

ITALIAN PATENT OFFICE

Document No.

102009901780708A1

Publication Date

20110505

Applicant

NOVAMONT S.P.A.

Title

MISCELE DI POLIESTERI BIODEGRADABILI

NVM01747_IT

“MISCELE DI POLIESTERI BIODEGRADABILI”

a nome della ditta Novamont S.p.A., di nazionalità italiana, con sede in Novara (NO),
a mezzo mandatario Dr. Enrico Zanoli, residente in Milano,
c/o Zanoli & Giavarini S.r.l., Via Melchiorre Gioia, 64.

DESCRIZIONE

La presente invenzione si riferisce a miscele di poliesteri biodegradabili comprendenti almeno due poliesteri alifatico-aromatici da diacido-diolo di cui almeno uno con un elevato contenuto di diacidi alifatici a catena lunga di origine rinnovabile.

Poliesteri biodegradabili alifatico-aromatici ottenuti a partire da diacidi alifatici come l'acido adipico, diacidi aromatici come l'acido tereftalico e da dioli alifatici sono noti in letteratura e commercio.

Un limite di questi poliesteri è costituito dal fatto che i monomeri di cui sono composti provengono principalmente da fonte non rinnovabile. Ciò comporta il loro significativo impatto ambientale nonostante la caratteristica della loro biodegradabilità.

La presenza in catena di monomeri aromatici come l'acido tereftalico è rilevante per ottenere poliesteri alifatico-aromatici con temperature di fusione sufficientemente elevate, adeguate velocità di cristallizzazione, rilevanti proprietà meccaniche, quali ad esempio carico a rottura e modulo elastico, nonché eccellenti caratteristiche di processabilità industriale. L'origine sintetica dei monomeri limita tuttavia la possibilità per questi poliesteri di ridurre in modo significativo il consumo di risorse (feedstock) provenienti da carbonio non rinnovabile, nonostante la loro biodegradabilità.

D'altra parte, un elevato contenuto di monomeri alifatici di origine sintetica come l'acido adipico, non solo aumenta l'impatto ambientale di questi poliesteri, ma anzi ne peggiora le proprietà meccaniche. Inoltre, un elevato contenuto di monomeri alifatici abbassa notevolmente la temperatura di fusione del poliestere e ne diminuisce la velocità di cristallizzazione ad alta temperatura con ciò richiedendo l'utilizzo di più frigoriferi e di tempi di raffreddamento più lunghi durante la lavorazione industriale del poliestere. Questi limiti incidono negativamente sulla processabilità industriale di questi poliesteri.

Il problema che sta alla base della presente invenzione è pertanto quello di trovare un materiale biodegradabile in grado di unire ottime proprietà meccaniche, buona processabilità industriale nonché un limitato impatto ambientale.

Partendo da questo problema, si è ora sorprendentemente trovato che, miscelando un primo poliestere biodegradabile alifatico-aromatico ottenuto a partire da diacidi alifatici di origine

sintetica, diacidi aromatici e da dioli con quantità specifiche di un secondo poliestere alifatico-aromatico ad elevato contenuto di diacidi alifatici a catena lunga da fonte rinnovabile, esiste un intervallo di composizioni che permette di ottenere un materiale dotato di eccellenti proprietà meccaniche, temperature di fusione sufficientemente elevate ed adeguate velocità di cristallizzazione.

In particolare, la presente invenzione si riferisce ad una miscela di poliesteri biodegradabili comprendente:

- un poliestere da diacido-diolo alifatico aromatico (A) comprendente:
 - a) almeno una componente acida avente la seguente composizione:
 - a 1) 51 - 95 % in moli di acidi dicarbossilici alifatici composti per almeno il 50 %, preferibilmente il 60 % e più preferibilmente il 70 % in moli da diacidi di origine rinnovabile a catena lunga;
 - a 2) 5 - 49 % in moli di acidi aromatici polifunzionali;
 - b) almeno un diolo;
- almeno un altro poliestere biodegradabile alifatico-aromatico (B) ottenuto a partire da acido adipico, acido tereftalico ed almeno un diolo alifatico;

in cui la concentrazione di (A) varia, rispetto ad (A+B), nell'intervallo tra 5 e 95 %, preferibilmente tra 20 e 70 % e più preferibilmente tra 30 e 60 % in peso.

Sono da considerarsi di origine rinnovabile quei prodotti ottenuti da fonti che, per loro caratteristica intrinseca, si rigenerano o non sono esauribili nella scala dei tempi della vita umana e, per estensione, il cui utilizzo non pregiudica le risorse naturali per le generazioni future. L'uso di prodotti di origine rinnovabile contribuisce inoltre alla diminuzione di CO₂ nell'atmosfera e alla diminuzione dell'uso di risorse non rinnovabili. Tipico esempio di fonte rinnovabile è costituito dalle colture vegetali.

Per diacidi a catena lunga nella presente invenzione si intendono acidi dicarbossilici con più di 6 atomi di carbonio nella catena principale quali ad esempio acido suberico, acido azelaico, acido sebacico, acido dodecandioico, acido brassilico, loro esteri e loro miscele.

Nel poliestere (A) acidi aromatici polifunzionali si intendono i composti aromatici dicarbossilici del tipo acido ftalico e loro esteri. Particolarmente preferiti l'acido tereftalico e suoi esteri, nonché miscele di questi.

Il contenuto di diacidi aromatici nei poliesteri (A) è compreso fra 5 e 49%, preferibilmente fra 30 e 48,5%, e più preferibilmente tra 40 e 48 % in moli rispetto al contenuto in moli totale degli acidi dicarbossilici.

Esempi di dioli nel poliestere (A) sono 1,2-etandiolo, 1,2-propandiolo, 1,3-propandiolo, 1,4-

butandiolo, 1,5-pentandiolo, 1,6-esandiolo, 1,7-eptandiolo, 1,8-ottandiolo, 1,9-nonandiolo, 1,10-decandiolo, 1,11-undecandiolo, 1,12-dodecandiolo, 1,13-tridecandiolo, 1,4-cicloesandimetanolo, propilenglicole, neo-pentilglicole, 2-metil-1,3-propandiolo, dianidrosorbitolo, dianidromannitolo, dianidroiditolo, cicloesandiolo, cicloesametandiolo e loro miscele. Tra i dioli, particolarmente preferiti sono 1,2-etandiolo, 1,4-butandiolo e le loro miscele.

Il poliestere (A) può contenere, in aggiunta ai monomeri di base, almeno un idrossiacido in quantità compresa fra 0 - 49% preferibilmente fra 0 - 30% in moli rispetto alle moli dell'acido dicarbossilico alifatico. Esempi di convenienti idrossiacidi sono acido glicolico, idrossibutirrico, idrossicaproico, idrossivalerico, 7-idrossieptanoico, 8-idrossicaproico, 9-idrossinonanoico, acido lattico o lattide. Gli idrossiacidi possono essere inseriti in catena come tali oppure possono anche essere preventivamente fatti reagire con diacidi o dioli.

Possono essere anche aggiunti in quantità non superiore al 10% molecole difunzionali lunghe anche con funzionalità non in posizione terminale. Esempi sono acidi dimeri, acido ricinoleico ed acidi con recanti funzionalità epossidiche.

Possono essere anche presenti in percentuali fino al 30% in moli rispetto a tutte le altre componenti ammine, amminoacidi, amminoalcoli.

Nel processo di preparazione del poliestere (A) possono essere vantaggiosamente aggiunte una o più molecole polifunzionali, in quantità comprese fra 0,01 e 3% in moli rispetto alla quantità di acidi dicarbossilici (nonché agli eventuali idrossiacidi), allo scopo di ottenere prodotti ramificati. Esempi di queste molecole sono glicerolo, pentaeritritolo, trimetilolpropano, acido citrico, dipentaeritritolo, monoanidrosorbitolo, monoidromannitolo, trigliceridi acidi, acido undecilenico.

Il peso molecolare M_n del poliestere (A) è maggiore di 15.000, preferibilmente maggiore di 30.000, più preferibilmente maggiore di 40.000. L'indice di polidispersità M_w / M_n è compreso fra 1,5 e 10, preferibilmente tra 1,6 e 8 e più preferibilmente tra 1,7 e 5.

I pesi molecolari M_n e M_w possono essere misurati mediante Gel Permeation Chromatography (GPC). La determinazione può essere condotta con il sistema cromatografico mantenuto a 40 °C, utilizzando un set di tre colonne in serie (diametro particelle di 5 μ e porosità rispettivamente di 500 Å, 1000 Å e 10000 Å), un detector a indice di rifrazione, cloroformio come eluente (flusso 1 ml/min) ed utilizzando polistirene come standard di riferimento.

Il poliestere (A) presenta una viscosità inerente (misurata con viscosimetro di Ubbelohde per soluzioni in CHCl_3 di concentrazione 0,2 g/dl a 25° C) maggiore di 0,5 dl/g, preferibilmente

maggiore di 0,6 dl/g e ancora più preferibilmente maggiore di 0,7 dl/g.

Tra i poliesteri alifatico-aromatici biodegradabili (B), preferiti sono i poliesteri con punto di fusione compreso tra 50 e 170°C, preferibilmente compreso tra 55 e 130 °C è più preferibilmente tra 60 e 110 °C. Preferibilmente detti poliesteri (B) comprendono almeno un diolo $C_2 - C_6$.

Per quanto riguarda la componente acida dei poliesteri alifatico-aromatici biodegradabili (B), essa preferibilmente comprendente dal 5-60 % in moli di acido tereftalico o suoi derivati. Possono essere compresi composti solforati da 0 a 5 % in moli, considerando la somma delle percentuali dei diversi componenti pari a 100 %. È inoltre possibile la presenza di isocianurati o composti corrispondenti contenenti due, tre o quattro gruppi funzionali capaci di reagire con i gruppi terminali dei poliesteri alifatico-aromatici, o miscele di isocianurati e composti corrispondenti.

Le miscele secondo l'invenzione possono essere utilizzate in blend con altri polimeri biodegradabili sia di origine sintetica che naturale. Tra i polimeri biodegradabili, preferiti sono i poliesteri sia del tipo diacido-diolo che da idrossiacido ed i polimeri di origine naturale. Preferibilmente i poliesteri biodegradabili sono alifatici e tra questi preferiti sono: acido poli L lattico, poli D lattico, stereo complesso poli D-L lattico, poli-ε-caprolattone, poli idrossibutirradi quali poli idrossibutirrato-valerato, poli idrossibutirrato propanoato, poli idrossibutirrato-esanoato, poli idrossibutirrato-decanoato, poli idrossibutirrato- dodecanoato, poli idrossibutirrato-esadecanoato, poli idrossibutirrato-ottadecanoato, poli 3-idrossibutirrato 4-idrossibutirrato, poli alchilensuccinati e loro copolimeri con acido adipico e acido lattico. Tra i poliesteri alifatici biodegradabili, particolarmente preferiti sono acido poli L lattico, poli D lattico e stereo complesso poli D-L lattico.

Le miscele secondo l'invenzione possono essere anche utilizzate in blend con polimeri di origine naturale come ad esempio amido, cellulosa, chitina e chitosano, alginati, proteine come glutine, zeina, caseina, collagene, gelatina, gomme naturali, acido rosinico e suoi derivati, lignine e loro derivati. Gli amidi e le cellulose possono essere modificati e fra questi è possibili menzionare, ad esempio, gli esteri di amido o di cellulosa con grado di sostituzione compreso fra 0,2 e 2,5, gli amidi idrossipropilati gli amidi modificati con catene grasse. Le miscele con amido sono particolarmente preferite. L'amido inoltre può essere utilizzato sia in forma destrutturata che gelatinizzata o di filler. L'amido può rappresentare la fase continua o dispersa o può essere in forma cocontinua. In caso di amido disperso l'amido è preferibilmente in forma inferiore al micron e più preferibilmente inferiore agli 0,5μm di diametro medio.

Le miscele secondo l'invenzione possono anche essere blendate con poliolefine come polietilene, polipropilene, loro copolimeri, polivinilalcol, polivinilacetato, poli etile vinilacetato e polietilene vinilalcol, poliesteri uretani, poliuretani, poliammidi, poliuree.

Le miscele secondo l'invenzione possono essere anche utilizzate in blend con i poliesteri di origine sintetica e i polimeri di origine naturale più sopra menzionati. Le miscele con amido e polilattico sono particolarmente preferite.

Le miscele secondo l'invenzione sono biodegradabili secondo la norma EN 13432.

Le miscele di poliesteri secondo l'invenzione possiedono proprietà e valori di viscosità che li rendono adatti ad essere impiegati, modulando opportunamente il relativo peso molecolare, a numerose applicazioni pratiche quali film, manufatti da injection molding, extrusion coating, fibre, schiume, termoformati, etc.

In particolare dette miscele sono adatte per la produzione di:

- film, sia mono che bi-orientati, e film multistrato con altri materiali polimerici;
- film per uso nel settore agricolo come film per pacciamatura;
- cling film (film estensibile) per alimenti, per balle in agricoltura e per l'avvolgimento di rifiuti;
- rivestimenti per sementi (c.d. seed dressing);
- colle come ad esempio le colle a caldo (c.d. hot melt adesive);
- sacchi e fodere per la raccolta organica quale la raccolta del rifiuto alimentare e dello sfalcio erboso;
- imballaggi alimentari termoformati sia monostrato che multistrato quali ad esempio contenitori per latte, yogurt, carni, bevande, etc;
- rivestimenti ottenuti con la tecnica dell'extrusion coating;
- laminati multistrato con strati di carta, materiali plastici, alluminio, film metallizzati;
- beads espansi o espandibili per produzione di pezzi formati mediante sinterizzazione;
- prodotti espansi e semiespansi compresi blocchi espansi formati da particelle pre espanse;
- foglie espanse, foglie espanse termoformate, contenitori da esse ottenute per il packaging alimentare;
- contenitori in genere per frutta e verdura;
- compositi con amido gelatinizzato, destrutturato e/o complessato, amido naturale, farine, altre cariche di origine naturali, vegetali o inorganiche, come filler;
- fibre, microfibre, fibre composite con anima costituita da polimeri rigidi come PLA, PET, PTT etc. e guscio esterno nel materiale dell'invenzione, fibre composite da

blends, fibre a sezioni diverse, da tonde a multilobate, fibre in fiocco, tessuti e tessuti non tessuti o spun bonded o thermobonded per il settore sanitario, dell'igiene dell'agricoltura e del vestiario.

Possono essere anche utilizzate in applicazioni in sostituzione del PVC plastificato.

RIVENDICAZIONI

1. Miscela di poliesteri biodegradabili comprendente:
 - (A) un poliestere da diacido-diolo alifatico aromatico comprendente:
 - a) almeno una componente acida avente la seguente composizione:
 - a 1) 51 - 95 % in moli di acidi dicarbossilici alifatici composti per almeno il 50% in moli da diacidi di origine rinnovabile a catena lunga;
 - a 2) 5 - 49 % in moli di acidi aromatici polifunzionali;
 - b) almeno un diolo;
 - (B) almeno un altro poliestere biodegradabile alifatico-aromatico ottenuto a partire da acido adipico, acido tereftalico e da dioli alifatici;

in cui la concentrazione di (A) varia, rispetto ad (A+B), nell'intervallo tra 5 e 95 % in peso.
2. Miscela di poliesteri biodegradabili secondo la rivendicazione 1, in cui la concentrazione di (A) varia, rispetto ad (A+B), nell'intervallo tra 20 e 70 %, preferibilmente tra 30 e 60 % in peso.
3. Miscela di poliesteri biodegradabili secondo ciascuna delle rivendicazioni 1-2, in cui gli acidi dicarbossilici alifatici sono composti per almeno il 60 %, preferibilmente il 70 % in moli da diacidi di origine rinnovabile a catena lunga.
4. Miscela di poliesteri biodegradabili secondo ciascuna delle rivendicazioni 1-3, in cui i diacidi di origine rinnovabile a catena lunga sono acido suberico, acido azelaico, acido sebacico, acido dodecandioico, acido brassilico, loro esteri e loro miscele.
5. Miscela di poliesteri biodegradabili secondo ciascuna delle rivendicazioni 1-4, in cui il contenuto di diacidi aromatici nel poliestere (A) è compreso fra 30 e 48,5%, e preferibilmente tra 40 e 48 % in moli rispetto al contenuto in moli totale degli acidi dicarbossilici.
6. Miscela di poliesteri biodegradabili secondo ciascuna delle rivendicazioni 1-5, in cui il diolo del poliestere (A) è scelto tra 1,2-etandiolo, 1,2-propandiolo, 1,3-propandiolo, 1,4-butandiolo, 1,5-pentandiolo, 1,6-esandiolo, 1,7-eptandiolo, 1,8-ottandiolo, 1,9-nonandiolo, 1,10-decandiolo, 1,11-undecandiolo, 1,12-dodecandiolo, 1,13-tridecandiolo, 1,4-cicloesandimetano, propilenglicole, neo-pentilglicole, 2-metil-1,3-propandiolo, dianidrosorbitolo, dianidromannitolo, dianidroiditolo, cicloesandiolo, cicloesanmetandiolo e loro miscele.
7. Miscela di poliesteri biodegradabili secondo ciascuna delle rivendicazioni 1-6, in cui il poliestere biodegradabile alifatico-aromatico (B) ha punto di fusione compreso tra 50 e

- 170°C, preferibilmente compreso tra 55 e 130 °C, più preferibilmente tra 60 e 110 °C,
8. Miscela di poliesteri biodegradabili secondo ciascuna delle rivendicazioni 1-7, in cui il poliestere biodegradabile alifatico-aromatico (B) comprende almeno un diolo C₂ – C₆.
 9. Miscela di poliesteri biodegradabili secondo ciascuna delle rivendicazioni 1-7, in cui il poliestere biodegradabile alifatico-aromatico (B) ha componente acida comprendente dal 5-60 % in moli di acido tereftalico o suoi derivati.
 10. Miscela di poliesteri biodegradabili secondo ciascuna delle rivendicazioni 1-9, utilizzata in blend con polimeri biodegradabili sia di origine sintetica che naturale.
 11. Blend secondo la rivendicazione 10, in cui i polimeri biodegradabili sono poliesteri sia del tipo diacido-diolo che da idrossiacido.
 12. Blend secondo la rivendicazione 11, in cui i poliesteri sia del tipo diacido-diolo che da idrossiacido sono acido poli L lattico, poli D lattico, stereo complesso poli D-L lattico, poli-ε-caprolattone, poli idrossibutirradi quali poli idrossibutirradi-valerato, poli idrossibutirradi propanoato, poli idrossibutirradi-esanoato, poli idrossibutirradi-decanoato, poli idrossibutirradi- dodecanoato, poli idrossibutirradi-esadecanoato, poli idrossibutirradi-ottadecanoato, poli 3-idrossibutirradi 4-idrossibutirradi, poli alchilensuccinati e loro copolimeri con acido adipico e acido lattico.
 13. Blend secondo la rivendicazione 10, in cui i polimeri biodegradabili di origine naturale sono amido, cellulosa, chitina e chitosano, alginati, proteine come glutine, zeina, caseina, collagene, gelatina, gomme naturali, acido rosinico e suoi derivati, lignine e loro derivati.
 14. Blend secondo la rivendicazione 13 in cui l'amido è utilizzato sia in forma destrutturata che gelatinizzata o di filler.
 15. Uso della miscela di poliesteri biodegradabili secondo ciascuna delle rivendicazioni 1- 14, per la produzione di:
 - film, sia mono che bi-orientati, e film multistrato con altri materiali polimerici;
 - film per uso nel settore agricolo come film per pacciamatura;
 - cling film (film estensibile) per alimenti, per balle in agricoltura e per l'avvolgimento di rifiuti;
 - rivestimenti per sementi (c.d. seed dressing);
 - colle come ad esempio le colle a caldo (c.d. hot melt adesive);
 - sacchi e fodere per la raccolta organica quale la raccolta del rifiuto alimentare e dello sfalcio erboso;
 - imballaggi alimentari termoformati sia monostrato che multistrato quali ad esempio contenitori per latte, yogurt, carni, bevande, etc;

- rivestimenti ottenuti con la tecnica dell'extrusion coating;
- laminati multistrato con strati di carta, materiali plastici, alluminio, film metallizzati;
- beads espansi o espandibili per produzione di pezzi formati mediante sinterizzazione;
- prodotti espansi e semiespansi compresi blocchi espansi formati da particelle pre espanse;
- foglie espanse, foglie espanse termoformate, contenitori da esse ottenute per il packaging alimentare;
- contenitori in genere per frutta e verdura;
- compositi con amido gelatinizzato, destrutturato e/o complessato, amido naturale, farine, altre cariche di origine naturali, vegetali o inorganiche, come filler;
- fibre, microfibre, fibre composite con anima costituita da polimeri rigidi come PLA, PET, PTT etc. e guscio esterno nel materiale dell'invenzione, fibre composite da blends, fibre a sezioni diverse, da tonde a multilobate, fibre in fiocco, tessuti e tessuti non tessuti o spun bonded o thermobonded per il settore sanitario, dell'igiene dell'agricoltura e del vestiario.

CLAIMS

1. Biodegradable polyesters mixture comprising:
 - (A) an aliphatic-aromatic polyester of the diacid-diol type comprising:
 - a) at least one acid component having the following composition:
 - a1) 51 - 95 % by moles of aliphatic dicarboxylic acids, said dicarboxylic acid being composed for at least 50% by moles by long chain diacids of renewable origin;
 - a2) 5 - 49 % by moles of polyfunctional aromatic acids;
 - b) at least one diol;
 - (B) at least another biodegradable aliphatic-aromatic polyester obtained starting from adipic acid, terephthalic acid and aliphatic diols;

in which the concentration by weight of (A) with respect to (A+B) is in the range comprised between 5 and 95 %.
2. Biodegradable polyesters mixture according to claim 1 characterized in that said concentration by weight of (A) with respect to (A+B) is in the range comprised between 20 e 70 %, preferably between 20 e 70 %.
3. Biodegradable polyesters mixture according to any claim 1-2, characterized in that said aliphatic dicarboxylic acid are composed for at least 60% by moles, preferably 70 %, by long chain diacids of renewable origin.
4. Biodegradable polyesters mixture according to any claim 1-3, characterized in that said long chain diacids of renewable origin are suberic acid, azelaic acid, sebacic acid, dodecandioic acid, brassylic acid, their esters and mixtures thereof.
5. Biodegradable polyesters mixture according to any claim 1-4, characterized in that the content of said polyfunctional aromatic acids in polyester (A) is comprised between 30 and 48,5 %, preferably between 40 and 48% by moles with respect to the total content of dicarboxylic acids.
6. Biodegradable polyesters mixture according to any claim 1-5, characterized in that said diol in polyester (A) is selected from 1,2-ethandiol, 1,2-propandiol, 1,3-propandiol, 1,4-butandiol, 1,5-pentandiol, 1,6-hexandiol, 1,7-eptandiol, 1,8-octandiol, 1,9-nonandiol, 1,10-decandiol, 1,11-undecandiol, 1,12-dodecandiol, 1,13-tridecandiol, 1,4-cyclohexandimethanol, propylene glycol, neo-pentyl glycol, 2-methyl-1,3-propanediol, dianhydrosorbitol, dianhydromannitol, dianhydroiditol, cyclohexanediol, cyclohexane-methanediol and mixtures thereof.

7. Biodegradable polyesters mixture according to any claim 1-6, characterized in that said biodegradable aliphatic-aromatic polyester (B) shows melting point comprised between 50 and 170 °C, preferably between 55 and 130°C, more preferably between 60 and 110 °C.
8. Biodegradable polyesters mixture according to any claim 1-7, characterized in that said biodegradable aliphatic-aromatic polyester (B) comprises at least one diol C₂-C₆.
9. Biodegradable polyesters mixture according to any claim 1-7, characterized in that said biodegradable aliphatic-aromatic polyester (B) has the acid component comprising 5-60% in moles of terephthalic acid or its derivatives.
10. Biodegradable polyesters mixture according to any claim 1-9, characterized by being used in blends with biodegradable polymers either of synthetic or natural origin.
11. Blend according to claim 10, characterized in that said biodegradable polymers are polyesters either of the diacid-diol type or hydroxyacid type.
12. Blend according to claim 11, characterized in that said polyesters either of the diacid-diol type or hydroxyacid type are poly-L-lactic acid, poly-D-lactic acid and stereo-complexed polylactic acid, poly-ε-caprolactone, polyhydroxybutyrates such as polyhydroxybutyrate valerate, polyhydroxybutyrate propanoate, polyhydroxybutyrate hexanoate, polyhydroxybutyrate decanoate, polyhydroxybutyrate dodecanoate, polyhydroxybutyrate hexadecanoate, polyhydroxybutyrate octadecanoate, poly-3-hydroxybutyrate 4-hydroxybutyrate, polyalkylenesuccinates and their copolymers with adipic acid and lactic acid.
13. Blend according to claim 10, characterized in that said biodegradable polymers of natural origin are starch, cellulose, chitin, chitosan, alginates, proteins such as gluten, zein, casein, collagen, gelatin, natural rubbers, rosin and its derivatives, lignins and their derivatives.
14. Blend according to claim 13, characterized in that said starch is used in form either destructurized or gelatinized or in filler form.
15. Use of the biodegradable polyesters mixture according to any claim 1-14 for the production of :
 - mono- and bi-oriented films, and films multilayered with other polymeric materials;
 - films for use in the agricultural sector, such as films for use in mulching;
 - cling films for use with foodstuffs, for bales in agriculture, and for wrapping waste;

- seed dressings;
glues as hot melt adhesives;
- bags and bin liners for the organic waste collection, such as the collection of food scraps and gardening waste;
- thermoformed foodstuff packaging, both mono- and multi-layered, as in containers for milk, yogurt, meats, beverages, etc;
- coatings obtained using the extrusion coating method;
- multilayer laminates with layers of paper, plastic, aluminium, or metallized films;
- expanded or expandable beads for the production of pieces obtained by sintering;
- expanded and semi-expanded products, including foam blocks formed using pre-expanded particles;
- foam sheets, thermoformed foam sheets, and containers obtained from them for use in foodstuff packaging;
- fruit and vegetable containers in general;
- composites with gelatinised, destructured and/or complexed starch, natural starch, flours or vegetable or inorganic natural fillers;
- fibres, microfibers, composite microfibers wherein the core is constituted by rigid polymers such as PLA, PET, PTT and the shell is constituted by the biodegradable polyester according to the invention, blend composite fibres, fibres with different sections, from circular to multilobed, staple fibres, woven and nonwoven fabrics or spun bonded or thermobonded for use in sanitary and hygiene products, and in the agricultural and clothing sectors.