

19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 834 008**

51 Int. Cl.:

<b>B32B 27/36</b>	(2006.01)	<b>B32B 27/32</b>	(2006.01)
<b>C08G 63/181</b>	(2006.01)	<b>B32B 27/40</b>	(2006.01)
<b>C08G 63/183</b>	(2006.01)	<b>B32B 27/42</b>	(2006.01)
<b>B32B 7/04</b>	(2009.01)	<b>C08L 67/02</b>	(2006.01)
<b>B32B 27/18</b>	(2006.01)	<b>C08J 5/18</b>	(2006.01)
<b>B32B 27/20</b>	(2006.01)	<b>B32B 27/34</b>	(2006.01)
<b>B32B 27/08</b>	(2006.01)		
<b>B32B 27/22</b>	(2006.01)		
<b>B32B 27/28</b>	(2006.01)		
<b>B32B 27/30</b>	(2006.01)		

12

## TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

86 Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **13.06.2017** **PCT/EP2017/064392**

87 Fecha y número de publicación internacional: **21.12.2017** **WO17216150**

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **13.06.2017** **E 17735400 (8)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **28.10.2020** **EP 3468797**

54 Título: **Película biodegradable de múltiples capas**

30 Prioridad:

**13.06.2016 IT UA20164319**

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:  
**16.06.2021**

73 Titular/es:

**NOVAMONT S.P.A. (100.0%)**  
**Via G. Fauser 8**  
**28100 Novara, IT**

72 Inventor/es:

**PONTI, ROBERTO y**  
**RUSSO, CLAUDIO**

74 Agente/Representante:

**ISERN JARA, Jorge**

ES 2 834 008 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

Película biodegradable de múltiples capas

5 La presente invención se refiere a una película biodegradable de múltiples capas que es particularmente adecuada para su uso en la fabricación de envase de diversos tipos, en particular bolsas para el transporte de mercancías y bolsas para el envasado de alimentos, tales como bolsas para frutas y verduras. Además de tener propiedades mecánicas de nivel alto, en particular un módulo elástico alto, dichas películas tienen propiedades de transparencia óptica apreciables.

10 La producción de envase, en particular bolsas para el envasado de alimentos, tales como bolsas para frutas y verduras, requiere el uso de películas que combinen buenas propiedades mecánicas con otras propiedades que sean positivas para el consumidor, tales como, en particular, propiedades de transparencia óptica que permitan a los consumidores usar el envase mediante la identificación de un objeto contenido en el interior desde el exterior.

15 El documento US2009324927 desvela una película, útil para el envase, por ejemplo, de productos alimenticios, productos médicos, indumentaria, basura, artículos absorbentes y productos de tejido, que comprende una mezcla que comprende un almidón termoplástico, ácido poliláctico, copoliéster alifático-aromático y carga.

20 El documento US2007042207 desvela una película de múltiples capas coextruida adecuada para el envasado de alimentos que tiene al menos una capa de mezcla de almidón de una mezcla de almidón termoplástico modificado que contiene más del 1 % al 10 % de agua y al menos una capa de poliéster de un poliéster biodegradable.

25 En el sector del envase biodegradable, además de los problemas mecánicos y ópticos, también es necesario hacer uso de materiales que sean capaces de degradarse una vez que hayan alcanzado el final de su uso primario sin dar lugar a una acumulación de desechos en el medio ambiente. El desarrollo de películas biodegradables que combinen estas diferentes propiedades es, de hecho, un desafío que requiere que las diferentes necesidades, que con frecuencia son muy contradictorias entre sí, se equilibren. De hecho, aunque pueden conseguirse criterios particulares para las propiedades mecánicas y la biodegradabilidad haciendo uso de composiciones de materiales que compartan cada una de las propiedades finales de la película de acuerdo con sus características diferentes, la consecución de propiedades de transparencia óptica altas se ve con mucha frecuencia obstaculizada específicamente por la naturaleza heterogénea de dichas composiciones. Para los fabricantes de películas de envase biodegradables, esto significa que deben decidir si usan una película que tenga propiedades mecánicas y de biodegradabilidad de nivel alto y propiedades de transparencia óptica no óptimas, o viceversa, haciendo uso de aspectos asociados a las propiedades ópticas del envase, aceptando de este modo un menor rendimiento en términos de propiedades mecánicas y de biodegradabilidad.

35 Por tanto, si fuera posible desarrollar una película capaz de equilibrar estos requisitos opuestos, una que se caracterice, por tanto, por sus propiedades de biodegradabilidad y mecánicas de nivel alto, en particular un módulo elástico alto, y propiedades de transparencia óptica apreciables, esto permitiría superar los presentes problemas descritos anteriormente.

40 La presente invención aborda este problema y presenta una solución al mismo que es capaz de equilibrar adecuadamente estos diferentes requisitos. En particular, la presente invención se refiere a una película de múltiples capas que comprende al menos una primera capa A y al menos una segunda capa B, en la que las capas A y B tienen una disposición mutua A/B/A, en donde la capa A y la capa B son diferentes entre sí, en la que la capa A comprende un poliéster alifático y/o alifático-aromático biodegradable o un alcohol polivinílico o sus copolímeros, y en la que la capa B comprende:

50 i) el 30-95 % en peso, preferentemente el 50-85 %, con respecto a la suma de los componentes i.-v., de al menos un poliéster que comprende:

a) un componente dicarboxílico que comprende, con respecto al componente dicarboxílico total:

55 a1) el 35-70 % en moles, preferentemente el 40-60 % en moles, más preferentemente el 45-60 % en moles, de unidades derivadas de al menos un ácido dicarboxílico aromático;  
a2) el 65-30 % en moles, preferentemente el 60-40 % en moles, más preferentemente el 55-40 % en moles, de unidades derivadas de al menos un ácido dicarboxílico alifático saturado;  
a3) el 0-5 % en moles de unidades derivadas de al menos un ácido dicarboxílico alifático insaturado;

60 b) un componente de diol que comprende, con respecto al componente de diol total:

b1) el 95-100 % en moles de unidades derivadas de al menos un diol alifático saturado;  
b2) el 0-5 % en moles de unidades derivadas de al menos un diol alifático insaturado;

65 ii) el 0,1-50 % en peso, preferentemente el 5-40 % en peso, con respecto a la suma de los componentes i.-v., de

al menos un polímero de origen natural;

iii) el 1-40 % en peso, preferentemente el 2-30 % en peso, con respecto a la suma de los componentes i.-v., de al menos un polihidroxialcanoato;

iv) el 0-15 % en peso, con respecto a la suma de los componentes i.-v., de al menos una carga inorgánica;

- 5 v) el 0-5 % en peso, preferentemente el 0-0,5 % en peso, con respecto a la suma de los componentes i.-v., de al menos un agente de reticulación y/o un prolongador de cadena que comprende al menos un compuesto que tiene dos y/o más grupos funcionales, incluyendo grupos isocianato, peróxido, carbodiimida, isocianurato, oxazolina, epóxido, anhídrido o diviniléter y mezclas de los mismos.

- 10 Una característica particular de la película de múltiples capas de acuerdo con la presente invención es que su estructura de capas comprende al menos una capa que comprende un poliéster biodegradable alifático-aromático y/o alifático o un alcohol polivinílico o sus copolímeros (capa A) y al menos una capa que comprende una composición polimérica que comprende los componentes i.-v. (capa B). Sorprendentemente, se ha descubierto que
- 15 una película de múltiples capas que tiene esta combinación de materiales tiene propiedades mecánicas, de biodegradabilidad y ópticas extraordinariamente buenas, lo que la hace adecuada para la producción de envase de diversos tipos.

- En particular, la capa B de la película de múltiples capas de acuerdo con la presente invención comprende estructuralmente una fase continua y una fase dispersa capaces de hacer que la película sea rápidamente
- 20 biodegradable en condiciones de compostaje industrial y más preferentemente en el compostaje doméstico de acuerdo con la norma UNI11355. Dicha película también tiene propiedades mecánicas de nivel alto y es extremadamente delgada; si, por ejemplo, está en forma de bolsas de no más de 50 cm de altura, no más de 40 cm de ancho (con o sin refuerzos) y en el caso de bolsas con asas que tengan asas de un ancho entre 5 y 3 cm y un espesor de menos de 15 µm y más preferentemente menos de 12 µm, las bolsas son capaces de soportar un peso
- 25 de al menos 3 kg, y aún más preferentemente de al menos 4 kg en condiciones de ensayo de movimiento acelerado. A modo de ejemplo, puede considerarse que un tipo de ensayo manual de movimiento acelerado consiste en levantar la bolsa a 40 cm del suelo 10 veces consecutivas sin que se produzca ningún desgarro. Aunque la estructura de la capa individual B tiene propiedades ópticas que son significativamente peores que las de los materiales no biodegradables ampliamente utilizados para la producción de envases, tales como, por ejemplo,
- 30 HDPE, la película de múltiples capas de acuerdo con la presente invención tiene propiedades ópticas similares a las de HDPE debido a su estructura, que proporciona una combinación de al menos una capa A y al menos una capa de B, manteniendo al mismo tiempo las características de biodegradabilidad de la capa B (compostaje industrial y, más preferentemente, compostabilidad y/o dispersabilidad domésticas en procesos de mezcla mecánica que preceden a tratamientos que implican anaerobiosis). En particular, la película de múltiples capas tiene propiedades de
- 35 transmisión óptica superiores al 90 %, preferentemente superiores al 91 %, una turbidez inferior al 65 %, preferentemente inferior al 55 %, y una claridad superior al 20 %, preferentemente superior al 40 %.

- La presente invención también se refiere a envase de diversos tipos, en particular bolsas para el transporte de mercancías y bolsas para el envasado de alimentos, tales como bolsas para alimentos y verduras que comprenden
- 40 dicha película de múltiples capas.

La película de múltiples capas de acuerdo con la presente invención comprende al menos una capa A y al menos una capa de B, caracterizada por una disposición mutua A/B/A.

#### 45 CAPA A

En lo que respecta a la capa A, esto comprende al menos un poliéster alifático y/o alifático-aromático o un alcohol polivinílico o sus copolímeros. En el caso de un poliéster alifático-aromático, este comprende preferentemente:

- 50 c) un componente dicarboxílico que comprende, con respecto al componente dicarboxílico total:
- c1) el 35-70 % en moles, preferentemente el 40-60 % en moles, más preferentemente el 45-60 % en moles, de unidades derivadas de al menos un ácido dicarboxílico aromático;
- 55 c2) el 65-30 % en moles, preferentemente el 60-40 % en moles, más preferentemente el 55-40 % en moles, de unidades derivadas de al menos un ácido dicarboxílico alifático saturado;
- c3) el 0-5 % en moles de unidades derivadas de al menos un ácido dicarboxílico alifático insaturado;
- d) un componente de diol que comprende, con respecto al componente de diol total:
- 60 d1) el 95-100 % en moles de unidades derivadas de al menos un diol alifático saturado;
- d2) el 0-5 % en moles de unidades derivadas de al menos un diol alifático insaturado.

- Los ácidos dicarboxílicos aromáticos del componente c1 se seleccionan preferentemente entre ácidos dicarboxílicos aromáticos del tipo del ácido ftálico, preferentemente ácido tereftálico o ácido isoftálico, más preferentemente ácido
- 65 tereftálico, y compuestos aromáticos dicarboxílicos heterocíclicos, preferentemente ácido 2,5-furanodicarboxílico, ácido 2,4-furanodicarboxílico, ácido 2,3-furanodicarboxílico, ácido 3,4-furanodicarboxílico, más preferentemente

ácido 2,5-furanodicarboxílico, sus ésteres, sales y mezclas. En una realización preferida, dichos ácidos dicarboxílicos aromáticos comprenden:

- del 1 al 99 % en moles, preferentemente del 5 al 95 % y más preferentemente del 10 al 80 %, de ácido tereftálico, sus ésteres o sales;
- del 99 al 1 % en moles, preferentemente del 95 al 5 % y más preferentemente del 90 al 20 %, de ácido 2,5-furanodicarboxílico, sus ésteres o sales.

Los ácidos dicarboxílicos alifáticos saturados del componente c2 se seleccionan preferentemente entre ácidos dicarboxílicos saturados C<sub>2</sub>-C<sub>24</sub>, preferentemente C<sub>4</sub>-C<sub>13</sub>, más preferentemente C<sub>4</sub>-C<sub>11</sub>, sus ésteres alquílicos C<sub>1</sub>-C<sub>24</sub>, preferentemente C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>, sus sales y mezclas de los mismos. Preferentemente, los ácidos dicarboxílicos alifáticos saturados se seleccionan entre ácido succínico, ácido 2-etilsuccínico, ácido glutárico, ácido 2-metilglutarico, ácido adípico, ácido pimélico, ácido subérico, ácido azelaico, ácido sebácico, ácido undecanodioico, ácido dodecanodioico, ácido brasílico, ácido hexadecanodioico, ácido octadecanodioico y sus ésteres de alquilo C<sub>1</sub>-C<sub>24</sub>. En una realización preferida de la presente invención el ácido dicarboxílico alifático saturado comprende mezclas que comprenden al menos el 50 % en moles, preferentemente más del 60 % en moles, más preferentemente más del 65 % en moles, de ácido succínico, ácido adípico, ácido azelaico, ácido sebácico, ácido brasílico, sus ésteres C<sub>1</sub>-C<sub>24</sub>, preferentemente C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>, y mezclas de los mismos. En una realización particularmente preferida dichas mezclas comprenden o consisten en ácido adípico y ácido azelaico y contienen ácido azelaico en una cantidad de entre el 5 y el 40 % en moles, más preferentemente de entre el 10 y el 35 % en moles de ácido azelaico con respecto a la suma de ácido adípico y ácido azelaico.

Los ácidos dicarboxílicos alifáticos insaturados del componente c3 se seleccionan preferentemente entre ácido itacónico, ácido fumárico, ácido 4-metilen-pimélico, ácido 3,4-bis(metileno)nonandioico, ácido 5-metileno-nonandioico, sus ésteres alquílicos C<sub>1</sub>-C<sub>24</sub>, preferentemente C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>, sus sales y mezclas de los mismos. En una realización preferida de la presente invención los ácidos dicarboxílicos alifáticos insaturados comprenden mezclas que comprenden al menos el 50 % en moles, preferentemente más del 60 % en moles, más preferentemente más del 65 % en moles, de ácido itacónico y sus ésteres C<sub>1</sub>-C<sub>24</sub>, preferentemente C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>. Más preferentemente, los ácidos dicarboxílicos alifáticos insaturados consisten en ácido itacónico.

En lo que respecta a los dioles alifáticos saturados del componente dl, estos se seleccionan preferentemente entre 1,2-etanodiol, 1,2-propanodiol, 1,3-propanodiol, 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, 1,13-tridecanodiol, 1,4-ciclohexanodimetanol, neopentilglicol, 2-metil-1,3-propanodiol, dianhidrosorbitol, dianhidromanitol, dianhidroiditol, ciclohexanodiol, ciclohexanometanodiol, dialquilenglicoles y polialquilenglicoles que tienen un peso molecular de 100-4000, tales como, por ejemplo, polietilenglicol, polipropilenglicol y mezclas de los mismos. Preferentemente, el componente diol comprende al menos el 50 % en moles de uno o más dioles seleccionados entre 1,2-etanodiol, 1,3-propanodiol, 1,4-butanodiol. Más preferentemente, el componente de diol comprende o consiste en 1,4-butanodiol.

En lo que respecta a los dioles alifáticos insaturados del componente d2, estos se seleccionan preferentemente entre cis 2-buten-1,4-diol, trans 2-buten-1,4-diol, 2-buten-1,4-diol, cis 2-penten-1,5-diol, trans 2-penten-1,5-diol, 2-pentin-1,5-diol, cis 2-hexen-1,6-diol, trans 2-hexen-1,6-diol, 2-hexin-1,6-diol, cis 3-hexen-1,6-diol, trans 3-hexen-1,6-diol, 3-hexin-1,6-diol.

En el caso de un poliéster alifático, este comprende preferentemente:

e) un componente dicarboxílico que comprende, con respecto al componente dicarboxílico total:

- e1) el 95-100 % en moles de unidades derivadas de al menos un ácido dicarboxílico alifático;
- e2) el 0-5 % en moles de unidades derivadas de al menos un ácido dicarboxílico alifático insaturado;

f) un componente de diol que comprende, con respecto al componente de diol total:

- f1) el 95-100 % en moles de unidades derivadas de al menos un diol alifático saturado;
- f2) el 0-5 % en moles de unidades derivadas de al menos un diol alifático insaturado.

Los ácidos dicarboxílicos alifáticos saturados del componente e1 se seleccionan preferentemente entre ácidos dicarboxílicos saturados C<sub>2</sub>-C<sub>24</sub>, preferentemente C<sub>4</sub>-C<sub>13</sub>, más preferentemente C<sub>4</sub>-C<sub>11</sub>, sus ésteres alquílicos C<sub>1</sub>-C<sub>24</sub>, preferentemente C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>, sus sales y mezclas de los mismos. Preferentemente, los ácidos dicarboxílicos alifáticos saturados se seleccionan entre ácido succínico, ácido 2-etilsuccínico, ácido glutárico, ácido 2-metilglutarico, ácido adípico, ácido pimélico, ácido subérico, ácido azelaico, ácido sebácico, ácido undecanodioico, ácido dodecanodioico, ácido brasílico, ácido hexadecanodioico, ácido octadecanodioico y sus ésteres de alquilo C<sub>1</sub>-C<sub>24</sub>.

Los ácidos dicarboxílicos alifáticos insaturados del componente e2 se seleccionan preferentemente entre ácido itacónico, ácido fumárico, ácido 4-metilen-pimélico, ácido 3,4-bis(metileno)nonandioico, ácido 5-metileno-nonandioico, sus ésteres alquílicos C<sub>1</sub>-C<sub>24</sub>, preferentemente C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>, sus sales y mezclas de los mismos. En una

realización preferida de la presente invención los ácidos dicarboxílicos alifáticos insaturados comprenden mezclas que comprenden al menos el 50 % en moles, preferentemente más del 60 % en moles, más preferentemente más del 65 % en moles, de ácido itacónico y sus ésteres C<sub>1</sub>-C<sub>24</sub>, preferentemente C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>. Más preferentemente, los ácidos dicarboxílicos alifáticos insaturados consisten en ácido itacónico.

5 En lo que respecta a los dioles alifáticos saturados del componente f1, estos se seleccionan preferentemente entre 1,2-etanodiol, 1,2-propanodiol, 1,3-propanodiol, 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, 1,13-tridecanodiol, 1,4-ciclohexanodimetanol, neopentilglicol, 2-metil-1,3-propanodiol, dianhidrosorbitol, dianhidromanitol, dianhidroiditol, 10 ciclohexanodiol, ciclohexanometanol, dialquilenglicoles y polialquilenglicoles que tienen un peso molecular de 100-4000, tales como, por ejemplo, polietilenglicol, polipropilenglicol y mezclas de los mismos. Preferentemente, el componente diol comprende al menos el 50 % en moles de uno o más dioles seleccionados entre 1,2-etanodiol, 1,3-propanodiol, 1,4-butanodiol. Más preferentemente, el componente de diol comprende o consiste en 1,4-butanodiol.

15 En lo que respecta a los dioles alifáticos insaturados del componente f2, estos se seleccionan preferentemente entre cis 2-buten-1,4-diol, trans 2-buten-1,4-diol, 2-butin-1,4-diol, cis 2-penten-1,5-diol, trans 2-penten-1,5-diol, 2-pentin-1,5-diol, cis 2-hexen-1,6-diol, trans 2-hexen-1,6-diol, 2-hexin-1,6-diol, cis 3-hexen-1,6-diol, trans 3-hexen-1,6-diol, 3-hexin-1,6-diol.

20 El peso molecular M<sub>n</sub> de dicho poliéster alifático y/o alifático-aromático en la capa A es preferentemente ≥ 20000, más preferentemente ≥ 40000. En lo que respecta al índice de polidispersidad de los pesos moleculares, M<sub>w</sub>/M<sub>n</sub>, este está preferentemente entre 1,5 y 10, más preferentemente entre 1,6 y 5, y aún más preferentemente entre 1,8 y 2,7.

25 Los pesos moleculares M<sub>n</sub> y M<sub>w</sub> pueden medirse usando Cromatografía de Permeación en Gel (CPG). La determinación puede realizarse con el sistema de cromatografía mantenido a 40 °C, usando un conjunto de dos columnas en serie (diámetros de partículas de 5 μm y 3 μm con porosidad mixta), un detector de índice de refracción, cloroformo como eluyente (flujo 0,5 ml/min) y usando poliestireno como patrón de referencia.

30 El contenido de grupos ácidos terminales de dicho poliéster alifático y/o alifático-aromático en la capa A es preferentemente inferior a 100 meq/kg, preferentemente inferior a 60 meq/kg y aún más preferentemente inferior a 40 meq/kg.

35 El contenido de grupos ácidos terminales puede medirse de la siguiente manera: se colocan 1,5-3 g de poliéster en un matraz de 100 ml junto con 60 ml de cloroformo. Después de que el poliéster se ha disuelto completamente, se añaden 25 ml de 2-propanol, y después 1 ml de agua desionizada inmediatamente antes del análisis. La solución obtenida de este modo se valora contra una solución previamente normalizada de NaOH en etanol. Se usa un indicador adecuado para determinar el punto final de la valoración, tal como, por ejemplo, un electrodo de vidrio para valoraciones ácido-base en disolventes no acuosos. El contenido de grupos ácidos terminales se calcula basándose 40 en el consumo de solución de NaOH en etanol usando la siguiente ecuación:

$$\text{Contenido de grupos ácidos terminales (meq/kg de polímero)} = \frac{[(V_{eq} - V_b) \cdot T] \cdot 1000}{P}$$

en la que:

45  $V_{eq}$  = ml de NaOH en etanol en el punto final de la valoración de la muestra;  
 $V_b$  = ml de solución de NaOH en etanol necesarios para alcanzar un pH de 9,5 en la valoración del blanco;  
 $T$  = concentración de la solución de NaOH en etanol expresada como moles/litro;  
 $P$  = peso de la muestra en gramos.

50 Preferentemente, dicho poliéster alifático y/o alifático-aromático de la capa A tiene una viscosidad inherente de más de 0,3 dl/g (medida usando un viscosímetro Ubbelohde para soluciones de concentración 0,2 g/dl en CHCl<sub>3</sub> a 25 °C), preferentemente entre 0,3 y 2 dl/g, más preferentemente entre 0,4 y 1,1 dl/g.

55 Dicho poliéster alifático y/o alifático-aromático de la capa A es biodegradable. En el significado de la presente invención, por polímero biodegradable se entiende un polímero biodegradable de acuerdo con la norma EN 13432.

60 Dicho poliéster alifático y/o alifático-aromático de la capa A puede sintetizarse de acuerdo con cualquiera de los procesos conocidos en el estado de la técnica. En particular, puede obtenerse ventajosamente usando una reacción de policondensación.

Ventajosamente, el proceso de síntesis puede realizarse en presencia de un catalizador adecuado. A modo de catalizadores adecuados pueden mencionarse, por ejemplo, compuestos organometálicos de estaño, por ejemplo, derivados del ácido estannico, compuestos de titanio, por ejemplo, titanato de ortobutilo, compuestos de aluminio,

por ejemplo, triisopropil aluminio, compuestos de antimonio y cinc y circonio y mezclas de los mismos.

En otra realización de la presente invención, dicho poliéster alifático de la capa A es el poliéster de un hidroxíácido, preferentemente una poli- $\epsilon$ -caprolactona.

En la capa A, dicho poliéster alifático y/o alifático-aromático se mezcla ventajosamente con uno o más componentes. En este caso, la capa A comprende una composición que comprende al menos un poliéster alifático y/o alifático-aromático o un alcohol polivinílico o sus copolímeros y, preferentemente, uno o más polímeros que no son los mismos que dicho poliéster alifático y/o alifático-aromático o dicho alcohol polivinílico o sus copolímeros, de origen sintético o natural, que pueden o no ser biodegradables, y preferentemente uno o más componentes adicionales.

En lo que respecta a los polímeros que no son los mismos que dicho poliéster alifático y/o alifático-aromático o dicho alcohol polivinílico o sus copolímeros de origen sintético o natural, ya sean biodegradables o no, estos se seleccionan ventajosamente entre el grupo que consiste en polihidroxialcanoatos, polímeros de vinilo, poliésteres de diol de diácido distintos de poliéster i., poliamidas, poliuretanos, poliéteres, poliureas, policarbonatos y mezclas de los mismos.

En el caso de los polímeros no biodegradables, están claramente presentes en cantidades tales que no tienen un efecto significativo sobre la biodegradabilidad del producto final.

En una realización preferida, dicha composición de la capa A comprende, además de dicho poliéster alifático y/o alifático-aromático o dicho alcohol polivinílico o sus copolímeros, entre el 1 y el 40 % en peso y más preferentemente entre el 5 y el 30 % en peso con respecto al total de la capa A de al menos un polihidroxialcanoato más preferentemente seleccionado entre el grupo que consiste en poliésteres de ácido láctico, poli- $\epsilon$ -caprolactona, polihidroxibutirato, polihidroxibutirato-valerato, polihidroxibutirato-propanoato, polihidroxibutirato-hexanoato, polihidroxibutirato-decanoato, polihidroxibutirato-dodecanoato, polihidroxibutirato-hexadecanoato, polihidroxibutirato-octadecanoato, poli-3-hidroxibutirato-4-hidroxibutirato. Preferentemente, dicho polihidroxialcanoato comprende al menos el 80 % en peso de uno o más poliésteres de ácido láctico.

En una realización preferida, los poliésteres de ácido láctico se seleccionan entre el grupo que consiste en poli-L-ácido láctico, poli-ácido D-láctico, el complejo estereo de poli-D-L-ácido láctico, copolímeros que comprenden más del 50 % en moles de dichos poliésteres de ácido láctico, o mezclas de los mismos. Se prefieren particularmente poliésteres de ácido láctico que contengan al menos el 95 % en peso de unidades repetitivas que derivan de L-ácido láctico o D-ácido láctico o combinaciones de los mismos, que tengan un peso molecular Mw de más de 50000 y una viscosidad de cizalla de entre 50 y 500 Pa.s, preferentemente 100-300 Pa.s (medida de acuerdo con la norma ASTM D3835 a T = 190 °C, velocidad de cizalla = 1000 s<sup>-1</sup>, D = 1 mm, L/D = 10).

En una realización particularmente preferida de la invención, el poliéster de ácido láctico comprende al menos el 95 % en peso de unidades derivadas de L-ácido láctico, el  $\leq$  5 % de unidades repetitivas que derivan de D-ácido láctico, tiene un punto de fusión dentro del intervalo de 135-180 °C, una temperatura de transición vítrea (Tg) en el intervalo de 55-65 °C y un MFR (medido de acuerdo con la norma ISO 1133-1 a 190 °C y 2,16 kg) en el intervalo de 1-50 g/10 min. Son ejemplos comerciales de poliésteres de ácido láctico que tienen estas propiedades, por ejemplo, los productos Biopolymer 4043D, 3251D y 6202D de la marca comercial Ingeo™.

Entre los polímeros de vinilo, los preferidos son polietileno, polipropileno, sus copolímeros, poli(alcohol vinílico), poli(acetato de vinilo), poli(acetato de etilvinilo) y alcohol polietilenvinílico, poliestireno, polímeros de vinilo clorados y poliacrilatos.

Entre los polímeros de vinilo clorados, los que se pretende incluir en el presente documento, además del poli(cloruro de vinilo) son poli(cloruro de vinilideno), cloruro de polietileno, poli(cloruro de vinilo - acetato de vinilo), poli(cloruro de vinilo - etileno), poli(cloruro de vinilo - propileno), poli(cloruro de vinilo - estireno), poli(cloruro de vinilo - isobutileno) y copolímeros en los que el poli(cloruro de vinilo) representa más del 50 % en moles. Dichos polímeros pueden ser copolímeros aleatorios, de bloque o alternos.

En lo que respecta a las poliamidas en la composición de acuerdo con la presente invención, éstas se seleccionan preferentemente entre el grupo que consiste en poliamida 6 y 6,6, poliamida 9 y 9,9, poliamida 10 y 10,10, poliamida 11 y 11,11, poliamida 12 y 12,12 y sus combinaciones del tipo 6/9, 6/10, 6/11 y 6/12, sus mezclas y copolímeros tanto aleatorios como de bloque.

Preferentemente, los policarbonatos de la composición de acuerdo con la presente invención se seleccionan entre el grupo que consiste en carbonatos de polialquileño, más preferentemente carbonatos de polietileno, carbonatos de polipropileno, carbonatos de polibutileno, sus mezclas y copolímeros aleatorios y de bloque.

Entre los poliéteres, los preferidos son los seleccionados entre el grupo que consiste en polietilenglicoles, polipropilenglicoles, polibutilenglicoles, sus copolímeros y sus mezclas que tienen pesos moleculares de 70000 a 500000.

En lo que respecta a los poliésteres de diol de diácido que no son iguales al poliéster alifático y/o alifático-aromático de la capa A, estos comprenden preferentemente:

5 g) un componente dicarboxílico que comprende, con respecto al componente dicarboxílico total:

- g1) el 20-100 % en moles de unidades derivadas de al menos un ácido dicarboxílico aromático,
- g2) el 0-80 % en moles de unidades derivadas de al menos un ácido dicarboxílico alifático saturado,
- g3) el 0-5 % en moles de unidades derivadas de al menos un ácido dicarboxílico alifático insaturado;

10

h) un componente de diol que comprende, con respecto al componente de diol total:

- h1) el 95-100 % en moles de unidades derivadas de al menos un diol alifático saturado;
- h2) el 0-5 % en moles de unidades derivadas de al menos un diol alifático insaturado.

15

Preferentemente, los ácidos dicarboxílicos aromáticos g1, ácidos dicarboxílicos alifáticos saturados g2, ácidos dicarboxílicos alifáticos insaturados g3, dioles alifáticos saturados h1 y dioles alifáticos insaturados h2 para dichos poliésteres se seleccionan entre aquellos descritos anteriormente para el poliéster alifático-aromático de la capa A de acuerdo con la presente invención.

20

En la composición de la capa A también puede haber presente al menos un agente de reticulación y/o un prolongador de cadena con el fin de mejorar la estabilidad a la hidrólisis. Dicho agente de reticulación y/o prolongador de cadena se seleccionan entre compuestos que tienen dos y/o múltiples grupos funcionales, incluyendo grupos isocianato, peróxido, carbodiimida, isocianurato, oxazolona, epoxi, anhídrido o divinil éter o mezclas de los mismos. Preferentemente, el agente de reticulación y/o prolongador de cadena comprende al menos un compuesto que tiene dos y/o múltiples grupos funcionales, incluyendo grupos isocianato. Más preferentemente, el agente de reticulación y/o prolongador de cadena comprende al menos el 25 % en peso de uno o más compuestos que tienen dos y/o múltiples grupos funcionales, incluyendo grupos isocianato. Se prefieren particularmente mezclas de compuestos que tengan dos y/o múltiples grupos funcionales, incluyendo grupos isocianato, con compuestos que tengan dos y/o múltiples grupos funcionales, incluyendo grupos epoxi, aún más preferentemente que comprendan al menos el 75 % en peso de compuestos que tengan dos y/o múltiples grupos funcionales, incluyendo grupos isocianato.

25

30

Los compuestos que tienen grupos di y multifuncionales, incluyendo grupos isocianato, se seleccionan preferentemente entre p-diisocianato de fenileno, diisocianato de 2,4-tolueno, diisocianato de 2,6-tolueno, 4,4'-difenilmetano-diisocianato, 4-cloro diisocianato de 1,3-fenileno, diisocianato de 1,5-naftaleno, diisocianato de 4,4'-difenileno, diisocianato de 3,3'-dimetil-4,4'-difenilmetano, diisocianato de 3-metil-4,4'-difenilmetano, diisocianato de difeniléter, diisocianato de 2,4-ciclohexano, diisocianato de 2,3-ciclohexano, diisocianato de 1-metil 2,4-ciclohexilo, diisocianato de 1-metil 2,6-ciclohexilo, bis-(isocianato ciclohexil) metano, triisocianato de 2,4,6-tolueno, triisocianato de 2,4,4'-difeniléter, polimetilen-polifenil-poliisocianatos, diisocianato de metilen difenilo, triisocianato de trifenilmetano, 4,4'-diisocianato de 3,3'-ditolileno, 4,4'-metilenbis (isocianato de 2-metil-fenilo), diisocianato de hexametileno, diisocianato de 1,3-ciclohexileno, diisocianato de 1,2-ciclohexileno y sus mezclas. En una realización preferida, el compuesto que contiene grupos isocianato es diisocianato de 4,4'-difenilmetano.

35

40

En lo que respecta a los compuestos que tienen dos y/o múltiples grupos funcionales, incluyendo grupos peróxido, estos se seleccionan preferentemente entre peróxido de benzoílo, peróxido de lauroílo, peróxido de isononanoílo, di-(t-butilperoxiisopropil)benceno, peróxido de t-butilo, peróxido de dicumilo, alfa, alfa-di(t-butilperoxi)diisopropilbenceno, 2,5-dimetil-2,5-di(t-butilperoxi)hexano, peróxido de t-butil cumilo, di-t-butilperóxido, 2,5-dimetil-2,5-di(t-butilperoxi)hex-3-ino, peroxidicarbonato de di(4-t-butilciclohexilo), peroxidicarbonato de dicetilo, peroxidicarbonato de dimiristilo, 3,6,9-trietil-3,6,9-trimetil-1,4,7-triperoxonano, peroxidicarbonato de di(2-etilhexilo) y mezclas de los mismos.

45

50

Los compuestos que tienen dos y/o múltiples grupos funcionales incluyendo grupos carbodiimida que se usan preferentemente en la composición de acuerdo con la presente invención se seleccionan entre poli(ciclooctileno carbodiimida), poli(1,4-dimetilenciclohexileno carbodiimida), poli(ciclohexileno carbodiimida), poli(etileno carbodiimida), poli(butileno carbodiimida), poli(isobutileno carbodiimida), poli(nonileno carbodiimida), poli(dodecileno carbodiimida), poli(neopentileno carbodiimida), poli(1,4-dimetilfenileno carbodiimida), poli(2,2',6,6'-tetraisopropildifenileno carbodiimida) (Stabaxol® D), poli(2,4,6-triisopropil-1,3-fenileno carbodiimida) (Stabaxol® P-100), poli(2,6-diisopropil-1,3-fenileno carbodiimida) (Stabaxol® P), poli(tolil carbodiimida), poli(4,4'-difenilmetano carbodiimida), poli(3,3'-dimetil-4,4'-bifenileno carbodiimida), poli(p-fenileno carbodiimida), poli(m-fenileno carbodiimida), poli(3,3'-dimetil-4,4'-difenilmetano carbodiimida), poli(naftileno carbodiimida), poli(isoforona carbodiimida), poli(cumeno carbodiimida), p-fenileno bis(etilcarbodiimida), 1,6-hexametilen bis(etilcarbodiimida), 1,8-octametilen bis(etilcarbodiimida), 1,10-decametilen bis(etilcarbodiimida), 1,12-dodecametilen bis(etilcarbodiimida) y mezclas de los mismos.

55

60

Son ejemplos de compuestos que tienen dos y múltiples grupos funcionales, incluyendo grupos epoxi, que pueden usarse ventajosamente en la composición de acuerdo con la presente invención, todos los poliepóxidos a partir de aceites epoxidados y/o a partir de estireno-glicidiléter-metilmetacrilato o glicidiléter-metilmetacrilato, incluidos dentro

65

de un intervalo de pesos moleculares entre 1000 y 10000 y que tienen un número de epóxido por molécula dentro del intervalo de 1 a 30 y preferentemente entre 5 y 25, comprendiendo los epóxidos seleccionados en el grupo: dietilenglicol diglicidiléter, polietilenglicol diglicidil éter, glicerol poliglicidiléter, diglicerol poliglicidiléter, 1,2-epoxibutano, poliglicerol poliglicidiléter, diepóxido de isopreno y diepóxidos cicloalifáticos, 1,4-ciclohaxanodimetanol diglicidil éter, glicidil 2-metilfenil éter, glicerol propoxilaotriglicidil éter, 1,4-butanodiol diglicidil éter, sorbitol poliglicidil éter, glicerol diglicidil éter, tetraglicidil éteres de meta-xilendiamina y diglicidil éter o bisfenol A y mezclas de los mismos.

Junto con los compuestos que tienen dos y múltiples grupos funcionales, incluyendo grupos isocianato, peróxido, carbodiimida, isocianurato, oxazolina, epoxi, anhídrido y diviniléter tales como, por ejemplo, los descritos anteriormente, también pueden usarse catalizadores para aumentar la reactividad de los grupos reactivos. En el caso de los poliepóxidos, pueden usarse preferentemente sales de ácidos grasos, aún más preferentemente estearatos de calcio y cinc.

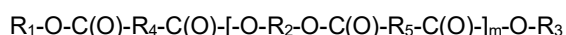
En una realización particularmente preferida de la invención, el agente de reticulación y/o el prolongador de cadena para la composición de la capa A comprende compuestos que incluyen grupos isocianato, preferentemente 4,4-difenilmetano-diisocianato, y/o que contienen grupos carbodiimida, y/o que contienen grupos epoxi, preferentemente del tipo estireno-glicidiletermilmetacrilato.

También puede haber presente una carga en la composición de la capa A, hasta el 10 % en peso con respecto al total de la capa A.

La composición de la capa A de la película de múltiples capas de acuerdo con la presente invención no contiene almidón.

Además de los componentes mencionados anteriormente, la composición de la capa A también comprende preferentemente al menos otro componente seleccionado entre el grupo que consiste en plastificantes, estabilizantes de UV, lubricantes, agentes de nucleación, tensioactivos, agentes antiestáticos, pigmentos, agentes retardantes de la llama, agentes compatibilizantes, lignina, ácidos orgánicos, antioxidantes, agentes antimoho, ceras, coadyuvantes de proceso y componentes poliméricos preferentemente seleccionados entre el grupo que consiste en polímeros de vinilo, poliésteres de diol de diácido que no son los poliésteres alifáticos-aromáticos descritos anteriormente, poliamidas, poliuretanos, poliéteres, poliureas o policarbonatos.

En lo que respecta a los plastificantes, preferentemente hay presentes, en la composición de la capa A de acuerdo con la presente invención, uno o más plastificantes seleccionados entre el grupo que comprende agua, polialcoholes que tienen de 2 a 22 átomos de carbono, ftalatos, tales como, por ejemplo, ftalato de diisononilo, trimelitados, tales como, por ejemplo, ésteres de ácido trimelítico con monoalcoholes C<sub>4</sub>-C<sub>20</sub> preferentemente seleccionados entre el grupo que comprende n-octanol y n-decanol, y ésteres alifáticos que tienen la siguiente estructura:



en la que:

R<sub>1</sub> se selecciona entre uno o más grupos que comprenden H, restos alquilo saturados e insaturados lineales y ramificados del tipo C<sub>1</sub>-C<sub>24</sub>, restos poliol esterificados con ácidos monocarboxílicos C<sub>1</sub>-C<sub>24</sub>;

R<sub>2</sub> comprende grupos -CH<sub>2</sub>-C(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>-CH<sub>2</sub>- y alquilenos C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>, y comprende al menos el 50 % en moles de dichos grupos -CH<sub>2</sub>-C(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>-CH<sub>2</sub>-;

R<sub>3</sub> se selecciona entre uno o más grupos que comprenden H, restos alquilo saturados e insaturados lineales y ramificados del tipo C<sub>1</sub>-C<sub>24</sub>, restos poliol esterificados con ácidos monocarboxílicos C<sub>1</sub>-C<sub>24</sub>;

R<sub>4</sub> y R<sub>5</sub> son iguales o diferentes, comprenden uno o más alquilenos C<sub>2</sub>-C<sub>22</sub>, preferentemente C<sub>2</sub>-C<sub>11</sub>, más preferentemente C<sub>4</sub>-C<sub>9</sub>, y comprenden al menos el 50 % en moles de alquilenos C<sub>7</sub>.

m es un número de entre 1 y 20, preferentemente 2-10, más preferentemente 3-7. Preferentemente, en dichos ésteres al menos uno de los grupos R<sub>1</sub> y/o R<sub>3</sub> comprende, preferentemente en cantidades ≥ 10 % en moles, más preferentemente ≥ 20 %, aún más preferentemente ≥ 25 % en moles con respecto a la cantidad total de grupos

R<sub>1</sub> y/o R<sub>3</sub>, restos poliol esterificados con al menos un ácido monocarboxílico C<sub>1</sub>-C<sub>24</sub> seleccionado entre el grupo que consiste en ácido esteárico, ácido palmítico, ácido 9-cetosteárico, ácido 10-cetosteárico y mezclas de los mismos. Se describen ejemplos de ésteres alifáticos de este tipo en la Solicitud de Patente Italiana MI2014A000030 y en las Solicitudes PCT PCT/EP2015/050336, PCT/EP2015/050338.

Cuando están presentes en la capa A, los plastificantes seleccionados están preferentemente presentes en hasta el 10 % en peso con respecto al peso total de la composición de la propia capa A.

Los lubricantes se seleccionan preferentemente entre ésteres y sales de metal de ácidos grasos tales como, por ejemplo, estearato de cinc, estearato de calcio, estearato de aluminio y estearato de acetilo. Preferentemente, la composición de la capa A de acuerdo con la presente invención comprende hasta el 1 % en peso de lubricantes, más preferentemente hasta el 0,5 % en peso con respecto al peso total de la composición de la capa A.



Los ejemplos de agentes nucleantes incluyen la sal de sodio de sacarina, silicato de calcio, benzoato de sodio, titanato de calcio, nitruro de boro, polipropileno isotáctico o PLA de bajo peso molecular. Estos aditivos se añaden preferentemente en cantidades de hasta el 10 % en peso y más preferentemente entre el 2 y el 6 % en peso con respecto al peso total de la composición. También pueden añadirse pigmentos si fuera necesario, por ejemplo, dióxido de titanio, arcillas, ftalocianina de cobre, dióxido de titanio, silicatos, óxido e hidróxidos de hierro, negro de carbono y óxido de magnesio. Estos aditivos se añaden preferentemente hasta el 10 % en peso.

En una realización preferida, la capa A de una película de múltiples capas de acuerdo con la presente invención comprende, con respecto a la suma de los componentes i.-v.:

- i) el 30-70 % en peso de al menos un poliéster alifático-aromático;
- ii) el 20-60 % en peso de al menos un poliéster alifático;
- iii) el 1-20 % en peso de al menos un polihidroxialcanoato;
- iv) el 0-5 % en peso, preferentemente el 0-0,5 %, de al menos un agente de reticulación y/o un prolongador de cadena que comprende al menos un compuesto que tiene dos y/o múltiples grupos funcionales, incluyendo grupos isocianato, peróxido, carbodiimida, isocianurato, oxazolina, epoxi, anhídrido o divinil éter y mezclas de los mismos;
- v) el 0-10 % en peso, preferentemente el 0-5 %, de al menos una carga.

En una realización preferida, la capa A de una película de múltiples capas de acuerdo con la presente invención comprende, con respecto a la suma de los componentes i.-v.:

- i) el 60-100 % en peso de al menos un poliéster alifático-aromático;
- ii) el 0-20 % en peso de al menos un poliéster alifático;
- iii) el 0-40 % en peso de al menos un polihidroxialcanoato;
- iv) el 0-5 % en peso, preferentemente el 0-0,5 %, de al menos un agente de reticulación y/o un prolongador de cadena que comprende al menos un compuesto que tiene dos y/o múltiples grupos funcionales, incluyendo grupos isocianato, peróxido, carbodiimida, isocianurato, oxazolina, epoxi, anhídrido o divinil éter y mezclas de los mismos;
- v) el 0-10 % en peso, preferentemente el 0-5 %, de al menos una carga.

En una realización preferida, la capa A de una película de múltiples capas de acuerdo con la presente invención comprende, con respecto a la suma de los componentes i.-v.:

- i) el 0-20 % en peso de al menos un poliéster alifático-aromático;
- ii) el 60-100 % en peso de al menos un poliéster alifático;
- iii) el 0-40 % en peso de al menos un polihidroxialcanoato;
- iv) el 0-5 % en peso, preferentemente el 0-0,5 %, de al menos un agente de reticulación y/o un prolongador de cadena que comprende al menos un compuesto que tiene dos y/o múltiples grupos funcionales, incluyendo grupos isocianato, peróxido, carbodiimida, isocianurato, oxazolina, epoxi, anhídrido o divinil éter y mezclas de los mismos;
- v) el 0-10 % en peso, preferentemente el 0-5 %, de al menos una carga.

#### CAPA B

En lo que respecta a la capa B, ésta comprende:

- i) el 30-95 % en peso, preferentemente el 50-85 % en peso, con respecto a la suma de los componentes i.-v., de al menos un poliéster que comprende:

a) un componente dicarboxílico que comprende, con respecto al total para el componente dicarboxílico:

- a1) el 35-70 % en moles, preferentemente el 40-60 % en moles, más preferentemente el 45-60 % en moles, de unidades derivadas de al menos un ácido dicarboxílico aromático;
- a2) el 70-35 % en moles, preferentemente el 60-40 % en moles, , más preferentemente el 55-40 % en moles, de unidades derivadas de al menos un ácido dicarboxílico alifático saturado;
- a3) el 0-5 % en moles de unidades derivadas de al menos un ácido dicarboxílico alifático insaturado;

b) un componente de diol que comprende, con respecto al total para el componente de diol:

- b1) el 95-100 % en moles de unidades derivadas de al menos un diol alifático saturado;
- b2) el 0-5 % en moles de unidades derivadas de al menos un diol alifático insaturado;

- ii) el 0,1-50 % en peso, preferentemente el 5-40 % en peso, con respecto a la suma de los componentes i.-v., de al menos un polímero de origen natural,

- iii) el 1-40 % en peso, preferentemente el 2-30 % en peso, con respecto a la suma de los componentes i.-v., de al menos un polihidroxialcanoato;
- iv) el 0-15 % en peso, con respecto a la suma de los componentes i.-v., de al menos una carga inorgánica;
- v) el 0-5 % en peso, preferentemente el 0-0,5 % en peso, con respecto a la suma de los componentes i.-v., de al menos un agente de reticulación y/o prolongador de cadena que comprende al menos un compuesto que tiene dos y/o múltiples grupos funcionales, incluyendo grupos isocianato, peróxido, carbodiimida, isocianurato, oxazolina, epóxido, anhídrido o divinil éter y mezclas de los mismos.

Los ácidos dicarboxílicos aromáticos del componente a1 de poliéster i. se seleccionan preferentemente entre ácidos dicarboxílicos aromáticos del tipo del ácido ftálico, preferentemente ácido tereftálico o ácido isoftálico, más preferentemente ácido tereftálico, y compuestos aromáticos dicarboxílicos heterocíclicos, preferentemente ácido 2,5-furanodicarboxílico, ácido 2,4-furanodicarboxílico, ácido 2,3-furanodicarboxílico, ácido 3,4-furanodicarboxílico, más preferentemente ácido 2,5-furanodicarboxílico, sus ésteres, sales y mezclas. En una realización preferida, dichos ácidos dicarboxílicos aromáticos comprenden:

- del 1 al 99 % en moles, preferentemente del 5 al 95 % y más preferentemente del 10 al 80 %, de ácido tereftálico, sus ésteres o sales;
- del 99 al 1 % en moles, preferentemente del 95 al 5 % y más preferentemente del 90 al 20 %, de ácido 2,5-furanodicarboxílico, sus ésteres o sales.

Los ácidos dicarboxílicos alifáticos saturados del componente a2 de poliéster i. se seleccionan preferentemente entre ácidos dicarboxílicos saturados C<sub>2</sub>-C<sub>24</sub>, preferentemente C<sub>4</sub>-C<sub>13</sub>, más preferentemente C<sub>4</sub>-C<sub>11</sub>, sus ésteres alquílicos C<sub>1</sub>-C<sub>24</sub>, preferentemente C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>, sus sales y mezclas de los mismos. Preferentemente, los ácidos dicarboxílicos alifáticos saturados se seleccionan entre ácido succínico, ácido 2-etilsuccínico, ácido glutárico, ácido 2-metilglutárico, ácido adipico, ácido pimélico, ácido subérico, ácido azelaico, ácido sebáico, ácido undecanodioico, ácido dodecanodioico, ácido bráico, ácido hexadecanodioico, ácido octadecanodioico y sus ésteres de alquilo C<sub>1</sub>-C<sub>24</sub>. En una realización preferida de la presente invención el ácido dicarboxílico alifático saturado comprende mezclas que comprenden al menos el 50 % en moles, preferentemente más del 60 % en moles, más preferentemente más del 65 % en moles, de ácido succínico, ácido adipico, ácido azelaico, ácido sebáico, ácido bráico, sus ésteres C<sub>1</sub>-C<sub>24</sub>, preferentemente C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>, y mezclas de los mismos. En una realización particularmente preferida dichas mezclas comprenden o consisten en ácido adipico y ácido azelaico y contienen ácido azelaico en una cantidad de entre el 5 y el 40 % en moles, más preferentemente de entre el 10 y el 35 % en moles de ácido azelaico con respecto a la suma de ácido adipico y ácido azelaico.

Los ácidos dicarboxílicos alifáticos insaturados del componente a3 de poliéster i. se seleccionan preferentemente entre ácido itacónico, ácido fumárico, ácido 4-metilen-pimélico, ácido 3,4-bis(metileno)nonandioico, ácido 5-metilenonandioico, sus ésteres alquílicos C<sub>1</sub>-C<sub>24</sub>, preferentemente C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>, sus sales y mezclas de los mismos. En una realización preferida de la presente invención los ácidos dicarboxílicos alifáticos insaturados comprenden mezclas que comprenden al menos el 50 % en moles, preferentemente más del 60 % en moles, más preferentemente más del 65 % en moles, de ácido itacónico y sus ésteres C<sub>1</sub>-C<sub>24</sub>, preferentemente C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>. Más preferentemente, el ácido dicarboxílico alifático insaturado comprende ácido itacónico.

En lo que respecta a los dioles alifáticos saturados del componente b1 de poliéster i., estos se seleccionan preferentemente entre 1,2-etanodiol, 1,2-propanodiol, 1,3-propanodiol, 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, 1,13-tridecanodiol, 1,4-ciclohexanodimetanol, neopentilglicol, 2-metil-1,3-propanodiol, dianhidrosorbitol, dianhidromanitol, dianhidroiditol, ciclohexanodiol, ciclohexanometanol, dialquilenglicoles y polialquilenglicoles que tienen un peso molecular de 100-4000, tales como, por ejemplo, polietilenglicol, polipropilenglicol y mezclas de los mismos. Preferentemente, el componente diol comprende al menos el 50 % en moles de uno o más dioles seleccionados entre 1,2-etanodiol, 1,3-propanodiol, 1,4-butanodiol. Más preferentemente, el componente de diol comprende o consiste en 1,4-butanodiol.

En lo que respecta a los dioles alifáticos insaturados del componente b2 de poliéster i., estos se seleccionan preferentemente entre cis 2-buten-1,4-diol, trans 2-buten-1,4-diol, 2-buten-1,4-diol, cis 2-pent 1,5 diol, trans 2-penten-1,5-diol, 2-pentin-1,5-diol, cis 2-hexen-1,6-diol, trans 2-hexen-1,6-diol, 2-hexin-1,6-diol, cis 3-hexen-1,6-diol, trans 3-hexen-1,6-diol, 3-hexin-1,6-diol.

El peso molecular M<sub>n</sub> del poliéster i. en la capa B es preferentemente  $\geq 20000$ , más preferentemente  $\geq 40000$ . En lo que respecta al índice de polidispersidad de los pesos moleculares, M<sub>w</sub>/M<sub>n</sub>, este está preferentemente entre 1,5 y 10, más preferentemente entre 1,6 y 5, y aún más preferentemente entre 1,8 y 2,7.

Los pesos moleculares M<sub>n</sub> y M<sub>w</sub> pueden medirse usando Cromatografía de Permeación en Gel (CPG). La determinación puede realizarse con el sistema de cromatografía mantenido a 40 °C, usando un conjunto de dos columnas en serie (diámetros de partículas de 5 µm y 3 µm con porosidad mixta), un detector de índice de refracción, cloroformo como eluyente (flujo 0,5 ml/min) y usando poliestireno como patrón de referencia.

El contenido de grupos ácidos terminales del poliéster i. en la capa B es preferentemente inferior a 100 meq/kg, preferentemente inferior a 60 meq/kg, y aún más preferentemente inferior a 40 meq/kg.

5 El contenido de grupos ácidos terminales puede medirse usando el método descrito para la capa A de poliéster alifático-aromático.

10 Preferentemente el poliéster i. en la capa B tiene una viscosidad inherente (medida usando un viscosímetro Ubbelohde para soluciones de concentración 0,2 g/dl en  $\text{CHCl}_3$  a 25 °C) de más de 0,3 dl/g, preferentemente entre 0,3 y 2 dl/g, más preferentemente entre 0,4 y 1,1 dl/g.

15 Preferentemente, el poliéster i. en la capa B es biodegradable. Para el significado de la presente invención, por polímero biodegradable se entiende un polímero que es biodegradable de acuerdo con la norma EN 13432.

20 Dicho poliéster i. de la capa B puede sintetizarse de acuerdo con cualquiera de los procesos conocidos en el estado de la técnica. En particular, puede obtenerse ventajosamente a través de una reacción de policondensación.

25 Ventajosamente, el proceso de síntesis puede realizarse en presencia de un catalizador adecuado. A modo de catalizadores adecuados pueden mencionarse, por ejemplo, compuestos organometálicos de estaño, por ejemplo, derivados del ácido estannico, compuestos de titanio, por ejemplo, titanato de ortobutilo, compuestos de aluminio, por ejemplo, triisopropil aluminio, compuestos de antimonio y cinc y circonio y mezclas de los mismos.

30 La composición de la capa B comprende el 0,1-50 % en peso, preferentemente el 5-40 % en peso, con respecto a la suma de los componentes i.-v., de al menos un polímero de origen natural. En la composición de la capa B, el polímero de origen natural (componente ii.) se selecciona ventajosamente entre almidón, quitina, quitosano, alginatos, proteínas tales como gluten, zeína, caseína, colágeno, gelatina, cauchos naturales, ácido rosínico y sus derivados. Preferentemente, en la composición de la capa B el polímero de origen natural es almidón.

35 Por el término almidón se entiende todos los tipos de almidón, es decir, harina, almidón nativo, almidón hidrolizado, almidón desestructurado, almidón gelatinizado, almidón plastificado, almidón termoplástico, biocarga que comprende almidón complejado o mezclas de los mismos. Son particularmente adecuados de acuerdo con la invención almidones tales como los de patata, maíz, tapioca y guisantes.

40 Los almidones que se pueden desestructurar fácilmente y que tienen pesos moleculares iniciales altos, tales como, por ejemplo, el almidón de patata o de maíz, han demostrado ser particularmente ventajosos.

45 El almidón puede estar presente tal cual o en una forma modificada químicamente, tal como, por ejemplo, en forma de ésteres de almidón con un grado de sustitución de entre 0,2 y 2,5, hidroxipropilato de almidón o almidón modificado con cadenas grasas.

50 En el caso del almidón desestructurado se hace referencia en el presente documento al contenido incluido en las patentes EP-0 118 240 y EP-0 327 505, es decir, almidón procesado de manera que esté sustancialmente exento de las denominadas "cruces de Malta" en un microscopio óptico con luz polarizada y de los denominados "fantasmas" en un microscopio óptico con contraste de fases. Ventajosamente, el almidón se desestructura por medio de un proceso de extrusión a temperaturas de entre 110 y 250 °C, preferentemente 130-180 °C, preferentemente a presiones entre 0,1 y 7 MPa, preferentemente 0,3-6 MPa, proporcionando preferentemente una energía específica de más de 0,1 kWh/kg durante dicha extrusión.

55 La desestructuración del almidón tiene lugar, preferentemente, en presencia del 1-40 % en peso con respecto al peso del almidón de uno o más plastificantes seleccionados entre agua y polioles que tienen de 2 a 22 átomos de carbono. En lo que respecta al agua, ésta también puede ser la que está naturalmente presente en el almidón. Entre los polioles, los preferidos son los polioles que tienen de 1 a 20 grupos hidroxilo que contienen de 2 a 6 átomos de carbono, sus éteres, tioéteres y ésteres orgánicos e inorgánicos. Son ejemplos de polioles glicerina, diglicerol, poliglicerol, pentaeritritol, poliglicerol etoxilato, etilenglicol, polietilenglicol, 1,2-propanodiol, 1,3-propanodiol, 1,4-butanodiol, neopentilglicol, monoacetato de sorbitol, diacetato de sorbitol, monoetoxilato de sorbitol, dietoxilato de sorbitol y mezclas de los mismos. En una realización preferida, el almidón se desestructura en presencia de glicerol o una mezcla de plastificantes que comprende glicerol, más preferentemente que contiene entre el 2 y el 90 % en peso de glicerol. Preferentemente, el almidón desestructurado y reticulado de acuerdo con la presente invención comprende entre 1 y 40 % en peso de plastificantes con respecto al peso del almidón.

60 Cuando está presente, el almidón en la composición de la capa B está preferentemente en forma de partículas que tienen una sección transversal circular o elíptica o, en cualquier caso, una sección transversal similar a una elipse que tiene un diámetro aritmético medio inferior a 1 micrómetro y, más preferentemente, de menos de 0,5  $\mu\text{m}$  de diámetro medio, medido usando el eje principal de la partícula.

65 La composición de la capa B comprende el 1-40 % en peso, preferentemente el 2-30 % en peso, con respecto a la suma de los componentes i.-v., de al menos un polihidroxicanoato (componente iii.), preferentemente seleccionado

entre el grupo que consiste en poliésteres de ácido láctico, poli-ε-caprolactona, polihidroxibutirato, polihidroxibutirato-valerato, polihidroxibutirato-propanoato, polihidroxibutirato-hexanoato, polihidroxibutirato-decanoato, polihidroxibutirato-dodecanoato, polihidroxibutirato-hexadecanoato, polihidroxibutirato-octadecanoato, poli-3-hidroxibutirato-4-hidroxibutirato. Preferentemente, dicho polihidroxialcanoato comprende al menos el 80 % en peso de uno o más poliésteres de ácido láctico.

En una realización preferida, los poliésteres de ácido láctico se seleccionan entre el grupo que comprende poli-L-ácido láctico, poli-ácido D-láctico, el complejo estereo de poli-D-L-ácido láctico, copolímeros que comprenden más del 50 % en moles de dichos poliésteres de ácido láctico, o mezclas de los mismos. Se prefieren particularmente poliésteres de ácido láctico que contengan al menos el 95 % en peso de unidades repetitivas que derivan de L-ácido láctico o D-ácido láctico o combinaciones de los mismos, que tengan un peso molecular Mw de más de 50000 y una viscosidad de cizalla de entre 50 y 500 Pa.s, preferentemente 100-300 Pa.s (medida de acuerdo con la norma ASTM D3835 a T = 190 °C, velocidad de cizalla = 1000 s<sup>-1</sup>, D = 1 mm, L/D = 10).

En una realización particularmente preferida de la invención, el poliéster de ácido láctico comprende al menos el 95 % en peso de unidades derivadas de L-ácido láctico, el ≤ 5 % de unidades repetitivas que derivan de D-ácido láctico, tiene un punto de fusión dentro del intervalo de 135-180 °C, una temperatura de transición vítrea (Tg) en el intervalo de 55-65 °C y un MFR (medido de acuerdo con la norma ISO 1133-1 a 190 °C y 2,16 kg) en el intervalo de 1-50 g/10 min. Son ejemplos comerciales de poliésteres de ácido láctico que tienen estas propiedades, por ejemplo, los productos Biopolymer 4043D, 3251D y 6202D de la marca comercial Ingeo™.

En la composición de la capa B hay presente un 0 - 15 % en peso, con respecto a la suma de los componentes i.-v., de al menos una carga inorgánica (componente iv.), que se selecciona preferentemente entre caolín, baritas, arcilla, talco, carbonatos de hierro y plomo, calcio y magnesio, hidróxido de aluminio, tierra de diatomeas, sulfato de aluminio, sulfato de bario, sílice, mica, dióxido de titanio, wollastonita.

En una realización preferida de la presente invención, la carga inorgánica en la composición de la capa B comprende talco, carbonato de calcio o mezclas de los mismos, presenten en forma de partículas que tienen un diámetro aritmético medio de menos de 10 micrómetros, medido con respecto al eje principal de las partículas. De hecho, se ha descubierto que las cargas del tipo mencionado anteriormente que no se caracterizan por dicho diámetro aritmético medio demuestran las características de desintegrabilidad significativamente menos durante el compostaje industrial de los objetos que las contienen.

En la composición de la capa B también hay presente del 0 al 5 % en peso, preferentemente el 0-0,5 % en peso, con respecto a la suma de los componentes i.-v., de al menos un agente de reticulación y/o prolongador de cadena (componente v.) con el fin de mejorar la estabilidad a la hidrólisis.

Dicho agente de reticulación y/o prolongador de cadena se seleccionan entre compuestos que tienen dos y/o múltiples grupos funcionales, incluyendo grupos isocianato, peróxido, carbodiimida, isocianurato, oxazolina, epoxi, anhídrido o divinil éter o mezclas de los mismos. Preferentemente, el agente de reticulación y/o prolongador de cadena comprende al menos un compuesto que tiene dos y/o múltiples grupos funcionales, incluyendo grupos isocianato. Más preferentemente, el agente de reticulación y/o prolongador de cadena comprende al menos el 25 % en peso de uno o más compuestos que tienen dos y/o múltiples grupos funcionales, incluyendo grupos isocianato. Se prefieren particularmente mezclas de compuestos que tengan dos y/o múltiples grupos funcionales, incluyendo grupos isocianato, con compuestos que tengan dos y/o múltiples grupos funcionales, incluyendo grupos epoxi, aún más preferentemente que comprendan al menos el 75 % en peso de compuestos que tengan dos y/o múltiples grupos funcionales, incluyendo grupos isocianato.

Los compuestos que tienen grupos di y multifuncionales, incluyendo grupos isocianato, se seleccionan preferentemente entre p-diisocianato de fenileno, diisocianato de 2,4-tolueno, diisocianato de 2,6-tolueno, 4,4-difenilmetano-diisocianato, 4-cloro diisocianato de 1,3-fenileno, diisocianato de 1,5-naftaleno, diisocianato de 4,4-difenileno, diisocianato de 3,3'-dimetil-4,4-difenilmetano, diisocianato de 3-metil-4,4'-difenilmetano, diisocianato de difeniléter, diisocianato de 2,4-ciclohexano, diisocianato de 2,3-ciclohexano, diisocianato de 1-metil 2,4-ciclohexilo, diisocianato de 1-metil 2,6-ciclohexilo, bis-(isocianato ciclohexil) metano, triisocianato de 2,4,6-tolueno, triisocianato de 2,4,4-difeniléter, polimetilen-polifenil-poliisocianatos, diisocianato de metilen difenilo, triisocianato de trifenilmetano, 4,4-diisocianato de 3,3'-ditolileno, 4,4'-metilenbis (isocianato de 2-metil-fenilo), diisocianato de hexametileno, diisocianato de 1,3-ciclohexileno, diisocianato de 1,2-ciclohexileno y sus mezclas. En una realización preferida, el compuesto que contiene grupos isocianato es diisocianato de 4,4-difenilmetano.

En lo que respecta a los compuestos que tienen dos y/o múltiples grupos funcionales, incluyendo grupos peróxido, estos se seleccionan preferentemente entre peróxido de benzoílo, peróxido de lauroílo, peróxido de isononanoílo, di-(t-butilperoxiisopropil)benceno, peróxido de t-butilo, peróxido de dicumilo, alfa, alfa-di(t-butilperoxi)diisopropilbenceno, 2,5-dimetil-2,5-di(t-butilperoxi)hexano, peróxido de t-butil cumilo, di-t-butilperóxido, 2,5-dimetil-2,5-di(t-butilperoxi)hex-3-ino, peroxidicarbonato de di(4-t-butilciclohexilo), peroxidicarbonato de dicetilo, peroxidicarbonato de dimiristilo, 3,6,9-trietil-3,6,9-trimetil-1,4,7-triperoxonano, peroxidicarbonato de di(2-etilhexilo) y mezclas de los mismos.

Los compuestos que tienen dos y/o múltiples grupos funcionales incluyendo grupos carbodiimida que se usan preferentemente en la composición de acuerdo con la presente invención se seleccionan entre poli(ciclooctileno carbodiimida), poli(1,4-dimetilenciclohexileno carbodiimida), poli(ciclohexileno carbodiimida), poli(etileno carbodiimida), poli(butileno carbodiimida), poli(isobutileno carbodiimida), poli(nonileno carbodiimida), poli(dodecileno carbodiimida), poli(neopentileno carbodiimida), poli(1,4-dimetilfenileno carbodiimida), poli(2,2',6,6'-tetraisopropildifenileno carbodiimida) (Stabaxol® D), poli(2,4,6-triisopropil-1,3-fenileno carbodiimida) (Stabaxol® P-100), poli(2,6-diisopropil-1,3-fenileno carbodiimida) (Stabaxol® P), poli(tolil carbodiimida), poli(4,4'-difenilmetano carbodiimida), poli(3,3'-dimetil-4,4'-bifenileno carbodiimida), poli(p-fenileno carbodiimida), poli(m-fenileno carbodiimida), poli(3,3'-dimetil-4,4'-difenilmetano carbodiimida), poli(naftileno carbodiimida), poli(isoforona carbodiimida), poli(cumeno carbodiimida), p-fenileno bis(etilcarbodiimida), 1,6-hexametileno bis(etilcarbodiimida), 1,8-octametileno bis(etilcarbodiimida), 1,10-decametileno bis(etilcarbodiimida), 1,12-dodecametileno bis(etilcarbodiimida) y mezclas de los mismos.

Son ejemplos de compuestos que tienen dos y múltiples grupos funcionales, incluyendo grupos epoxi, que pueden usarse ventajosamente en la composición de acuerdo con la presente invención, todos los poliepóxidos a partir de aceites epoxidados y/o a partir de estireno-glicidiléter-metilmetacrilato o glicidiléter-metilmetacrilato, incluidos dentro de un intervalo de pesos moleculares entre 1000 y 10000 y que tienen un número de epóxido por molécula dentro del intervalo de 1 a 30 y preferentemente entre 5 y 25, comprendiendo los epóxidos seleccionados en el grupo: dietilenglicol diglicidiléter, polietilenglicol diglicidil éter, glicerol poliglicidiléter, diglicerol poliglicidiléter, 1,2-epoxibutano, poliglicerol poliglicidiléter, diepóxido de isopreno y diepóxidos cicloalifáticos, 1,4-ciclohaxanodimetanol diglicidil éter, glicidil 2-metilfenil éter, glicerol propoxilaotriglicidil éter, 1,4-butanodiol diglicidil éter, sorbitol poliglicidil éter, glicerol diglicidil éter, tetraglicidil éteres de meta-xilendiamina y diglicidil éter o bisfenol A y mezclas de los mismos.

Junto con los compuestos que tienen dos y múltiples grupos funcionales, incluyendo grupos isocianato, peróxido, carbodiimida, isocianurato, oxazolona, epoxi, anhídrido y diviniléter tales como, por ejemplo, los descritos anteriormente, también pueden usarse catalizadores para aumentar la reactividad de los grupos reactivos. En el caso de los poliepóxidos, pueden usarse preferentemente sales de ácidos grasos, aún más preferentemente estearatos de calcio y cinc.

En una realización particularmente preferida de la invención, el agente de reticulación y/o el prolongador de cadena para la composición de la capa B comprende compuestos que incluyen grupos isocianato, preferentemente 4,4'-difenilmetano-diisocianato, y/o que contienen grupos carbodiimida, y/o que contienen grupos epoxi, preferentemente del tipo estireno-glicidilétermetilmetacrilato.

En la capa B, además del componente i.-v. mencionado anteriormente, también puede haber presentes, ventajosamente, uno o más componentes adicionales. En este caso, la capa B comprende una composición que comprende los componentes i.-v. y, preferentemente, uno o más polímeros que no son iguales a los componentes i., ii. y iii., de origen sintético o natural, que pueden o no ser biodegradable, junto con posiblemente uno o más componentes.

En lo que respecta a los polímeros que no son iguales que los componentes i., ii. y iii., de origen sintético o natural, que pueden o no ser biodegradables, estos se seleccionan ventajosamente entre el grupo que comprende polímeros de vinilo, poliésteres de diol de diácido que no iguales que el poliéster i., poliamidas, poliuretanos, poliéteres, poliureas, policarbonatos y mezclas de los mismos.

Entre los polímeros de vinilo, los preferidos son polietileno, polipropileno, sus copolímeros, poli(alcohol vinílico), poli(acetato de vinilo), poli(acetato de etilvinilo) y alcohol polietilenvinílico, poliestireno, polímeros de vinilo clorados, poliacrílatos.

Entre los polímeros de vinilo clorados, los que se pretende incluir en el presente documento, además del poli(cloruro de vinilo) son poli(cloruro de vinilideno), cloruro de polietileno, poli(cloruro de vinilo-acetato de vinilo), poli(cloruro de vinilo-etileno), poli(cloruro de vinilo-propileno), poli(cloruro de vinilo-estireno), poli(cloruro de vinilo-isobutileno) y copolímeros en los que el poli(cloruro de vinilo) representa más del 50 % en moles. Dichos polímeros pueden ser copolímeros aleatorios, de bloque o alternos.

En lo que respecta a las poliamidas en la composición de acuerdo con la presente invención, éstas se seleccionan preferentemente entre el grupo que comprende poliamida 6 y 6,6, poliamida 9 y 9,9, poliamida 10 y 10,10, poliamida 11 y 11,11, poliamida 12 y 12,12 y sus combinaciones del tipo 6/9, 6/10, 6/11 y 6/12, sus mezclas y copolímeros tanto aleatorios como de bloque.

Preferentemente, los policarbonatos de la composición de acuerdo con la presente invención se seleccionan entre el grupo que comprende carbonatos de polialquileño, más preferentemente carbonatos de polietileno, carbonatos de polipropileno, carbonatos de polibutileno, sus mezclas y copolímeros aleatorios y de bloque.

Entre los poliéteres, los preferidos son los seleccionados entre el grupo que consiste en polietilenglicoles,

polipropilenglicoles, polibutilenglicoles, sus copolímeros y sus mezclas que tienen pesos moleculares de 70000 a 500000.

En lo que respecta a los poliésteres de diol de diácido que no son iguales al poliéster i. de la capa B, estos comprenden preferentemente:

i) un componente dicarboxílico que comprende, con respecto al componente dicarboxílico total:

- i1) el 20-100 % en moles de unidades derivadas de al menos un ácido dicarboxílico aromático,
- i2) el 0-80 % en moles de unidades derivadas de al menos un ácido dicarboxílico alifático saturado,
- i3) el 0-5 % en moles de unidades derivadas de al menos un ácido dicarboxílico alifático insaturado;

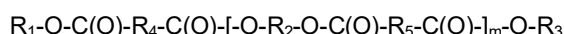
j) un componente de diol que comprende, con respecto al componente de diol total:

- j1) el 95-100 % en moles de unidades derivadas de al menos un diol alifático saturado;
- j2) el 0-5 % en moles de unidades derivadas de al menos un diol alifático insaturado.

Preferentemente, los ácidos dicarboxílicos aromáticos i1, ácidos dicarboxílicos alifáticos saturados i2, ácidos dicarboxílicos alifáticos insaturados i3, dioles alifáticos saturados j1 y dioles alifáticos insaturados j2 para dichos poliésteres se seleccionan entre aquellos descritos anteriormente para el poliéster i de la capa B de acuerdo con la presente invención.

Además de los componentes mencionados anteriormente, la composición de la capa B también comprende preferentemente al menos otro componente seleccionado entre el grupo que consiste en plastificantes, estabilizantes de UV, lubricantes, agentes de nucleación, tensioactivos, agentes antiestáticos, pigmentos, agentes retardantes de la llama, agentes compatibilizantes, lignina, ácidos orgánicos, antioxidantes, agentes antimoho, ceras, coadyuvantes de proceso y componentes poliméricos preferentemente seleccionados entre el grupo que consiste en polímeros de vinilo, poliésteres de diol de diácido que no son los poliésteres alifáticos-aromáticos descritos anteriormente, poliamidas, poliuretanos, poliéteres, poliureas o policarbonatos.

En lo que respecta a los plastificantes, preferentemente hay presentes, en la composición de la capa B de acuerdo con la presente invención, además de los plastificantes utilizados preferentemente para la preparación del almidón desestructurado descrito anteriormente, uno o más plastificantes seleccionados entre el grupo que consiste en ftalatos, tales como, por ejemplo, ftalato de diisnonilo, trimelitatos, tales como, por ejemplo, ésteres de ácido trimelítico con monoalcoholes C<sub>4</sub>-C<sub>20</sub> preferentemente seleccionados entre el grupo que consiste en n-octanol y n-decanol, y ésteres alifáticos que tienen la siguiente estructura:



en la que:

R<sub>1</sub> se selecciona entre uno o más grupos que comprenden H, restos alquilo saturados e insaturados lineales y ramificados del tipo C<sub>1</sub>-C<sub>24</sub>, restos poliol esterificados con ácidos monocarboxílicos C<sub>1</sub>-C<sub>24</sub>;

R<sub>2</sub> comprende grupos -CH<sub>2</sub>-C(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>-CH<sub>2</sub>- y alquilenos C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>, y comprende al menos el 50 % en moles de dichos grupos -CH<sub>2</sub>-C(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>-CH<sub>2</sub>-;

R<sub>3</sub> se selecciona entre uno o más grupos que comprenden H, restos alquilo saturados e insaturados lineales y ramificados del tipo C<sub>1</sub>-C<sub>24</sub>, restos poliol esterificados con ácidos monocarboxílicos C<sub>1</sub>-C<sub>24</sub>;

R<sub>4</sub> y R<sub>5</sub> son iguales o diferentes, comprenden uno o más alquilenos C<sub>2</sub>-C<sub>22</sub>, preferentemente C<sub>2</sub>-C<sub>11</sub>, más preferentemente C<sub>4</sub>-C<sub>9</sub>, y comprenden al menos el 50 % en moles de alquilenos C<sub>7</sub>.

m es un número de entre 1 y 20, preferentemente 2-10, más preferentemente 3-7. Preferentemente, en dichos ésteres al menos uno de los grupos R<sub>1</sub> y/o R<sub>3</sub> comprende, preferentemente en cantidades ≥ 10 % en moles, más preferentemente ≥ 20 %, aún más preferentemente ≥ 25 % en moles con respecto a la cantidad total de grupos R<sub>1</sub> y/o R<sub>3</sub>, restos poliol esterificados con al menos un ácido monocarboxílico C<sub>1</sub>-C<sub>24</sub> seleccionado entre el grupo que consiste en ácido esteárico, ácido palmítico, ácido 9-cetosteárico, ácido 10-cetosteárico y mezclas de los mismos. Se describen ejemplos de ésteres alifáticos de este tipo en la Solicitud de Patente Italiana MI2014A000030 y en las Solicitudes PCT PCT/EP2015/050336, PCT/EP2015/050338.

Cuando están presentes en la capa B, los plastificantes seleccionados están preferentemente presentes en hasta el 10 % en peso con respecto al peso total de la composición de la propia capa B.

Los lubricantes se seleccionan preferentemente entre ésteres y sales de metal de ácidos grasos tales como, por ejemplo, estearato de cinc, estearato de calcio, estearato de aluminio y estearato de acetilo. Preferentemente, la composición de la capa B de acuerdo con la presente invención comprende hasta el 1 % en peso de lubricantes, más preferentemente hasta el 0,5 % en peso con respecto al peso total de la composición de la capa B.

Los ejemplos de agentes nucleantes incluyen la sal de sodio de sacarina, silicato de calcio, benzoato de sodio,

titanato de calcio, nitrato de boro, polipropileno isotáctico o PLA de bajo peso molecular. Estos aditivos se añaden preferentemente en cantidades de hasta el 10 % en peso y más preferentemente entre el 2 y el 6 % en peso con respecto al peso total de la composición. También pueden añadirse pigmentos si fuera necesario, por ejemplo, dióxido de titanio, arcillas, ftalocianina de cobre, silicatos, óxido e hidróxidos de hierro, negro de carbono y óxido de magnesio. Estos aditivos se añaden preferentemente hasta el 10 % en peso.

Preferentemente, los poliésteres de las capas A y/o B de la película de múltiples capas de acuerdo con la presente invención comprenden al menos el 10 % en moles de ácidos dicarboxílicos aromáticos y/o ácidos dicarboxílicos alifáticos y/o dioles de origen renovable. De acuerdo con la presente invención, los productos que pueden considerarse de origen renovable son los obtenidos a partir de fuentes que, por su propia naturaleza, son regenerables e inagotables en la escala temporal de la vida humana y cuyo uso, por consiguiente, no afecta negativamente a la disponibilidad de los recursos naturales para las generaciones futuras. Son ejemplos de monómeros de origen renovable el ácido sebáico, ácido succínico, ácido 2,5-furanodicarboxílico, ácido azelaico, 1,4-butanodiol.

La película de múltiples capas de acuerdo con la presente invención comprende al menos una capa A y al menos una capa B, caracterizada por una relación mutua A/B/A, en donde la capa A y la capa B son diferentes entre sí. La película de múltiples capas de acuerdo con la presente invención puede comprender ventajosamente una o más capas A y una o más capas B, así como capas adicionales, tales como, por ejemplo, capas de enlace o capas de barrera, o películas metálicas. En la película de múltiples capas de acuerdo con la presente invención, la relación entre la totalidad de las capas A y la totalidad de las capas B está entre 0,05 y 1,2. Preferentemente, en la película de múltiples capas de acuerdo con la presente invención, la relación entre la totalidad de las capas A y la totalidad de las capas B está entre 0,1 y 0,6. La película de múltiples capas de acuerdo con la presente invención con una disposición de las capas del tipo A/B/A tiene un espesor total en el que la suma de los espesores de las capas A es inferior al espesor de las capas B, preferentemente inferior a B/2 y más preferentemente inferior a B/3. La película de múltiples capas de acuerdo con la presente invención tiene ventajosamente un espesor total de menos de 50 micrómetros, más preferentemente inferior a 15 micrómetros, aún más preferentemente inferior a 13 micrómetros.

El espesor de las capas puede medirse ventajosamente usando el microscopio electrónico sobre la superficie de la fractura en nitrógeno líquido.

En el presente documento también se describen capas adicionales, dispuestas en una posición intermedia con respecto a las capas A y B (disposición A/C/B, donde C es una capa adicional) o una posición no intermedia (disposición A/B/C o C/A/B, donde C es una capa adicional).

La película de múltiples capas de acuerdo con la presente invención puede producirse de acuerdo con cualquiera de los procesos conocidos en la técnica, a través de, por ejemplo, un proceso de coextrusión, recubrimiento/esparcimentado o laminación. En una realización preferida, la película de múltiples capas de acuerdo con la presente invención puede obtenerse a través de un proceso de coextrusión, preferentemente asociado a un proceso de formación de película de burbujas.

El equipo y las condiciones de proceso específicas, por ejemplo, para la coextrusión y la formación de películas, para la producción de la película de múltiples capas de acuerdo con la presente invención, dependen de la composición y el número de capas en las que se pretende producir la película de múltiples capas. Gracias a la combinación específica de componentes y capas, la película de múltiples capas de acuerdo con la presente invención tiene la característica de que permite un equilibrio óptimo entre propiedades de biodegradación de nivel alto, propiedades mecánicas, en particular un módulo elástico alto, y propiedades de transparencia óptica apreciables. Esto la hace especialmente adecuada para la producción de una amplia gama de artículos, tales como, por ejemplo, envase de diversos tipos, en particular bolsas para el transporte de mercancías y bolsas para el envasado de alimentos, tales como bolsas para frutas y verduras que comprenden dicha película de múltiples capas.

En lo que respecta a las propiedades ópticas, se prefieren particularmente valores de transmitancia de más del 90 %, más preferentemente más del 91 %, valores de turbidez de menos del 65 %, más preferentemente menos del 55 % y una claridad superior al 20 %, más preferentemente superior al 40 % (medida de acuerdo con la norma ASTM D1003), lo que permite que la película de múltiples capas de acuerdo con la presente invención sea particularmente adecuada para las aplicaciones mencionadas anteriormente.

La película de múltiples capas de acuerdo con la presente invención es biodegradable en condiciones de compostaje doméstico de acuerdo con la norma UNI11355. Preferentemente, dicha película de múltiples capas es biodegradable en condiciones de compostaje doméstico de acuerdo con la norma UNI1135, cuando se caracteriza por un espesor total de menos de 15 micrómetros, preferentemente menos de 13 micrómetros.

La película de múltiples capas de acuerdo con la presente invención encuentra aplicación en la producción de películas de cubrición del suelo gracias a su alto grado de desintegración a temperaturas bajas, acompañado de propiedades mecánicas fuertes, siendo por tanto capaces de realizar eficazmente su acción de protección del suelo, por ejemplo, impidiendo el crecimiento de malas hierbas y reduciendo el consumo de agua, sin necesidad de

retirarlas después de su uso.

Preferentemente, La desintegración de dichas películas de cubrición del suelo que comprenden la composición de acuerdo con la presente invención tiene lugar en el suelo, a temperaturas de  $28\text{ }^{\circ}\text{C} \pm 2$ , y el grado de desintegración podría determinarse visiblemente a través de observaciones periódicas. Preferentemente, la película de múltiples capas de acuerdo con la presente invención ya no será visible después de 180 días.

La presente invención se ilustrará ahora sobre la base de una serie de ejemplos que no pretenden ser limitantes de la misma.

#### EJEMPLO 1 - película de dos capas que tiene una disposición A/B (no de acuerdo con la invención)

Preparación de la Composición A (capa A): Se alimentaron 29,7 kg/h de poli(adipato-co-tereftalato de butileno), que tenía un contenido de ácido tereftálico del 47,5 % en moles con respecto al componente dicarboxílico total, un MFR de 11 g/10 min (a  $190\text{ }^{\circ}\text{C}$ , 2,16 kg) y una acidez de 50 meq/kg, 9,1 kg/h de ácido poliláctico Ingeo 3251D ("PLA"), MFR de 58 g/10 min (a  $190\text{ }^{\circ}\text{C}$ , 2,16 kg), 1,0 kg/h de mezcla madre que comprendía un 10 % en peso de Joncryl ADR4368CS (copolímero de estireno-glicidileter-metilmecrilato) y un 90 % de ácido poliláctico Ingeo 4043D ("PLA"), 0,2 kg/h de mezcla madre que comprendía un 10 % de perlas Crodamide SR Bead fabricadas por Croda y un 90 % de poli(adipato de butileno-co-tereftalato de butileno), en una extrusora de doble tornillo OMC EBV60/36 que funcionaba en las siguientes condiciones:

Diámetro del tornillo (D) = 58 mm;  
L/D = 36;  
Velocidad de rotación del tornillo = 140 rpm;  
Perfil térmico = 60-150-180-210 x 4-150 x 2  $^{\circ}\text{C}$ ;  
Rendimiento: 40 kg/h;  
Desgasificación al vacío en zona 8 de 10.

Los gránulos obtenidos este modo tenían un MFR ( $190\text{ }^{\circ}\text{C}$ ), 2,16 kg de acuerdo con la norma ISO 1133-1 "Plásticos - Determinación del caudal de masa fundida (MFR) y el caudal de volumen fundido (MVR) de termoplásticos - Parte 1: Método de referencia") de 7 g/10 minutos. Preparación de la Composición B (capa B): Se alimentaron 28,3 kg/h de poli(adipato de butileno-co-azelaato de butileno-co-tereftalato de butileno) que tenía un contenido de ácido azelaico del 30 % en moles con respecto a la suma de ácido adipico y ácido azelaico, y un contenido de ácido tereftálico del 48,3 % en moles con respecto al total para el componente dicarboxílico, un MFR de 5 g/10 min (a  $190\text{ }^{\circ}\text{C}$ , 2,16 kg) y una acidez de 47 meq/kg, 1,4 kg/h de ácido poliláctico Ingeo 4043D ("PLA"), MFR de 2,7 g/10 min (a  $190\text{ }^{\circ}\text{C}$ , 2,16 kg), 16 kg/h de almidón de maíz termoplástico, 0,1 kg/h de Almatex PD-4440 producido por Anderson Development Company, 0,1 kg/h de microperlas Crodamide ER fabricadas por Croda y 0,1 kg/h de Carbodilite HMV15CA fabricada por Nisshinbo Chemical Inc. a una extrusora de doble tornillo modelo OMC EBV60/36 que funcionaba en las siguientes condiciones:

Diámetro del tornillo (D) = 58 mm;  
L/D = 36;  
Velocidad de rotación del tornillo = 160 rpm;  
Perfil térmico = 60-150-180-210 x 4-150 x 2  $^{\circ}\text{C}$ ;  
Rendimiento: 46,1 kg/h;  
Desgasificación al vacío en zona 8 de 10.

Los gránulos obtenidos este modo tenían un MFR ( $160\text{ }^{\circ}\text{C}$ ), 5 kg de acuerdo con la norma ISO 1133-1 "Plásticos - Determinación del caudal de masa fundida (MFR) y el caudal de volumen fundido (MVR) de termoplásticos - Parte 1: Método de referencia") de 2,4 g/10 minutos.

Después se alimentaron Composición A y Composición B simultáneamente a una coextrusora para formar una película soplada de dos capas con una disposición A/B. Para este fin se alimentó Composición A con una producción de 3,3 kg/h a una extrusora con un diámetro de tornillo de 35 mm y una L/D de 30 que funcionaba a 13 rpm con un perfil térmico de 100-170 x 4. En paralelo, se alimentó Composición B a través de dos extrusoras, la primera caracterizado por un diámetro de tornillo de 35 mm con una L/D de 30 funcionando a 12 rpm con un perfil térmico de 80-154 x 4 funcionando a 3,3 kg/h y la segunda caracterizada por un diámetro de tornillo de 40 mm con una L/D de 30 funcionando a 74 rpm con un perfil térmico de 80-145 x 4 y un rendimiento de 28,3 kg/h. Una vez fundidas las dos composiciones se combinaron en el cabezal de coextrusión-soplado que tenía un hueco de 0,9 mm y una L/D 9 fijada a  $170\text{ }^{\circ}\text{C}$ , alimentando la estructura de múltiples capas a un proceso de formación de película que funcionaba con una relación de soplado de 4,5 y una relación de estiramiento de 20,2.

La película obtenida de este modo (total 10 micrómetros, 10 % de capa A, 90 % de capa B) se caracterizó después en términos de propiedades mecánicas y ópticas (Tabla 1).



EJEMPLO 2 - película de dos capas que tenía una disposición A/B/A

Se alimentaron simultáneamente Composición A y Composición B de acuerdo con el Ejemplo 1 a una coextrusora para formar una película soplada de tres capas con una disposición A/B/A. Con este objeto, se alimentó Composición A con una producción de 3,3 kg/h a una primera extrusora que tenía un diámetro de tornillo de 35 mm con una L/D de 30 que funcionaba a 14 rpm con un perfil térmico de 100-170 x 4 y con una producción de 3,3 kg/h a una segunda extrusora caracterizada por un diámetro de tornillo de 35 mm con una L/D de 30 que funcionaba a 13 rpm con un perfil térmico de 100-170 x 4. Se alimentó Composición B a 28,3 kg/h a una extrusora que tenía un diámetro de tornillo de 40 mm con una L/D de 30 que funcionaba a 74 rpm con un perfil térmico de 80-154 x 4. Una vez fundidas, las dos composiciones se combinaron en un cabezal de coextrusión-soplado con un hueco de 0,9 mm y una L/D de 9 fijada a 170 °C, alimentando la estructura de múltiples capas a un proceso de formación de película que funcionaba con una relación de soplado de 4,5 y una relación de estiramiento de 20,2.

La película obtenida de este modo (total 10 micrómetros, 20 % de capa A, distribuida uniformemente entre las dos capas, 80 % de capa B) se caracterizó después en términos de propiedades mecánicas y ópticas (Tabla 1).

EJEMPLO 3 (comparativo) - preparación de una película de una sola capa de composición B

Se alimentó simultáneamente Composición B de acuerdo con el Ejemplo 1 a una coextrusora para formar una película soplada de una sola capa con una disposición B/B/B. Con este objeto se alimentó Composición B con una producción de 2,8 kg/h a una primera extrusora que tenía un diámetro de tornillo de 35 mm con una L/D de 30 que funcionaba a 18 rpm con un perfil térmico de 100-145 x 4 y con una producción de 24,3 kg/h a una segunda extrusora caracterizada por un diámetro de tornillo de 40 mm con una L/D de 30 que funcionaba a 63 rpm con un perfil térmico de 80-145 x 4 y con una producción de 2,8 kg/h a una tercera extrusora caracterizada por un diámetro de tornillo de 35 mm con una L/D de 30 que funcionaba a 18 rpm con un perfil térmico de 100-145 x 4. El cabezal de coextrusión-soplado tiene un hueco de 0,9 mm y una L/D de 9 fijada a 145 °C, alimentando la estructura de una sola capa a un proceso de formación de película que funcionaba con una relación de soplado de 4,5 y una relación de estiramiento de 20,2.

La película obtenida de este modo (total 10 micrómetros, 100 % de composición B) se caracterizó después en términos de propiedades mecánicas y ópticas (Tabla 1).

EJEMPLO 4 - película de dos capas que tenía una disposición A/B/A

Preparación de la Composición A (capa A): Se alimentaron 31,4 kg/h de poli(adipato-co-tereftalato de butileno), que tenía un contenido de ácido tereftálico del 47,5 % en moles con respecto al componente dicarboxílico total, un MFR de 11 g/10 min (a 190 °C, 2,16 kg) y una acidez de 50 meq/kg, 7,6 kg/h de ácido poliláctico Ingeo 3251D ("PLA"), MFR de 58 g/10 min (a 190 °C, 2,16 kg), 0,8 kg/h de mezcla madre que comprendía un 10 % en peso de Joncyl ADR4368CS (copolímero de estireno-glicidileter-metilmetacrilato) y un 90 % de ácido poliláctico Ingeo 4043D ("PLA"), 0,2 kg/h de mezcla madre que comprendía un 10 % de perlas Crodamide SR Bead fabricadas por Croda y un 90 % de poli(adipato de butileno-co-tereftalato de butileno), a una extrusora de doble tornillo modelo OMC EBV60/36 que funcionaba en las condiciones especificadas para la capa A en el Ejemplo 1.

Los gránulos obtenidos este modo tenían un MFR (190 °C), 2,16 kg de acuerdo con la norma ISO 1133-1) de 7,5 g/10 minutos.

Se alimentaron simultáneamente Composición A de acuerdo con el Ejemplo 4 y Composición B de acuerdo con el Ejemplo 1 a una coextrusora para formar una película soplada de tres capas con una disposición A/B/A. Con este objeto, se alimentó Composición A con una producción de 2,9 kg/h a una primera extrusora que tenía un diámetro de tornillo de 35 mm con una L/D de 30 que funcionaba a 11 rpm con un perfil térmico de 60-170 x 4 y con una producción de 2,9 kg/h a una segunda extrusora caracterizada por un diámetro de tornillo de 35 mm con una L/D de 30 que funcionaba a 11 rpm con un perfil térmico de 60-170 x 4. Se alimentó Composición B a 24,2 kg/h a una extrusora que tenía un diámetro de tornillo de 40 mm con una L/D de 30 que funcionaba a 64 rpm con un perfil térmico de 80-145 x 4. Una vez fundidas, las dos composiciones se combinaron en un cabezal de coextrusión-soplado con un hueco de 0,9 mm y una L/D 9 fijada a 170 °C, alimentando la estructura de múltiples capas a un proceso de formación de película que funcionaba con una relación de soplado de 4,5 y una relación de estiramiento de 20,2.

La película obtenida de este modo (total 10 micrómetros, 20 % de capa A distribuida uniformemente entre las dos capas, 80 % de capa B) se caracterizó después en términos de propiedades mecánicas y ópticas (Tabla 1).

EJEMPLO 5 - película de dos capas que tenía una disposición A/B/A

Preparación de la Composición A (capa A): 16 kg/h de poli(sebacato de butileno), MFR de 3,7 g/10 min (a 150 °C, 2,16 kg) y una acidez de 25 meq/kg, Se alimentaron 20 kg/h de poli(adipato-co-tereftalato de butileno), que tenía un contenido de ácido tereftálico del 47,5 % en moles con respecto al componente dicarboxílico total, un MFR de 5,1 g/10 min (a 190 °C, 2,16 kg) y una acidez de 37 meq/kg, 4 kg/h de ácido poliláctico Ingeo 4043D ("PLA"), MFR

de 2,5 g/10 min (a 190 °C, 2,16 kg), 0,1 kg/h de microperlas Crodamide ER fabricadas por Croda, en una extrusora de doble tornillo OMC EBV60/36 que funcionaba en las siguientes condiciones:

Diámetro del tornillo (D) = 58 mm;  
L/D = 36;  
Velocidad de rotación del tornillo = 160 rpm;  
Perfil térmico = 60-120-160 x 5-150 x 2 °C;  
Rendimiento: 40,1 kg/h;  
Desgasificación al vacío en zona 8 de 10.

Los gránulos obtenidos este modo tenían un MFR (190 °C), 2,16 kg de acuerdo con la norma ISO 1133-1 "Plásticos - Determinación del caudal de masa fundida (MFR) y el caudal de volumen fundido (MVR) de termoplásticos - Parte 1: Método de referencia" de 6 g/10 minutos.

Después, se alimentaron simultáneamente Composición A de acuerdo con el Ejemplo 5 y Composición B de acuerdo con el Ejemplo 1 a una coextrusora para formar una película soplada de tres capas con una disposición A/B/A. Para este fin se alimentó Composición A con una producción de 2,8 kg/h a una extrusora con un diámetro de tornillo de 35 mm y una L/D de 30 que funcionaba a 11 rpm con un perfil térmico de 60-125 x 4. Se alimentó Composición B a través de una extrusora caracterizada por un diámetro de tornillo de 40 mm con una L/D de 30 que funcionaba a 66 rpm con un perfil térmico de 80-145 x 4. Una vez fundidas las dos composiciones se combinaron en el cabezal de coextrusión-soplado que tenía un hueco de 0,9 mm y una L/D 9 fijada a 145 °C, alimentando la estructura de múltiples capas a un proceso de formación de película que funcionaba con una relación de soplado de 4,5 y una relación de estiramiento de 20,2.

La película obtenida de este modo (total 10 micrómetros, 20 % de capa A, 80 % de capa B) se caracterizó después en términos de propiedades mecánicas y ópticas (Tabla 1).

#### EJEMPLO 6 - película de dos capas que tenía una disposición A/B/A

Preparación de la Composición A (capa A): poli(succinato de butileno-co-azelato de butileno) que tenía un contenido de ácido azelaico del 25 % en moles con respecto al componente dicarboxílico total, un MFR de 6 g/10 min (a 190 °C, 2,16 kg) y una acidez de 46 meq/kg.

Se alimentaron simultáneamente Composición A de acuerdo con el Ejemplo 6 y Composición B de acuerdo con el Ejemplo 1 a una coextrusora para formar una película soplada de tres capas con una disposición A/B/A. Con este objeto, se alimentó Composición A con una producción de 2,8 kg/h a una primera extrusora que tenía un diámetro de tornillo de 35 mm con una L/D de 30 que funcionaba a 12 rpm con un perfil térmico de 60-120 x 4 y con una producción de 2,8 kg/h a una segunda extrusora caracterizada por un diámetro de tornillo de 35 mm con una L/D de 30 que funcionaba a 12 rpm con un perfil térmico de 60-120 x 4. Se alimentó Composición B a 24,3 kg/h a una extrusora que tenía un diámetro de tornillo de 40 mm con una L/D de 30 que funcionaba a 63 rpm con un perfil térmico de 80-145 x 4. Una vez fundidas, las dos composiciones se combinaron en un cabezal de coextrusión-soplado con un hueco de 0,9 mm y una L/D 9 fijada a 145 °C, alimentando la estructura de múltiples capas a un proceso de formación de película que funcionaba con una relación de soplado de 4,5 y una relación de estiramiento de 16,8.

La película obtenida de este modo (total 12 micrómetros, 20 % de capa A distribuida uniformemente entre las dos capas, 80 % de capa B) se caracterizó después en términos de propiedades mecánicas y ópticas (Tabla 1).

#### EJEMPLO 7 - película de dos capas que tenía una disposición A/B/A

Preparación de la Composición A (capa A): poli(adipato de butileno-co-tereftalato de butileno) que tenía un contenido de ácido tereftálico del 47,5 % en moles con respecto al componente dicarboxílico total, un MFR de 3,9 g/10 min (a 190 °C, 2,16 kg) y una acidez de 33 meq/kg.

Se alimentaron simultáneamente Composición A de acuerdo con el Ejemplo 7 y Composición B de acuerdo con el Ejemplo 1 a una coextrusora para formar una película soplada de tres capas con una disposición A/B/A. Con este objeto, se alimentó Composición A con una producción de 2,8 kg/h a una primera extrusora que tenía un diámetro de tornillo de 35 mm con una L/D de 30 que funcionaba a 16 rpm con un perfil térmico de 60-145 x 4 y con una producción de 2,8 kg/h a una segunda extrusora caracterizada por un diámetro de tornillo de 35 mm con una L/D de 30 que funcionaba a 16 rpm con un perfil térmico de 60-145 x 4. Se alimentó Composición B a 24,3 kg/h a una extrusora que tenía un diámetro de tornillo de 40 mm con una L/D de 30 que funcionaba a 63 rpm con un perfil térmico de 80-145 x 4. Una vez fundidas, las dos composiciones se combinaron en un cabezal de coextrusión-soplado con un hueco de 0,9 mm y una L/D 9 fijada a 145 °C, alimentando la estructura de múltiples capas a un proceso de formación de película que funcionaba con una relación de soplado de 3,6 y una relación de estiramiento de 25,2.

## ES 2 834 008 T3

La película obtenida de este modo (total 10 micrómetros, 20 % de capa A distribuida uniformemente entre las dos capas, 80 % de capa B) se caracterizó después en términos de propiedades mecánicas y ópticas (Tabla 1).

TABLA 1

	RESISTENCIA A LA TRACCIÓN DE LA PELÍCULA NORMA ASTM D882 (23 °C, HR DEL 55 % - Vo 50 mm/min)			Desgarro de Elmendorf norma ASTM D1922 (23 °C - HR del 55 %)		PROPIEDADES ÓPTICAS NORMA ASTM D1003		
	σ <sub>b</sub> (MPa)	ε <sub>b</sub> (%)	E (MPa)	Dirección	Fuerza (N/mm)	% de TRASM.	% de TURBIDEZ	% de CLARIDAD
Ejemplo 1 (10 micrómetros)	24	874	334	DM	107	92	88	27
				DT	40			
Ejemplo 2 (10 micrómetros)	25	320	355	DM	112	92	38	60
				DT	40			
Ejemplo 3 comparativo (10 micrómetros)	30	315	243	DM	161	92	98	8
				DT	309			
Ejemplo 4 (10 micrómetros)	32	351	386	DM	127	92	31	61
				DT	78			
Ejemplo 5 (10 micrómetros)	30	291	332	DM	157	93	61	31
				DT	214			
Ejemplo 6 (12 micrómetros)	28	335	243	DM	173	93	46	34
				DT	203			
Ejemplo 7 (10 micrómetros)	44	331	298	DM	98	92	46	41
				DT	258			

## REIVINDICACIONES

1. Una película de múltiples capas que comprende al menos una primera capa A y al menos una segunda capa B, en la que las capas A y B tienen una disposición mutua A/B/A, en donde la capa A y la capa B son diferentes entre sí, en la que la capa A comprende un poliéster biodegradable alifático y/o alifático-aromático o un alcohol polivinílico o copolímeros de los mismos y en la que la capa B comprende:
  - i) el 30-95 % en peso, con respecto a la suma de los componentes i-v, de al menos un poliéster que comprende:
    - a) un componente dicarboxílico que contiene, con respecto al componente dicarboxílico total:
      - a1) el 35-70 % en moles de unidades derivadas de al menos un ácido dicarboxílico aromático,
      - a2) el 65-30 % en moles de unidades derivadas de al menos un ácido dicarboxílico alifático saturado, y
      - a3) el 0-5 % en moles de unidades derivadas de al menos un ácido dicarboxílico alifático insaturado; y
    - b) un componente de diol que comprende, con respecto al componente de diol total:
      - b1) el 95-100 % en moles de unidades derivadas de al menos un diol alifático saturado, y
      - b2) el 0-5 % en moles de unidades derivadas de al menos un diol alifático insaturado;
  - ii) el 0,1-50 % en peso, con respecto a la suma de los componentes i-v, de al menos un polímero de origen natural;
  - iii) el 1-40 % en peso, con respecto a la suma de los componentes i-v, de al menos un polihidroxi alcanato;
  - iv) el 0-15 % en peso, con respecto a la suma de los componentes i-v, de al menos una carga inorgánica; y
  - v) el 0-5 % en peso, con respecto a la suma de los componentes i-v, de al menos un agente de reticulación y/o prolongador de cadena que comprende al menos un compuesto que tiene dos y/o múltiples grupos funcionales, incluyendo grupos isocianato, peróxido, carbodiimida, isocianurato, oxazolina, epóxido, anhídrido, divinil éter y mezclas de los mismos.
2. La película de múltiples capas de acuerdo con la reivindicación 1, en la que dicho poliéster alifático-aromático en la capa A comprende:
  - c) un componente dicarboxílico que comprende, con respecto al componente dicarboxílico total:
    - c1) el 35-70 % en moles de unidades derivadas de al menos un ácido dicarboxílico aromático,
    - c2) el 65-30 % en moles de unidades derivadas de al menos un ácido dicarboxílico alifático saturado, y
    - c3) el 0-5 % en moles de unidades derivadas de al menos un ácido dicarboxílico alifático insaturado; y
  - d) un componente de diol que comprende, con respecto al componente de diol total:
    - d1) el 95-100 % en moles de unidades derivadas de al menos un diol alifático saturado, y
    - d2) el 0-5 % en moles de unidades derivadas de al menos un diol alifático insaturado.
3. La película de múltiples capas de acuerdo con la reivindicación 2, en la que los ácidos dicarboxílicos alifáticos saturados en el componente c2 comprenden mezclas que comprenden al menos el 50 % en moles de al menos un ácido seleccionado entre ácido succínico, ácido adípico, ácido azelaico, ácido sebácico, ácido brasílico, sus ésteres C<sub>1</sub>-C<sub>24</sub>, preferentemente C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>, y mezclas de los mismos.
4. La película de múltiples capas de acuerdo con la reivindicación 3, en la que los ácidos dicarboxílicos alifáticos saturados en el componente c2 se seleccionan entre ácido adípico y ácido azelaico o mezclas de los mismos.
5. La película de múltiples capas de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 4, en la que además de dicho poliéster alifático y/o alifático-aromático en la capa A, dicha capa A comprende el 1-40 % en peso con respecto al total para la capa A de al menos un polihidroxi alcanato.
6. La película de múltiples capas de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 5, en la que el ácido dicarboxílico alifático saturado del componente a2 del poliéster en la capa B comprende mezclas que comprenden al menos el 50 % en moles de al menos un ácido seleccionado entre ácido succínico, ácido adípico, ácido azelaico, ácido sebácico, ácido brasílico, sus ésteres C<sub>1</sub>-C<sub>24</sub>, preferentemente C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>, y mezclas de los mismos.
7. La película de múltiples capas de acuerdo con la reivindicación 6, en la que los ácidos dicarboxílicos alifáticos saturados en dicho componente a2 se seleccionan entre ácido adípico y ácido azelaico o mezclas de los mismos.
8. La película de múltiples capas de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 7, caracterizada por valores de transmitancia de más del 90 %, valores de turbidez de menos del 65 % y una claridad superior al 20 %, medida de acuerdo con la norma ASTM D1003.

9. La película de múltiples capas de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 8, siendo dicha película biodegradable en condiciones de compostaje doméstico de acuerdo con la norma UNI 11355.

5      10. Un envase que comprende la película de múltiples capas de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 9.

11. El envase de acuerdo con la reivindicación 10, seleccionándose dicho envase entre bolsas para el transporte de mercancías y bolsas para el envasado de alimentos.

10      12. Una bolsa para frutas y verduras de acuerdo con la reivindicación 11.

13. Una película de cubrición del suelo que comprende la película de múltiples capas de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 9.