



19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA

11 Número de publicación: **2 356 312**

51 Int. Cl.:  
**C09C 1/00** (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

96 Número de solicitud europea: **04701488 .1**

96 Fecha de presentación : **12.01.2004**

97 Número de publicación de la solicitud: **1587881**

97 Fecha de publicación de la solicitud: **26.10.2005**

54 Título: **Pigmento de efecto multicapa con la capa más exterior más gruesa.**

30 Prioridad: **17.01.2003 US 346076**

45 Fecha de publicación de la mención BOPI:  
**06.04.2011**

45 Fecha de la publicación del folleto de la patente:  
**06.04.2011**

73 Titular/es: **BASF CATALYSTS L.L.C.**  
**100 Campus Drive**  
**Florham Park, New Jersey 07932, US**

72 Inventor/es: **Zimmerman, Curtis, J. y**  
**Fuller, Daniel, Stevenson**

74 Agente: **Carpintero López, Mario**

**ES 2 356 312 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**Antecedentes de la invención

Los pigmentos de efecto, conocidos también como pigmentos perlados o nacarados, están basados en el uso de un sustrato laminar, tal como laminilla de vidrio o mica, que se ha recubierto con una capa de óxido de metal. Estos pigmentos exhiben un lustre tipo perla como resultado de la reflexión y la refracción de la luz, dependiendo del espesor de la capa de óxido metálico, pueden exhibir también efectos de color por interferencia.

Los pigmentos de efecto de mica recubierta con dióxido de titanio y mica recubierta con óxido de hierro son los pigmentos de efecto que se encuentran más frecuentemente comercialmente. También son bien conocidos en la técnica, pigmentos en los que el óxido de metal ha sido recubierto con otro material.

Los pigmentos de efecto, disponibles comercialmente, que contienen un único recubrimiento de un material de alto índice de refracción proporcionan solo dos interfaces reflectantes entre los materiales. Estos dos interfaces de material (y reflexiones) son, por lo tanto, completamente responsables de la reflectividad conseguida de la superficie de plaqueta. Un porcentaje considerable de la luz incidente es transmitida, de esta manera, a través de la plaqueta y aunque esto es necesario para crear la apariencia nacarada del pigmento, esto disminuye también otras propiedades ideales de los pigmentos de efecto, tales como lustre, cromaticidad y poder de ocultación. Para contrarrestar esta consecuencia, la técnica ha mezclado los pigmentos de efecto con otros pigmentos o ha añadido capas adicionales de materiales transparentes y/o selectivamente absorbentes sobre el pigmento de efecto.

Los ejemplos de la técnica anterior, que describen pigmentos de efecto multicapa, incluyen JP 7-246366, WO 98/53011, WO 98/53012 y US 4.434.010. Toda esta técnica anterior requiere que cada capa recubierta posea un espesor óptico igual a un número entero múltiple de un cuarto de la longitud de onda a la que se espera la interferencia. Dicha construcción de las denominadas pilas de un cuarto de longitud de onda es una condición ampliamente aceptada e implementada en las industrias de película fina. Debido a esta limitación, una combinación con un único espesor de capa es esencial para crear cada uno de los colores de interferencia individuales del espectro visible. El sustrato base es la única dimensión común a todas las composiciones que muestran diferentes colores de interferencia.

Los documentos WO 02/33010 A y US 6.132.873 divulgan también pigmentos que emplean la teoría del cuarto de onda.

El pigmento del documento WO 02/33010 A está basado en la tecnología de película fina convencional, según se divulga en US 4.434.010, que usa la teoría del cuarto de longitud de onda para desarrollar sus pilas ópticas. El documento WO 02/33010 A indica que puede producirse un número de otros colores simplemente modificando el espesor de diseño de la capa de dióxido de silicio de media longitud de onda, que el espesor y el número de las capas es esencial para las propiedades ópticas del pigmento, y que el espesor de capa debe fijarse en correspondencia a sus índices de refracción. Esta teoría es consistente con la usada en la teoría de un cuarto de longitud onda para el establecimiento de las pilas ópticas de capa fina.

De manera similar, el documento US 6.132.873 se refiere a pigmentos de interferencia multicapa y

se refiere también a US 4.434.010 como antecedente para el estado de la técnica. El documento US 6.132.873 divulga que, preferentemente, se dispone una capa intermedia de manera que el espesor de capa de las capas de óxido de metal de alto índice de refracción corresponda al espesor óptico, o a un múltiplo integral de este espesor óptico, que es necesario para el color de interferencia respectivo. Esta es una reafirmación de la teoría de un cuarto de longitud de onda.

Se ha descubierto ahora que el apego al enfoque de la pila de un cuarto de longitud de onda no es necesario y que pueden conseguirse productos adecuados, incluso con ganancias considerables en lustre, cromaticidad y poder de ocultación, sin observar ese requerimiento. Además, pueden conseguirse numerosas ventajas diferentes.

Consiguientemente, el objeto de la presente invención es proporcionar un nuevo pigmento de efecto multicapa, que tenga un lustre, una cromaticidad y/o un poder de ocultación mejorados con relación a otros pigmentos de efecto.

#### Resumen de la invención

La presente invención se refiere a un pigmento de efecto multicapa y, más particularmente, a un pigmento de efecto multicapa que incluye un sustrato transparente que tiene, sobre el mismo, una capa de material transparente, de alto índice de refracción, y al menos un par de capas que son de un material transparente, de alto índice de refracción, y un material transparente, de bajo índice de refracción, en el que el número total de capas es un número impar, en el que cada dos capas contiguas, diferentes al sustrato, difieren en índice de refracción, en al menos aproximadamente 0,2, y en el que al menos una capa tiene un espesor óptico que es diferente de todas las otras capas, por lo cual el pigmento no es una pila de un cuarto de longitud de onda.

#### Descripción de la invención

Según la presente invención, el pigmento de efecto es un producto con múltiples capas, compuesto de un sustrato transparente que tiene un número impar de capas sobre el mismo, y en el que al menos una de las capas tiene un espesor óptico que es diferente a todas las otras capas, lo que hace que el pigmento no sea una pila de un cuarto de longitud de onda.

Puede usarse cualquier plaqueta transparente, suave y encapsulable, como sustrato en la presente invención. Los ejemplos de plaquetas utilizables incluyen mica, natural o sintética, caolín, laminillas de vidrio y similares. El sustrato no necesita ser totalmente transparente pero debería tener, preferentemente, al menos una transmisión de aproximadamente el 75%. El tamaño del sustrato con forma de plaqueta no es crítico de por sí y puede adaptarse al uso particular. Generalmente, las partículas tienen las dimensiones principales mayores con un promedio de 5-250 micrómetros, preferentemente de 5-100 micrómetros y una relación de aspecto mayor de aproximadamente 5. Su área superficial libre específica (BET) en, generalmente, de aproximadamente 0,2 a 25 m<sup>2</sup>/g.

Las capas que encapsulan el sustrato se alternan entre materiales de alto índice de refracción y materiales de bajo índice de refracción. Los materiales de alto índice de refracción pueden ser dióxido de titanio anatasa, dióxido de titanio rutilo, óxido de hierro, dióxido de circonio, óxido de zinc, sulfuro de zinc, oxiclورو de bismuto o similares. El material de bajo índice de refracción puede ser dióxido de silicio,

fluoruro de magnesio, óxido de aluminio, un polímero, tal como polimetil metacrilato, poliestireno, etileno vinil acetato, poliurea, poliuretano, polidivinil benceno y similares. Puede seleccionarse cualquier combinación de materiales, siempre y cuando las capas contiguas difieran en índice de refracción, en al menos aproximadamente 0,2 y, más preferentemente, en al menos aproximadamente 0,6. Los materiales  
5 son transparentes, pero pueden tener un componente de absorción, tal como óxido de hierro u óxido de cromo.

Las capas individuales pueden ser aplicadas al sustrato y unas a las otras usando técnicas bien conocidas en la materia. Puede utilizarse cualquiera de dichas técnicas. Una de las ventajas de la invención es que pueden usarse técnicas sol-gel para aplicar los recubrimientos. Dichas técnicas son bien  
10 conocidas y practicadas ampliamente para deposición de película fina, y son seguras, económicas y flexibles para una amplia variedad de tamaños y formas de partícula. Las técnicas de deposición química en fase vapor, que han sido usadas en la técnica anterior, tienen un aspecto negativo o letanía que incluye peligros de seguridad, reactivos caros y limitaciones de tamaño de partícula del sustrato e infraestructura. También se han utilizado, en la técnica anterior, técnicas de recubrimiento multicapa  
15 basadas en malla monolítica, y padecen las desventajas de que las partículas de pigmento se forman después de aplicados los recubrimientos, y, por lo tanto, tienen discontinuidades en las capas en los puntos de fractura. Las partículas deben clasificarse también según el tamaño después de fracturar el monolito, mientras que en la presente invención el tamaño de partícula puede estar predeterminado antes del recubrimiento y puede ser constante.

Otra ventaja de la presente invención es que el sustrato y todas las capas tienen un grado de transparencia apreciable y, por lo tanto, los pigmentos resultantes pueden exhibir una reflectividad, dependiente del ángulo, única, en el intervalo desde la reflexión casi total a la transmisión sustancial, según se cambie el ángulo de visión. Muchos pigmentos multicapa de la técnica anterior usan laminillas de metal como sustratos y dichas capas de metal no son capaces de transmitir la luz y el pigmento  
20 resultante es, por lo tanto, totalmente opaco.

Debido a que el pigmento no es una pila de un cuarto de longitud de onda, la primera capa, que es contigua al sustrato, puede tener un espesor fijo y variando el espesor de las otras capas, es posible preparar todos los colores de interferencia deseados.

Aunque puede emplearse cualquier número impar, igual o superior a tres, de capas, se ha  
30 encontrado que hay ventajas considerables presentes cuando hay tres capas, y, por lo tanto, esto es preferente.

El material de bajo índice de refracción es preferentemente sílice y aunque ésta puede tener otros espesores, la capa de sílice tiene, preferentemente, un espesor en el intervalo de aproximadamente 20-80 nm, y, más preferentemente, de aproximadamente 40-80 nm. Esto minimiza el desplazamiento de color dependiente de los grados del ángulo, que es inherente a las películas de sílice. Las capas de sílice que  
35 tienen un espesor mayor de 80 nanómetros producen un intervalo más amplio de colores dependientes del ángulo, lo cual no es siempre deseable.

La primera capa sobre el sustrato y la capa más exterior pueden ser iguales o diferentes, pero,

preferentemente, son iguales, y, más preferentemente, son dióxido de titanio. Se apreciará que cuando la primera capa o la capa más interior tiene un espesor fijo y la capa de bajo índice de refracción tiene también un espesor predeterminado, la capa de alto índice de refracción, más externa, controlará el color de interferencia, como resultado de su espesor. La combinación de sustrato/primer capa/segunda capa actúa, de esta manera, como una base universal, a partir de la cual pueden conseguirse todos los colores de interferencia, simplemente variando el espesor de la tercera capa. El espesor de la tercera capa, cuando es titania, en dicha disposición, varía generalmente de aproximadamente 40 a 250 nm, y, preferentemente, es de aproximadamente 60 - 170 nm.

Los productos de la presente invención pueden ser usados en cualquier aplicación en la que se han utilizado pigmentos perlados hasta la fecha. De esta manera, los productos de la presente invención tienen un uso ilimitado en todos los tipos de aplicaciones de pintura industrial y de automoción, especialmente en el recubrimiento de color orgánico y en el campo de las tintas, donde se requiere una profunda intensidad de color. Por ejemplo, estos pigmentos pueden ser usados en aplicaciones en capa gruesa ("mass tone") o como agentes de estilo para pintar con spray todos los tipos de vehículos de automoción o no automoción. De manera similar, pueden ser usados en todas las superficies de arcilla / formica / madera / vidrio / metal / esmalte / cerámica y porosas o no porosas. Los pigmentos pueden ser usados en composiciones de recubrimiento en polvo. Pueden ser incorporados en artículos de plástico destinados a la industria juguetera o al hogar. Estos pigmentos pueden ser impregnados en fibras para impartir un colorido nuevo y estético a ropas y tapizados. Pueden ser usados para mejorar el aspecto de zapatos, suelos de vinilo/mármol y caucho, revestimientos exteriores de vinilo, y todo el resto de producto de vinilo. Además, estos colores pueden ser usados en todos los tipos de hobbies de modelado.

Las composiciones indicadas anteriormente, en las que las composiciones de la presente invención son útiles, son bien conocidas para las personas con conocimientos ordinarios en la materia. Los ejemplos incluyen tintas de impresión, esmaltes de uñas, lacas, materiales termoplásticos o termoendurecibles, resinas naturales y resinas sintéticas. Algunos ejemplos no limitativos incluyen poliestireno y sus polímeros mezclados, poliolefinas, en particular, polietileno y polipropileno, compuestos poliacrílicos, compuestos de polivinilo, por ejemplo, cloruro de polivinilo y acetato de polivinilo, poliésteres y caucho, y también filamentos realizados en éteres de celulosa y viscosa, ésteres de celulosa, poliamidas, poliuretanos, poliésteres, por ejemplo, poliglicol tereftalatos y poliacrilonitrilo.

Para una introducción completa a una variedad de aplicaciones de pigmentos, véase Temple C. Patton, editor, *The Pigment Handbook*, volumen II, *Applications and Markets*, John Wiley and Sons, New York (1973). Además, véase, por ejemplo, con relación a las tintas: Leach, editor, *The Printing Ink Manual*, Cuarta Edición, Van Nostrand Reinhold (International) Co. Ltd., London (1988), particularmente las páginas 282-591; con relación a las pinturas: C.H. Hare, *Protective Coatings*, Technology Publishing Co., Pittsburgh (1994), particularmente las páginas 63-288. Las referencias anteriores se incorporan a la presente memoria, por referencia, por sus enseñanzas sobre las composiciones y formulaciones de tinta, pintura y plásticas y los vehículos en los que las composiciones de la presente invención pueden ser usadas, incluyendo las cantidades y los colorantes. Por ejemplo, el pigmento puede ser usado a un nivel

del 10 al 15% en una tinta litográfica para impresión offset, siendo el resto un vehículo que contiene resinas de hidrocarburos, gelificadas o no gelificadas, resinas alquídicas, compuestos de cera y solvente alifático. El pigmento puede ser usado también, por ejemplo, en un nivel del 1 al 10% en una formulación de pintura para la automoción, junto con otros pigmentos que pueden incluir dióxido de titanio, redes  
5 acrílicas, agentes coalescente, agua o solventes. El pigmento puede ser usado también, por ejemplo, a un nivel del 20 al 30% en un concentrado de color plástico en polietileno.

En el campo de la cosmética y del cuidado personal, estos pigmentos pueden ser usados en la zona del ojo y en todas las aplicaciones externas y en enjuagues. Están restringidos solo para la zona de los labios. De esta manera, pueden ser usados en sprays para el pelo, polvo facial, maquillaje para  
10 piernas, loción repelente de insectos, torta/crema para mascarilla, esmalte de uñas, quita esmalte de uñas, loción de perfume y champús de todos los tipos (gel o líquido). Además, pueden ser usados en cremas de afeitado (concentrado para aerosol, sin brocha, para enjabonado), barra abrillantadora de piel, maquillaje de piel, crema para el cabello, sombra de ojos (líquida, pomada, polvo, barra, comprimida o crema), delineador de ojos, barra de desodorante, colonia, emoliente de colonia, baño de burbujas, loción  
15 corporal (hidratante, limpiadora, analgésica, astringente), loción para después del afeitado, leche para después del baño y loción protectora solar.

Para ilustrar adicionalmente la invención, a continuación se exponen varios ejemplos. En estos ejemplos, así como a lo largo de la presente especificación y las reivindicaciones, todas las partes y los porcentajes son en peso y todas las temperaturas son en grados centígrados, si no se indica lo contrario.

#### 20 Ejemplo 1

En un matraz Morton, de 1 litro, se añade una solución de 420 ml de isopropanol, 32 ml de agua destilada y 4 ml de una solución acuosa de  $\text{NH}_4\text{OH}$  al 29%. A esta solución agitada, se añaden 300 gramos de polvo de laminilla de vidrio recubierta con  $\text{TiO}_2$ , reflectante, blanco (G130L, Reflects Pinpoints of Pearl, Engelhard Corporation). La suspensión resultante es agitada y calentada a  $60^\circ\text{C}$ .

25 Una carga de 33,2 gramos de tetraetoxisilano es añadida a la suspensión, que se agita durante 18 horas. A continuación, la suspensión es filtrada en vacío, y la torta de prensa es secada en un horno a  $120^\circ\text{C}$ , durante 16 horas. El rendimiento del producto secado es de 307,4 gramos, y el color masivo es un rojo tenue que no es visible en la suspensión de reacción.

En un matraz Morton, de 2 litros, equipado con calentador, agitador y control de temperatura, se  
30 añaden 550 ml de agua desmineralizada y 278 gramos del producto intermedio, preparado anteriormente, recubierto de sílice. El pH de la suspensión en agitación es ajustado a 1,5, y la temperatura se fija a  $79^\circ\text{C}$ . Mientras se mantiene el pH a 1,5, se añaden 16,7 gramos de una solución  $\text{SnCl}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  al 18%, a una tasa constante, durante 60 minutos, y, a continuación, la suspensión es agitada a los valores predeterminados de temperatura y pH, durante 30 minutos después de la adición. Mientras se mantiene el pH a 1,5 y la  
35 temperatura a  $79^\circ\text{C}$ , 50 ml de una solución acuosa de  $\text{TiCl}_4$  al 40% son añadidos, a continuación, durante 60 minutos. La suspensión es filtrada, y la torta de prensa es aclarada con agua y es secada durante 16 horas a  $120^\circ\text{C}$ . El rendimiento del producto final es de 315 gramos.

Una pequeña porción (5 gramos) del producto final recubierto con  $\text{TiO}_2$  es calcinada a  $600^\circ\text{C}$

durante 20 minutos. El producto secado a 120°C y el producto calcinado a 600°C son comparados con el material de inicio con un único recubrimiento (G130L, Engelhard Corporation) como descensos del nivel de polvo del 12% en laca de nitrocelulosa. La reflectividad de todas las muestras es evaluada, tanto visual como instrumentalmente. Un gran incremento en la reflectividad es impartido al material de inicio G130L mediante la aplicación de los 2 recubrimientos adicionales.

#### Ejemplo 2

En un matraz Morton, de 2 litros, se añade una solución de 900 ml de isopropanol, 190 ml de agua destilada y 17 ml de una solución acuosa de NH<sub>4</sub>OH al 29%. A esta solución agitada, se añaden 300 gramos de un polvo de mica recubierto con TiO<sub>2</sub>, reflectante, blanco, (Timica Sparkle™, 110P, Engelhard Corporation).

Una carga de 176,8 gramos de tetraetoxisilano es añadida a la suspensión a 60°C, que es agitada durante 18 horas. A continuación, la suspensión es filtrada en vacío, y la torta de prensa es secada a 120°C durante 16 horas. El rendimiento del producto recubierto de sílice es de 355 gramos. El material muestra un color de reflexión rojo tenue en forma masiva, que no es visible en la suspensión de reacción.

En un matraz Morton, de 3 litros, equipado con calentador, agitador y control de temperatura, se añaden 1000 ml de agua desmineralizada y 150 gramos del producto intermedio recubierto de sílice, obtenido en el procedimiento de recubrimiento anterior. Mientras se agita a una tasa constante, la suspensión es calentada al valor predeterminado de 74°C, y el pH se ajusta a 1,6. A continuación, 23,5 gramos de una solución de SnCl<sub>4</sub>.5H<sub>2</sub>O al 18%, son bombeados a la suspensión, durante 15 minutos, mientras se mantiene el pH a 1,6. La suspensión se deja agitando durante 30 minutos, después de la adición.

Mientras se mantiene la temperatura, la tasa de agitación y el pH de la suspensión en los valores para la adición del reactivo anterior, una solución acuosa de TiCl<sub>4</sub> al 40% es añadida a la suspensión a una tasa de 0,65 ml por minuto. Durante la adición, pequeñas alícuotas de la suspensión son extendidas sobre una placa de vidrio negro para supervisar el lustre y el color de las plaquetas de pigmento. Después de añadir 100 ml de solución de TiCl<sub>4</sub>, todavía no hay ningún incremento en el lustre de las partículas, la adición se termina y la suspensión es filtrada y el producto es secado a 120°C. El rendimiento del producto es de 170 gramos. El producto es comparado con el material de inicio con un único recubrimiento (Timica Sparkle) como un descenso del nivel de pigmento del 3% en laca de nitrocelulosa. La pintura secada muestra un lustre inferior al material de inicio, y una severa aglomeración de partículas.

#### Ejemplo 3

Una suspensión acuosa de 420 gramos de laminilla de borosilicato recubierta con óxido de hierro (G270L, REFLECKS™, Blazing Bronze, Engelhard Corporation), 590 ml de isopropanol, 45 ml de agua y 5,6 ml de una solución de NH<sub>4</sub>OH al 29% es calentada a 60°C y es agitada en un recipiente de reacción. A continuación, 46,5 gramos de tetraetoxisilano son añadidos a la suspensión acuosa y se agita a esa temperatura durante 20 horas. La suspensión acuosa es filtrada en vacío y el producto es secado durante 24 horas a 135°C, proporcionando 432,2 gramos. Una suspensión acuosa de 416 gramos del producto recubierto de sílice, indicado anteriormente, en 756 ml de agua es agitada en un recipiente de reacción y

es calentada a 79°C. El pH de la suspensión acuosa es ajustado a 1,5. Una suspensión acuosa que contiene 8,93 gramos de  $\text{SnCl}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  es bombeada en la suspensión acuosa durante un periodo de 2 horas, mientras se mantiene el pH a 1,5 con una solución de  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  al 10%. Después de completada la adición, la temperatura de la suspensión acuosa es elevada a 82°C y el pH es ajustado a 3,0 con una solución de  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  al 10%. Una solución acuosa de  $\text{FeCl}_3$  al 39% es bombeada, a 0,4 g/min, mientras se controla el pH a 3,0 con la solución de  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  al 10%. La adición se detiene después de añadir 81,8 gramos de la solución de hierro, y, a continuación, la suspensión acuosa es filtrada en vacío, la torta de prensa es lavada con agua y, a continuación, es calcinada durante 90 minutos a 650°C.

El producto calcinado y las laminilla de vidrio recubierta con óxido de vidrio base se comparan como descensos del nivel de polvo del 12% en laca de nitrocelulosa. Se observa que el producto calcinado exhibe una sombra bronce con reflectividad y cromaticidad superiores a las del material base.

#### Ejemplo 4

Una suspensión acuosa de 420 gramos de laminilla de borosilicato recubierta de dióxido de titanio (G130L, REFLECKS™ Pinpoints of Pearl, Engelhard Corporation), 590 ml de isopropanol, 45 ml de agua y 5,6 ml de una solución de  $\text{NH}_4\text{OH}$  al 29%, es calentada a 60°C y es agitada en un recipiente de reacción. A continuación, 46,5 gramos de tetraetoxisilano son añadidos a la suspensión acuosa y se agita a esa temperatura durante 20 horas. La suspensión acuosa es filtrada en vacío y el producto es secado durante 24 horas a 135°C, proporcionando 432,2 gramos. Se prepara una suspensión acuosa con 416 gramos del producto recubierto de sílice, indicado anteriormente, en 756 ml de agua, se agita en un recipiente de reacción y se calienta a 79°C. El pH de la suspensión acuosa es ajustado a 1,5. Una solución acuosa, que contiene 8,93 gramos de  $\text{SnCl}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ , es bombeada a la suspensión acuosa durante un periodo de 2 horas, mientras se mantiene el pH a 1,5, con una solución de  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  al 10%. Después de completada la adición, la temperatura de la suspensión acuosa es elevada a 82°C y el pH es ajustado a 3,0 con una solución de  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  al 10%. Una solución acuosa de  $\text{FeCl}_3$  al 39% es bombeada, a 0,4 g/min, mientras se controla el pH a 3,0 con una solución de  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  al 10%. La adición se detiene después de añadir 81,8 gramos de la solución de hierro, y la suspensión acuosa es filtrada en vacío, la torta de prensa es lavada con agua y es calcinada durante 90 minutos a 650°C.

El producto calcinado y la laminilla de vidrio recubierta de óxido de hierro base son comparados como descensos del nivel de polvo del 12% en laca de nitrocelulosa. Se observa que el producto calcinado exhibe una sombra bronce con reflectividad y cromaticidad superiores a las del material base.

#### Ejemplo 5

Los datos siguientes se han desarrollado realizando simulaciones con un software de modelado de película fina, sobre pigmentos de esta invención, empleando un sustrato de vidrio de 1 micrómetro de espesor. La primera línea representa la muestra perlada blanca, preparada según se ha descrito en el Ejemplo 1.



Color objetivo	Primera capa de TiO <sub>2</sub> , Nm	Capa de sílice, Nm	Segunda capa de TiO <sub>2</sub> , Nm	L*	a*	b*
Blanco	62	80	57	90,6	-2,6	0,2
Blanco	62	0	0	75,5	0,6	0,4
Amarillo	62	80	87	84,2	-1,2	54,0
Amarillo	87	0	0	64,3	5,2	37,6
Amarillo	69	113	69	84,3	-4,0	67,5
Rojo	62	80	101	74,7	33,5	-0,7
Rojo	101	0	0	51,4	28,3	0,1
Violeta	62	40	129	57,1	54,0	-53,3
Violeta	111	0	0	44,6	36,2	-36,7
Azul	62	40	144	59,0	1,1	-56,3
Azul	128	0	0	51,7	-0,3	-45,4
Verde	62	40	172	78,1	-44,2	0,5
Verde	157	0	0	70,9	-19,1	-0,5
Verde	155	254	155	72,1	-58,8	-1,2

Los datos L\*, a\* y b\* son para reflexión especular e incidencia normal.

#### Ejemplo 6

5 El pigmento de la presente invención puede ser formulado en una sombra de ojos en polvo, dispersando y mezclando completamente los materiales siguientes:

Ingredientes	Partes en peso
Mearltalc TCA <sup>®</sup> (Talco)	18
Mearlmica <sup>®</sup> SVA (Mica)	20
Miristato de magnesio	5
Sílice	2
Cloisonné <sup>®</sup> Red 424C (mica recubierta con TiO <sub>2</sub> rojo)	20
Cloisonné <sup>®</sup> Violet 525C (mica recubierta con TiO <sub>2</sub> violeta)	13
Cloisonné <sup>®</sup> Nu-Antique Blue 626CB (mica recubierta con TiO <sub>2</sub> /mica recubierta con óxido de hierro)	2
Cloisonné <sup>®</sup> Cerise Flambé 550Z (mica recubierta con óxido de hierro)	2
Conservantes y antioxidante	q.s.

10 A continuación, 7 partes de palmitato de octilo y 1 parte de neopentanoato de isostearilo son calentadas y mezcladas hasta la uniformidad, momento en el que la mezcla resultante es esparcida en la dispersión y se continúa con el mezclado. El material mezclado es pulverizado y, a continuación, se añaden 5 partes de Cloisonne Red 424C y 5 partes del pigmento de la presente invención y se mezcla hasta que se obtiene una sombra de ojos en polvo uniforme.

Ejemplo 7

El pigmento puede ser formulado en una barra de labios colocando las cantidades siguientes de los ingredientes listados en un recipiente calentado y elevando la temperatura a  $85 \pm 3^{\circ}\text{C}$ :

Ingredientes	Partes en peso
Cera de candelilla	2,75
Cera de carnauba	1,25
Cera de abeja	1,00
Cera de ceresina	5,90
Cera de ozoquerita	6,75
Cera microcristalina	1,40
Alcohol de oleílico	3,00
Palmitato de isosteárido	7,50
Isosteárido de isosteárido	5,00
Triglicérido caprílico/cáprico	5,00
Adipato de bis-diglicerilpolialcohol	2,00
Alcohol lanolínico acetilado	2,50
Triesteárido de sorbitán	2,00
Aloe vera	1,00
Aceite de ricino	37,50
Red 6 Lake	0,25
Acetato de tocoferilo	0,20
Fenoxietanol, isopropilparabeno y butilparabeno	1,00
Antioxidante	q.s.

- 5 Una mezcla de 13 partes del pigmento de la presente invención y 1 parte de caolín son añadidas y mezcladas hasta que todo el pigmento está bien dispersado. Se añade fragancia según se desee y se mezcla con agitación. La mezcla resultante es vertida en moldes a  $75 \pm 5^{\circ}\text{C}$ , se deja enfriar y se funde en barras de labios.

## REIVINDICACIONES

1. Pigmento de efecto multicapa, que comprende:
  - un sustrato transparente que tiene una capa de un material transparente de alto índice de refracción sobre el mismo,
  - al menos un par de capas transparentes, una de las cuales es un material de alto índice de refracción y la otra de las cuales es un material de bajo índice de refracción,en el que el número total de capas es un número impar, cada capa difiere en índice de refracción de cualquier capa contigua, en al menos aproximadamente 0,3, y en el que al menos una capa tiene un espesor óptico que es diferente de todas las otras capas, por lo que el pigmento no es una pila de un cuarto de longitud de onda.
2. Pigmento de efecto multicapa, según la reivindicación 1, en el que todas las capas del material de alto índice de refracción son el mismo material y todas las capas del material de bajo índice de refracción son el mismo material.
3. Pigmento de efecto multicapa según la reivindicación 2, en el que el material de alto índice de refracción es dióxido de titanio y el material de bajo índice de refracción es dióxido de silicio.
4. Pigmento de efecto multicapa según la reivindicación 3, en el que el espesor de cada capa de dióxido de silicio es de aproximadamente 40 a 80 nm.
5. Pigmento de efecto multicapa según la reivindicación 4, en el que el número total de capas es tres.
6. Pigmento de efecto multicapa según la reivindicación 5, en el que la capa de dióxido de titanio más exterior en relación al sustrato tiene un espesor mayor que cualquier otra capa de dióxido de titanio.
7. Pigmento de efecto multicapa según la reivindicación 6, en el que la capa de dióxido de titanio más exterior sobre el sustrato transparente tiene un espesor de aproximadamente 60 - 170 nm.
8. En una composición de pintura o tinta que incluye un pigmento, siendo la mejora que comprende dicho pigmento el pigmento de efecto según la reivindicación 1.
9. En una composición plástica que incluye un pigmento, siendo la mejora que comprende dicho pigmento el pigmento de efecto según la reivindicación 1.
10. En una composición cosmética que incluye un pigmento, siendo la mejora que comprende dicho pigmento el pigmento de efecto según la reivindicación 1.