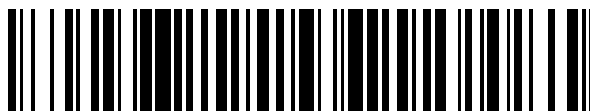


19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 729 986**

51 Int. Cl.:

**C08G 63/183** (2006.01)

**C08G 63/20** (2006.01)

**C08L 67/02** (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

86 Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **29.12.2015 PCT/TH2015/000099**

87 Fecha y número de publicación internacional: **07.07.2016 WO16108768**

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **29.12.2015 E 15823409 (6)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **03.04.2019 EP 3240818**

54 Título: **Composición de copoliéster biodegradable**

30 Prioridad:

**30.12.2014 TH 1401007925**

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:  
**07.11.2019**

73 Titular/es:

**PTT GLOBAL CHEMICAL PUBLIC COMPANY  
LIMITED (100.0%)  
555/1 Energy Complex Building A 14th-18th Floor  
Vibhavadi Rangsit Road Chatuchak  
Bangkok 10900, TH**

72 Inventor/es:

**TANG-AMORNSUKSAN, SUCHADA y  
POTISATITYUENYONG, ANUPAT**

74 Agente/Representante:

**VALLEJO LÓPEZ, Juan Pedro**

**ES 2 729 986 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**

Composición de copoliéster biodegradable

**5 Sumario de la invención**

Esta invención se refiere a una composición de copoliéster biodegradable preparada a partir de la reacción de policondensación de diol con ácido dicarboxílico aromático y una mezcla de ácidos dicarboxílicos alifáticos, en la que la composición de copoliéster biodegradable comprende:

10

a) del 40 al 60 % en moles, basado en los moles totales de a) y b), de un ácido dicarboxílico aromático seleccionado entre ácido benceno dicarboxílico o un derivado éster de dicho ácido;

b) del 40 al 60 % en moles, basado en los moles totales de a) y b), de una mezcla de ácido dicarboxílico alifático, en la que b) comprende:

15

b1) del 20 al 80 % en moles, basado en los moles de b), de al menos un ácido dicarboxílico alifático con 2 a 6 átomos de carbono; y

b2) del 20 al 80 % en moles, basado en los moles de b), de al menos un ácido dicarboxílico alifático con 7 a 14 átomos de carbono;

20

c) al menos un equivalente molar, basado en los moles totales de a) y b), de un diol con 2 a 6 átomos de carbono;

d) del 0,1 al 0,2 % en moles, basado en los moles totales de a), b), c) y d), de un alcohol con al menos 3 grupos hidroxilo,

25

en la que la composición b1) se selecciona entre ácido oxálico, ácido malónico, ácido succínico, ácido glutárico, ácido malónico o ácido fumárico.

**Campo de la invención**

30

La presente invención se refiere al campo químico y polimérico de una composición de copoliéster biodegradable.

**Antecedentes de la invención**

35

El poliéster aromático es un polímero con buenas propiedades mecánicas y estabilidad térmica, por lo que puede moldearse en varios productos, como el tereftalato de polietileno, que es rígido, transparente, resistente y se puede usar como fibra, botella de envase, película; y tereftalato de polibutileno, que es rígido, estable al calor y se puede usar como plástico de ingeniería. Sin embargo, desde el punto de vista ambiental, el poliéster aromático no puede ser degradado por microorganismos naturales, lo que genera un problema en los desechos ambientales después del uso.

40

El poliéster alifático, como el polibutileno succinato, el ácido poliláctico y el polihidroxialcanoato, puede degradarse por microorganismos naturales, pero sus propiedades mecánicas, como la rigidez, la estabilidad ambiental y la estabilidad térmica son inferiores a las de un poliéster aromático.

45

Ha habido muchos intentos de integrar las ventajas del poliéster aromático y alifático mediante la preparación de un copoliéster alifático-aromático como se describe en la patente de EE.UU. n.º 6150490. Dicha patente estadounidense describe la preparación de un copoliéster alifático-aromático aleatorio mediante una reacción de condensación de diol y ácido dicarboxílico utilizando un catalizador metálico en condiciones de alta temperatura y baja presión. También describía el método para aumentar el peso molecular mediante el uso de una sustancia de diisocianato. La composición de poliéster biodegradable obtenida de dicha patente tiene propiedades mecánicas y térmicas adecuadas y podría moldearse para formar una película.

50

Ejemplos de copoliéster alifático-aromático disponible en el mercado son el tereftalato de adipato de polibutileno de BASF descrito en las patentes US6046248, US6303677, US414108 y US2011/0034662. Las patentes descritas utilizaron ácido adípico, ácido tereftálico y butanodiol como reactivos para obtener un copoliéster resistente, elástico y biodegradable.

55

Otro ejemplo es el tereftalato de succinato de polibutileno de DuPont que se produce al añadir un compuesto sulfonado como reactivo para obtener copoliéster sulfonado con mayor biodegradabilidad. Fue ampliamente utilizado para el moldeo por compresión o el moldeo por inyección (patentes de EE.UU. n.º 6368710 y 6657017).

60

Las propiedades y aplicaciones del copoliéster alifático-aromático dependen del tipo y la cantidad de ácido dicarboxílico y del tipo de diol que se utiliza como en los siguientes ejemplos.

65

La publicación de patente de EE.UU. n.º 2008/0194770 describe un copoliéster alifático-aromático comprendiendo

del 49 al 60 % en moles de ácido dicarboxílico aromático, del 34 al 51 % en moles de ácido orgánico dicarboxílico alifático con al menos el 70 % de ácido sebácico. Dicho copoliéster puede ser biodegradado en más del 40 % en 30 días. Sin embargo, dicho copoliéster comprendía un alto contenido de unidades aromáticas con el fin de mejorar la rigidez del copoliéster, que comprendía ácido sebácico flexible de cadena larga.

5 Las publicaciones de patente de EE.UU. n.º 2011/0237743, 2011/0237750 y el documento WO2011117203 describe el proceso de producción de película y lámina utilizando copoliéster alifático-aromático. Dicho copoliéster comprendía del 60 al 80 % en moles de uno o más ácidos seleccionados entre ácido succínico, ácido adípico, ácido sebácico, ácido brassílico y ácido azelaico, y del 20 al 35 % en moles de ácido orgánico dicarboxílico aromático.  
10 Dichas patentes reivindicaban una baja cantidad de composición aromática en el copoliéster, lo que proporciona una buena restauración de la película sin mencionar la rigidez.

15 La publicación de patente de EE.UU. n.º 2012/0245256 mostró un ejemplo de copoliéster alifático-aromático comprendiendo ácido tereftálico, ácido 2-metil succínico y ácido sebácico. Sin embargo, el copoliéster obtenido de dicha publicación mostró una baja temperatura de cristalización que era inferior a 30 °C, lo que no era adecuado para el proceso de moldeo de polímeros. Además, dicho copolímero mostró una estabilidad de hidrólisis mejorada que puede dar como resultado una degradación difícil.

20 Las patentes de EE.UU. n.º 8193298, 8193300 y 8461273 describen un copoliéster alifático-aromático que se centra en el uso de diácidos de cadena larga de origen natural tales como ácido sebácico, ácido brassílico y ácido azelaico preparados a partir de aceite vegetal. El uso de una molécula de diácido de cadena larga dio bajas propiedades térmicas, como un bajo punto de fusión y baja temperatura de cristalización, como resultado, se necesita al menos un 50 % en moles basado en la cantidad total de ácido dicarboxílico, de ácido dicarboxílico aromático. Además, para el uso de ingredientes renovables, se necesitaba al menos el 70 % del ácido sebácico natural basado en el ácido orgánico dicarboxílico alifático total. Las bajas propiedades térmicas del copoliéster resultante resultó una limitación para su uso.  
25

30 Por lo tanto, la presente invención tiene como objetivo preparar una composición de copoliéster biodegradable que sea biodegradable, comprendiendo ácido dicarboxílico aromático y ácido dicarboxílico alifático comprendiendo ácido dicarboxílico alifático de cadena corta con 2 a 6 átomos de carbono y cadena larga con 7 a 14 átomos de carbono en una relación óptima. Esta invención se centra en la mejora de las propiedades térmicas, propiedades mecánicas y biodegradabilidad. Además, el ácido dicarboxílico alifático puede prepararse a partir de recursos naturales renovables o recursos petroquímicos.

### 35 **Breve descripción de los dibujos**

La Figura 1 muestra el gráfico de la biodegradación de copoliésteres según los ejemplos de la tabla 6, que tienen diferentes composiciones de ácidos dicarboxílicos.

### 40 **Descripción detallada de la invención**

#### **Definiciones**

45 Los términos técnicos o los términos científicos utilizados en el presente documento tienen definiciones tal como las entienden los expertos en la materia, a menos que se indique lo contrario.

50 Los equipos, aparatos, métodos o productos químicos mencionados en el presente documento significan equipos, aparatos, métodos o productos químicos operados o utilizados habitualmente por los expertos en la materia, a menos que se indique explícitamente que son equipos, aparatos, métodos o productos químicos utilizados específicamente en esta invención.

El uso de los sustantivos singulares o plurales con el término "comprendiendo" en las reivindicaciones o en la especificación se refiere a "uno" y también a "uno o más", "al menos uno" y "uno o más de uno".

55 A lo largo de esta solicitud, el término "aproximadamente" se usa para indicar que cualquier valor presentado en este documento puede variar o se puede desviar. Dicha variación o desviación puede resultar de errores de aparatos, métodos utilizados en el cálculo o de aparatos o métodos de implementación de operadores individuales. Estas incluyen variaciones o desviaciones causadas por los cambios de las propiedades físicas, como el peso molecular del polímero.  
60

65 El "agente potenciador del peso molecular" se refiere a un extensor de cadena, un reticulante de cadena, o una mezcla de los mismos, en el que dicho extensor de cadena o reticulante de cadena para los poliésteres comprende grupos funcionales que pueden reaccionar con un grupo funcional hidroxilo y un grupo ácido carboxílico en el poliéster. Como se usa en este documento, el extensor de cadena se define por el número de grupos funcionales que pueden reaccionar con el poliéster, que es dos, lo que resulta en el enlace de las cadenas de polímero y el aumento de peso molecular sin cambiar las propiedades reológicas. La unidad "phr" representa la proporción del

agente potenciador del peso molecular que se añade al poliéster por cien partes de poliéster. A menos que se indique lo contrario, phr se calcula por peso.

5 Un objetivo de esta invención es la preparación de una composición de copoliéster biodegradable a partir de la reacción de policondensación entre diol y ácido dicarboxílico aromático y una mezcla de ácido dicarboxílico alifático de cadena corta con 2 a 6 átomos de carbono y una cadena larga con 7 a 14 átomos de carbono, y comprendiendo un alcohol con al menos 3 grupos hidroxilo.

10 Un objetivo de esta invención es la preparación de una composición de copoliéster biodegradable a partir de una reacción de policondensación entre un diol con 2 a 6 átomos de carbono y ácido dicarboxílico aromático y una mezcla de ácido dicarboxílico alifático con 2 a 6 átomos de carbono y ácido dicarboxílico alifático con 7 a 14 átomos de carbono, y comprendiendo un alcohol con al menos 3 grupos hidroxilo. Dicha composición de copoliéster tiene buenas propiedades térmicas y mecánicas y buena biodegradabilidad en comparación con el poliéster preparado a partir de un ácido dicarboxílico de tipo alifático.

15 A continuación se muestra una descripción detallada de la invención sin intención de limitar el alcance de la invención de ninguna manera.

20 Esta invención proporciona la composición de copoliéster biodegradable comprendiendo:

a) del 40 al 60 % en moles, basado en los moles totales de a) y b), de un ácido dicarboxílico aromático seleccionado entre ácido benceno dicarboxílico o un derivado éster de dicho ácido;

b) del 40 al 60 % en moles, basado en los moles totales de a) y b), de una mezcla de ácido dicarboxílico alifático, en la que b) comprende:

25 b1) del 20 al 80 % en moles, basado en los moles de b), de al menos un ácido dicarboxílico alifático con 2 a 6 átomos de carbono; y

b2) del 20 al 80 % en moles, basado en los moles de b), de al menos un ácido dicarboxílico alifático con 7 a 14 átomos de carbono;

30 c) al menos un equivalente molar, basado en los moles totales de a) y b), de un diol con 2 a 6 átomos de carbono;

d) del 0,1 al 2,0 % en moles, basado en los moles totales de a), b), c) y d), de un alcohol con al menos 3 grupos hidroxilo,

35 en la que la composición b1) se selecciona entre ácido oxálico, ácido malónico, ácido succínico, ácido glutárico, ácido malónico o ácido fumárico.

40 Preferiblemente, el ácido dicarboxílico aromático de acuerdo con la composición a) está en el intervalo del 45 al 50 % en moles basado en los moles totales de a) y b). Preferiblemente, la composición a) es ácido tereftálico.

Preferiblemente, el ácido dicarboxílico alifático de acuerdo con la composición b) está en el intervalo del 50 al 55 % en moles basado en los moles totales de a) y b).

45 Preferiblemente, la composición b1) está en el intervalo del 20 al 50 % en moles basado en los moles de b), en la que la composición b1) se selecciona entre ácido oxálico, ácido malónico, ácido succínico, ácido glutárico, ácido malónico o ácido fumárico, más preferiblemente es el ácido succínico.

50 Preferiblemente, la composición b2) está en el intervalo del 50 al 80 % en moles basado en los moles de b), en la que la composición b2) se puede seleccionar entre ácido subérico, ácido azelaico, ácido sebáico o ácido brassílico, más preferiblemente es ácido sebáico.

55 Preferiblemente, la composición c) se puede seleccionar entre etilenglicol, 1,2-propilenglicol, 1,3-propilenglicol, 1,4-butanodiol, 1,5-pentanodiol, 1,6-hexanodiol, 1,7-heptanodiol, 1,8-octanodiol, 1,9-nonanodiol, 1,10-decanodiol, 1,11-undecanodiol, 1,12-dodecanodiol, 1,4-ciclohexanodimetanol, neopentilglicol o 2-metil-1,3-propanodiol, más preferiblemente es 1,4-butanodiol.

60 Preferiblemente, la composición d) está en el intervalo del 0,3 al 1,0 % en moles basado en los moles totales de a), b), c) y d).

En un aspecto de la invención, la composición de copoliéster puede comprender además un agente potenciador del peso molecular que tiene un grupo difuncional que puede reaccionar con el grupo funcional hidroxilo y el grupo ácido carboxílico del copoliéster.

65 Preferiblemente, el agente potenciador del peso molecular se puede seleccionar entre un grupo diisocianato, un grupo isocianato bloqueado, un grupo epóxido, un grupo anhídrido de ácido carboxílico, un grupo carbodiimida, un

grupo oxozalina, un grupo oxazolinona o un grupo carbonil-bis-lactama, más preferiblemente es un grupo diisocianato, en la que el agente potenciador del peso molecular está en el intervalo de aproximadamente 0,1 a 5 phr basado en el peso total de las composiciones a), b), c) y d).

- 5 El proceso sintético de la composición de copoliéster de acuerdo con esta invención comprende las siguientes etapas:
- añadir aproximadamente del 40 al 60 % en moles de ácido dicarboxílico aromático, aproximadamente del 40 al 60 % en moles de ácido dicarboxílico alifático basado en los moles totales de ácido dicarboxílico aromático y alifático, y al menos un equivalente molar de diol basado en los moles totales de ácido dicarboxílico aromático y alifático en un reactor;
  - añadir aproximadamente del 0,1 al 2,0 % en moles, basado en los moles totales de las composiciones en la etapa anterior, de un alcohol con al menos 3 grupos hidroxilo;
  - calentar la mezcla de la etapa anterior a una temperatura de aproximadamente 170 a 250 °C, y agitar durante 30 minutos bajo atmósfera de nitrógeno;
  - añadir catalizador de butóxido de titanio (IV) y agitar dicha mezcla hasta que no haya agua condensada en el reactor;
  - reducir la presión para que sea inferior a 40 milibar (4 kPa) utilizando una bomba de vacío;
  - agitar dicha mezcla a una temperatura de aproximadamente 170 a 250 °C hasta obtener un polímero de alta viscosidad o que no quede agua condensada en el reactor;
  - reducir la temperatura a aproximadamente 130 a 150 °C y añadir de aproximadamente 0,1 a 5 phr de agente potenciador del peso molecular;
  - agitar dicha mezcla hasta completar la reacción para obtener copoliéster.
- 25 Lo que sigue es la prueba de propiedad del copoliéster obtenida de la presente invención, en la que los métodos de prueba y el equipo para estas propiedades son los métodos y el equipo utilizados habitualmente y no pretenden limitar el alcance de la invención.

Los instrumentos analíticos utilizados en el estudio de las propiedades térmicas del copoliéster de acuerdo con esta invención son el analizador termogravimétrico (TGA) que utiliza un gradiente de temperatura de 20 °C/min con una purga de nitrógeno de 20 ml/min, y el calorímetro de barrido diferencial (DSC) usando las condiciones proporcionadas en la tabla 1. La temperatura de cristalización (Tc) se identifica a partir de la temperatura máxima de cristalización del termograma durante el primer enfriamiento, la temperatura de transición vítrea (Tg) se considera a partir del termograma durante el segundo calentamiento.

35 La tabla 1 muestra las etapas y las condiciones de las pruebas del calorímetro de barrido diferencial.

Etapa	Temperatura (°C)	Velocidad de calentamiento (°C/min)	Tiempo (min)
1	25 a -60	20	-
2	mantener a -60	-	5,0
3	-60 a 200	20	-
4	mantener a 200	-	5,0
5	200 a -10	20	-
6	-10 a -60	20	-
7	-60 a 200	20	-
8	200 a -10	20	-
9	-10 a -60	20	-
10	-60 a 25	20	-

40 El peso molecular del copoliéster obtenido de la presente invención se determinó mediante la separación por tamaños usando cromatografía de permeación de gel (GPC) a 40 °C usando tetrahidrofurano (THF) como eluyente con un caudal de 1 ml/min. El peso molecular resultante se comparó con la gráfica del patrón de peso molecular de poliestireno. El copoliéster de la invención se moldeó en una lámina de 3 mm de espesor mediante moldeo por compresión según las condiciones de la tabla 2 para el análisis de las propiedades mecánicas del copoliéster en esta invención.

45 La tabla 2 muestra las etapas y las condiciones del moldeo por compresión del copoliéster.

Etapa	Tiempo (s)	Temperatura (°C)	Presión (bar)
Pre calentamiento	400	190	1
Desgasificación	10	190	30
Compresión	300	190	30
Enfriamiento	700	40	35

La prueba de tracción del copoliéster se realizó de acuerdo con la norma ASTM D638-10 en 5 muestras con forma

de mancuerna.

La prueba de impacto del copoliéster se realizó a una temperatura de -40 °C de acuerdo con la norma ASTM D256-10 en muestras cuadradas.

5

Las pruebas de biodegradación del copoliéster se realizaron de acuerdo con la norma ISO 14855-1.

Efecto de la cantidad de ácido dicarboxílico aromático sobre las propiedades de la composición de copoliéster (ejemplos de referencia)

10

El copoliéster se sintetizó añadiendo de 40 a 60 partes de ácido tereftálico en 100 partes por mol de ácido carboxílico, ácido succínico y ácido sebácico en una proporción de 1 a 1, y 2 equivalentes molares de butanodiol basado en el ácido dicarboxílico total en el reactor. El reactor se calentó a 230 °C y se agitó durante 30 minutos bajo una atmósfera de nitrógeno gaseoso. Se añadió catalizador de butóxido de titanio (IV) y dicha mezcla se agitó a 230 °C hasta que no quedó agua condensada en el reactor. La presión se redujo usando una bomba de vacío para que estuviera por debajo de 40 milibar (4 kPa). Dicha mezcla se agitó a una temperatura de 230 °C hasta que se obtuvo un polímero de alta viscosidad o no se condensó agua del reactor. La muestra se recogió para el análisis de peso molecular y las propiedades térmicas. El resultado mostró que en el mismo intervalo de peso molecular, la temperatura de fusión y la temperatura de cristalización del poliéster aumentaron con un aumento de la proporción de ácido dicarboxílico aromático en copoliéster, como se muestra en la tabla 3.

15

20

La Tabla 3 muestra las propiedades del copoliéster obtenido de la presente invención con diferentes cantidades de ácido dicarboxílico aromático

Ácido tereftálico (% en moles)	Mn	MW	PDI	Tm (°C)	Tc (°C)
40	14488	26856	1,86	92,8	50,8
46	14948	26339	1,77	115,5	77,9
60	16037	28397	1,77	125,6	90,9
polibutileno co-tereftalato	36720	72125	1,96	121,2	48,0

25

Efecto de la cantidad de alcohol con al menos 3 grupos hidroxilo sobre las propiedades del copoliéster (ejemplos inventivos)

El copoliéster se sintetizó añadiendo 46 partes de ácido tereftálico en 100 partes por mol de ácido carboxílico, ácido succínico y ácido sebácico de 1 a 1, 2 moles equivalentes de butanodiol basado en el total de ácido dicarboxílico, y glicerol de 0,3 a 1,0 % en mol en el reactor. El reactor se calentó a 230 °C y se agitó durante 30 minutos bajo una atmósfera de nitrógeno gaseoso. Se añadió catalizador de butóxido de titanio (IV) y dicha mezcla se agitó a 230 °C hasta que no quedó agua condensada en el reactor. La presión se redujo usando una bomba de vacío para que estuviera por debajo de 40 milibar (4 kPa). Dicha mezcla se agitó a una temperatura de 230 °C hasta que se obtuvo un polímero de alta viscosidad o no se condensó agua del reactor. El resultado mostró que el peso molecular y la distribución del peso molecular aumentaron al aumentar la cantidad de alcohol con al menos 3 grupos hidroxilo, y se encontró que la temperatura de cristalización está relacionada con el contenido de alcohol con al menos 3 grupos hidroxilo como se muestra en la tabla 4.

30

35

40

La Tabla 4 muestra las propiedades del copoliéster obtenido de la presente invención con diferentes cantidades de un alcohol con al menos 3 grupos hidroxilo.

Glicerol (% mol)	Mn	Mw	PDI	Tm (°C)	Tc (°C)
0	14948	26339	1,77	115,5	77,9
0,3	11555	24744	2,14	109,5	74,8
0,5	20637	60032	2,91	109,7	59,9
1,0	25729	177442	6,89	109,5	57,2

Estudio de las propiedades del copoliéster con diferentes composiciones de ácido dicarboxílico (ejemplos de referencia)

45

Un objetivo de la presente invención es obtener un copoliéster con buenas propiedades térmicas, propiedades mecánicas y biodegradabilidad en comparación con el poliéster con una estructura similar. Por lo tanto, se utilizaron como ejemplos comparativos otro poliéster tal como polibutileno succinato-co-tereftalato, polibutileno sebacato-co-tereftalato y polibutileno adipato-co-tereftalato. Dichos ejemplos comparativos se sintetizaron mediante el mismo proceso, como el polibutileno succinato-co-tereftalato (PBST), el polibutileno sebacato-co-tereftalato (PBSeT), o un grado comercial como el polibutileno adipato-co-tereftalato (PBAT).

50

55

El copoliéster se sintetizó añadiendo 50 partes de ácido tereftálico en 100 partes por mol de ácido dicarboxílico, de 0 a 50 partes de ácido succínico y de 0 a 50 partes de ácido sebácico, y 2 equivalentes molares de butanodiol basado

en los moles totales de ácido dicarboxílico en el reactor. El reactor se calentó a 230 °C y se agitó durante 30 minutos en condiciones de nitrógeno gaseoso. Se añadió catalizador de butóxido de titanio (IV) y dicha mezcla se agitó a 230 °C hasta que no quedó agua condensada en el reactor. La presión se redujo a menos de 40 milibar (4 kPa) usando una bomba de vacío. Dicha mezcla se agitó a una temperatura de 230 °C hasta que se obtuvo un polímero de alta viscosidad o no se condensó agua del reactor. La temperatura se redujo a 150 °C. Se añadió un agente potenciador del peso molecular, diisocianato de hexametileno, en una cantidad de 1 phr. Dicha mezcla se agitó durante 30 minutos. El producto se analizó para determinar su peso molecular, las propiedades térmicas y las propiedades mecánicas, como se muestra en la tabla 5 y la tabla 6. La biodegradación se analizó y se muestra en la Figura 1.

La Tabla 5 muestra las propiedades térmicas del copoliéster con diferentes cantidades de ácido dicarboxílico

Ejemplo	% en mol de ácido dicarboxílico			Mn	Mw	PDI	Tg (°C)	Tm (°C)	Tc (°C)	Td (°C)
	tereftálico	succínico	sebácico							
1	50	50	0	35049	168172	4,8	-15,3	127,5	66,5	381,4
2	50	40	10	40926	195592	4,78	-22,1	126,7	83,1	391,0
3	50	20	30	45553	167075	3,67	-31,0	119,7	61,6	392,7
4	50	10	40	46827	174431	3,73	-33,4	119,6	75,3	396,9
5	50	0	50	34366	102760	2,99	-35,3	119,6	59,9	397,2
6	adipato-co-tereftalato de polibutileno			36720	72125	1,96	-30	121,2	48,0	356

De la tabla 5, al comparar las propiedades del copoliéster con una cantidad diferente de la composición del ácido dicarboxílico, se encuentra que la temperatura de fusión (Tm) y la temperatura de transición vítrea (Tg) se reducen de acuerdo con la proporción de ácido sebácico. Cuando se comparan los ejemplos 1 a 5 con el ejemplo comparativo 6, se encuentra que el copoliéster preparado a partir de una mezcla de ácido succínico y ácido sebácico tiene una temperatura de cristalización (Tc) y una temperatura de degradación (Td) significativamente mayor que el copoliéster preparado a partir de ácido adípico.

La tabla 6 muestra las propiedades mecánicas del copoliéster con diferentes cantidades de ácido dicarboxílico

Ejemplo	% en mol de ácido dicarboxílico			Resistencia a la tracción (MPa)		% de elongación		Resistencia al impacto a -40 °C (J/m)	
	tereftálico	succínico	sebácico	Media	DT	Media	DT	Media	DT
1	50	50	0	11,5	0,672	260	33	32,1	4,8
2	50	40	10	15,9	0,305	460	16	37,6	4,6
3	50	20	30	15,1	0,67	600	38	36,2	7,7
4	50	10	40	16,4	1,1	600	43	38,0	14,1
5	50	0	50	10,8	0,525	520	28	-	-
6	adipato-co-tereftalato de polibutileno			14	0,216	520	11	36,0	4,0

De la tabla 6, el copoliéster que contiene una mezcla de ácido dicarboxílico alifático que es ácido sebácico y ácido succínico en sus estructuras en los ejemplos 2 a 5 tiene una mejor elongación y resistencia al impacto que el copoliéster comprendiendo un tipo de composición de ácido dicarboxílico alifático que es ácido succínico tal como polibutileno succinato co-tereftalato (PBST) en el ejemplo 1, y dichas propiedades son similares a las del adipato-co-tereftalato de polibutileno (PBAT) en el ejemplo 6.

Cuando se comparan los ejemplos 2 a 4 que son copoliésteres que tienen una composición de ácido succínico y ácido sebácico en la estructura polimérica del ejemplo 1 que es polibutileno succinato-co-tereftalato (PBST) y el ejemplo 5 que es polibutileno sebacato-co-tereftalato (PBSeT) y el ejemplo 6, que es adipato-co-tereftalato de polibutileno (PBAT), se encontró que el copoliéster con una mezcla de ácido succínico y ácido sebácico en su estructura tiene una resistencia a la tracción significativamente mayor que el polibutileno succinato-co-tereftalato, polibutileno sebacato-co-tereftalato y polibutileno adipato-co-tereftalato.

La Figura 1 muestra el gráfico de la biodegradabilidad del copoliéster según los ejemplos de la tabla 6 que tienen diferentes tipos de ácido dicarboxílico. Se encontró que el copoliéster con una mezcla de ácido dicarboxílico alifático que es ácido sebácico y ácido succínico en su estructura tienen mejor biodegradabilidad que el copoliéster comprendiendo un tipo de ácido dicarboxílico alifático que es ácido succínico solo. Además, el copoliéster según el ejemplo 3 y el ejemplo 4 muestra un mayor porcentaje de biodegradación en comparación con el ejemplo 6.

#### Mejor modo de llevar a cabo la invención

El mejor modo o realización preferida de la invención es como se proporciona en la descripción de la invención.

## REIVINDICACIONES

1. Una composición de copoliéster biodegradable, que comprende:
- 5 a) del 40 al 60 % en moles, basado en los moles totales de a) y b), de un ácido dicarboxílico aromático seleccionado entre ácido benceno dicarboxílico o un derivado éster de dicho ácido;  
b) del 40 al 60 % en moles, basado en los moles totales de a) y b), de una mezcla de ácido dicarboxílico alifático, en donde b) comprende:
- 10 b1) del 20 al 80 % en moles, basado en los moles de b), de al menos un ácido dicarboxílico alifático con 2 a 6 átomos de carbono; y  
b2) del 20 al 80 % en moles, basado en los moles de b), de al menos un ácido dicarboxílico alifático con 7 a 14 átomos de carbono;
- 15 c) al menos un equivalente molar, basado en los moles totales de a) y b), de un diol con 2 a 6 átomos de carbono;  
d) del 0,1 al 2,0 % en moles, basado en los moles totales de a), b), c) y d), de un alcohol con al menos 3 grupos hidroxilo
- 20 en donde la composición b1) se selecciona entre ácido oxálico, ácido malónico, ácido succínico, ácido glutárico, ácido malónico o ácido fumárico.
2. La composición de copoliéster biodegradable de acuerdo con la reivindicación 1, en la que el ácido dicarboxílico aromático de acuerdo con la composición a) es ácido tereftálico.
- 25 3. La composición de copoliéster biodegradable de acuerdo con las reivindicaciones 1 o 2, en la que el ácido dicarboxílico aromático de acuerdo con la composición a) está en el intervalo del 45 al 50 % en moles basado en los moles totales de a) y b).
- 30 4. La composición de copoliéster biodegradable de acuerdo con la reivindicación 1, en la que el ácido dicarboxílico alifático de acuerdo con la composición b) está en el intervalo del 50 al 55 % en moles basado en los moles totales de a) y b).
- 35 5. La composición de copoliéster biodegradable de acuerdo con la reivindicación 1, en la que la composición b1) es ácido succínico.
6. La composición de copoliéster biodegradable de acuerdo con las reivindicaciones 1 o 5, en la que la composición b1) está en el intervalo del 20 al 50 % en moles basado en los moles de b).
- 40 7. La composición de copoliéster biodegradable de acuerdo con la reivindicación 1, en la que la composición b2) se selecciona entre ácido subérico, ácido azelaico, ácido sebáico o ácido brasílico.
- 45 8. La composición de copoliéster biodegradable de acuerdo con la reivindicación 7, en la que la composición b2) es ácido sebáico.
9. La composición de copoliéster biodegradable de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones 1, 7 a 8, en la que la composición b2) está en el intervalo del 50 al 80 % en moles basado en los moles de b).
- 50 10. La composición de copoliéster biodegradable de acuerdo con la reivindicación 1, en la que la composición c) se selecciona entre etilenglicol, 1,2-propilenglicol, 1,3-propilenglicol, 1,4-butanodiol, 1,5-pentanodiol, 1,6-hexanodiol, 1,7-heptanodiol, 1,8-octanodiol, 1,9-nonanodiol, 1,10-decanodiol, 1,11-undecanodiol, 1,12-dodecanodiol, 1,4-ciclohexanodimetanol, neopentilglicol o 2-metil-1,3-propanodiol.
- 55 11. La composición de copoliéster biodegradable de acuerdo con la reivindicación 10, en la que la composición c) es 1,4-butanodiol.
12. La composición de copoliéster biodegradable de acuerdo con la reivindicación 1, en la que la composición d) está en el intervalo del 0,3 al 1,0 % en moles basado en los moles totales de a), b), c) y d).
- 60 13. La composición de copoliéster biodegradable de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 12, que comprende además un agente potenciador del peso molecular que tiene un grupo difuncional que puede reaccionar con el grupo funcional hidroxilo y el grupo ácido carboxílico del copoliéster.
- 65 14. La composición de copoliéster biodegradable de acuerdo con la reivindicación 13, en la que el agente potenciador del peso molecular se selecciona entre un grupo diisocianato, un grupo isocianato bloqueado, un grupo epóxido, un grupo anhídrido de ácido carboxílico, un grupo carbodiimida, un grupo oxazolina, un grupo oxazolinona



o un grupo carbonil-bis-lactama.

15. La composición de copoliéster biodegradable de acuerdo con la reivindicación 14, en la que el agente potenciador del peso molecular es un grupo diisocianato.

5

16. La composición de copoliéster biodegradable de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones 13 a 15, en la que el agente potenciador del peso molecular está en el intervalo de 0,1 a 5 phr basado en el peso total de las composiciones a), b), c) y d).

10 17. Poliéster que comprende la composición de copoliéster biodegradable de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 16.

18. Mezcla de polímero que comprende la composición de copoliéster biodegradable de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 16.

15

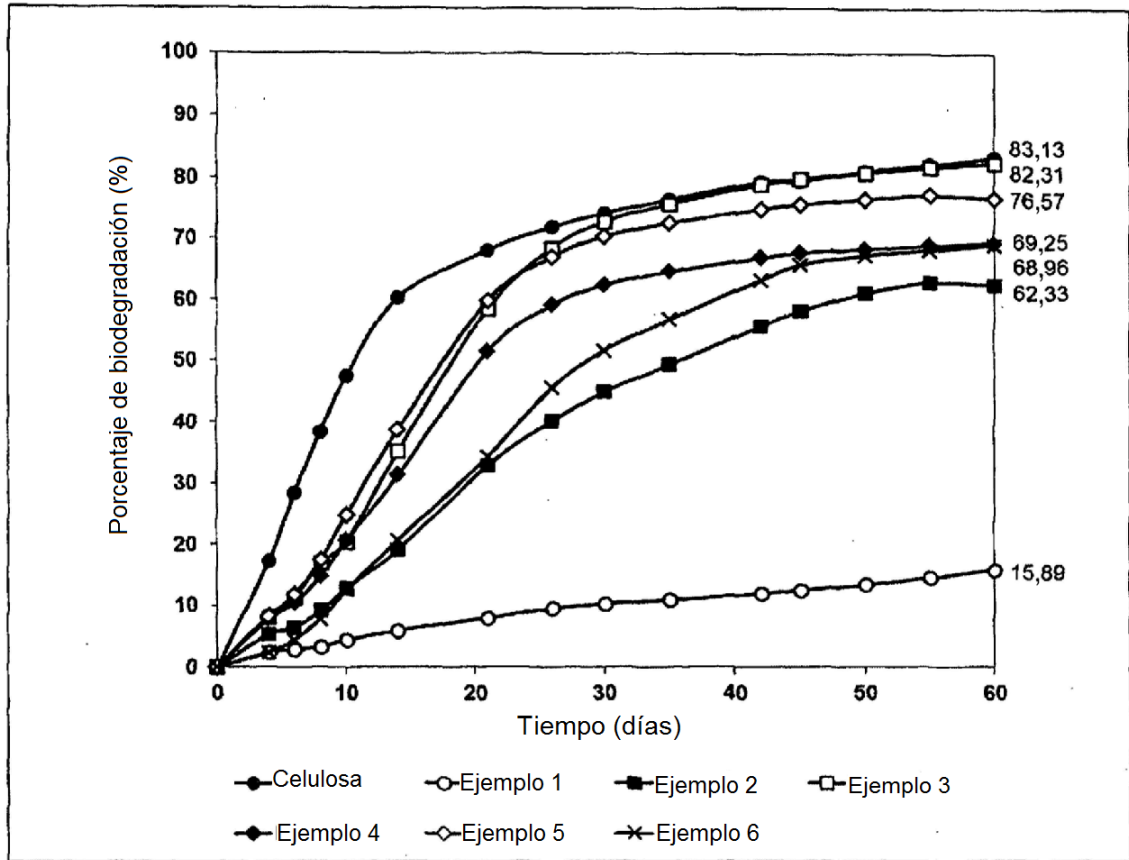


Figura 1