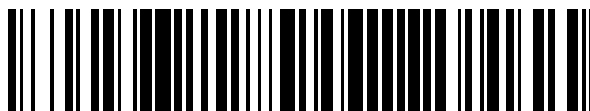


19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11) Número de publicación: **2 782 197**

51) Int. Cl.:

C08L 67/04	(2006.01)
C08J 3/20	(2006.01)
C08K 3/36	(2006.01)
C08K 5/10	(2006.01)
C08L 67/02	(2006.01)
C08L 101/16	(2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

86) Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **01.10.2013 PCT/JP2013/005851**

87) Fecha y número de publicación internacional: **10.04.2014 WO14054278**

96) Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **01.10.2013 E 13843254 (7)**

97) Fecha y número de publicación de la concesión europea: **11.03.2020 EP 2905314**

54) Título: **Composición de resina de poliéster y procedimiento para producir la misma**

30) Prioridad:

05.10.2012 JP 2012223513

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

11.09.2020

73) Titular/es:

**KANEKA CORPORATION (100.0%)
3-18, Nakanoshima 2-chome, Kita-ku
Osaka-shi, Osaka 530-8288 , JP**

72) Inventor/es:

**OKURA, TETSUO y
KOYAMA, RYOHEI**

74) Agente/Representante:

SALVÀ FERRER, Joan

ES 2 782 197 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 resina de poliéster y procedimiento para producir la misma

5 Campo técnico

[0001] La presente invención se refiere a una composición de resina de poliéster, y particularmente se refiere a una composición de resina de poliéster que contiene una alta proporción de poli(3-hidroxialcanoato) excelente en biodegradabilidad y es adecuada para su uso en la producción de una lámina o película que tiene una alta resistencia al desgarro, y a un procedimiento para producir tal composición de resina de poliéster.

Antecedentes de la técnica

[0002] En los últimos años, los problemas medioambientales causados por los residuos plásticos han salido a la luz y se ha deseado la conciencia de una sociedad basada en el reciclaje a escala global. En estas circunstancias, han recibido atención los plásticos biodegradables que se descomponen en agua y dióxido de carbono después del uso por acción de microorganismos. Además, en Europa, etc., donde la basura de la cocina se trata mediante compostaje, ha habido una demanda de bolsas de basura que se puedan poner en el compost junto con la basura. Los ejemplos de plásticos biodegradables incluyen poli(3-hidroxialcanoato) (en lo sucesivo en el presente documento, denominado P3HA), policaprolactona, tereftalato de adipato de polibutileno, adipato de succinato de polibutileno, o succinato de polibutileno, y se han desarrollado películas y láminas que utilizan estos plásticos biodegradables. Particularmente, entre estos plásticos biodegradables, el P3HA tiene la biodegradabilidad más excelente y, por lo tanto, puede tratarse mediante diversos procesos de biodegradación, tal como el compostaje a aproximadamente la temperatura normal y la degradación anaerobia. Por lo tanto, desde el punto de vista de la biodegradabilidad, se prefiere que P3HA se use individualmente o que se use una composición de resina que contenga una alta proporción de P3HA y otra resina biodegradable.

[0003] Como película y lámina convencionales de excelente biodegradabilidad se han descrito, por ejemplo, una película que comprende poli(3-hidroxibutirato-co-3-hidroxihexanoato) (abreviatura: PHBH) producida por un microorganismo (véase el Documento de patente 1), y una lámina que comprende una composición de resina que contiene una resina a base de petróleo, tal como tereftalato de adipato de polibutileno, adipato de succinato de polibutileno, succinato de polibutileno o policaprolactona y PHBH (véase el Documento de patente 2).

[0004] Sin embargo, cuando un poliéster alifático producido por un microorganismo, tal como PHBH, o una composición de resina que contiene dicho poliéster alifático se forma en una película o lámina por soplado en láminas o extrusión con troquel en T, la película o lámina resultante tiene mala resistencia al desgarro MD.

[0005] Como medio para mejorar la rigidez y la tenacidad de una resina biodegradable y/o derivada de biomasa, se ha descrito mezclar la resina con partículas inorgánicas recubiertas en la superficie para obtener una composición (véase el Documento de patente 3).

[0006] Sin embargo, el ácido poliláctico descrito en el Documento de patente 3 tiene originalmente mala resistencia a la rotura, y, por lo tanto, su resistencia al desgarro sigue siendo deficiente incluso después de la mezcla con partículas inorgánicas. Por otro lado, a diferencia del ácido poliláctico, el P3HA tiende a tener un peso molecular inferior en un ambiente ácido o básico y, por lo tanto, es difícil mejorar su resistencia al desgarro mediante el uso de partículas inorgánicas recubiertas.

[0007] También se ha descrito la mezcla con sílice. Por ejemplo, se ha descrito la combinación de una resina de poliéster alifático y una resina de poliéster aromático-alifático con partículas inorgánicas que tienen un tamaño de partícula específico para obtener una composición que tenga una resistencia al desgarro mejorada (véase el Documento de patente 4). Sin embargo, la resistencia al desgarro de la composición es insuficiente para producir continuamente una película o lámina. Además, no hay una descripción sobre un caso en el que la resina de poliéster alifático sea P3HA y un caso en el que las partículas inorgánicas sean partículas de sílice. Además, se ha descrito una composición obtenida mezclando una resina de poliéster alifático a base de ácido poliláctico, un plastificante, y sílice hidrófila (véase el Documento de patente 5). Sin embargo, la mezcla con la sílice hidrófila está destinada a mejorar la resistencia al calor para la resina a base de ácido poliláctico, y no se describe la mejora en la resistencia al desgarro de una resina que comprende P3HA y PBAT. Además, se ha descrito una composición que comprende dióxido de silicio, un plastificante y una resina biodegradable, tal como ácido poliláctico (véase el Documento de patente 6). Sin embargo, la mezcla con la sílice es la técnica de dispersar uniformemente el plastificante en el plástico rígido biodegradable para mejorar la flexibilidad y, por lo tanto, la sílice se usa como un vehículo del plastificante para dispersar uniformemente el plastificante. Por otro lado, la presente invención se aplica a plásticos blandos biodegradables y, por lo tanto, no tiene ese problema y su idea técnica es diferente. Además, no se describe la mejora en la resistencia al desgarro de una resina que comprende P3HA y PBAT, que es el objeto de la presente invención.

[0008] Además, se ha descrito una composición que comprende polihidroxibutirato que es uno de los P3HA,

un plastificante y un agente de nucleación de cristales (véase el Documento de patente 7). Sin embargo, la mezcla de la resina que tiene un alto punto de fusión con el plastificante pretende suprimir la degradación térmica durante el procesamiento y, por lo tanto, la resistencia al desgarro apenas mejora. El Documento de patente 8 describe una película o lámina mate monocapa que comprende el 85 % en peso de poliéster alifático-aromático biodegradable, el 5 10 % en peso de ácido poliláctico, y el 4 % en peso de sílice.

Lista de referencias

Documentos de patentes

10

[0009]

Documento de patente 1: JP-A-2006-045365

Documento de patente 2: WO 2010/013483

15

Documento de patente 3: JP-T-2011-510106

Documento de patente 4: JP-A-2009-221337

Documento de patente 5: JP-A-2004-189991

Documento de patente 6: JP-T-2006-028219

Documento de patente 7: JP-T-2009-527596

20

Documento de patente 8: EP1837363

Resumen de la invención

Problema técnico

25

[0010] En vista de lo anterior, es un objeto de la presente invención proporcionar una composición de resina que sea adecuada para su uso en la producción de una película o lámina que tenga una alta resistencia al desgarro y sea excelente en transparencia, procesabilidad, propiedades mecánicas y biodegradabilidad.

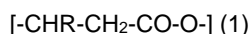
30 Solución al problema

[0011] Para lograr el objetivo anterior, los presentes inventores han estudiado intensamente y, como resultado, finalmente han encontrado que la mezcla de una composición de resina que comprende P3HA y PBAT con sílice hidrófila según el procedimiento de la presente reivindicación 10 hace posible mejorar significativamente la resistencia al desgarro MD (dirección del flujo de resina, dirección de la máquina) de una película o lámina obtenida a partir de una composición de resina según la presente invención.

35

[0012] Es decir, para lograr el objeto anterior, la presente invención se dirige a una composición de resina de poliéster biodegradable que comprende un poliéster alifático (P3HA) que tiene una unidad repetida representada por la siguiente fórmula general (1)

40



(en la que R es un grupo alquilo representado por C_nH_{2n+1} + 1 y n es un número entero de 1 o más y 15 o menos), tereftalato de adipato de polibutileno (PBAT) y sílice hidrófila (A), en la que una relación en peso del poliéster alifático (P3HA) con respecto al tereftalato de adipato de polibutileno (PBAT) es de 90/10 a 10/90, y una cantidad de sílice hidrófila (A) contenida es de 2 a 30 partes en peso con respecto a 100 partes en peso de una cantidad total del poliéster alifático (P3HA) y el tereftalato de adipato de polibutileno (PBAT) contenidos, en la que la composición de resina de poliéster biodegradable se obtiene mediante el procedimiento que comprende: una primera etapa de amasar por fusión el poliéster alifático (P3HA) y la sílice hidrófila (A) para preparar una composición de resina; y una segunda etapa de amasar por fusión la composición de resina preparada en la primera etapa con el tereftalato de adipato de polibutileno (PBAT).

45

50

[0013] El poliéster alifático (P3HA) es preferentemente al menos uno seleccionado del grupo que consiste en poli(3-hidroxiбутирато-co-3-hidroxihexanoato) (PHBH), poli(3-hidroxiбутирато) (P3HB), poli(3-hidroxiбутирато-co-3-hidroxi valerato) (PHBV), poli(3-hidroxiбутирато-co-4-hidroxiбутирато) (P3HB4HB), poli(3-hidroxiбутирато-co-3-hidroxi octanoato), y poli(3-hidroxiбутирато-co-3-hidroxi octadecanoato), y la sílice hidrófila (A) es preferentemente sílice precipitada.

55

60

[0014] Además, la relación en peso del poliéster alifático (P3HA) con respecto al tereftalato de adipato de polibutileno (PBAT) es preferentemente de 50/50 a 90/10.

[0015] Además, un plastificante (B) está contenido preferentemente en una cantidad de 2 a 30 partes en peso con respecto a 100 partes en peso de la cantidad total del poliéster alifático (P3HA) y el tereftalato de adipato de polibutileno (PBAT) contenido. El plastificante (B) es preferentemente al menos uno seleccionado de compuestos a

65

base de éster de glicerina, compuestos a base de adipato, y compuestos a base de éster de poliéster.

[0016] Además, la composición de resina de poliéster según la presente invención está destinada preferentemente para el procesamiento de una película o lámina.

5

[0017] La presente invención también se dirige a un artículo formado por resina de poliéster obtenido a partir de la composición de resina de poliéster. El artículo formado por resina de poliéster está preferentemente en forma de película o lámina.

10 [0018] La presente invención también se dirige a un procedimiento para producir la composición de resina de poliéster, que comprende: una primera etapa de amasar por fusión el poliéster alifático (P3HA) y la sílice hidrófila (A) para preparar una composición de resina; y una segunda etapa de amasar por fusión la composición de resina preparada en la primera etapa con el tereftalato de adipato de polibutileno (PBAT). En la primera etapa, se añade preferentemente el plastificante (B).

15

Efectos ventajosos de la invención

[0019] Según la presente invención, es posible proporcionar una composición de resina a base de poliéster que contenga una alta proporción de un poliéster alifático excelente en transparencia, procesabilidad, propiedades mecánicas y biodegradabilidad, particularmente una película o lámina con alta resistencia al desgarro MD.

20

Descripción de las realizaciones

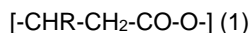
[0020] A continuación, en el presente documento, se describirá una realización de una composición de resina de poliéster según la presente invención, pero la presente invención no se limita a la misma.

25

[Poliéster alifático (P3HA)]

[0021] La composición de resina de poliéster según la presente invención contiene, como componente de resina, un poliéster alifático (P3HA) que tiene una unidad repetida representada por la siguiente fórmula general (1)

30



(en la que R es un grupo alquilo representado por C_nH_{2n+1} + 1 y n es un número entero de 1 o más y 15 o menos), y tereftalato de adipato de polibutileno (PBAT), y además contiene sílice hidrófila (A).

35

[0022] El poliéster alifático (P3HA) usado en la presente invención es una resina de poliéster que se denomina poli(3-hidroxialcanoato) y se produce por un microorganismo.

40 [0023] El microorganismo que produce el P3HA no está particularmente limitado, siempre que el microorganismo tenga la capacidad de producir P3HA. Los ejemplos de un microorganismo que produce un copolímero de hidroxibutirato y otro hidroxialcanoato incluyen *Aeromonas caviae* que produce un copolímero que tiene 3-hidroxibutirato y 3-hidroxivalerato como unidades monoméricas (en lo sucesivo en el presente documento, abreviado como "PHBV") y poli(3-hidroxibutirato-co-3-hidroxihexanoato) (en lo sucesivo en el presente documento, abreviado como "PHBH"), y *Alcaligenes eutrophus* que produce poli(3-hidroxibutirato-co-4-hidroxibutirato). Particularmente, como microorganismo que produce PHBH, por ejemplo, es más preferida la cepa AC32 de *Alcaligenes eutrophus* (FERM BP-6038) (J. Bacteriol., 179, pág. 4821 a 4830 (1997)) que se produce al introducir un gen enzimático sintético de PHA en *Alcaligenes eutrophus* para mejorar la productividad de PHBH. Tal microorganismo se cultiva en condiciones apropiadas para acumular PHBH en sus células, y se usan las células.

45

[0024] Desde el punto de vista del equilibrio entre la procesabilidad y las propiedades físicas, el peso molecular promedio en peso del P3HA usado en la presente invención es preferentemente de 50.000 a 3.000.000, más preferentemente de 100.000 a 1.500.000. Cabe apreciar que el peso molecular promedio en peso se determina basándose en la distribución de peso molecular del poliestireno medida por cromatografía de permeación en gel (GPC) usando cloroformo como eluyente.

55

[0025] El P3HA usado en la presente invención es preferentemente uno que tiene una unidad repetida representada por la fórmula general (1) anterior, en la que n del grupo alquilo (R) es 1, o uno que tiene una unidad repetida representada por la fórmula general (1) anterior, en la que n es 1, y una unidad repetida representada por la fórmula general (1) anterior, en la que n es al menos uno de 2, 3, 5 y 7, y es más preferentemente uno que tiene una unidad repetida representada por la fórmula general (1) anterior, en la que n es 1, y una unidad repetida representada por la fórmula general (1) anterior, en la que n es 3.

60

[0026] Los ejemplos específicos de P3HA incluyen poli(3-hidroxibutirato) (abreviatura: P3HB), poli(3-hidroxibutirato-co-3-hidroxihexanoato) (abreviatura: PHBH), poli(3-hidroxibutirato-co-3-hidroxivalerato) (abreviatura:

65

PHBV), poli(3-hidroxiobutirato-co-4-hidroxiobutirato) (abreviatura: P3HB4HB), poli(3-hidroxiobutirato-co-3-hidroxiocetanoato), y poli(3-hidroxiobutirato-co-3-hidroxiocetadecanoato). Se prefieren PHBH, P3HB, PHBV, P3HB4HB, poli(3-hidroxiobutirato-co-3-hidroxiocetanoato), y poli(3-hidroxiobutirato-co-3-hidroxiocetadecanoato) por su excelente biodegradabilidad.

5

[0027] Entre ellos, P3HB, PHBH, PHBV, y P3HB4HB se producen fácilmente industrialmente.

[0028] Entre ellos, se prefiere PHBH, que tiene una unidad repetida representada por la fórmula general (1) anterior, en la que n del grupo alquilo (R) es 1, y una unidad repetida representada por la fórmula general (1) anterior, en la que n es 3, a la luz del hecho de que su punto de fusión y cristalinidad se pueden cambiar cambiando la relación de contenido entre las unidades repetidas para cambiar las propiedades físicas, tal como el módulo de Young y la resistencia al calor, de manera que se puedan impartir propiedades físicas intermedias entre el polipropileno y el polietileno, y el PHBH se puede producir fácilmente industrialmente como se ha descrito anteriormente y es un plástico útil en términos de propiedades físicas. Un procedimiento específico para producir PHBH se describe, por ejemplo, en el documento WO 2010/013483 (Documento de patente 2). Un ejemplo de PHBH disponible comercialmente es "AONILEX" (marca registrada) fabricado por KANEKA CORPORATION.

[0029] Desde el punto de vista del equilibrio entre flexibilidad y resistencia, la relación de contenido entre las unidades repetidas de PHBH, es decir, la relación de contenido de 3-hidroxiobutirato con respecto a 3-hidroxihexanoato es preferentemente de 80/20 a 99/1 (mol/mol), más preferentemente de 75/15 a 97/3 (mol/mol). La razón de esto es que la relación de contenido es preferentemente 99/1 o menos desde el punto de vista de la flexibilidad y es preferentemente 80/20 o más desde el punto de vista de impartir la dureza apropiada a la resina.

[0030] Además, el punto de fusión, el módulo de Young, etc. del PHBV cambian dependiendo de la relación entre un componente 3-hidroxiobutirato (3HB) y un componente 3-hidroxiacetoato (3HV), pero la cristalinidad del PHBV es tan alta como del 50 % o más debido a la cocrystalización entre el componente 3HB y el componente 3HV. Por lo tanto, el PHBV es más flexible que el poli(3-hidroxiobutirato) (P3HB), pero tiende a tener un alargamiento de rotura tan bajo como del 50 % o menos.

30 [Tereftalato de adipato de polibutileno (PBAT)]

[0031] El tereftalato de adipato de polibutileno (PBAT) utilizado en la presente invención se refiere a un copolímero aleatorio de 1,4-butanodiol, ácido adipico y ácido tereftálico. Particularmente, se prefiere PBAT descrito en, por ejemplo, el documento JP-T-10-508640, que se obtiene por reacción de una mezcla que contiene (a) una mezcla que comprende principalmente del 35 al 95 % en moles de ácido adipico, su derivado formador de éster, o una mezcla de ellos, y del 5 al 65 % en moles de ácido tereftálico, su derivado formador de éster, o una mezcla de ellos (la suma de los porcentajes molares individuales es 100) y una mezcla que contiene (b) butanodiol (la relación molar de (a) con respecto a (b) es de 0,4: 1 a 1,5 : 1). Un ejemplo de PBAT disponible comercialmente es "Ecoflex" (marca registrada) fabricado por BASF.

40

[0032] La relación en peso de P3HA con respecto a PBAT (P3HA/PBAT) en la composición de resina de poliéster según la presente invención no está particularmente limitada, pero es preferentemente de 10/90 a 90/10, porque una película o lámina resultante es excelente en resistencia al desgarro y tiene la dureza adecuada. Además, la relación en peso es preferentemente 50/50 o más porque la composición es excelente en biodegradabilidad, especialmente biodegradabilidad a baja temperatura.

[Sílice hidrófila (A)]

[0033] La sílice hidrófila (A) utilizada en la presente invención es sílice que tiene grupos silanol que son grupos hidroxilo unidos a silicio. La sílice hidrófila (A) tiene principalmente grupos hidroxilo en su superficie. Cabe señalar que la sílice hidrófila (A) tiene un índice de refracción relativamente cercano al del P3HA, y, por lo tanto, se prefiere desde el punto de vista de lograr una excelente transparencia de la composición de resina o un artículo formado de la misma.

[0034] Los ejemplos de la sílice hidrófila (A) utilizada en la presente invención incluyen sílice precipitada y sílice pirógena. Los ejemplos específicos de sílice precipitada incluyen "Nipsil" (marca registrada) fabricada por TOSOH SILICA CORPORATION, "CARPLEX" (marca registrada) fabricada por Evonik, "SYLYSIA" (marca registrada) fabricada por FUJISILYSIA CHEMICAL LTD., y "SYLOPHOBIC" (marca registrada) fabricada por FUJISILYSIA CHEMICAL LTD. Los ejemplos específicos de sílice pirógena incluyen "AEROSIL" (marca registrada) fabricada por NIPPON AEROSIL CO., LTD., "REOLOSIL" (marca registrada) fabricada por Tokuyama Corporation y "EXCELICA" (marca registrada) fabricada por Tokuyama Corporation.

[0035] Particularmente, se prefiere la sílice precipitada por su alto efecto de mejora de la resistencia al desgarro.

65 **[0036]** En este caso, la sílice precipitada es sílice obtenida por la reacción de sosa de silicato y ácido sulfúrico

en agua, y la sílice pirógena es sílice obtenida por reacción de cloruro de silicio, hidrógeno y oxígeno a alta temperatura.

[0037] La cantidad de sílice hidrófila (A) contenida en el poliéster según la presente invención es de 2 a 30 partes en peso, preferentemente de 4 a 20 partes en peso con respecto a 100 partes en peso de la cantidad total de P3HA y el PBAT contenido. Si el contenido de sílice hidrófila (A) es inferior a 2 partes en peso, hay un caso en el que la resistencia al desgarro es baja. Por otro lado, si el contenido de sílice hidrófila (A) excede las 30 partes en peso, hay un caso en el que una película o lámina obtenida a partir de la composición de resina tiene mala flexibilidad.

[0038] Además, el tamaño de partícula primario de la sílice hidrófila (A) utilizada preferentemente en la presente invención no está particularmente limitado siempre que una película o lámina resultante pueda tener una resistencia al desgarro mejorada y sea menos probable que tenga defectos de apariencia tales como ojos de pez y su transparencia no se vea significativamente afectada. Sin embargo, desde el punto de vista de obtener fácilmente el efecto de mejorar las propiedades mecánicas tales como la resistencia al desgarro, y lograr una excelente transparencia, el tamaño de partícula primario de la sílice hidrófila (A) es preferentemente de 0,001 μm a 0,1 μm , particularmente preferentemente de 0,005 μm a 0,05 μm .

[0039] Aquí, el tamaño de partícula primario de la sílice hidrófila (A) puede medirse por dispersión por difracción láser.

20 [Plastificante (B)]

[0040] El componente de resina descrito anteriormente de la composición de resina de poliéster según la presente invención puede mezclarse adicionalmente con un plastificante (B) para mejorar aún más la resistencia al desgarro.

25

[0041] Los ejemplos del plastificante incluyen compuestos a base de éster de glicerina, compuestos a base de adipato, compuestos a base de éster de poliéter, compuestos a base de ftalato, compuestos a base de éster de isosorbida, y compuestos a base de policaprolactona. Entre ellos, se prefieren compuestos a base de glicerina modificados tales como diaceto-monolaurato de glicerina, diaceto-monocaprilato de glicerina, y diaceto-monodecanoato de glicerina, compuestos a base de adipato tales como adipato de dietilhexilo, adipato de dioctilo y adipato de diisononilo, y compuestos a base de éster de poliéter tales como dibenzoato de polietilenglicol, dicaprilato de polietilenglicol y diisosteato de polietilenglicol, porque tienen una afinidad excelente por el componente de resina y es menos probable que exuden. Además, particularmente el plastificante contiene preferentemente una alta proporción de un componente derivado de biomasa porque el contenido de biomasa de la composición puede aumentarse en su conjunto. Un ejemplo de dicho plastificante es la serie PL "RIKEMAL" (marca registrada) fabricada por RIKEN VITAMIN Co., Ltd.

[0042] Desde el punto de vista de una excelente compatibilidad con el P3HA, el plastificante (B) utilizado en la presente invención es preferentemente al menos uno seleccionado de compuestos a base de éster de glicerina, compuestos a base de adipato y compuestos a base de éster de poliéter.

[0043] La cantidad de plastificante (B) contenida en la composición de resina según la presente invención es de 2 a 30 partes en peso, preferentemente de 4 a 20 partes en peso con respecto a 100 partes en peso de la cantidad total del P3HA y el PBAT contenidos. Si el contenido de plastificante (B) es inferior a 2 partes en peso, hay un caso en el que el efecto de mejorar la resistencia al desgarro es deficiente. Por otro lado, si el contenido del plastificante (B) excede las 30 partes en peso, el efecto de mejorar la resistencia al desgarro no aumenta en proporción con respecto al contenido del plastificante (B), y el plastificante (B) puede causar exudación.

[Aditivo]

50

[0044] La composición de resina según la presente invención puede contener una o más resinas a base de poliéster alifático, tales como adipato de succinato polibutileno y succinato de polibutileno, y/u otras resinas, siempre que los efectos de la presente invención no se vean afectados.

[0045] Además, la composición de resina según la presente invención puede contener uno o más materiales usados habitualmente como aditivos, tales como cargas distintas de sílice, agentes colorantes tales como pigmentos y tintes, absorbentes de olores tales como carbón activado y zeolita, perfumes tales como vainillina y dextrina, inhibidores de la oxidación, antioxidantes, mejoradores de la resistencia a la intemperie, absorbentes ultravioleta, lubricantes, agentes de liberación, repelentes al agua, agentes antibacterianos, mejoradores de la capacidad de deslizamiento, y otros aditivos secundarios, siempre que los efectos de la presente invención no se vean afectados.

[Procedimiento para producir una composición de resina de poliéster]

[0046] A continuación, en el presente documento, se describirá una realización de un procedimiento para producir la composición de resina de poliéster según la presente invención, pero la presente invención no se limita a

la misma.

5 **[0047]** La composición de resina según la presente invención puede producirse usando un mezclador conocido tal como una extrusora un husillo, una extrusora de doble husillo, o un mezclador Banbury. Entre ellos, el mezclador es preferentemente una extrusora de doble husillo porque la sílice hidrófila (A) y el plastificante (B) que se añade, si es necesario, se pueden dispersar en la resina sin aplicar un cizallamiento excesivo a la resina. En cuanto a la condición de ajuste del mezclador, la temperatura preestablecida del cilindro es preferentemente 180 °C o menos porque se puede suprimir la descomposición térmica del P3HA.

10 **[0048]** La composición de resina según la presente invención se produce mediante un procedimiento de producción que comprende: una primera etapa de amasar por fusión el P3HA y la sílice hidrófila (A) para preparar una composición de resina; y una segunda etapa de amasar por fusión la composición de resina preparada en la primera etapa con el PBAT. Esto se debe a que un dominio de P3HA relativamente inferior en resistencia al desgarro con respecto al PBAT se mejora eficazmente y, por lo tanto, la resistencia al desgarro de la composición se mejora eficazmente en su conjunto.

[0049] Además, cuando se dispersa en la resina, el plastificante (B) se añade preferentemente en la primera etapa desde el punto de vista de lograr una excelente resistencia al desgarro como se ha descrito anteriormente.

20 **[0050]** Cuando se mezcla el plastificante (B), la sílice hidrófila (A) y el plastificante (B) se suministran preferentemente a la extrusora sin mezclarlos previamente. Esto se debe a que es probable que el plastificante (B) aplique cizalladura a la sílice hidrófila (A).

[Artículo formado por resina de poliéster]

25

[0051] Se puede producir un artículo formado por resina de poliéster según la presente invención procesando la composición de resina de poliéster según la presente invención mediante cualquiera de diversos procedimientos de procesamiento tales como extrusión, moldeo por inyección o calandria.

30 **[0052]** Cuando la composición de resina de poliéster según la presente invención se procesa en una película o lámina, se puede usar un procedimiento de procesamiento conocido tal como soplado en láminas o extrusión con troquel en T. Las condiciones específicas pueden establecerse adecuadamente. Sin embargo, en el caso de, por ejemplo, el soplado en láminas, se prefiere que los gránulos se sequen con un secador de deshumidificación o similar antes del soplado en láminas hasta que su contenido de humedad se reduzca a 500 ppm o menos, la temperatura de ajuste predeterminada del cilindro es de 100 °C a 160 °C, y una temperatura predeterminada del adaptador y una temperatura predeterminada del troquel es de 130 °C a 160 °C.

35 **[0053]** Cuando se procesa en una película o lámina, la composición de resina de poliéster según la presente invención puede desarrollar una alta resistencia al desgarro incluso en una dirección de máquina en la que la resistencia al desgarro tiende a ser baja.

40 **[0054]** El grosor de la película o lámina no está estrictamente definido. Sin embargo, la película generalmente tiene un grosor de aproximadamente 1 a 100 µm, y la lámina generalmente tiene un grosor de aproximadamente más de 100 µm a 2 mm.

45

[0055] La película o lámina según la presente invención es adecuada para su uso en los campos de la agricultura, la pesca, la silvicultura, la jardinería, la medicina, los artículos sanitarios, la industria alimentaria, la confección, campo diferente de la confección, el embalaje, los automóviles, los materiales de construcción, etc. Por ejemplo, la película o lámina se usa en aplicaciones tales como películas de acolchado para agricultura, láminas de fumigación para silvicultura, cintas de encuadernación que incluyen hilos planos y similares, láminas de envoltura de raíces de árboles, láminas posteriores para pañales, láminas de embalaje, bolsas de compra, bolsas de basura, bolsas de drenaje, bolsas de compost, etc.

Ejemplos

55

[0056] A continuación, en el presente documento, la presente invención se describirá más específicamente con referencia a ejemplos y ejemplos comparativos, pero la invención no se limita a estos ejemplos.

<Ejemplo de producción>

60

[0057] El P3HA (materia prima A-1) usado en los ejemplos se produjo de la siguiente manera. Cabe señalar que la producción de cultivo del P3HA se realizó utilizando la cepa KNK-631 (véase el documento WO 2009/145164).

65 **[0058]** La composición de un medio de semilla fue: 1 % p/v de extracto de carne, 1 % p/v de bacto-triptona, 0,2 % p/v de extracto de levadura, 0,9 % p/v de Na₂HPO₄·12H₂O, y 0,15 % p/v de KH₂PO₄, y el pH del medio de semilla

se ajustó a 6,8.

[0059] La composición de un medio de precultivo fue: 1,1 % p/v de $\text{Na}_2\text{HPO}_4 \cdot 12\text{H}_2\text{O}$, 0,19 % p/v de KH_2PO_4 , 1,29 % p/v de $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$, 0,1 % p/v de $\text{MgSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$, y 0,5 % v/v de solución de sal de metal traza (preparada mediante disolución, en ácido clorhídrico 0,1 N, 1,6 % p/v de $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, 1 % p/v de $\text{CaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$, 0,02 % p/v de $\text{CoCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, 0,016 % p/v de $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$, y 0,012 % p/v de $\text{NiCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$). Se añadió aceite de palmiste a la vez como fuente de carbono a una concentración de 10 g/l.

[0060] La composición de un medio de producción de PHA fue: 0,385 % p/v de $\text{Na}_2\text{HPO}_4 \cdot 12\text{H}_2\text{O}$, 0,067 % p/v de KH_2PO_4 , 0,291 % p/v de $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$, 0,1 % p/v de $\text{MgSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$, 0,5 % v/v de solución de sal de metal traza (obtenida mediante disolución, en ácido clorhídrico 0,1 N, 1,6 % p/v de $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, 1 % p/v de $\text{CaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$, 0,02 % p/v de $\text{CoCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, 0,016 % p/v de $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$, y 0,012 % p/v de $\text{NiCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$), y 0,05 % p/v de BIOSPUREX 200K (agente antiespumante: fabricado por Cognis Japan Ltd.).

[0061] Primero, se inoculó una solución madre de glicerol (50 μl) de la cepa KNK-631 en el medio de semilla (10 ml) y se cultivó la semilla durante 24 horas. A continuación, el cultivo de semillas resultante se inoculó al 1,0 % v/v en un fermentador en frasco de 3 litros (MDL-300 fabricado por B. E. MARUBISHI Co., Ltd.) que contenía 1,8 l del medio de precultivo. El precultivo se realizó durante 28 horas en condiciones de operación donde la temperatura de cultivo fue de 33 °C, la velocidad de agitación fue de 500 rpm, y el volumen de ventilación fue de 1,8 l/min, mientras que el pH se controló para que estuviera en el intervalo de 6,7 a 6,8. El control del pH se realizó usando una solución acuosa al 14 % de hidróxido de amonio.

[0062] A continuación, el precultivo resultante se inoculó al 1,0 % v/v en un fermentador en frasco de 10 litros (MDS-1000 fabricado por B. E. MARUBISHI Co., Ltd.) que contenía 6 l del medio de producción. El cultivo se realizó en condiciones de operación donde la temperatura de cultivo fue de 28 °C, la velocidad de agitación fue de 400 rpm, y el volumen de ventilación fue de 6,0 l/min, mientras que el pH se controló para que estuviera en el intervalo de 6,7 a 6,8. El control del pH se realizó usando una solución acuosa al 14 % de hidróxido de amonio. Se utilizó aceite de oleína de palmiste como fuente de carbono. El cultivo se realizó durante 64 horas. Después de la finalización del cultivo, las células se recogieron por separación centrífuga, se lavaron con metanol y se liofilizaron para medir el peso de las células secas.

[0063] Se añadieron cien mililitros de cloroformo a 1 g de las células secas obtenidas, y la mezcla resultante se agitó a temperatura ambiente durante todo el día y toda la noche para extraer el PHA de las células. La mezcla se filtró para eliminar los restos celulares, y el filtrado resultante se concentró mediante un evaporador hasta que su volumen total se convirtió en 30 ml. Después, se añadieron gradualmente 90 ml de hexano al filtrado, y la mezcla resultante se dejó en reposo durante 1 hora mientras se agitaba suavemente. La mezcla se filtró para separar el PHA depositado, y el PHA se secó al vacío a 50 °C durante 3 horas. El contenido de 3-hidroxihexanoato (3HH) del PHA obtenido se midió por cromatografía de gases en el siguiente procedimiento. Se mezclaron veinte miligramos del PHA seco con 2 ml de un líquido mixto de ácido sulfúrico-metanol (relación en volumen de 15:85) y 2 ml de cloroformo en un recipiente, y el recipiente se selló herméticamente. A continuación, la mezcla resultante se calentó a 100 °C durante 140 minutos para obtener un éster metílico del producto de degradación de PHA. Después del enfriamiento, se añadieron a esto 1,5 g de hidrogenocarbonato de sodio poco a poco para neutralización, y la mezcla resultante se dejó en reposo hasta que se detuvo la generación de dióxido de carbono. La mezcla se mezcló bien con 4 ml de éter diisopropílico y después se centrifugó. Después, la composición de la unidad de monómero del producto de degradación de poliéster en un sobrenadante se analizó por cromatografía de gases capilar. La cromatografía de gases se realizó usando GC-17A fabricado por SHIMADZU CORPORATION como un cromatógrafo de gases y NEUTRA BOND-1 (longitud de la columna: 25 m, diámetro interno de la columna: 0,25 mm, espesor de la película líquida: 0,4 μm) fabricado por GL Sciences Inc. como una columna capilar. El gas se usó como gas portador, la presión de entrada de la columna se ajustó a 100 kPa, y se inyectó una muestra en una cantidad de 1 μl . En cuanto a las condiciones de temperatura, la temperatura se aumentó de una temperatura inicial de 100 a 200 °C a una velocidad de 8 °C/min, y se aumentó aún más de 200 a 290 °C a una velocidad de 30 °C/min. Como resultado del análisis realizado en las condiciones anteriores, se descubrió que el PHA era poli(3-hidroxibutirato-co-3-hidroxihexanoato) representado por la fórmula química (1). El contenido de 3HH fue del 11,2 % en moles. Después de completar el cultivo, se obtuvo PHBH del cultivo mediante el procedimiento descrito en el documento WO 2010/067543. El PHBH tenía un peso molecular promedio en peso de 570000 según se midió por GPC.

[0064] En los ejemplos y ejemplos comparativos descritos más adelante, también se usaron las siguientes materias primas.

[0065] Materia prima A-2: PHBH con un Pm de 620000 y un contenido de 3HH del 5,4 % en moles (fabricado por KANEKA CORPORATION). La materia prima A-2 se obtuvo en el mismo procedimiento que en el Ejemplo de producción anterior, excepto que se usó la cepa KNK-005 (véase el documento WO 2008/010296) en lugar de la cepa KNK-631.

[0066] Materia prima B-1: PBAT ("Ecoflex (marca registrada)" fabricado por BASF).

[0067] Materia prima C-1: Sílice precipitada ("Nipsil (marca registrada)" LP fabricada por TOSOH SILICA CORPORATION) con un tamaño de partícula primario de 0,016 µm.

[0068] Materia prima C-2: Sílice pirógena ("AEROSIL (marca registrada)" R972 fabricada por NIPPON AEROSIL CO., LTD.) con un tamaño de partícula primario de 0,008 µm.

[0069] Materia prima C-3: Sílice precipitada hidrofobizada por recubrimiento superficial con ácido esteárico. La materia prima C-3 se preparó añadiendo el 3 % en peso de ácido esteárico (fabricado por Wako Pure Chemical Industries, Ltd., reactivo garantizado) a la sílice precipitada ("Nipsil (marca registrada)" LP fabricada por TOSOH SILICA CORPORATION) y agitando la mezcla resultante con un mezclador Henschel a 80 °C durante 30 minutos.

[0070] Materia prima C-4: Carbonato de calcio ("Brilliant (marca registrada)" 15 fabricado por SHIRAIISHI CALCIUM KAISHA, LTD.) con un tamaño de partícula primario de 0,150 µm.

[0071] Materia prima D-1: Plastificante a base de éster de glicerina ("RIKEMAL (marca registrada)" PL012 fabricado por RIKEN VITAMIN Co., Ltd.).

[0072] Materia prima D-2: Plastificante a base de adipato ("Monocizer (marca registrada)" W242 fabricado por DIC Corporation).

[0073] Materia prima D-3: Plastificante a base de éster de éter ("Monocizer (marca registrada)" W260 fabricado por DIC Corporation).

<Ejemplo 1>

(Producción de composición de resina)

[Primera etapa]

[0074] Para preparar una composición de resina usando los componentes mostrados en la Tabla 1, se obtuvo una composición de resina de PHBH que contenía sílice amasando por fusión el polímero de 3-hidroxialcanoato A-1 como componente P3HA y la sílice precipitada C-1 como sílice hidrófila (A) con una extrusora de doble husillo (TEX 30 fabricada por The Japan Steel Works, Ltd.) a una temperatura preestablecida de 100 a 130 °C y una velocidad de rotación del husillo de 100 rpm.

[Segunda etapa]

[0075] La composición de resina de PHBH que contenía sílice preparada en la primera etapa y el poliéster B-1 (PBAT) se amasaron por fusión con una extrusora de doble husillo (TEX30 fabricada por The Japan Steel Works, Ltd.) a una temperatura preestablecida de 100 a 130 °C y una velocidad de rotación del husillo de 100 rpm para obtener una composición de resina de poliéster según la presente invención.

(Producción de la lámina)

[0076] La composición de resina obtenida se extruyó usando un extrusor de un husillo, Labo Plastomill (20C200 fabricado por Toyo Seiki Seisaku-sho, Ltd.) equipado con un troquel en T que tenía un ancho de 150 mm y un reborde de 0,25 mm (extrusión con troquel en T) a una temperatura preestablecida de 135 °C y una velocidad de rotación del husillo de 80 rpm, y después se recogió mediante un rodillo de enfriamiento ajustado a 60 °C para obtener una lámina de 100 µm de grosor.

(Medición de la resistencia al desgarro)

[0077] La resistencia al desgarro MD de la lámina obtenida se midió según JIS 8116 con un analizador de resistencia al desgarro Elmendorf (fabricado por Kumagai Riki Kogyo Co., Ltd.). El resultado de la medición de la resistencia al desgarro se muestra en la Tabla 1.

<Ejemplos 2 a 4>

[0078] Se obtuvieron una composición de resina de poliéster biodegradable y una lámina que comprendía la composición de resina en el mismo procedimiento que en el Ejemplo 1, excepto que los tipos y cantidades de las materias primas utilizadas se cambiaron como se muestra en la Tabla 1, y se midió la resistencia al desgarro de la lámina. El resultado de la medición de la resistencia al desgarro se muestra en la Tabla 1.

<Ejemplos 5 a 9>

[0079] Se produjo una composición de resina de poliéster biodegradable de la misma manera que en el Ejemplo 4, excepto que se añadió un plastificante (B) en la primera etapa. Además, se obtuvo una lámina que comprendía la composición de resina, y se midió la resistencia al desgarro de la lámina. Los tipos y cantidades de las materias primas utilizadas y el resultado de la medición de la resistencia al desgarro se muestran en la Tabla 1.

5 <Ejemplo 10>

[0080] Se produjo una composición de resina de poliéster biodegradable en el mismo procedimiento que en el Ejemplo 4, excepto que el P3HA se cambió a A-2 y se añadió un plastificante (B) en la primera etapa. Además, se obtuvo una lámina que comprendía la composición de resina, y se midió la resistencia al desgarro de la lámina. Los tipos y cantidades de las materias primas utilizadas y el resultado de la medición de la resistencia al desgarro se muestran en la Tabla 1.

<Ejemplos comparativos 1 a 3>

[0081] Se obtuvo una composición de resina de poliéster biodegradable amasando por fusión la resina PHBH que no contenía sílice hidrófila (A) con el PBAT en el mismo procedimiento que en el Ejemplo 1, se obtuvo una lámina que comprendía la composición de resina, y se midió la resistencia al desgarro de la lámina. Los tipos y cantidades de las materias primas utilizadas y el resultado de la medición de la resistencia al desgarro se muestran en la Tabla 1.

(Ejemplo comparativo 4)

[0082] Se obtuvieron una composición de resina de poliéster biodegradable y una lámina que comprendía la composición de resina en el mismo procedimiento que en el Ejemplo 4, excepto que la sílice hidrófila (A) se cambió a C-3 sometida a tratamiento superficial, y se midió la resistencia al desgarro de la lámina. El resultado de la medición de la resistencia al desgarro se muestra en la Tabla 1.

<Ejemplo 11 (No según la invención)>

[0083] Las materias primas utilizadas en el Ejemplo 5 se mezclaron a la vez sin obtener previamente una composición de resina de PHBH que contenía sílice, y la mezcla resultante se amasó por fusión con una extrusora de doble husillo (TEX30 fabricada por The Japan Steel Works, Ltd.) a una temperatura preestablecida de 100 a 130 °C y una velocidad de rotación del husillo de 100 rpm para producir una composición de resina de poliéster biodegradable. Además, se obtuvo una lámina que comprendía la composición de resina en el mismo procedimiento que en el Ejemplo 1, y se midió la resistencia al desgarro de la lámina. El resultado de la medición de la resistencia al desgarro se muestra en la Tabla 1.

<Ejemplo 12>

[0084] La composición de resina de poliéster obtenida en el Ejemplo 5 se formó en una película cilíndrica que tenía un ancho de plegado de 400 mm y un grosor de 40 μm con una máquina de soplado en láminas (fabricada por Hokushin Sangyo Co., Ltd.) (procedimiento de soplado en láminas) en condiciones en las que el grosor del reborde del troquel circular era de 1 mm, el diámetro del reborde del troquel circular era de 100 mm, la temperatura preestablecida era de 120 a 140 °C, y la velocidad de absorción era de 8 m/min. Se midió la resistencia al desgarro de la película obtenida en la dirección de extrusión y se encontró que era de 54 mN/ μm .

(Ejemplo comparativo 5)

[0085] Se obtuvo una película en el mismo procedimiento que en el Ejemplo 12, excepto que la composición de resina de poliéster utilizada se cambió a la composición de resina de poliéster biodegradable obtenida en el Ejemplo comparativo 2. La resistencia al desgarro de la película obtenida en la dirección de extrusión fue de 7 mN/ μm .

(Ejemplo comparativo 6)

[0086] Se obtuvo una composición de resina de poliéster biodegradable y una lámina de 100 μm de grosor que comprendía la composición de resina en el mismo procedimiento que en el Ejemplo 1, excepto que la sílice hidrófila (A) se cambió por el carbonato de calcio C-4, y se midió la resistencia al desgarro de la lámina. El resultado de la medición de la resistencia al desgarro se muestra en la Tabla 1.

[0087] Como se puede ver en los resultados de los Ejemplos 1 a 4 y los Ejemplos comparativos 1 a 3, cuando se hace una comparación entre las composiciones de resina de poliéster que son iguales en la relación de contenido entre las resinas, la composición de resina de poliéster que contiene la sílice hidrófila ha mejorado la resistencia al desgarro en comparación con la composición de resina de poliéster que no contiene sílice. Particularmente, la resistencia al desgarro tiende a ser menor cuando se contiene una mayor proporción de PHBH excelente en biodegradabilidad. Sin embargo, la resistencia al desgarro se ha mejorado mediante la adición de sílice hidrófila.

También se puede ver que cuando se añade la sílice hidrófila, la sílice precipitada es más eficaz para mejorar la resistencia al desgarro que la sílice pirógena.

[0088] Además, se puede ver que las composiciones de resina de poliéster de los Ejemplos 5 a 10 que contienen el plastificante, así como la sílice, tienen una resistencia al desgarro significativamente mejorada.

[0089] Por otro lado, en el Ejemplo comparativo 4 que usa la sílice cuya superficie se convirtió en hidrófoba con ácido esteárico, la resistencia al desgarro no mejoró.

10 **[0090]** Además, se puede ver que la resistencia al desgarro se mejora más eficazmente al amasar previamente el PHBH, la sílice y el plastificante que al amasar por fusión todas las materias primas a la vez como en el Ejemplo 11 (no según la invención).

15 **[0091]** Además, se puede ver que incluso cuando la composición de resina de poliéster según la presente invención se forma en una película mediante soplado en láminas como en el Ejemplo 12, la película tiene una resistencia al desgarro mejorada.

[Tabla 1]

	Composición										Amasado preliminar de P3HA y partículas inorgánicas	Procedimiento de procesamiento de película/lámina	Propiedades de la lámina	
	P3HA		PBAT		Partículas inorgánicas		Plastificante		Espesor de la lámina(µm)	Resistencia al desgarro(mN/µm)				
	Tipo	Cantidad (partes en peso)	Tipo	Cantidad (partes en peso)	Tipo	Cantidad (partes en peso)	Tipo	Cantidad (partes en peso)						
Ejemplo 1	A-1	40	B-1	60	C-1	10	-	-	-	100	20			
Ejemplo 2	A-1	40	B-1	60	C-1	4	-	-	-	100	19			
Ejemplo 3	A-1	40	B-1	60	C-2	10	-	-	-	100	17			
Ejemplo 4	A-1	50	B-1	50	C-1	13	-	-	-	100	13			
Ejemplo 5	A-1	50	B-1	50	C-1	13	D-1	8	-	100	51			
Ejemplo 6	A-1	50	B-1	50	C-1	13	D-1	3	-	100	19			
Ejemplo 7	A-1	50	B-1	50	C-1	13	D-1	13	-	100	93			
Ejemplo 8	A-1	50	B-1	50	C-1	13	D-2	8	-	100	24			
Ejemplo 9	A-1	50	B-1	50	C-1	13	D-3	8	-	100	31			
Ejemplo 10	A-2	50	B-1	50	C-1	13	D-1	10	-	100	13			
Ejemplo 11	A-1	50	B-1	50	C-1	13	D-1	8	No realizado	100	34			
Ejemplo 12	A-1	50	B-1	50	C-1	13	D-1	8	Realizado	40	54			
Ejemplo comparativo 1	A-1	40	B-1	60	-	-	-	-	-	100	13			

(continuación)

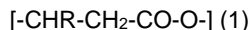
	Composición										Procedimiento de procesamiento de película/lámina	Propiedades de la lámina	
	P3HA		PBAT		Partículas inorgánicas		Plastificante		Amasado preliminar de P3HA y partículas inorgánicas	Grosor de la lámina (µm)		Resistencia al desgarro (mN/µm)	
	Tipo	Cantidad (partes en peso)	Tipo	Cantidad (partes en peso)	Tipo	Cantidad (partes en peso)	Tipo	Cantidad (partes en peso)					
Ejemplo comparativo 2	A-1	50	B-1	50	-	-	-	-	-	-	Extrusión con troquel en T	100	9
Ejemplo comparativo 3	A-2	50	B-1	50	-	-	-	-	-	-	Extrusión con troquel en T	100	7
Ejemplo comparativo 4	A-1	50	B-1	50	C-3	13	-	-	-	Realizado	Extrusión con troquel en T	100	9
Ejemplo comparativo 5	A-1	50	B-1	50	-	-	-	-	-	-	soplado en láminas	40	7
Ejemplo comparativo 6	A-1	40	B-1	60	C-4	10	-	-	-	Realizado	Extrusión con troquel en T	100	13

El Ejemplo 11 no es según la invención.

REIVINDICACIONES

1. Una composición de resina de poliéster biodegradable que comprende un poliéster alifático (P3HA) que tiene una unidad repetida representada por la siguiente fórmula general (1)

5



(en la que R es un grupo alquilo representado por C_nH_{2n+1} y n es un número entero de 1 o más y 15 o menos), tereftalato de adipato de polibutileno (PBAT) y sílice hidrófila (A), en la que una relación en peso del poliéster alifático (P3HA) con respecto al tereftalato de adipato de polibutileno (PBAT) es de 90/10 a 10/90, y una cantidad de sílice hidrófila (A) contenida es de 2 a 30 partes en peso con respecto a 100 partes en peso de una cantidad total del poliéster alifático (P3HA) y el tereftalato de adipato de polibutileno (PBAT) contenidos, en la que la composición de resina de poliéster biodegradable se obtiene mediante el procedimiento que comprende: una primera etapa de amasar por fusión el poliéster alifático (P3HA) y la sílice hidrófila (A) para preparar una composición de resina; y una segunda etapa de amasar por fusión la composición de resina preparada en la primera etapa con el tereftalato de adipato de polibutileno (PBAT).

2. La composición de resina de poliéster según la reivindicación 1, en la que el poliéster alifático (P3HA) es al menos uno seleccionado del grupo que consiste en poli(3-hidroxiobutirato-co-3-hidroxihexanoato) (PHBH), poli(3-hidroxiobutirato) (P3HB), poli(3-hidroxiobutirato-co-3-hidroxi valerato) (PHBV), poli(3-hidroxiobutirato-co-4-hidroxiobutirato) (P3HB4HB), poli(3-hidroxiobutirato-co-3-hidroxi octanoato), y poli(3-hidroxiobutirato-co-3-hidroxi octadecanoato).

3. La composición de resina de poliéster según la reivindicación 1 o 2, en la que la sílice hidrófila (A) es sílice precipitada.

25

4. La composición de resina de poliéster según cualquiera de las reivindicaciones 1 a 3, en la que la relación en peso del poliéster alifático (P3HA) con respecto al tereftalato de adipato de polibutileno (PBAT) es de 50/50 a 90/10.

5. La composición de resina de poliéster según cualquiera de las reivindicaciones 1 a 4, en la que un plastificante (B) está contenido en una cantidad de 2 a 30 partes en peso con respecto a 100 partes en peso de la cantidad total del poliéster alifático (P3HA) y el tereftalato de adipato de polibutileno (PBAT) contenidos.

6. La composición de resina de poliéster según la reivindicación 5, en la que el plastificante (B) es al menos uno seleccionado de compuestos a base de éster de glicerina, compuestos a base de adipato, y compuestos a base de éster de poliéster.

7. La composición de resina de poliéster según cualquiera de las reivindicaciones 1 a 6, que está destinada al procesamiento de película o lámina.

40

8. Un artículo formado por resina de poliéster obtenido a partir de la composición de resina de poliéster alifático según cualquiera de las reivindicaciones 1 a 7.

9. El artículo formado por resina de poliéster según la reivindicación 8, que está en forma de película o lámina.

45

10. Un procedimiento para producir la composición de resina de poliéster según cualquiera de las reivindicaciones 1 a 7, que comprende: una primera etapa de amasar por fusión el poliéster alifático (P3HA) y la sílice hidrófila (A) para preparar una composición de resina; y una segunda etapa de amasar por fusión la composición de resina preparada en la primera etapa con el tereftalato de adipato de polibutileno (PBAT).

50

11. El procedimiento para producir la composición de resina de poliéster según la reivindicación 10, en el que, en la primera etapa, se añade el plastificante (B).