



(12)

CERERE DE BREVET DE INVENȚIE

(21) Nr. cerere: **a 2022 00494**

(22) Data de depozit: **12.08.2022**

(41) Data publicării cererii:
28.02.2024 BOPI nr. **2/2024**

(71) Solicitant:
• **INSTITUTUL NAȚIONAL DE
CERCETARE-DEZVOLTARE PENTRU
CHIMIE ȘI PETROCHIMIE - ICECHIM,
SPLAIUL INDEPENDENȚEI NR.202,
SECTOR 6, BUCUREȘTI, B, RO**

(72) Inventatori:
• **FRONE ADRIANA NICOLETA,
STR.UIOARA NR.4, BL.50, SC.3, AP.60,
SECTOR 4, BUCUREȘTI, B, RO;**
• **PANAITESCU DENIS MIHALEA,
PIAȚA KOGALNICEANU, NR.8, SC.B, ET.6,
AP.35, SECTOR 5, BUCUREȘTI, B, RO;**

• **UȘURELU CĂTĂLINA DIANA,
STR.BOBESȚI, NR.1203, SAT TELEGA,
COMUNA TELEGA, PH, RO;**
• **GABOR AUGUSTA RALUCA,
STR.DOINEI, NR.66D, SAT FUNDENI,
COMUNA DOBROEȘTI, IF, RO;**
• **NICOLAE CRISTIAN ANDI,
CALEA CRÂNGAȘI NR.14, BL.40, SC.A,
ET.5, AP.17, SECTORUL 6, BUCUREȘTI, B,
RO;**
• **RADU DORIAN, STR. ARMENIȘ, NR.4,
BL.J1, SC.B, AP.18, SECTOR 3,
BUCUREȘTI, B, RO**

(54) **COMPOZIȚII DE COPOLIESTERI ALIFATICI LINIARI
BIODEGRADABILI ȘI BIOPOLIMERI MODIFICAȚI
CU ACEȘTIA, PROCEDEU DE OBȚINERE ȘI PROCEDEU
DE UTILIZARE**

(57) Rezumat:

Invenția se referă la un procedeu de obținere a unor amestecuri polimerice biodegradabile cu proprietăți mecanice de alungire îmbunătățite. Procedeu, conform invenției, constă în etapele: sinteza copoliestereilor biodegradabili alifatici liniari de tippoli(butilen sebacat-co-propilen itaconat) (SI) cu masa moleculară mai mică de 10000 g/mol prin amestecarea monomerilor: 80...90% mol acid sebacic, 10...20% mol acid itaconic, 80% mol 1,4-butandiol și 20% mol 1,3-propandiol la temperatura de 180...200°C, timp de 60 min, în prezență de catalizator de tip compus al titanului și a unui

inhibitor al reacției de polimerizare radicalică de tip hidrochinonă, cu menținerea reacției timp de 4 h sub agitare puternică, răcirea produsului, urmată de dispersia acestuia în bioesteri de tip acid polilactic, din care rezultă amestecuri polimerice conținând SI, având caracteristicile: alungire la rupere 63,7...78,9%, indice de curgere 82,1...150 g/10 min, temperatura de cristalizare 105,2...108,4°C și temperatura de topire 138,3...144,4°C.

Revendicări: 3



COMPOZIȚII DE COPOLIESTERI ALIFATICI LINIARI BIODEGRADABILI ȘI
BIOPOLIMERI MODIFICAȚI CU ACEȘTIA, PROCEDEU DE OBTINERE ȘI
PROCEDEU DE UTILIZARE

30

Invenția se referă la copoliesteri alifatici obținuți din cel puțin un acid alifatic dicarboxilic și cel puțin un compus alifatic dihidroxilic și la un procedeu de obținere a acestora. Prezenta invenție se mai referă la un procedeu pentru obținerea unor amestecuri din acești copoliesteri alifatici biodegradabili și alți polimeri biodegradabili atât de origine naturală cât și de origine sintetică. Copoliesterii alifatici obținuți conform invenției, au o masă moleculară M_n sub 10000 g/mol determinată prin analiză GPC și pot fi cu ușurință utilizați pentru producerea de amestecuri polimerice atât prin procedee specifice prelucrării în topitură cât și prin metoda depunerii din soluție. Copoliesterii sintetizați care fac obiectul acestei invenții precum și amestecurile lor cu alți polimeri biodegradabili sunt materiale ecologice care se obțin fără utilizarea unor procedee care implică substanțe chimice toxice, fiind astfel în conformitate cu strategia UE privind o bio-economie inovatoare prin valorificarea ridicată a bioresurselor precum și cu strategia de protecție a mediului. Copoliesterii sintetizați care fac obiectul acestei invenții precum și polimerii utilizați pentru realizarea amestecurilor multifuncționale se sintetizează din monomeri proveniți din biomasă, având astfel un caracter ecologic ridicat.

În prezent, mai mult de 90% dintre substanțele chimice și 80% din energia la nivel global provin exclusiv din combustibili fosili. Se estimează că până în anul 2050 resursele de combustibil fosil se vor diminua dacă viteza actuală de utilizare rămâne neschimbată [Goncalves et al., *Prog. Polym. Sci.* 68 (2017) 1–34]. De aceea, utilizarea resurselor regenerabile a devenit prioritară pentru producerea sustenabilă de substanțe chimice organice, polimeri, căldură, combustibili și electricitate. Biomasa, care include lemn și reziduuri de lemn, plante agricole și acvatică, resturi agroalimentare și furajere, deșeuri animale și alte deșeuri materiale, este una dintre cele mai importante resurse regenerabile pentru a produce bunuri cu valoare adăugată. În prezent, numai 3-4% din biomasă este folosită de oameni pentru hrană și alte scopuri nealimentare [Goncalves et al., *Prog. Polym. Sci.* 68 (2017) 1–34]. Astfel, biomasa este o sursă ieftină cu un potențial neexploatat la capacitatea maximă care poate fi utilizată pentru obținerea de monomeri și polimeri regenerabili iar prin valorificarea ei se pot limita problemele pe care aceasta le cauzează mediului. Astfel, utilizarea polimerilor proveniți din resurse regenerabile

reprezintă cea mai bună alternativă la polimerii convenționali pe bază de petrol și oferă o soluție viabilă la problemele de mediu cauzate de deșeurile de plastic.

Acidul polilactic (PLA) este un poliester alifatic biodegradabil produs la scară comercială din resurse complet regenerabile precum porumbul și s-a dovedit viabil în înlocuirea materialelor plastice pe bază de petrol în aplicații multiple, de la industria automobilelor și până la cea biomedicală. Cu toate acestea, cazașta inerentă a PLA, evidențiată prin rezistența scăzută la impact și la tracțiune, reprezintă un dezavantaj major care îi limitează mult aplicațiile. S-a încercat înlăturarea acestui dezavantaj prin metode precum plastifierea, copolimerizarea și amestecarea fizică. Amestecarea fizică a PLA cu polimeri sau aditivi adecvați reprezintă o metodă promițătoare pentru îmbunătățirea flexibilității PLA deoarece este avantajoasă din punct de vedere economic, ecologică, practică și accesibilă în comparație cu modificarea chimică. În ultimile decenii, au fost raportate la scară largă diverse amestecuri pe bază de PLA și plastifianți cu masă moleculară scăzută, cu umpluturi anorganice, polimeri flexibili sau elastomeri. Cu toate acestea, majoritatea polimerilor și aditivilor utilizați până în prezent în PLA și alți biopolimeri au prezentat o compatibilitate slabă cu aceștia, nereușind să elimine cazașta. Prin urmare, înlăturarea cazaștei și menținerea caracterului regenerabil a PLA este o problemă care necesită o rezolvare rapidă în contextul economiei verzi.

În brevetul **US005589566A** au fost revendicați copoliesteri formați din unități repetitive ale acidului succinic sau derivați ai acestuia. Copoliesterii alifatici revendicați conțin un component secundar, 1,4-butan diol și un al treilea component care poate fi un diacid sau un diol. Acești copoliesteri se sintetizează printr-o reacție de policondensare în două etape. Prima etapă cuprinde amestecarea componentilor la o temperatură cuprinsă între 190°C și 220 °C la presiune atmosferică și cea de-a doua etapă la temperatură cuprinsă între 245°C și 260°C sub presiune mai mică de 2 mm Ha. Astfel se obțin copoliesteri cu un indice de polidispersitate mai mic decât 2.6. Totuși, această invenție cuprinde utilizarea pe lângă catalizatorul de reacție și a unui aditiv pe bază de fosfor cu rol de stabilizator al culorii și al masei moleculare medii numerice (M_n), ceea ce îi diminuează caracterul regenerabil.

Poliesteri alifatici obținuți din acid succinic și dioli de tip C2 până la C6 au fost revendicați și în **brevetul US3883901**. Poliesterii succinați obținuți prin acest brevet sunt destinați doar aplicării ca suturi chirurgicale.

Alte brevete revendică obținerea unor poliesteri de tip alifatic – aromatic.

Brevetul **US 2008/0194770 A1** descrie obținerea de poliesteri alifatici-aromatici pornind de la cel puțin 70% acid sebacic, un acid aromatic polifuncțional și un diol precum și amestecuri ale acestor poliesteri cu alți polimeri biodegradabili. Invenția descrisă în **EP1858978 B1** revendică obținerea unui poliestere alifatic-aromatic biodegradabil obținut din 50% acid azelaic, un acid aromatic polifuncțional și cel puțin un dialcool și amestecuri ale acestor poliesteri cu alți polimeri biodegradabili. În cadrul brevetului **DEA19508737** se revendică obținerea unor poliesteri biodegradabili cu masă moleculară medie de maximum 51000 g/mol obținuți din policondensarea acidului tereftalic cu un diacid alifatic și un diol. Brevetul **US4966959** revendică obținerea de copoliesteri formați din 60 până la 70% moli de acid tereftalic, 25 până la 40% moli de acid alifatic carboxilic sau acid cicloalifatic și un component glicolic. Totuși poliesterii revendicați în brevetul **US4966959** nu pot fi utilizați decât ca adezivi, nefiind potriviți unor alte aplicații datorită vâscozității mici (0.4-0.6). Principalul dezavantaj al poliestereilor de tip alifatic – aromatic menționați în brevetele anterioare constă în scăderea biodegradabilității acestora ca urmare a prezenței acidului aromatic în lanțul poliesteric. Deși adăugarea componentei aromatice în compoziția poliesterului conduce la creșterea temperaturii de topire a acestuia și la creșterea vitezei de cristalizare, ea conduce și la scăderea biodegradabilității ceea ce are repercursiuni negative asupra mediului înconjurător.

Un alt mare dezavantaj al poliestereilor alifatico-aromatici care sunt în prezent disponibili la nivel comercial este reprezentat de faptul că monomerii din care sunt constituiți provin din surse neregenerabile, menținând astfel un impact negativ semnificativ asupra mediului. Acest tip de poliesteri, și în special cei care au în componența lor acid adipic, generează un nivel mai ridicat de noxe decât polimerii termoplastici produși din resurse petroliere cum ar fi polietilena de joasă și de înaltă densitate.

În literatura de specialitate sunt câteva raportări privind copoliesteri obținuți din combinații de monomeri derivați din resurse regenerabile comerciale. Astfel copoliesteri conținând acid lactic și unul sau mai multe componente dintre acidul sebacic, acidul itaconic și butandiol (**Hu. et al., Ind. Eng. Chem. Res. 2016, 55, 9195–9204**) au fost obținuți și utilizați la modificarea PLA în scopul îmbunătățirii flexibilității. În acest studiu concentrația de PLA în compoziții a fost de numai 15% ceea ce reduce mult aplicațiile materialelor obținute.

Un alt studiu de literatură prezintă sinteza unor copoliesteri formați din cinci monomeri (acid sebacic, acid itaconic, acid succinic, propandiol și butandiol) care prezintă o masă

moleculară medie de $M_w=181.000$ g/mol și care au fost utilizați pentru modificarea PLA (Kang et al., Polymer 54, 2013, 2450-2458). În afara de complexitatea mărită a metodei autorii acestei lucrări au utilizat acidul succinic care scade regularitatea lanțului polimeric și împiedică cristalizarea.

Nici una dintre lucrările menționate anterior nu prezintă copoliesteri alifatici caracterizați printr-o masă moleculară mai mică de 10000 g/mol care să asigure o bună compatibilitatea cu matricea polimerică de tipul acidului polilactic. De asemenea nu sunt menționate în lucrările prezentate anterior informații privind stabilitatea termică a copoliesterilor sintetizați, temperatura de începere a descompunerii termice sau cea la care are loc pierderea maximă de masă, informații fără de care acești copoliesteri nu pot fi utilizați în aplicații industriale.

Prezenta invenție se referă la obținerea unor copoliesteri biodegradabili alifatici liniari de tip poli(butilen sebacat-co-propilen itaconat) (SI) caracterizați printr-o masă moleculară mai mică de 10000 g/mol folosind monomeri derivați din resurse regenerabile și anume un amestec de acizi dicarboxilici din care cel puțin 85% este reprezentat de acidul sebacic și un amestec de dialcooli din care cel puțin 85% este 1,4-butandiol precum și la amestecuri ale acestor copoliesteri (SI) în procente cuprinse între 0 și 20% cu alți polimeri biodegradabili care pot fi atât de origine naturală cât și de origine sintetică. Problemele tehnice pe care le rezolvă invenția se referă la: (i) folosirea unor materii prime, monomeri, din resurse regenerabile ceea ce conduce la obținerea unor produse noi sub forma de copoliesteri biodegradabili alifatici (SI) și la reducerea consumului de monomeri derivați din resurse neregenerabile; (ii) reducerea emisiilor de CO₂ și a schimbărilor climatice negative datorită resurselor regenerabile folosite; (iii) obținerea de compoziții noi, 100% biodegradabile, caracterizate prin proprietăți mecanice de alungire mai bune comparativ cu polimerul matrice de la care s-a plecat prin stabilirea unor parametri tehnologici pentru amestecare în topitură a SI cu alți polimeri biodegradabili care pot fi atât de origine naturală cât și de origine sintetică folosind procedeele de malaxare, extrudare, presare, suflare sau injecție. Nu există la această dată rapoartări privind obținerea unor copoliesteri biodegradabili alifatici ușor compatibili cu biopolimerii datorită masei moleculare medii numerice (M_n) mai mică de 10000 g/mol și lărgimii distribuției maselor moleculare sub 1.5 care apoi să fie utilizați prin procedee clasice de prelucrare în topitură pentru obținerea de amestecuri polimerice biodegradabile cu proprietăți mecanice de alungire îmbunătățite. Copoliesterii biodegradabili alifatici de tip SI sunt obținuți din: 80 până la 90 mol% de acid

24

sebacic, 10 până la 20 mol% de acid itaconic, 80 mol% 1,4-butandiol și 20 mol% 1,3-propandiol, în următoarele rapoarte molare: raportul molar al 1,4-butandiol și 1,3-propandiol este 8:2 iar raportul molar dintre amestecul de acizi dicarboxilici și amestecul de dioli este 1:1.1. Procedeu de sinteză a copoliesterilor biodegradabili de tip SI conform invenției constă într-o reacție de policondensare în topitură a monomerilor în rapoartele prezentate mai sus într-un reactor cu capacitatea de 1L, cu agitare și condensator pentru eliminarea apei rezultate care decurge în următoarele condiții: (1) amestecarea monomerilor în faza de prepolicondensare la o temperatură cuprinsă între 180 și 200 °C timp de 60 min., (2) creșterea temperaturii la 200 °C urmată de adaugarea unui catalizator al reacției de policondensare de tipul unei compus al titanului, în concentrație cuprinsă între 0.5 și 1% față de masa totală de acizi dicarboxilici și a unui inhibitor al reacției de polimerizare radicalică, hidrochinona în concentrație cuprinsă între 0.5 și 1.5% față de masa totală a amestecului de reacție, (3) menținerea reacției un timp de 4 h sub agitare puternică, și (4) turnarea produsului rezultat într-un vas de sticlă sau de teflon pentru răcirea acestuia.

Procedeu de obținere a amestecurilor polimerice conform invenției utilizând SI sintetizați conform invenției și acid polilactic (PLA) constă în aceea că PLA cu grad ridicat de izomer L cuprins între 94 și 98%, sub formă de granule, este introdus direct într-un malaxor dotat cu rotoți sigma, cu rotire în contrasens, cu viteza cuprinsă între 50 și 100 min⁻¹, este topit la o temperatură cuprinsă între 155 °C și 165 °C, se adaugă 0.5....20 părți de SI mărunțit până la o dimensiune de aproximativ 0.2 mm, și se amestecă cu PLA timp de 5....15 min, produsul rezultat fiind profilat pe valț în foaie, care se mărunțește într-o moară cu cuțite rotative, rezultând amestecul polimeric. Avantajele invenției:

SI conform invenției prezintă i) o masă moleculară medie numerică M_n mai mică de 10000 g/mol și ii) un indice de polidispersitate M_w/M_n determinat prin cromatografie lichidă de înaltă performanță (HPLC) sub 1.5 și iii) o temperatură de cristalizare T_c mai mare de 20 °C.

Amestecurile polimerice conținând SI rezultate conform invenției prezintă un indice de curgere (MFI) determinat conform ASTM D1238 la temperatura de 190°C, cu o greutate de 2.16 kg, cuprins între 5 și 150 g/10 min, în funcție de concentrația de SI din amestec.

Copoliesterii de tip SI conform invenției prezintă avantajul de a fi ușor de dispersat în biopoliesteri alifatici de tipul acidului polilactic, poli ϵ -caprolactona, polihidroxiacanoați și

amestecuri ale acestora datorită compatibilității ridicate dintre SI sintetizați și acești polimeri folosind tehnici de prelucrare în topitura uzuale în prelucrarea industrială a acestor polimeri. 25

Copoliesterii de tip SI conform invenției prezintă avantajul de a fi stabili termic în condițiile prelucrării în topitură în amestec cu biopolimeri deoarece prezintă o pierdere de masă mai mică de 3% la temperatura de 200 °C.

Copoliesterii de tip SI conform invenției prezintă și avantajul de a putea fi utilizați în amestecuri cu polimeri de origine naturală precum celuloza, amidonul, chitosanul, alginatii sau diverse fibre naturale (iuta, cânepă, in). Copoliesterii de tip SI conform invenției pot fi utilizați ca atare sau în amestecuri cu PLA și alți biopolimeri din cei specificați mai sus în aplicații precum ambalajele alimentare, obiecte biomedicale, în industria agricolă, la obținerea de laminate multistrat cu straturi de hârtie reciclată, alte material plastice, aluminiu).

Amestecurile din PLA și SI conform invenției prezintă avantajul unei comportări îmbunătățite la prelucrarea în topitura, ceea ce elimină un dezavantaj important al acidului polilactic, deoarece copoliesterii conform invenției prezintă valori ale M_n mai mici decât 10000 g/mol care contribuie la scăderea cuplului de malaxare.

Copoliesterii biodegradabili alifatici liniari de tip SI obținuți conform invenției precum și amestecurile cu PLA au fost caracterizate prin:

- Cromatografie lichidă de înaltă performanță (HPLC) pentru determinarea distribuției maselor moleculare utilizând un cromatograf cu permeație pe gel (Agilent Technologies 1200) dotat cu o coloană de tip PLgel Mixed-C (300x7.5 mm) și un refractometru diferențial (Agilent 1200) folosind dimetilformamida ca și solvent iar măsurătorile s-au făcut la temperatura de 30°C cu un debit de solvent de 1 mL/min.
- analiza termo-gravimetrică pentru evaluarea stabilității termice și a purității folosind un instrument TGA (TA Instruments, SUA) în atmosfera inertă cu o viteză de încălzire de 10 °C/min de la temperatura camerei la 700 °C;
- analiza calorimetrică diferențială de scanare (DSC) utilizând un instrument Q2000 (TA Instruments, SUA) cu o viteză de încălzire de 10 °C/min de la -80 °C la 205 °C;
- indicele de curgere, MFI, a fost determinat folosind aparatul Dynisco Polymers Test, la temperatura de 190 °C, cu o greutate calibrată având masa de 2,16 kg conform ASTM D1238;
- alungirea la tracțiune utilizând o mașină universală Instron 3382, celula de forță de 10 kN, viteză de încercare de 2 mm/min, epruvete tip 5A conform SR EN ISO 527.

Se dau în continuare exemple de realizare a invenției.

Exemplul 1

Într-un reactor de 1L dotat cu agitator mecanic și conectat la un refrigerent au fost introduse următoarele materiale:

- 344.8 g acid sebacic, (1.706 moli);
- 55.6 g acid itaconic, (0.426 moli)
- 168.8 g 1,4-butandiol, (1.876 moli);
- 35.6 g 1,3-propandiol, (0.468 moli);

Procentul molar al acidului sebacic în amestecul de acid sebacic și acid itaconic a fost de 80%, procentul molar al 1.4-butandiolului în amestecul de 1.4-butandiolului și 1,3-propandiol a fost de 80% iar raportul molar dintre amestecul de acizi dicarboxilici și amestecul de dioli a fost de 1 la 1.1.

În prima etapa, de prepolicondensare, amestecul de reacție a fost lăsat timp de 1 h, la temperatura de 190 °C sub agitare puternică. În această etapă a fost colectată cea mai mare parte din cantitatea teoretică de apă, aproximativ 90%. În cea de-a doua etapă, de policondensare propriuză, temperatura a fost ridicată la 200 °C și a fost adăugat catalizatorul, butoxidul de titan (IV) (0.75% față de masa de acizi dicarboxilici) și hidrochinona (1% față de amestec), reacția a fost menținută timp de 4 h la sub agitare puternică. Produsul (SI1) obținut, de culoarea mierii, a fost apoi turnat din reactor într-un recipient de teflon și s-a observat faptul că acesta s-a solidificat rapid. Produsul obținut a prezentat următoarele caracteristici: $M_n=9105$ g/mol, M_w/M_n (PDI)=1.39; pierderea de masă la temperatura de 200 °C a fost mică, de numai 2.74 %, această caracteristică fiind esențială în cazul prelucrării acestor poliesteri prin procedee specifice de prelucrare în topitură unde temperaturile de prelucrare sunt de obicei peste 150 °C; temperatura de cristalizare T_c a prezentat o valoare de 28 °C.

Exemplul 2

Reactorul din Exemplul 1 a fost alimentat cu aceeași compuși în următoarele cantități:

- 373.6 g acid sebacic, (1.850 moli);
- 26.72 g acid itaconic, (0.205 moli)
- 162.8 g 1,4-butandiol, (1.810 moli);
- 35.6 g 1,3-propandiol, (0.468 moli);

Deosebirea constă în faptul că de această dată procentul molar al acidului sebacic în amestecul de acizi a fost de 90%, celelalte rapoarte fiind menținute identice cu cele din Exemplul 1. Reacția de policondensare a decurs la fel ca în Exemplul 1 iar produsul (SI2) obținut a avut de această dată o culoare mai închisă și a prezentat următoarele caracteristici: $M_n=9140$ g/mol, M_w/M_n (PDI)=1.28; pierderea de masă la temperatura de 200 °C a fost de 2.33 %, iar temperatura de cristalizare T_c a prezentat o valoare de 30 °C.

Exemplul 3

O cantitate de 26.40 g PLA cu grad ridicat de izomer L de 98%, a fost uscată în prealabil în etuvă sub vid (Heraeus) la temperatura de 80°C timp de 4 h, apoi a fost introdusă într-un malaxor dotat cu rotoiri sigma încălzit la temperatura de 165°C având viteza de 100 min⁻¹ ceea ce a determinat topirea polimerului, apoi o cantitate de 6.60 g SI1, obținut conform exemplului 1, a fost adăugată treptat în decurs de 3 minute și amestecată cu polimerul la o temperatură de 155 °C cu viteza de 50 min⁻¹, după care s-a continuat amestecarea măbind viteza la 100 min⁻¹ astfel încât întregul procedeu de amestecare în topitură al componentilor introduși să nu depășească 12 min. Amestecul obținut (A1) se profilează pe valț. Pentru caracterizare se presează plăci cu dimensiunile 150x150x2 mm din care se ștanțează epruvete pentru încercări mecanice la tracțiune având dimensiuni conform SR EN ISO 527. Rezultatele obținute sunt prezentate în Tabelul 1 comparativ cu PLA simplu, prelucrat în aceleași condiții (M0).

Exemplul 4

Se lucrează ca la exemplul 3 cu deosebirea că 26.40 g PLA se amestecă cu o cantitate de 6.60 g SI2, obținut conform exemplului 2, obținându-se amestecul polimeric A2 cu caracteristicile din Tabelul 1.

Tabelul 1

Amestec polimeric PLA/SI	Alungirea la rupere (%)	Indice de curgere (g/10 min.)	Temperatura de cristalizare (°C)	Temperatura de topire (°C)
M0	3.38	6.9	119.4	149.4
A1	63.7	82.1	108.4	144.4
A2	78.9	150.0	105.2	138.3

Revendicări

1. Copoliesterii biodegradabili alifatici de tip SI **caracterizați prin aceea că** sunt constituiți din 80 până la 90 mol% de acid sebacic, 10 până la 20 mol% de acid itaconic, 80 mol% 1,4-butandiol și 20 mol% 1,3-propandiol, în următoarele rapoarte molare: raportul molar dintre 1,4-butandiol și 1,3-propandiol este 8:2 iar raportul molar dintre amestecul de acizi dicarboxilici și amestecul de dioli este 1:1.1.

2. Procedeu de sinteză a copoliesterilor biodegradabili de tip SI **conform revendicării 1 caracterizat prin aceea că** constă într-o reacție de policondensare în topitură a monomerilor: 80 până la 90 mol% de acid sebacic, 10 până la 20 mol% de acid itaconic, 80 mol% 1,4-butandiol și 20 mol% 1,3-propandiol, în următoarele rapoarte molare: raportul molar dintre 1,4-butandiol și 1,3-propandiol este 8:2 iar raportul molar dintre amestecul de acizi dicarboxilici și amestecul de dioli este 1:1.1, care are loc într-un reactor cu capacitatea de 1L, cu agitare și condensator pentru eliminarea apei rezultate în următoarele condiții: (1) amestecarea monomerilor în faza de prepolicondensare la o temperatură cuprinsă între 180 și 200 °C timp de 60 min., (2) creșterea temperaturii la 200 °C urmată de adaugarea unui catalizator al reacției de policondensare de tipul unei compus al titanului, în concentrație cuprinsă între 0.5 și 1% față de masa totală de acizi dicarboxilici și a unui inhibitor al reacției de polimerizare radicalică, hidrochinona în concentrație cuprinsă între 0.5 și 1.5 % față de masa totală a amestecului de reacție, (3) menținerea reacției un timp de 4 h sub agitare puternică, și (4) turnarea produsului rezultat într-un vas de sticlă sau de teflon pentru răcirea acestuia.

3. Procedeu de utilizare a copoliesterilor de tip SI sintetizați conform invenției pentru obținerea amestecurilor polimerice utilizand acid polilactic (PLA) **caracterizat prin aceea că** consta în aceea că PLA cu grad ridicat de izomer L cuprins între 94 și 98%, sub formă de granule, este introdus direct într-un malaxor dotat cu rotor sigma, cu rotire în contrasens, cu viteza cuprinsă între 50 și 100 min⁻¹, este topit la o temperatură cuprinsă între 155 și 165 °C, se adaugă 0.5....20 părți de SI mărunțit până la o dimensiune de aproximativ 0.2 mm, și se amesteca cu PLA timp de 5....15 min, produsul rezultat fiind profilat pe valț în foaie, care se mărunțește într-o moară cu cuțite rotative, rezultând amestecul polimeric.

22