zeolítico comprende X_2O_3 e YO_2 y la relación molar $X_2O_3:YO_2$ es mayor de 0,02:1, preferentemente en el intervalo de 0,03:1 a 0,05:1;

30 (a.2) crear sitios huecos de estructura tetraédrica tratando el material de partida zeolítico proporcionado en (a.1) con un sistema disolvente líquido, preferentemente bajo reflujo, obteniendo un material zeolítico que tiene una relación molar $X_2O_3:YO_2$ de como máximo 0,02:1, en el que el sistema disolvente líquido es preferentemente agua, en el que más preferentemente, el sistema disolvente líquido no contiene un ácido inorgánico u orgánico, o una sal del mismo y en el que el tratamiento se realiza preferentemente a una temperatura comprendida en el intervalo de 50 a 125°C, preferentemente durante un período comprendido en el intervalo de 6 a 20 horas;

35 (a.3) separar al menos parcialmente el material zeolítico obtenido en (a.2) desde el sistema disolvente líquido, incluyendo opcionalmente el secado;

(a.4) opcionalmente calcinar el material zeolítico separado obtenido en (a.3), preferentemente a una temperatura comprendida en el intervalo de 400 a 700°C, y preferentemente durante un período de tiempo comprendido en el intervalo de 1 a 10 horas.

40 23. El procedimiento de una cualquiera de las realizaciones 1 a 22, en el que en (i), el peróxido de hidrógeno se emplea como una solución acuosa que contiene peróxido de hidrógeno, en el que la solución acuosa contiene el peróxido de hidrógeno preferentemente en una cantidad comprendida en el intervalo del 25 al 85% en peso, más preferentemente en el intervalo del 25 al 80% en peso, más preferentemente en el intervalo del 25 al 75% en peso, en base al peso total de la solución acuosa.

45 24. El procedimiento de la realización 23, en el que la solución acuosa contiene el peróxido de hidrógeno en una cantidad comprendida en el intervalo del 65 al 75% en peso, en base al peso total de la solución acuosa.

25. El procedimiento de una cualquiera de las realizaciones 1 a 24, en el que al inicio de la oxidación en (i), la relación molar del compuesto de fórmula (I) con relación al peróxido de hidrógeno está comprendida en el intervalo de 10:1 a 1:1, preferentemente en el intervalo de 5:1 a 1:1, más preferentemente en el intervalo de 3:1 a 1:1.

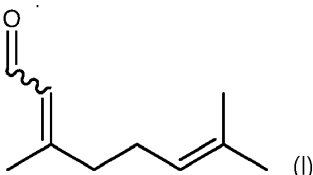
26. El procedimiento de una cualquiera de las realizaciones 1 a 25, en el que al inicio de la oxidación en (i), la relación

molar del compuesto de fórmula (I) con relación al peróxido de hidrógeno está comprendida en el intervalo de 2:1 a 1:1, preferentemente en el intervalo de 1,5:1 a 1:1, más preferentemente en el intervalo de 1,3:1 a 1:1.

- 5 27. El procedimiento de una cualquiera de las realizaciones 1 a 26, en el que la oxidación en (i) se realiza en un disolvente, preferentemente en un disolvente orgánico, que comprende preferentemente uno o más de entre alcoholes, ésteres, éteres, alcanos opcionalmente sustituidos de manera adecuada, nitrilos.
- 10 28. El procedimiento de la realización 27, en el que el disolvente comprende, preferentemente consiste en, uno o más alcoholes, preferentemente uno o más alcoholes C4, uno o más alcoholes C5, uno o más alcoholes C6, uno o más alcoholes C7, uno o más alcoholes C8, uno o más alcoholes C9 o una mezcla de dos o más de los mismos.
- 10 29. El procedimiento de la realización 27 o 28, en el que los uno o más alcoholes comprenden, preferentemente consisten en, uno o más de entre tert-butanol, 2-metil-2-butanol, n-pentanol, 3-metil-1-butanol, n-hexanol, 2-metil-1-pentanol, 3-heptanol, 2-etil-1-hexanol, 2-octanol, 1-octanol, 2,4,4-trimetil-1-hexanol, 2,6-dimetil-4-heptanol, 2-propil-1-heptanol y 2-propil-5-metil-1-hexanol.
- 15 30. El procedimiento de una cualquiera de las realizaciones 27 a 29, en el que los uno o más alcoholes comprenden, preferentemente consisten en, uno o más de entre 2-etil-1-hexanol y 3-heptanol.
- 15 31. El procedimiento de una cualquiera de las realizaciones 27 a 30, en el que los uno o más alcoholes comprenden, preferentemente consisten en, 2-etil-1-hexanol.
32. El procedimiento de una cualquiera de las realizaciones 27 a 31, en el que los uno o más alcoholes comprenden, preferentemente consisten en, 3-heptanol.
- 20 33. El procedimiento de cualquiera de las realizaciones 27 a 32, en el que al inicio de la oxidación en (i), la relación en peso del compuesto de fórmula (I) con relación al disolvente está comprendida en el intervalo de 1:10 a 1:2, preferentemente en el intervalo de 1:5 a 1:2.
34. El procedimiento de una cualquiera de las realizaciones 27 a 33, en el que al inicio de la oxidación en (i), la relación en peso del compuesto de fórmula (I) con relación al disolvente está comprendida en el intervalo de 1:4 a 1:2.
- 25 35. El procedimiento de una cualquiera de las realizaciones 1 a 34, en el que la oxidación en (i) se realiza a una temperatura de la mezcla de reacción comprendida en el intervalo de 30 a 90°C, preferentemente en el intervalo de 40 a 80°C, más preferentemente en el intervalo de 50 a 60°C.
36. El procedimiento de una cualquiera de las realizaciones 1 a 35, en el que la oxidación en (i) se realiza en modo por lotes.
- 30 37. El procedimiento de una cualquiera de las realizaciones 1 a 36, preferentemente de la realización 36, en el que el catalizador se emplea como polvo o polvo de pulverización.
38. El procedimiento de la realización 37, en el que al menos el 90% en peso, preferentemente al menos el 95% en peso, más preferentemente al menos el 99% en peso del catalizador consiste en el tamiz molecular que contiene estaño.
- 35 39. El procedimiento de una cualquiera de las realizaciones 1 a 38, preferentemente de una cualquiera de las realizaciones 36 a 38, en el que la oxidación en (i) se realiza durante un período de tiempo comprendido en el intervalo de 3 a 600 minutos, preferentemente en el intervalo de 30 a 500 minutos, más preferentemente en el intervalo en el intervalo de 60 a 400 minutos.
- 40 40. El procedimiento de una cualquiera de las realizaciones 1 a 39, preferentemente de una cualquiera de las realizaciones 36 a 39, en el que la oxidación en (i) se realiza durante un período de tiempo comprendido en el intervalo de 1 a 25 minutos, preferentemente en el intervalo de 2 a 20 minutos, más preferentemente en el intervalo de 3 a 15 minutos.
41. El procedimiento de una cualquiera de las realizaciones 1 a 35, en el que la oxidación en (i) se realiza en modo continuo.
- 45 42. El procedimiento de la realización 41, en el que el catalizador se emplea como una piza moldeada que contiene el tamiz molecular que contiene estaño y preferentemente un aglutinante.
43. El procedimiento de la realización 42, en el que el aglutinante comprende, preferentemente es, un aglutinante de sílice.

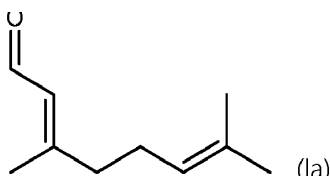
44. El procedimiento de la realización 42 o 43, en el que el tamiz molecular que contiene estaño está contenido en la pieza moldeada como polvo o polvo de pulverización.
- 5 45. El procedimiento de una cualquiera de las realizaciones 1 a 44, en el que la oxidación en (i) se realiza de manera que, durante la oxidación, la conversión de peróxido de hidrógeno esté comprendida al menos en el intervalo del 60 al 80%.
46. El procedimiento de una cualquiera de las realizaciones 1 a 45, en el que, durante la oxidación en (i), la temperatura de la mezcla de reacción y el tiempo de reacción se eligen de manera que, durante la oxidación, la conversión de peróxido de hidrógeno esté comprendida al menos en el intervalo del 60 al 80%.
- 10 47. El procedimiento de una cualquiera de las realizaciones 1 a 46, preferentemente de una cualquiera de las realizaciones 1 a 44, que comprende, además
- (ii) separar preferentemente el catalizador de Baeyer-Villiger, preferentemente un catalizador que comprende un tamiz molecular que contiene estaño, desde la mezcla obtenida en (i);
 - (iii) hidrolizar el compuesto de fórmula (II), obteniendo una mezcla que contiene el compuesto de fórmula (III);
 - (iv) separar preferentemente el compuesto de fórmula (III) desde la mezcla obtenida en (iii).
- 15 48. El procedimiento de la realización 47, en el que en (ii), la separación comprende, preferentemente consiste en, someter la mezcla obtenida en (i) a filtración.
49. El procedimiento de la realización 48, en el que en (iii), la hidrolización se realiza añadiendo una base acuosa a la mezcla de reacción obtenida desde el oxidante en (i) y preferentemente la separación en (ii), obteniendo una fase orgánica que contiene el compuesto de fórmula (III) y una fase acuosa.
- 20 50. El procedimiento de la realización 49, en el que la base acuosa comprende, preferentemente es, una solución acuosa de hidróxido de sodio.
51. El procedimiento de la realización 50, en el que la solución acuosa de hidróxido de sodio contiene el hidróxido de sodio en una cantidad comprendida en el intervalo del 1 al 25% en peso, preferentemente en el intervalo del 2 al 20% en peso, más preferentemente en el intervalo del 5 al 15% en peso, en base al peso total de la solución acuosa de hidróxido de sodio.
- 25 52. El procedimiento de una cualquiera de las realizaciones 48 a 51, en el que en (iii), la base acuosa se añade a la mezcla de reacción a una temperatura de la mezcla de reacción comprendida en el intervalo de 5 a 40°C, preferentemente en el intervalo de 8 a 20°C, más preferentemente en el intervalo de 10 a 15°C.
- 30 53. El procedimiento de una cualquiera de las realizaciones 48 a 52, en el que en (iv), la separación del compuesto de fórmula (III) desde la mezcla obtenida en (iii) comprende separar la fase orgánica desde la fase acuosa.
54. El procedimiento de una cualquiera de las realizaciones 48 a 53, preferentemente de la realización 53, en el que la fase orgánica se lava, preferentemente con un agente de lavado que comprende agua.
55. El procedimiento de la realización 54, en el que al menos el 95% en peso, preferentemente al menos el 99% en peso, más preferentemente al menos el 99,9% en peso del agente de lavado consiste en agua.
- 35 56. El procedimiento de la realización 54 o 55, en el que el lavado se realiza a una temperatura del agente de lavado comprendida en el intervalo de 5 a 40°C, preferentemente en el intervalo de 10 a 30°C, más preferentemente en el intervalo de 15 a 25°C.
- 40 57. El procedimiento de una cualquiera de las realizaciones 48 a 56, preferentemente de una cualquiera de las realizaciones 53 a 56, más preferentemente de una cualquiera de las realizaciones 54 a 56, en el que el compuesto de fórmula (III) se separa desde la fase orgánica, preferentemente desde la fase orgánica separada desde la fase acuosa, más preferentemente desde la fase orgánica lavada.
58. El procedimiento de la realización 57, en el que la separación del compuesto de fórmula (III) desde la fase orgánica comprende destilación, preferentemente destilación fraccionada.
59. Una mezcla, obtenible u obtenida mediante un procedimiento según una cualquiera de las realizaciones 1 a 46.
- 45 60. Una mezcla, obtenible u obtenida mediante un procedimiento según una cualquiera de las realizaciones 48 a 58.
61. Una mezcla que comprende un compuesto de fórmula (I)

5



en la que más del 50% del compuesto de fórmula (I) está presente como compuesto de fórmula (Ia)

10



y un catalizador de oxidación de Baeyer-Villiger.

62. La mezcla de la realización 61, en la que el catalizador comprende un tamiz molecular que contiene estaño, preferentemente un tamiz molecular que contiene estaño tal como se ha definido en una cualquiera de las realizaciones 4 a 21.

15

63. La mezcla de la realización 61 o 62, que comprende además un disolvente.

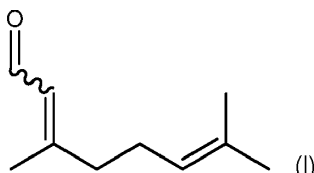
64. La mezcla de la realización 63, en la que el disolvente comprende, preferentemente consiste en, uno o más alcoholes, preferentemente tal como se ha definido en una cualquiera de las realizaciones 28 a 32.

20

65. La mezcla de la realización 63 o 64, en la que, en la mezcla, la relación en peso del compuesto de fórmula (I) con relación al disolvente está comprendida en el intervalo de 1:10 a 1:2, preferentemente en el intervalo de 1:5 a 1:2, más preferentemente en el intervalo de 1:4 a 1:2.

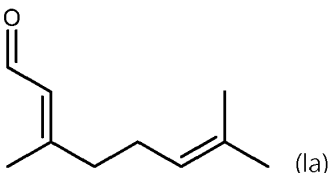
66. Uso de un compuesto de fórmula (I)

25



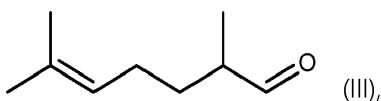
más del 50% del cual está presente como compuesto de fórmula (Ia)

30



o el uso de una mezcla según una cualquiera de las realizaciones 61 a 65, para aumentar la selectividad de la oxidación de Baeyer-Villiger del compuesto de fórmula (I) para preparar un compuesto de fórmula (III)

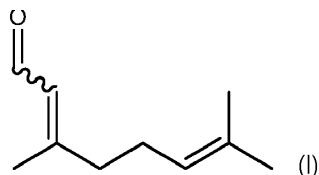
35



en comparación con la oxidación de Baeyer-Villiger respectiva del compuesto de fórmula (I) como máximo el 50% del cual está presente como compuesto de fórmula (Ia), bajo condiciones de oxidación por lo demás idénticas.

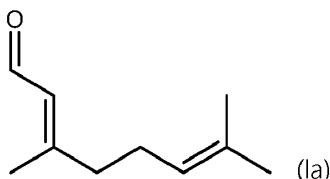
67. Uso de un compuesto de fórmula (I)

5



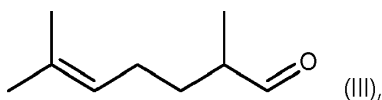
más del 50% del cual está presente como compuesto de fórmula (Ia)

10



o el uso de una mezcla según una cualquiera de las realizaciones 61 a 65, para reducir el tiempo de reacción de la oxidación de Baeyer-Villiger del compuesto de fórmula (I) para preparar un compuesto de fórmula (III)

15



en comparación con la oxidación de Baeyer-Villiger respectiva del compuesto de fórmula (I) como máximo el 50% del cual está presente como compuesto de fórmula (Ia), bajo condiciones de oxidación por lo demás idénticas.

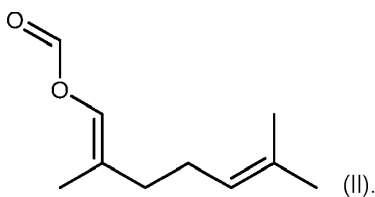
20

68. El uso de la realización 66 o 67, en el que la oxidación de Baeyer-Villiger se realiza usando un catalizador que comprende un tamiz molecular que contiene estaño, preferentemente un tamiz molecular que contiene estaño tal como se ha definido en una cualquiera de las realizaciones 4 a 21.

69. El uso de una cualquiera de las realizaciones 66 a 68, en el que la oxidación de Baeyer-Villiger se realiza usando peróxido de hidrógeno.

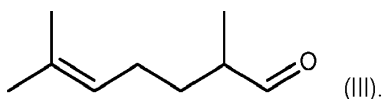
70. Uso de una mezcla según una cualquiera de las realizaciones 61 a 65 para preparar un compuesto de fórmula (II)

25



71. Uso de una mezcla según una cualquiera de las realizaciones 61 a 65 para preparar un compuesto de fórmula (III)

30



La presente invención se ilustra adicionalmente mediante los siguientes ejemplos de referencia y ejemplos.

Ejemplos

35 Ejemplo de referencia 1: Determinación de la absorción de agua

Las isotermas de adsorción/desorción de agua se realizaron en un instrumento VTI SA de TA Instruments siguiendo un programa de isotermas escalonadas. El experimento consistió en una ejecución o una serie de ejecuciones realizadas sobre un material de muestra que se había colocado sobre la bandeja de microbalanza en el interior del instrumento. Antes de iniciar la medición, la humedad residual de la muestra se eliminó calentando la muestra a 100°C (rampa de

calentamiento de 5°C/minutos) y manteniéndola durante 6 horas bajo un flujo de nitrógeno. Después del programa de secado, la temperatura en la celda se redujo a 25°C y se mantuvo isotérmica durante la medición. La microbalanza se calibró y el peso de la muestra seca se equilibró (desviación máxima de masa del 0,01% en peso). La absorción de agua por la muestra se midió como el aumento en el peso con relación al de la muestra seca. Primero, se midió una curva de adsorción aumentando la humedad relativa (RH) (expresada como % en peso de agua en la atmósfera en el interior de la celda) a la que se expuso la muestra y midiendo la absorción de agua por la muestra como equilibrio. La HR se aumentó con escalones del 10% en peso desde el 5% al 85% y en cada escalón el sistema controló la HR y supervisó el peso de la muestra hasta alcanzar las condiciones de equilibrio después de que la muestra se expuso desde el 85% en peso al 5% en peso con escalones del 10% y se supervisó y se registró el cambio en el peso de la muestra (absorción de agua).

Ejemplo de referencia 2: Determinación de la cristalinidad

La cristalinidad de los materiales zeolíticos según la presente invención se determinó mediante un análisis XRD usando el procedimiento EVA tal como se describe en el Manual de Usuario DIF-FRAC.EVA Versión 3, página 105, de Bruker AXS GmbH, Karlsruhe. Los datos respectivos se recopilaron en un difractómetro estándar Bruker D8 Advance Diffractometer Series II usando un detector Sol-X, de 2° a 50° 2theta, usando ranuras variables (V20), un tamaño de paso de 0,02° 2theta y una velocidad de escaneo de 2,4 s /paso. Se usaron parámetros por defecto para estimar el contenido de fondo/amorfo (curvatura = 1, umbral = 1).

Ejemplo de referencia 3: mediciones FT-IR

Las mediciones FT-IR (infrarrojo con transformada de Fourier) se realizaron en un espectrómetro Nicolet 6700. El material en polvo se prensó en un gránulo individual sin el uso de ningún aditivo. El gránulo se introdujo en una celda de alto vacío (HV) colocada en el instrumento FT-IR. Antes de la medición, la muestra se trató previamente en alto vacío (10⁻⁵ mbar) durante 3 horas a 300°C. Los espectros se recopilaron después de enfriar la celda a 50°C. Los espectros se registraron en el intervalo de 4.000 a 800 cm⁻¹ a una resolución de 2 cm⁻¹. Los espectros obtenidos se representan en una gráfica que tiene en el eje x el número de onda (cm⁻¹) y en el eje y la absorbancia (unidades arbitrarias, a.u.). Para la determinación cuantitativa de las alturas de los picos y la relación entre estos picos se realizó una corrección de la línea base. Se analizaron los cambios en la región 3.000-3.900 cm⁻¹ y se tomó como referencia la banda a 1.880 ± 5 cm⁻¹ para comparar las múltiples muestras.

Ejemplo de referencia 4: Determinación de la resistencia al aplastamiento de las piezas moldeadas

La resistencia al aplastamiento, tal como se hace referencia en el contexto de la presente invención, debe entenderse como determinada mediante una máquina de ensayo de resistencia al aplastamiento Z2.5/TS1S, proveedor Zwick GmbH & Co., D-89079 Ulm, Alemania. En lo que se refiere a los fundamentos de esta máquina y su funcionamiento, se hace referencia al manual de instrucciones respectivo "Register 1: Betriebsanleitung/Sicherheitshandbuch für die Material-Prufmaschine Z2.5/TS1S", versión 1.5, Diciembre de 2001 de Zwick GmbH & Co. Technische Dokumentation, August-Nagel-Strasse 11, D-89079 Ulm, Alemania. Con dicha máquina, una hebra determinada, tal como se describe en el Ejemplo 5, que tiene un diámetro de 1,5 mm, se sometió a una fuerza creciente mediante un émbolo que tenía un diámetro de 3 mm hasta que la hebra se aplasta. La fuerza a la que se aplasta la hebra se denomina fuerza de aplastamiento de la hebra. La máquina está equipada con una mesa horizontal fija sobre la que se posiciona la hebra. Un émbolo, que es móvil libremente en dirección vertical, acciona la hebra contra la mesa fija. El aparato se hizo operar con una fuerza preliminar de 0,5 N, una velocidad de cizallamiento bajo una fuerza preliminar de 10 mm/minuto y una velocidad de ensayo posterior de 1,6 mm/minuto. El émbolo móvil verticalmente se conectó a una celda de carga para la captación de la fuerza y, durante la medición, se movió hacia la mesa giratoria fija sobre la que se posicionó la pieza moldeada (hebra) a investigar, accionando de esta manera la hebra contra la mesa. El émbolo se aplicó a las hebras perpendicularmente a su eje longitudinal. El control del experimento se realizó mediante un ordenador que registró y evaluó los resultados de las mediciones. Los valores obtenidos fueron el valor medio de las medidas para 10 hebras en cada caso.

Ejemplo de referencia 5: Preparación de tamices moleculares que contienen estaño (materiales zeolíticos que contienen estaño que tienen una estructura BEA) mediante intercambio de iones en estado sólido

Ejemplo de referencia 5.1: Materiales zeolíticos que contienen estaño que tienen una estructura BEA que tiene un contenido de estaño del 12,4% en peso

Se añadieron 50,0 g del material zeolítico que tenía una estructura BEA descrito en el Ejemplo de referencia 5.3.2 a continuación a una amasadora junto con 14,2 g de acetato de estaño (II) (Sn(OAc)₂ [Nº-CAS: 638-39-1]), y la mezcla se mezcló primero en seco, a continuación, la mezcla se trituró con 50 ml de agua desionizada usando una amasadora, y la mezcla resultante se amasó durante 15 minutos. Después del amasado, la mezcla se secó durante la noche a 60°C. Posteriormente, la mezcla seca se calentó a una temperatura de 500°C bajo nitrógeno (rampa de calentamiento: 2 K/minuto) y se mantuvo a 500°C durante 3 horas, seguido de calcinación a 500°C durante 3 horas bajo aire. El material en polvo obtenido tenía un contenido de Sn del 12,4% en peso, un contenido de silicio (Si) del 35% en peso, un

contenido de B de menos del 0,03% en peso y un TOC de menos del 0,1% en peso. La superficie BET específica medida según DIN 66131 fue de 443 m²/g, la cristalinidad fue del 45% determinada mediante XRD y la absorción de agua fue del 12% en peso.

Ejemplo de referencia 5.2: Materiales zeolíticos que contienen estaño que tienen una estructura BEA que tienen un contenido de estaño del 1,1% en peso

5.2.1 Preparación de un material zeolítico que contiene boro que tiene una estructura BEA

Se proporcionaron 259 g de agua desionizada en un recipiente. Bajo una agitación a 120 rpm (revoluciones por minuto), se añadieron 440 g de hidróxido de tetraetilamonio y la suspensión se agitó durante 10 minutos a temperatura ambiente. A continuación, se suspendieron 75,6 g de ácido bórico y la suspensión se agitó durante otros 30 minutos a temperatura ambiente. Posteriormente, se añadieron 687,9 g de Ludox® AS-40 y la mezcla resultante se agitó durante otra hora a temperatura ambiente. La mezcla obtenida finalmente se transfirió a un recipiente de cristalización y se calentó a 160°C y se agitó a 140 rpm durante 120 horas. La mezcla se enfrió a temperatura ambiente y posteriormente. Se añadió agua desionizada (dos veces la cantidad de la mezcla), resultando en una mezcla que tenía un pH de 10,0. Esta mezcla se ajustó a un pH de 7-8 añadiendo HNO₃ acuoso (10% en peso de HNO₃). La mezcla se sometió a filtración y la torta de filtración se lavó con agua desionizada hasta que el agua de lavado alcanzó una conductividad de menos de 150 microSiemens. La torta de filtración obtenida de esta manera se sometió a secado a 120°C durante 2 horas al aire, seguido de calcinación a 490°C durante 5 horas al aire (rampa de calentamiento: 2 K/minuto). El material calcinado tenía un contenido de B del 0,89% en peso, un contenido de Si del 47% en peso, un contenido de carbono total de (TOC) de menos del 0,1% en peso, una cristalinidad determinada mediante XRD del 42% y un área superficial específica BET determinada según DIN 66131 de 257 m²/gramo.

5.2.2 Desboronación y formación de sitios vacíos tetraédricos

Se pasaron 2.100 g de agua desionizada en un recipiente agitado de 4 l. Bajo agitación, se añadieron 140 g del material obtenido en el Ejemplo de referencia 5.2.1 anterior y la mezcla resultante se calentó a 100°C. La mezcla se mantuvo a esta temperatura bajo reflujo durante 10 horas. A continuación, la mezcla se enfrió a temperatura ambiente. La mezcla enfriada se sometió a filtración y la torta del filtro se lavó con agua desionizada. La torta de filtración obtenida de esta manera se sometió a secado a 120°C durante 12 horas bajo aire (rampa de calentamiento: 3 K/minuto), seguido de calcinación a 550°C durante 5 horas bajo aire (rampa de calentamiento: 2 K/minuto). El material calcinado tenía un contenido de B del 0,15% en peso, un contenido de Si del 49% en peso, un contenido de carbono total de (TOC) de menos del 0,1% en peso.

5.2.3 Incorporación de estaño mediante intercambio iónico en estado sólido

Se añadieron 25 g del material zeolítico desboronado que tenía una estructura BEA descrito en el Ejemplo de referencia 5.2.2 anterior a un mezclador (tipo de molino Microton MB550) junto con 1,02 g de acetato de estaño (II) (Sn(OAc)₂ [Nº-CAS: 638-39-1]), y la mezcla se molió durante 15 minutos a 14.000 r.p.m. (revoluciones por minuto). Después de la molienda, la mezcla se transfirió a una cesta de porcelana y se calcinó al aire a 500°C durante 3 horas bajo N₂ seguido de 3 horas al aire, con una rampa de calentamiento de 2 K/minuto. El material en polvo obtenido tenía un contenido de Sn del 1,1% en peso, un contenido de silicio (Si) del 47% en peso, un contenido de B de menos del 0,1% en peso y un TOC de menos del 0,1% en peso. La superficie específica BET medida según DIN 66131 fue de 170 m²/gramo.

Ejemplo de referencia 5.3: Materiales zeolíticos que contienen estaño que tienen una estructura BEA que tienen un contenido de estaño del 13,1% en peso

5.3.1 Preparación de un material zeolítico que contiene boro que tiene una estructura BEA

Se proporcionaron 209 kg de agua desionizada en un recipiente. Bajo agitación a 120 rpm (revoluciones por minuto), se añadieron 355 kg de hidróxido de tetraetilamonio y la suspensión se agitó durante 10 minutos a temperatura ambiente. Posteriormente, se suspendieron 61 kg de ácido bórico en el agua y la suspensión se agitó durante otros 30 minutos a temperatura ambiente. Posteriormente, se añadieron 555 kg de Ludox® AS-40 y la mezcla resultante se agitó a 70 rpm durante otra hora a temperatura ambiente. El gel líquido tenía un pH de 11,8 según se determinó mediante medición con un electrodo de pH. La mezcla obtenida finalmente se transfirió a un recipiente de cristalización y se calentó a 160°C en un periodo de 6 horas bajo una presión de 7,2 bar y bajo agitación (140 rpm). Posteriormente, la mezcla se enfrió a temperatura ambiente. La mezcla se calentó de nuevo a 160°C en un periodo de 6 horas y se agitó a 140 rpm durante 55 horas adicionales. La mezcla se enfrió a temperatura ambiente y, posteriormente, la mezcla se calentó durante 45 horas adicionales a una temperatura de 160°C bajo agitación a 140 rpm. Se añadieron 7.800 kg de agua desionizada a 380 kg de esta suspensión. La suspensión se agitó a 70 rpm y se añadieron 100 kg de una solución acuosa de HNO₃ al 10% en peso. A partir de esta suspensión, el material zeolítico que contenía boro y que tenía una estructura BEA se separó mediante filtración. A continuación, la torta de filtración se lavó con agua desionizada a temperatura ambiente hasta que el agua de lavado alcanzó una conductividad menor de 150 microSiemens/cm. La torta de filtración obtenida de esta

manera se sometió a un secado previo en una corriente de nitrógeno. El material zeolítico obtenido de esta manera se sometió, después de haber preparado una suspensión acuosa que tenía un contenido de sólidos del 15% en peso, en base al peso total de la suspensión, usando agua desionizada, para el secado por pulverización en una torre de atomización con las siguientes condiciones de secado por pulverización:

gas de secado, gas de la boquilla:	nitrógeno técnico
temperatura del gas de secado:	
- temperatura de la torre de pulverización (entrada):	235°C
- temperatura de la torre de pulverización (salida):	140°C
boquilla:	
- boquilla de componente superior	proveedor Gerig; tamaño 0
- temperatura del gas de la boquilla:	temperatura ambiente
- presión del gas de la boquilla:	1 bar
modo de operación:	nitrógeno puro
aparato usado:	torre de pulverización con una boquilla
configuración:	torre de pulverización - filtro - depurador
flujo de gas:	1.500 kg/horas
material de filtro:	Fieltro de aguja Nomex® 20 m ²
dosificación mediante bomba de tubo flexible:	SP VF 15 (proveedor: Verder)

5 La torre de pulverización estaba compuesta por un cilindro dispuesto verticalmente que tenía una longitud de 2.650 mm y un diámetro de 1.200 mm, cuyo cilindro se estrechaba cónicamente en la parte inferior. La longitud del cono era de 600 mm. En la cabeza del cilindro, se dispusieron los medios de pulverización (una boquilla de dos componentes). El material secado por pulverización se separó del gas de secado en un filtro aguas abajo de la torre de pulverización, y el gas de secado se pasó, a continuación, a través de un depurador. La suspensión se pasó a través de la abertura interior de la boquilla, y el gas de la boquilla se hizo pasar a través de la ranura con forma de anillo que rodeaba la abertura. El material secado por pulverización se sometió a continuación a calcinación a 500°C durante 5 horas. El material calcinado tenía una relación molar B₂O₃:SiO₂ de 0,045, un contenido de carbono total de (TOC) del 0,08% en peso, una cristalinidad determinada mediante XRD del 56% y una superficie específica BET determinada según DIN 66131 de 498 m²/gramo.

15 5.3.2 Desboronación y formación de sitios vacíos tetraédricos

Se proporcionaron 840 kg de agua desionizada en un recipiente equipado con un condensador de reflujo. Bajo agitación a 40 rpm, se emplearon 28 kg del material zeolítico secado por pulverización y calcinado descrito anteriormente en 5.1. Posteriormente, el recipiente se cerró y se puso en funcionamiento el condensador de reflujo. La velocidad de agitación se aumentó a 70 rpm. Bajo agitación a 70 rpm, el contenido del recipiente se calentó a 100°C en un periodo de 1 hora y se mantuvo a esta temperatura durante 20 horas. A continuación, el contenido del recipiente se enfrió a una temperatura de menos de 50°C. El material zeolítico desboronado resultante que tenía una estructura BEA se separó desde la suspensión mediante filtración bajo una presión de nitrógeno de 2,5 bares y se lavó cuatro veces con agua desionizada a temperatura ambiente. Después de la filtración, la torta del filtro se secó en una corriente de nitrógeno durante 6 horas. El material zeolítico desboronado obtenido se sometió, después de volver a suspender el material zeolítico en agua desionizada, a un secado por pulverización bajo las condiciones descritas en 5.3.1. El contenido de sólidos de la suspensión acuosa fue del 15% en peso, en base al peso total de la suspensión. El material zeolítico obtenido tenía una relación molar B₂O₃:SiO₂ de menos de 0,002, una absorción de agua del 15% en peso, una cristalinidad determinada mediante XRD del 48% y una superficie específica BET determinada según DIN 66131 de 489 m²/gramo.

5.3.3 Incorporación de estaño mediante intercambio iónico en estado sólido

30 Se añadieron 50 g del material zeolítico desboronado que tenía una estructura BEA descrito en el Ejemplo de referencia 5, sección 5.3.2, a un mezclador (tipo molino Microton MB550) junto con 14,2 g de acetato de estaño (II) (Sn(OAc)₂ [Nº-CAS: 638-39-1]), y la mezcla se molió durante 15 minutos a 14.000 r.p.m. (revoluciones por minuto). Después de la molienda, la mezcla se transfirió a una cesta de porcelana y se calcinó al aire a 500°C durante 3 horas bajo N₂ seguido

de 3 horas al aire, con una rampa de calentamiento de 2 K/minuto. El material en polvo obtenido tenía un contenido de Sn del 13,1% en peso, un contenido de silicio (Si) del 38% en peso y un TOC de menos del 0,1% en peso. La superficie específica BET medida según DIN 66131 fue de 442 m²/g, la cristalinidad determinada mediante XRD fue del 44% y la absorción de agua fue del 11,5% en peso. El espectro UV/Vis mostró dos máximos, uno a una longitud de onda de 200 nm con un hombro aproximadamente a 250 nm. En el espectro FT-IR, la relación de intensidad entre una primera banda de adsorción con un máximo entre 3.701 y 3.741 cm⁻¹ y una segunda adsorción con el máximo entre 3.600 a 3.690 cm⁻¹ fue de 1,62.

Ejemplo de referencia 5.4: Materiales zeolíticos que contienen estaño que tienen una estructura BEA que tienen un contenido de estaño del 12,0% en peso

Se añadieron 50 g del material zeolítico desboronado que tenía una estructura BEA descrito en el Ejemplo de referencia 5.3.2 anterior a un mezclador (tipo de molino Microtron MB550) junto con 14,2 g de acetato de estaño (II) (Sn(OAc)₂ [CAS-Nr: 638-39-1]), y la mezcla se molió durante 15 minutos a 14.000 r.p.m. (revoluciones por minuto). Después de la molienda, la mezcla se transfirió a un cesto de porcelana y se calcinó al aire a 500°C durante 3 horas, con una rampa de calentamiento de 2 K/minuto.

El material en polvo obtenido tenía un contenido de Sn del 12,0% en peso, un contenido de silicio (Si) del 35% en peso y un TOC de menos del 0,1% en peso. El área superficial específica BET medida según DIN 66131 fue de 391 m²/ g, la cristalinidad determinada mediante XRD fue del 44%, y la absorción de agua fue del 15% en peso. El espectro UV/Vis mostró dos máximos, uno a una longitud de onda de 200 nm con un hombro aproximadamente a 250 nm. En el espectro FT-IR, la relación de intensidad entre una primera banda de adsorción con un máximo entre 3.701 y 3.741 cm⁻¹ y una segunda adsorción con el máximo entre 3.600 a 3.690 cm⁻¹ fue de 1,32.

Ejemplo de referencia 5.5: Materiales zeolíticos que contienen estaño que tienen una estructura BEA que tienen un contenido de estaño del 12,4% en peso

Se añadieron 50 g del material zeolítico desboronado que tenía una estructura BEA descrito en el Ejemplo de referencia 5.3.2 anterior a un molino de bolas (17 bolas con un peso total de 904 g) colocado en un horno, junto con 14,2 g de acetato de estaño (II) (Sn(OAc)₂ [Nº-CAS: 638-39-1]), y la mezcla se molió con bolas durante 15 minutos a 80 r.p.m. Después de la molienda con bolas, la mezcla se calentó en dicho horno a una temperatura de 500°C a una rampa de calentamiento de 2 K/minuto y se mantuvo a 500°C durante 3 horas.

El material en polvo obtenido tenía un contenido de Sn del 12,4% en peso, un contenido de silicio (Si) del 35,5% en peso, un contenido de B de menos del 0,03% en peso y un TOC del 0,01% en peso. El área superficial específica BET medida según DIN 66131 fue de 426 m²/gramo.

Ejemplo 1: Oxidación de Baeyer-Villiger de citral (compuesto de fórmula (I)) con peróxido de hidrógeno en tert-butanol como disolvente usando un material zeolítico que tiene una estructura BEA y una carga de estaño del 12,4% en peso

Un matraz de vidrio de 1 l se cargó con citral (122,5 g), tal como se indica en la Tabla 1 a continuación, el material zeolítico según el Ejemplo de referencia 5.1 anterior (8,75 g, carga de Sn = 12,4% en peso) y tert-butanol (367,5 g) y se calentó a 65°C. A continuación, se añadió una solución acuosa de peróxido de hidrógeno al 70% p/p, 29,75 g) y se agitó la mezcla de reacción. Después de enfriar a temperatura ambiente, la solución resultante se filtró y el filtrado se analizó mediante GC usando dioxano como estándar interno.

Los resultados se muestran en la Tabla 1 a continuación.

Tabla 1

Resultados del Ejemplo 1					
Ejemplo (E) y Ejemplo comparativo (CE)#	Tiempo de reacción/minutos	Tipo de citral /% de trans-citral	Conversión Citral /%	Selectividad ¹⁾ basada en peróxido de hidrógeno / %	Selectividad ²⁾ basado en citral / %
CE1.1	55	50	25	46	68
CE1.2	30	7	18	51	50

Resultados del Ejemplo 1					
Ejemplo (E) y Ejemplo comparativo (CE)#	Tiempo de reacción/minutos	Tipo de citral /% de trans-citral	Conversión Citral /%	Selectividad ¹⁾ basada en peróxido de hidrógeno / %	Selectividad ²⁾ basado en citral / %
CE1.3	40	7	22	48	45
CE1.4	50	7	24	45	44
CE1.5	60	7	27	43	47
E1.1	3	98	11	80	99
E1.2	6	98	20	71	88
E1.3	10	98	28	67	78
E1.4	15	98	33	67	77
¹⁾ cantidad molar de melonal (compuesto de fórmula III) + cantidad molar de formiato de enol (compuesto de fórmula II) obtenida a partir de la reacción dividida por la cantidad molar de peróxido de hidrógeno empleada en la reacción ²⁾ cantidad molar de melonal (compuesto de fórmula III) + cantidad molar de formiato de enol (compuesto de fórmula II) obtenida a partir de la reacción dividida por la cantidad molar de citral (compuesto de fórmula I) empleada en la reacción					

Resultados del Ejemplo 1

El ejemplo 1 muestra claramente que, cuando se usa el compuesto de fórmula (I) con un contenido del compuesto de fórmula (Ia) de más del 50%, tanto la selectividad basada en peróxido de hidrógeno como la selectividad basada en el compuesto de fórmula (I) aumentaron significativamente y la conversión del compuesto de fórmula (I) permaneció en el intervalo de los ejemplos comparativos donde el compuesto de fórmula (I) se empleó con un contenido del compuesto de fórmula (Ia) de más del 50% o menos del 50%.

Con relación al Ejemplo E1.1, se observa que, aunque la conversión del compuesto de fórmula (I) fue menor que las conversiones de los Ejemplos comparativos, las selectividades exhibieron con mucho los valores más altos; en particular, se observa que son estos valores de selectividad los que representan un parámetro decisivo para la aplicación industrial de una reacción.

Ejemplo 2: Oxidación de Baeyer-Villiger de trans-citral (compuesto de fórmula (Ia)) con peróxido de hidrógeno en metil tert-butil éter como disolvente usando diferentes materiales zeolíticos que contienen estaño que tienen una estructura BEA

Para cada ejecución de catalizador, un matraz de vidrio de 1 l se cargó con 122,5 g de citral (compuesto de fórmula (I)), que tenía un contenido de trans-citral (compuesto de fórmula (Ia)) del 98%), un catalizador tal como se indica en la Tabla 2 a continuación, y metil tert-butil éter como disolvente, y se calentó a 50°C. A continuación, se añadió una solución acuosa de peróxido de hidrógeno (70% p/p) de manera que en la mezcla hubiera presentes 1,3 equivalentes molares del compuesto de fórmula (Ia) con relación al peróxido de hidrógeno. La cantidad de catalizador fue, en cada experimento, el 6,6% en peso con relación al compuesto de fórmula (I). La mezcla de reacción se agitó, y la reacción se realizó durante 150 minutos en cada experimento. Después de enfriar a temperatura ambiente, la solución se filtró y el filtrado se analizó mediante GC usando dioxano como estándar interno.

Los resultados se muestran en la Tabla 2 a continuación.

Tabla 2

Resultados del Ejemplo 2				
Ejemplo (E)#	Contenido de Sn del catalizador / % en peso	Catalizador del ejemplo de referencia / #	Conversión de Citral / %	Selectividad a melonal ¹⁾ basada en citral / %
E2.1	1.1	5.2	11	63
E2.2	13.1	5.3	18	66
E2.3	12.7	5.4	10	73
E2.4	12.4	5.5	22	55

¹⁾ cantidad molar de melonal (compuesto de fórmula III) + cantidad molar de formiato de enol (compuesto de fórmula (II)) obtenida a partir de la reacción dividida por la cantidad molar de citral (compuesto de fórmula (I)) empleada en la reacción

Resultados del ejemplo 2

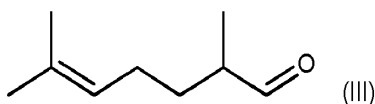
5 El Ejemplo 2 muestra que todos los tamices moleculares que contienen estaño empleados en la oxidación de Baeyer-Villiger que se prepararon según procedimientos simples evitando las desventajas del procedimiento de preparación según Corma et al., Journal of Catalysis 234 (2005) 96-100, conducen a selectividades ventajosas para el valioso producto melonal. Cabe señalar que, aunque algunos valores de selectividad según la Tabla pueden parecer más bajos que algunos valores selectivos según la Tabla 1, los valores de selectividad de las Tablas 1 y 2 no pueden compararse entre sí, ya que se usan disolventes diferentes y catalizadores diferentes en condiciones de procesamiento diferentes. Aunque el Ejemplo 1 permite una comparación directa es ilustra de esta manera la ventaja del uso de la forma trans de citral como material de partida en comparación con el uso de la mezcla 1:1 enseñada en la técnica, el Ejemplo 2 muestra la validez general del concepto inventivo ilustrado por una diversidad de catalizadores.

Literatura citada

- 15 – Corma et al., Journal of Catalysis 234 (2005) 96-100
- WO 2014/ 068134 A
- Baerlocher et al., Atlas of Zeolite Framework Structures, Sexta edición revisada, Elsevier, Amsterdam (2007) páginas 72-73
- 20 – K.S.W. Sing, D.H. Everett, R.A.W. Haul, L. Moscou, R.A. Pierotti, J. Rouquerol, T. Siemieniowska, Reporting Physisorption Data for Gas/Solid Systems with Special Reference to the Determination of Surface Area and Porosity (Recommendations 1984) Pure & Appl. Chem. 57 (1985) 603-619

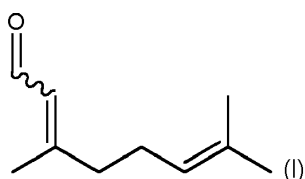
REIVINDICACIONES

1. Un procedimiento de preparación de un compuesto de fórmula (III)

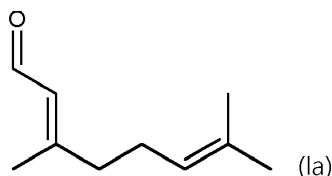


comprendiendo dicho procedimiento

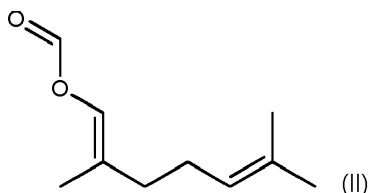
(i) oxidar un compuesto de fórmula (I)



más del 50% del cual está presente como compuesto de fórmula (Ia)



con peróxido de hidrógeno en presencia de un catalizador que comprende un tamiz molecular que contiene estaño, obteniendo una mezcla de reacción que comprende un compuesto de fórmula (II)



y opcionalmente el compuesto de fórmula (III).

25 2. El procedimiento según la reivindicación 1, en el que en (i), al menos el 95% del compuesto de fórmula (I) está presente como compuesto de fórmula (Ia).

30 3. El procedimiento según la reivindicación 1 o 2, en el que en (i), el tamiz molecular que contiene estaño es un material zeolítico que contiene estaño, en el que el tipo de estructura marco del material zeolítico que contiene estaño se selecciona preferentemente de entre el grupo BEA, MWW, MFI, una mezcla de dos o más de los mismos, y un tipo mixto de dos o más de los mismos, en el que, más preferentemente, el tipo de estructura marco del material zeolítico que contiene estaño comprende el tipo de estructura BEA.

4. El procedimiento según una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 3, en el que el tamiz molecular que contiene estaño tiene un contenido de estaño comprendido en el intervalo del 0,1 al 20% en peso, preferentemente en el intervalo del 2 al 14% en peso, en base al peso total del tamiz molecular que contiene estaño.

35 5. El procedimiento según una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 4, en el que en (i), el peróxido de hidrógeno se emplea como una solución acuosa que contiene peróxido de hidrógeno en una cantidad comprendida en el intervalo del 25 al 85% en peso, preferentemente en el intervalo del 65 al 75% en peso, en base al peso total de la solución acuosa.

6. El procedimiento según una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 5, en el que, al inicio de la oxidación en (i), la relación molar del compuesto de fórmula (I) con relación al peróxido de hidrógeno está comprendida en el intervalo de 10:1 a 1:1, preferentemente en el intervalo de 5:1 a 1:1, más preferentemente en el intervalo de 3:1 a 1:1.

40 7. El procedimiento según una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 6, en el que la oxidación en (i) se realiza en un disolvente, preferentemente en un disolvente orgánico, que comprende preferentemente uno o más de entre alcoholes,

ésteres, éteres, alcanos opcionalmente sustituidos de manera adecuada, nitrilos.

8. El procedimiento según la reivindicación 7, en el que el disolvente comprende uno o más alcoholes, preferentemente que comprenden uno o más de entre tert-butanol, 2-metil-2-butanol, n-pentanol, 3-metil-1-butanol, n-hexanol, 2-metil-1-pentanol, 3-heptanol, 2-etil-1-hexanol, 2-octanol, 1-octanol, 2,4,4-trimetil-1-hexanol, 2,6-dimetil-4-heptanol, 2-propil-1-heptanol y 2-propil-5-metil-1-hexanol, más preferentemente que comprenden uno o más de entre 2-etil-1-hexanol y 3-heptanol, o en el que el disolvente comprende uno o más éteres, preferentemente metil tert-butil éter.

9. El procedimiento según la reivindicación 7 u 8, en el que, al inicio de la oxidación en (i), la relación en peso del compuesto de fórmula (I) con relación al disolvente está comprendida en el intervalo de 1:10 a 1:2, preferentemente en el intervalo de 1:5 a 1:2, más preferentemente en el intervalo de 1:4 a 1:2.

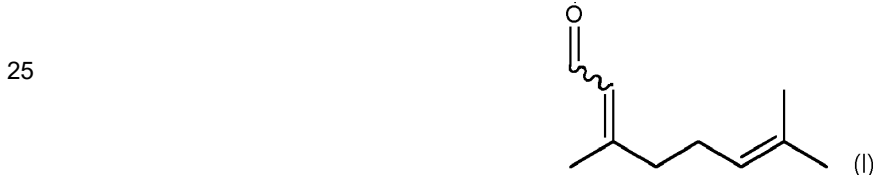
10. El procedimiento según una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 9, en el que la oxidación en (i) se realiza a una temperatura de la mezcla de reacción comprendida en el intervalo de 30 a 90°C, preferentemente en el intervalo de 40 a 80°C, más preferentemente en el intervalo de 50 a 60°C.

11. El procedimiento según una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 10, que comprende, además

- (ii) preferentemente separar el catalizador que comprende un tamiz molecular que contiene estaño de la mezcla obtenida en (i);
- (iii) hidrolizar el compuesto de fórmula (II), obteniendo una mezcla que contiene el compuesto de fórmula (III);
- (iv) preferentemente separar el compuesto de fórmula (III) de la mezcla obtenida en (iii).

12. El procedimiento según la reivindicación 11, en el que en (iii) la hidrolización se realiza añadiendo una base acuosa a la mezcla de reacción obtenida a partir de la oxidación en (i), preferentemente obtenida de la separación en (ii), obteniendo una fase orgánica que contiene el compuesto de fórmula (III) y una fase acuosa y en el que, en (iv), la separación del compuesto de fórmula (III) a partir de la mezcla obtenida en (iii) comprende separar la fase orgánica desde la fase acuosa, y en el que el compuesto de la fórmula (III) se separa desde la fase orgánica.

13. Una mezcla que comprende un compuesto de fórmula (I)

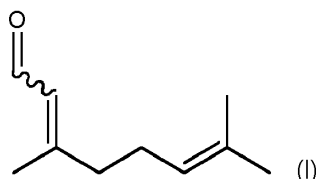


en la que más del 50% del compuesto de fórmula (I) está presente como compuesto de fórmula (Ia)



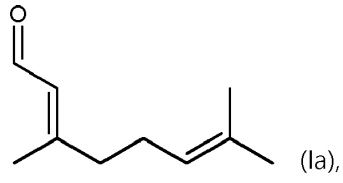
y un catalizador que comprende un tamiz molecular que contiene estaño, en el que la mezcla comprende además preferentemente un disolvente.

35 14. Uso de un compuesto de fórmula (I)



40 más del 50% del cual está presente como compuesto de fórmula (Ia)

5



o uso de una mezcla según la reivindicación 13 para preparar un compuesto de fórmula (III)

