

19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 379 492**

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

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

- 96 Número de solicitud europea: **07023303 .6**  
96 Fecha de presentación: **30.11.2007**  
97 Número de publicación de la solicitud: **1935946**  
97 Fecha de publicación de la solicitud: **25.06.2008**

54 Título: **Relleno, proceso para producir el mismo, y cosmético**

30 Prioridad:  
**22.12.2006 JP 2006345638**

45 Fecha de publicación de la mención BOPI:  
**26.04.2012**

45 Fecha de la publicación del folleto de la patente:  
**26.04.2012**

73 Titular/es:  
**MERCK PATENT GMBH  
FRANKFURTER STRASSE 250  
64293 DARMSTADT, DE**

72 Inventor/es:  
**Noguchi, Tamio;  
Watanabe, Yukitaka y  
Sasaki, Fumiko**

74 Agente/Representante:  
**Carvajal y Urquijo, Isabel**

**ES 2 379 492 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

Relleno, proceso para producir el mismo, y cosmético

[Campo técnico]

5 La presente invención se refiere a un relleno usado en varias aplicaciones. Específicamente, la presente invención se refiere a un relleno para un cosmético, particularmente apropiado para su uso en una base.

[Antecedentes de la técnica]

10 Entre los cosméticos de maquillaje, constantemente se solicitan bases aplicadas a la piel con un tacto cómodo y favorable, buena adherencia a la piel y más larga duración (Material Technology (ZAIROYO GIJYUTSU en japonés), 16 (2), 64 (1998)). La mica delgada en forma de escamas se usa en las bases porque puede tener buena extensibilidad y adhesión y produce comodidad (Journal of the Society of Powder Technology, Japan, 21, (9), 565, (1984)). Sin embargo, el uso de mica sola no es preferible porque la mica, cuando se mezcla con aceite, presenta un brillo no natural. Para reducir este brillo, los presentes inventores han propuesto un relleno para una base que comprende mica recubierta en su superficie con una fina partícula de un óxido metálico y con un denominado foco suave característico, realizando una propiedad de dispersión de la luz en la superficie. Por ejemplo, la publicación de patente japonesa nº H2-42388 (Documento de patente 1) y la patente japonesa abierta a inspección pública nº H5-287212 (Documento de patente 2) han desvelado un relleno que comprende mica recubierta en su superficie con partículas de sulfato de bario con óxido de titanio finamente agregado y partículas de óxido de titanio. La patente japonesa abierta a inspección pública nº 2001-098186 (Documento de patente 4) ha revelado un relleno que comprende mica recubierta con óxido de silicio con particulado esférico y partículas de óxido de titanio.

20 En la última moda, las bases que se sirven de la transparencia como un factor de piel bella, mejoran el tono de la piel, consiguen un maquillaje más natural y tienen el efecto superior de enmascarado de las arrugas, se han solicitado para producir una belleza saludable (véase, p. ej., J. Soc. Cosmet. Chem. Jpn. 39 (3), 201-208, (2005) (Documento de no patente 1); Skin and Beauty (HIFU TO BIYO en japonés), 124 (4), 4080 (1992) (Documento de no patente 2); y Surface (HYOMEN en japonés), 30(9), 703 (1992) (Documento de no patente 3)). Hay que decir que, como funciones ópticas de las bases, se han solicitado propiedades que permitan cubrir el color irregular de la piel, las arrugas y similares, con una película fina dando un acabado luminoso y natural. Además, las bases se aplican sobre la piel y por tanto, por supuesto, es necesario que den una buena sensación de uso.

30 Se han estudiado una variedad de rellenos para ser contenidos en las bases, con objeto de mejorar la funcionalidad de las bases. En particular, la mica recubierta con óxido de titanio, un pigmento iridiscente de perla con color de interferencia, ha recibido atención al poder cubrir el color irregular de la piel y las arrugas mediante su luz transmitida. Sin embargo, la mica recubierta con óxido de titanio genera un brillo no natural en la piel. Para reducir el brillo, se sabe que sobre la mica recubierta con óxido de titanio se depositan de forma dispersa sulfato de bario o partículas finas de polímero para la dispersión de la luz (FRAGRANCE JOURNAL, 34 (2) 67 (2006) (Documento de no patente 4) y FRAGRANCE JOURNAL, 28 (5) 13 (2000) (Documento de no patente 5)). Sin embargo, estos rellenos sólo están pensados para la dispersión de la luz sobre la superficie y, por tanto, no tienen una naturaleza transparente y provocan el problema de un acabado blanquecino o pulverulento en el maquillaje facial.

40 Se han propuesto rellenos con mejor naturaleza transparente, lo que incluye un polvo compuesto inorgánico que comprende dos o más tipos de óxidos inorgánicos con diferentes índices de refracción respectivamente y laminados secuencialmente desde el de índice de refracción mayor en el fondo sobre un sustrato delgado en forma de escamas, como la mica (WO99/49834 (Documento de patente 5)), un pigmento esférico de interferencia de tipo laminado que comprende una estructura núcleo-cubierta donde un óxido metálico con un índice de refracción bajo y un óxido metálico con un índice de refracción alto forman capas alternativamente (Patente japonesa abierta a inspección pública nº 2003-55573 (Documento de patente 6)), un material compuesto que bloquea los rayos UV, que comprende mica recubierta con sílica con un índice de refracción bajo y óxido de titanio con un índice de refracción alto alternativamente (J. Soc. Cosmet. Chem. Jpn. 40 (1) 34 (2006) (Documento de no patente 6)), y un relleno recubierto en su superficie con una capa semitransparente como un relleno donde un sustrato delgado en forma de escamas, como la mica, se recubre con óxido de hierro y después se recubre con sílica (FRAGRANCE JOURNAL, 34 (2) 74 (2006) (Documento de no patente 7)).

[Documento de patente 1] Publicación de patente japonesa nº H2-42388

50 [Documento de patente 2] Patente japonesa abierta a inspección pública nº H5-287212

[Documento de patente 3] Publicación de patente japonesa nº H8-13943

[Documento de patente 4] Patente japonesa abierta a inspección pública nº 2001-098186

[Documento de patente 5] WO99/49834

[Documento de patente 6] Patente japonesa abierta a inspección pública nº 2003-55573

[Documento de no patente 1] J. Soc. Cosmet. Chem. Jpn. 39 (3), 201-208, (2005)

[Documento de no patente 2] Skin and Beauty (HIFU TO BIYO en japonés), 124 (4), 4080 (1992)

5 [Documento de no patente 3] Surface (HYOMEN en japonés), 30 (9), 703 (1992)

[Documento de no patente 4] FRAGRANCE JOURNAL, 34 (2) 67 (2006)

[Documento de no patente 5] FRAGRANCE JOURNAL, 28 (5) 13 (2000)

[Documento de no patente 6] J. Soc. Cosmet. Chem. Jpn. 40 (1), 34 (2006)

[Documento de no patente 7] FRAGRANCE JOURNAL, 34 (2) 74 (2006)

10 [Descripción de la invención]

[Problemas que debe solucionar la invención]

15 Sin embargo, ningún relleno cosmético convencional, a la vez con buen equilibrio, ha satisfecho la capacidad de cobertura para cubrir suficientemente el color irregular de piel, manchas, lunares, arrugas, poros y similares, una piel bella y natural con transparencia para dar una imagen saludable, un tono de piel suave y buena sensación de uso. En particular, aún no se ha encontrado un material que tenga transparencia a la vez que una propiedad de dispersión de la luz moderada y capacidad de cobertura suficiente, es decir, un relleno que presente los llamados efectos nebulosos, excelente en una propiedad de dispersión moderada frente a la luz transmitida, como en las gafas empañadas.

Un objeto de la presente invención es proporcionar un relleno capaz de mostrar efectos nebulosos semitransparentes, como en gafas empañadas.

20 [Medidas para solucionar los problemas]

La presente invención se refiere a los temas siguientes.

1. Un relleno que comprende:

un sustrato delgado en forma de escamas, transparente o semitransparente;

25 una capa de partícula o capa de recubrimiento (en adelante se denominará primera capa) que se forma en la superficie del sustrato delgado en forma de escamas y contiene un óxido hidratado, carbonato o producto calcinado de los mismos, de al menos un metal (en adelante se denominará primer metal) seleccionado del grupo consistente en Mg, Al y Ca;

30 una capa de recubrimiento (en adelante se denominará segunda capa) que recubre el sustrato delgado en forma de escamas que comprende la primera capa formada encima y contiene un óxido de Si hidratado o un producto calcinado del mismo; y una capa de recubrimiento (en adelante se denominará tercera capa) que recubre la segunda capa y contiene un óxido de Ti hidratado o un producto calcinado del mismo.

2. Un relleno según el punto 1 anterior, en el que el sustrato delgado en forma de escamas tiene una forma con una relación de aspecto de 10 a 100 representada por el diámetro promedio de partícula/grosor promedio y un diámetro de partícula promedio de 5 a 20  $\mu\text{m}$ .

35 3. Un relleno según el punto 1 o 2 anterior, en el que el sustrato delgado en forma de escamas se selecciona del grupo consistente en mica natural y sintética, alúmina delgada en forma de escamas, talco, escamas de vidrio, caolín y sílica delgada en forma de escamas.

40 4. Un relleno según cualquiera de los puntos del 1 al 3 anteriores, en el que una interfaz entre la segunda capa y la tercera capa tiene, en un intervalo de distancia de 1  $\mu\text{m}$ , la aspereza de una segunda capa, donde la diferencia entre la altura mayor y la menor desde la superficie del sustrato va de 30 nm a 200 nm.

5. Un relleno según cualquiera de los puntos del 1 al 4 anteriores, en el que el relleno comprende agregados de 70 nm a 500 nm formados por cristales de óxido de Ti hidratado o un producto calcinado del mismo en la superficie.
6. Un relleno según cualquiera de los puntos del 1 al 5 anteriores, en el que la proporción en peso de cada capa respecto a todo el relleno es
- 5 1 a 7% en peso de la primera capa en términos de un óxido metálico del primer metal,  
10 a 40% en peso de la segunda capa en términos de dióxido de silicio, y  
20 a 50% en peso de la tercera capa en términos de dióxido de titanio.
7. Un relleno según cualquiera de los puntos del 1 al 6 anteriores, en el que una película de recubrimiento seco que incluye un 20% en peso del relleno y tiene un grosor de película de 7,0 a 15  $\mu\text{m}$  muestra una transmitancia luminosa perfecta ( $\tau$ ) del 70% o superior, una transmitancia de luz paralela del 20% o superior, cada una según ISO 13468-1 (JIS K7361) y una turbidez de 40 a 70 según ISO 14782 (JIS K7136).
- 10
8. Un relleno según cualquiera de los puntos del 1 al 7 anteriores, en el que el relleno tiene una absorción de aceite de 80 a 150 ml/100 g.
9. Un relleno según cualquiera de los puntos del 1 al 8 anteriores, en el que el relleno tiene un coeficiente de fricción (valor MIU) de 0,75 o inferior medido con un medidor de fricción KES.
- 15
10. Un proceso para producir un relleno, que comprende:
- una etapa de formación de la primera capa de suspensión en agua de un sustrato delgado en forma de escamas transparente o semitransparente y la adición gradual a esta suspensión, bajo condiciones neutras o básicas, de una solución acuosa de una sal de al menos un metal (en adelante, se denominará primer metal) seleccionada del grupo consistente en soluciones acuosas de Mg, Al y Ca y una solución acuosa alcalina o una solución acuosa de carbonato, depositándose de este modo un óxido hidratado y/o carbonato del primer metal en forma de partícula o capa sobre la superficie del sustrato delgado en forma de escamas;
- 20
- una etapa de formación de la segunda capa, de adición gradual de una solución acuosa alcalina de ácido silícico y dilución del ácido mineral al mismo tiempo bajo condiciones neutras o básicas, recubriendo de este modo con un óxido de Si hidratado el sustrato delgado en forma de escamas que comprende la primera capa formada encima; y
- 25
- una etapa de formación de la tercera capa, de adición gradual de una solución acuosa de una sal de Ti y una solución acuosa alcalina al mismo tiempo bajo condiciones ácidas, recubriendo de este modo con un óxido de Ti hidratado el sustrato delgado en forma de escamas que comprende la segunda capa formada encima.
11. Un proceso según el punto 10 anterior, que comprende además una etapa de calcinado del sustrato delgado en forma de escamas tras la formación de la tercera capa.
- 30
12. Uso del relleno según cualquiera de los puntos del 1 al 9 anteriores en cosméticos, lacas, plásticos, tintas, tintas de impresión y recubrimientos.
13. Un cosmético que contiene 1-50 % en peso basado en la formulación cosmética de un relleno según cualquiera de los puntos 1 a 9 anteriores.
- 35 [La mejor forma de llevar a cabo la invención]
- A continuación, un relleno de la presente invención se describirá junto con un proceso de producción de la presente invención.
- Un sustrato delgado en forma de escamas usado en el relleno puede ser cualquier sustancia transparente o semitransparente. Para usos en cosmética se prefiere en particular una sustancia con poco brillo. Específicamente, son preferibles mica natural como moscovita y sericita, mica sintética, alúmina delgada en forma de escamas, talco, escamas de vidrio, caolín y sílica delgada en forma de escamas y similares. Entre ellos, se recomiendan preferiblemente micas como la moscovita y la sericita, que son económicas y su suministro es altamente estable.
- 40
- El tamaño de partícula del sustrato delgado en forma de escamas es preferiblemente 5 a 20  $\mu\text{m}$  en diámetro de partícula promedio. Si el diámetro de partícula promedio es demasiado pequeño, es difícil obtener la semitransparencia

necesaria debido a la agregación. Si el diámetro de partícula promedio es demasiado grande, es difícil obtener una textura favorable para la piel. La relación de aspecto (diámetro de partícula promedio/ grosor promedio) del sustrato delgado en forma de escamas es 10 a 100, preferiblemente 20 a 50. Una relación de aspecto demasiado pequeña (grosor demasiado grande) no es preferible porque aumenta una propiedad de cubrimiento (se reduce la transparencia). Por otro lado, una relación de aspecto demasiado grande proporciona una transparencia demasiado elevada y presenta el problema de que no se mantiene la resistencia mecánica de la propia partícula. En referencia al tamaño de partícula, "promedio" significa volumen promedio y medido con, por ejemplo, Mastersizer-2000 fabricado por Malvern Instruments Ltd.

En una etapa de formación de la primera capa, un óxido hidratado y/o carbonato de al menos un metal (primer metal) seleccionado del grupo consistente en Mg, Al y Ca se deposita sobre la superficie del sustrato delgado en forma de escamas. Específicamente, la partícula de sustrato delgado en forma de escamas se suspende en agua y a esta suspensión se le añade gradualmente una solución acuosa de una sal del primer metal, por ejemplo, gota a gota, normalmente con agitación. Al mismo tiempo, una solución acuosa alcalina o una solución acuosa de carbonato se añade gradualmente, por ejemplo gota a gota, para de este modo depositar el primer metal en forma de óxido hidratado y/o carbonato sobre la superficie del sustrato. En este contexto, la frase "añadido gradualmente" significa añadir gradualmente en la medida que permita que casi toda la cantidad del óxido hidratado y/o carbonato del primer metal añadido se deposite sobre el sustrato delgado en forma de escamas. Lo mismo se aplica a la segunda y tercera capas descritas abajo. Las capas depositadas en la superficie indican que el sustrato está completamente recubierto con la primera capa y no contiene ningún borde abierto. La segunda capa y la tercera capa cubren completamente el sustrato recubierto.

La sal del primer metal puede ser una sal soluble en agua. Los ejemplos de la sal de Mg incluyen cloruro de magnesio, sulfato de magnesio y nitrato de magnesio. Los ejemplos de la sal de Al incluyen cloruro de aluminio, sulfato de aluminio, nitrato de aluminio, aluminato sódico y aluminato potásico. Los ejemplos de la sal de Ca incluyen cloruro cálcico y nitrato cálcico. Estas sales se pueden mezclar o de forma alternativa se pueden usar diferentes sales del mismo metal o sales de diferentes metales. El sustrato delgado en forma de escamas está recubierto con óxidos hidratados y/o carbonatos que comprenden dos o más metales, o en forma de metal compuesto, usando las sales de diferentes metales. Al se prefiere particularmente como primer metal. Así, se emplea preferiblemente la sal de Al.

Simultáneamente a la adición de la solución acuosa de la sal del primer metal, se puede añadir una solución acuosa alcalina o una solución acuosa de carbonato a la suspensión de partículas de sustrato delgado en forma de escamas para de este modo depositar el óxido hidratado o carbonato del primer metal sobre la superficie del sustrato. Para convertir el primer metal a la forma de óxido hidratado se usa un compuesto alcalino. Por ejemplo, es preferible hidróxido sódico o hidróxido potásico. Para convertir el primer metal a la forma carbonato se usa carbonato sódico, carbonato potásico o similares. En general, se usan en forma de solución acuosa.

Para la adición de la solución acuosa de la sal del primer metal y la solución acuosa alcalina o la solución acuosa de carbonato, se prefiere que las condiciones como el pH en la suspensión, la temperatura y el tiempo de adición se ajusten para alcanzar los propósitos pretendidos. En general, la suspensión se mantiene a condiciones neutras o básicas, en particular a condiciones básicas débiles, por ejemplo a un pH de 5 a 10, en particular es preferible de 6 a 9. La temperatura se puede ajustar apropiadamente y se encuentra en el intervalo, por ejemplo, de temperatura ambiente a 100°C, preferiblemente de 40 a 90°C. La cantidad total de primer metal añadido se puede depositar sobre la superficie del sustrato mediante selección apropiada de las condiciones.

En la presente invención, la primera capa que comprende el óxido hidratado y/o carbonato del primer metal depositado encima es preferiblemente un 1 a 7% en peso en términos de su peso de óxido metálico con respecto al peso total del relleno (lo que significa la suma total del peso del sustrato y todos los pesos de la primera a la tercera capa en términos de peso de su óxido metálico, lo mismo se aplica a las descripciones siguientes). La cantidad de uso puede ser grande para el sustrato delgado en forma de escamas usado con una gran área superficial (pequeño diámetro de partícula promedio), mientras que la cantidad de uso puede ser pequeña para el sustrato delgado en forma de escamas con un diámetro de partícula grande.

La cantidad de la deposición de la primera capa tiene una gran influencia en el rendimiento del relleno de la presente invención. Preferiblemente, una segunda capa de óxido de Si hidratado tiene aspereza en su superficie, como se describe más adelante. La cantidad de la deposición de la primera capa tiene una influencia en la aspereza de la superficie de la segunda capa. Si la primera capa está ausente o se ha depositado en una cantidad demasiado pequeña, la capa de recubrimiento del óxido de Si hidratado no se puede formar sobre el sustrato delgado en forma de escamas. Por otro lado, si la cantidad de la primera capa es demasiado grande, el grosor del recubrimiento aumenta, dando como resultado que la capa de recubrimiento del óxido de Si hidratado tiene una superficie plana y suave, que es menos probable que se vuelva áspera.

Así, la cantidad de la primera capa depositada es particularmente preferible de un 2 a 7% en peso, más preferiblemente 2,5 a 6% en peso. La primera capa se deposita en forma de partículas o en forma de capa sobre la superficie del sustrato delgado en forma de escamas. Cuando la cantidad de la primera capa, aunque en forma de

capa, se encuentra dentro del intervalo descrito arriba, se forma aspereza en la superficie de la segunda capa de óxido de Si hidratado. El término "en forma de partículas o en forma de capa" usado aquí se define indicando cualquier estado intermedio entre "partículas" y "capa continua" además de "partículas" y "capa continua".

5 En la etapa posterior de formación de la segunda capa, los sustratos delgados en forma de escamas que comprenden la primera capa formada encima se recubren con el óxido de Si hidratado. Un compuesto alcalino de ácido silícico para la formación de la capa de óxido de Si hidratado se selecciona entre silicato sódico, silicato potásico y similares. Preferiblemente, se usan en forma de solución acuosa. Los ejemplos de ácido mineral añadido simultáneamente (preferiblemente, gota a gota) incluyen ácido clorhídrico, ácido sulfúrico y ácido nítrico. Preferiblemente, se diluyen respectivamente con agua y se usan.

10 Las condiciones como el pH en la suspensión, la temperatura y el tiempo de adición se ajustan apropiadamente para alcanzar los propósitos. La suspensión se mantiene a condiciones neutras o básicas, en particular a condiciones básicas débiles, por ejemplo a un pH de 5 a 10, en particular es preferible de 6 a 9. La temperatura se puede ajustar apropiadamente, normalmente con agitación, y se encuentra en el intervalo, por ejemplo, de temperatura ambiente a 100°C, preferiblemente de 40 a 90°C. La cantidad total de componente de Si añadido se puede depositar y unir a la superficie del sustrato donde se ha formado la primera capa, mediante selección apropiada de las condiciones.

En la presente invención, cuando se usan micas como moscovita y sericita como sustrato delgado en forma de escamas, el recubrimiento con la capa de óxido de Si hidratado en la primera capa se puede formar fácilmente recubriendo el sustrato delgado en forma de escamas con la primera capa.

20 La cantidad de óxido de Si hidratado que constituye la segunda capa es preferiblemente 10 a 40% en peso en términos de dióxido de silicio con respecto al peso total del relleno. Si la cantidad es menor que este intervalo, la semitransparencia de la presente invención es difícil de obtener debido a la alta posibilidad de que una tercera capa (capa de óxido de Ti hidratado) descrita abajo se una/deposite directamente sobre la primera capa. Una cantidad demasiado grande de óxido de Si hidratado no es preferible debido a una transparencia demasiado alta.

25 Preferiblemente, el sustrato delgado en forma de escamas tiene aspereza en su superficie tras la formación de la segunda capa. Se puede confirmar como una interfaz entre la segunda capa y la tercera capa observando el corte transversal del relleno con SEM (scanning electron microscope, microscopio electrónico de barrido) tras la calcinación del relleno. Específicamente, se prefiere que la interfaz en la imagen SEM del corte transversal, en el intervalo de 1 µm de distancia en la dirección planar del sustrato, tenga la aspereza de la segunda capa, donde una diferencia entre la altura mayor y menor desde la superficie del sustrato se encuentra en el intervalo de 30 nm a 200 nm inclusive. En general, las alturas menores y mayores son 10 a 100 nm y 40 a 300 nm, respectivamente. Además, se prefiere que dicha aspereza se forme en el intervalo de 0,5 µm de distancia en la dirección planar del sustrato.

30 La aspereza en la superficie de la segunda capa se puede conseguir mediante la formación de la primera capa, particularmente mediante el ajuste adecuado del peso de recubrimiento como se ha descrito arriba. Se considera que la propia aspereza en la superficie de la segunda capa contribuye a la transparencia y a una propiedad de dispersión de la luz moderada y también se considera que tiene influencia en la formación de agregación de cristales de la tercera capa (agregados de los cristales) descrita abajo.

En la etapa posterior de formación de la tercera capa, el sustrato delgado en forma de escamas que comprende la segunda capa formada encima se sigue recubriendo con un óxido de Ti hidratado.

40 Los ejemplos de sal de Ti para la formación de la capa de óxido de Ti hidratado incluyen sales de tetracloruro de titanio y sulfato de titanilo. Preferiblemente, se usan en forma de solución acuosa. Un compuesto alcalino usado para depositar el óxido de Ti hidratado y añadido gradualmente de forma simultánea con la sal de Ti (solución acuosa) (preferiblemente, gota a gota) bajo condiciones ácidas es hidróxido sódico, hidróxido potásico o similares. Preferiblemente, se usan en forma de solución acuosa.

45 Las condiciones como el pH en la suspensión, la temperatura y el tiempo de adición se ajustan apropiadamente para alcanzar los propósitos. La suspensión se mantiene en condiciones ácidas, por ejemplo, a un pH entre 1 y 3, de forma particularmente preferible de 1,5 a 2,5. Normalmente esta adición se lleva a cabo con agitación. La temperatura se puede ajustar de forma apropiada. Generalmente, se encuentra por ejemplo entre temperatura ambiente y 100°C, preferiblemente de 40 a 90°C. La cantidad total de componente de Ti añadido se puede depositar y unir a la superficie del sustrato tras la formación de la segunda capa mediante selección apropiada de las condiciones.

50 Antes de iniciar la adición de la sal de Ti (solución acuosa), la suspensión se acidifica. Durante este procedimiento, una cantidad muy pequeña del óxido hidratado y/o carbonato del primer metal se puede eluir desde la primera capa recubierta inicialmente. Los iones de metal eluidos del primer metal se considera que se redepositan y vuelven a unir a la tercera capa porque el pH de la suspensión se ajusta finalmente a un intervalo neutro tras la formación de la tercera

capa. Así, la tercera capa se compone principalmente de óxido de Ti hidratado y abarca también una tercera capa que comprende una cantidad muy pequeña del primer metal.

5 La cantidad de la tercera capa, es decir, de óxido de Ti hidratado es preferiblemente un 20 a 50% en peso en términos de dióxido de titanio con respecto al peso total del relleno. Una cantidad demasiado pequeña de óxido de Ti hidratado no es preferible debido a una transparencia demasiado alta, mientras que una cantidad demasiado grande del mismo no es preferible porque incrementa el tono azulado.

10 El sustrato delgado en forma de escamas tras la formación de la tercera capa tiene cristales (partículas primarias) del óxido de Ti hidratado en su superficie, y después éstos se agrupan y forman agregados (partícula secundaria). Los agregados se pueden confirmar mediante observación en SEM de la superficie tras la calcinación del relleno. En la presente invención, los cristales (partículas primarias) del óxido de Ti hidratado según la imagen SEM tienen un diámetro de partícula de, por ejemplo, 10 nm a 70 nm y estos cristales se deben unir y formar agregados, preferiblemente con un tamaño de 70 nm a 500 nm. Los agregados están presentes en forma granular o de flor y tienen preferiblemente un tamaño de 100 nm a 450 nm, más preferiblemente un tamaño de 150 nm a 400 nm. Se considera que los agregados del óxido de Ti hidratado impiden la excesiva dispersión de la luz causada por reflexión, confieren un efecto de dispersión moderado, contribuyen a la mejora en la transmitancia y confieren transparencia moderada (semitransparencia) sin tinte azulado.

20 Posteriormente, abajo se muestra una etapa de postratamiento. Una sustancia sólida se separa por lavado y filtración a partir de la suspensión ajustada a un intervalo neutro. La sustancia sólida se seca a 105°C hasta 150°C y después se calcina, si se desea, a una temperatura de 500°C a 850°C. Tras la calcinación, las agregaciones, etc. se eliminan con un tamiz o similar.

25 En la presente invención la primera capa se compone preferiblemente de (es decir, se compone esencialmente de) óxido hidratado, carbonato o producto calcinado de los mismos, del primer metal; la segunda capa se compone preferiblemente de (es decir, se compone esencialmente de) óxido de Si hidratado o producto calcinado del mismo; y la tercera capa se compone preferiblemente de (es decir, se compone esencialmente de) óxido de Ti hidratado o producto calcinado del mismo. En la presente invención el término "óxido hidratado" se refiere representativamente a formas hidróxido, formas óxido y formas intermedias de los mismos (óxidos hidratados o hidratos de óxido). Por ejemplo, cuando se adopta la etapa de calcinación, una temperatura más elevada en la etapa es más apropiada para formar el óxido. Si sólo se usa secado, es más probable que el producto resultante esté presente en la forma hidróxido u óxido hidratado (hidrato de óxido). Además, el "carbonato" del primer metal indica que el carbonato está presente como componente principal. El carbonato puede comprender un hidrato del mismo, óxido hidratado del mismo y similar. En general, una parte o la totalidad del mismo, cuando se somete a una etapa de temperatura elevada como la calcinación, se convierte en un óxido. Esto significa que las sustancias que constituyen la primera a la tercera capas en el relleno de la presente invención pueden encontrarse en cualquier estado desde una forma depositada hasta una forma completamente convertida en un óxido por calcinación.

35 El relleno de la presente invención se produce mediante el proceso que se describe arriba y tiene transmitancia luminosa perfecta ( $\tau$ ) del 70% o superior y transmitancia de luz paralela del 20% o superior según ISO 13468-1 (JIS K7361) así como turbidez (valor de turbidez) de 40 a 70 según ISO 14782 (JIS K7136) en la condición de medida mostrada abajo.

40 La transmitancia luminosa perfecta es más preferiblemente 75% o superior. Normalmente es 95% o inferior y es 90% o inferior en un ejemplo representativo. El valor de turbidez es más preferiblemente 45 a 70 y la transmitancia de luz paralela es más preferiblemente 25% o superior.

45 En la presente invención, la transmitancia luminosa perfecta ( $\tau$ ), la transmitancia de luz paralela y la turbidez (valor de turbidez) se midieron con un "medidor de turbidez/transmitancia HM-150" fabricado por Murakami Color Research Laboratory Co., Ltd., mediante la preparación de una muestra para la medición mostrada abajo. La muestra para la medición se preparó añadiendo 0,5 g del relleno obtenido por la presente invención a 9,5 g de medio base de cloruro de vinilo que comprende un 20% en peso de sustancia sólida (p. ej., "VS Medium" de Dainichiseika Color & Chemicals Mfg. Co., Ltd.), seguido de mezcla por agitación y aplicando la solución de dispersión resultante a una placa de vidrio de cuarzo de 0,15 cm de grosor  $\times$  5 cm de ancho  $\times$  5 cm de largo mediante el uso de un recubridor de barra nº 20. Es decir, el relleno de la presente invención se caracteriza porque la muestra preparada mediante dicho método posee las propiedades ópticas dadas. El grosor de película inmediatamente antes del secado es 40 a 50  $\mu$ m según este método para preparar la muestra. Así, la película de recubrimiento seco que incluye el relleno en aproximadamente un 20% en peso tiene un grosor de película de 7,0 a 15  $\mu$ m. Sólo se desea que el recubrimiento seco así obtenido tenga las propiedades ópticas dadas.

55 En la presente invención, los efectos nebulosos se refieren a transmitancia luminosa perfecta ( $\tau$ ) del 70% o superior, transmitancia de luz paralela del 20% o superior y turbidez (valor de turbidez) de 40 a 70 según ISO 14782 (JIS K7136) en la condición de medición mostrada arriba.

Preferiblemente, el relleno de la presente invención tiene absorción de aceite en el intervalo de 80 a 150 ml/100 g. Los rellenos producidos como se describe arriba y satisfaciendo las propiedades ópticas dadas generalmente satisfacen este intervalo de cantidad de absorción de aceite. El relleno con absorción de aceite que se encuentra dentro de este intervalo es apropiado en cosmética, particularmente para el uso en una base.

- 5 Preferiblemente, el relleno de la presente invención tiene un coeficiente de fricción (valor MIU) de 0,75 o inferior medido con un medidor de fricción KES (medidor KES-SE-DC de Kato Tech Co., Ltd.). Los rellenos producidos como se describe arriba y satisfaciendo las propiedades ópticas dadas generalmente satisfacen este intervalo y tienen una textura favorable a la piel. El coeficiente de fricción es generalmente 0,5 o superior. Este coeficiente de fricción se puede medir con el medidor KES-SE-DC pegando una cinta adhesiva por los dos lados a un portaobjetos, pegando la  
10 muestra de ensayo encima y deslizando un sensor de silicona 20 mm.

[Aplicación del relleno]

- El relleno de la presente invención se puede usar en una base y otros cosméticos. Específicamente, el cosmético de la presente invención incluye cosméticos de maquillaje, cosméticos para el pelo y antitranspirantes. Los ejemplos  
15 específicos de los mismos pueden incluir geles, rojos de labios, bases (p. ej., tipo emulsión, tipo líquido y tipo aceite), polvos compactos, cremas, barras de labios, coloretes, máscaras, esmaltes de uñas, color para cejas, sombras de ojos, delineadores de ojos, remedios para el pelo, polvos antitranspirantes y sprays antitranspirantes. La cantidad de relleno de la presente invención formulada se puede ajustar de forma apropiada según los propósitos y es, por ejemplo, 1 a 50% en peso en un cosmético. Por ejemplo, la cantidad se ejemplifica por 1 a 25% en peso en una base, 1 a 40% en peso en una sombra de ojos, 1 a 20% en peso en un rojo de labios y 0,1 a 10% en peso en un esmalte de uñas.

- 20 Estos cosméticos comprenden el relleno de la presente invención como componente esencial y además comprenden como otros ingredientes activos, uno o varios tipos de miembros seleccionados entre agentes protectores de la piel, agentes colorantes y otros pigmentos extensores, protectores solares, antitranspirantes, hidratantes, agentes antimicrobianos/bactericidas, agentes mejoradores de la textura, aceites y estabilizadores de la espuma.

- 25 Los agentes protectores de la piel se formulan con la finalidad de prevenir la aspereza de la piel y los ejemplos de ello incluyen: grasas líquidas y aceites como parafinas, ésteres, alcoholes superiores y glicéridos; emulsiones o suspensiones de polímeros acrílicos, base estireno, base éter, base éster y base silicona.

- Los agentes colorantes y otros pigmentos incluyen pigmentos insolubles en agua, colorantes solubles en lípidos, colorantes de cuba, colorantes de laca y se ejemplifican especialmente mediante los siguientes: dióxido de titanio, carbonato cálcico, yeso, talco, sulfato de bario, negro de carbón blanco, óxido de cromo, blanco de cinc, sulfuro de  
30 cinc, polvos de cinc, pigmentos metálicos en polvo, negro de hierro, óxido de hierro amarillo, colcótár, amarillo de cromo, negro de carbón, naranja de molibdato, azul de hierro, azul ultramarino, pigmentos de base cadmio, pigmentos fluorescentes, pigmentos azo solubles, pigmentos azo insolubles, pigmentos azo condensados, pigmentos ftalocianina, pigmentos policíclicos condensados, pigmentos compuestos de base óxido, grafito, mica (p. ej., moscovita, flogopita, mica sintética y mica de tetrasilicio de flúor), micas recubiertas de óxido metálico (p. ej., mica recubierta de óxido de titanio, mica recubierta de dióxido de titanio, mica recubierta de óxido de hierro (hidratado), mica recubierta con óxido de hierro y óxido de titanio y mica recubierta de óxido de titanio inferior), grafito recubierto de óxido metálico (p. ej., grafito recubierto de dióxido de titanio), alúmina delgada en forma de escamas, alúminas delgadas en forma de escamas recubiertas de óxidos metálicos (p. ej., alúmina delgada en forma de escamas recubierta con dióxido de titanio, alúmina delgada en forma de escamas recubierta de óxido de hierro, alúmina delgada en forma de escamas recubierta de sesquióxido de hierro, alúmina delgada en forma de escamas recubierta de tetraóxido de trihierro y alúmina delgada en forma de escamas recubierta de óxido metálico que tiene color de interferencia), MIO, sericita, carbonato magnésico, sílica, zeolita, hidroxiapatita, óxido de cromo, titanato de cobalto, perlas de vidrio, perlas de nylon y perlas de silicona. Los pigmentos orgánicos están ejemplificados por rojo los nº 2, 3, 102, 104, 105, 106, 201, 202, 203, 204, 205, 206, 207, 208, 213, 214, 215, 218, 219, 220, 221, 223, 225, 226, 227, 228, 230 (1), 230 (2), 231, 232, y  
45 405, amarillo los nº 4, 5, 201, 202-1, 202-2, 203, 204, 205, 401, 402, 403, 404, 405, 406, y 407, verde los nº 3, 201, 202, 204, 205, 401, y 402, azul los nº 1, 2, 201, 202, 203, 204, 205, 403, y 404, naranja los nº 201, 203, 204, 205, 206, 207, 401, 402, y 403, marrón el nº 201, violeta los nº 201 y 401, y negro el nº 401. Los colorantes naturales incluyen amarillo salol, cartamina, β-caroteno, color hibisco, capsaicina, ácido carmínico, ácido lacaico, curcumina, riboflavina y shikonina.

- 50 Los ejemplos de protectores solares incluyen: compuestos orgánicos como compuestos de benzofenona, derivados de dibenzolilmetano y derivados de cinamato; y compuestos inorgánicos como óxido de titanio y óxido de cinc.

Los ejemplos de antitranspirantes incluyen hidroxiclورو de aluminio, ácido tánico y sulfato de cinc.

Los ejemplos de hidratantes incluyen glicerina, glicol, sorbitol y polioles como polietilenglicol.



Los ejemplos de agentes antimicrobianos/bactericidas incluyen: alcoholes como alcohol etílico y alcohol isopropílico; fenoles como fenol y ortofenilfenol; aldehídos como formaldehído y glutaraldehído; ácidos carboxílicos como ácido benzoico (y sales de Na del mismo), 10-undecilenato de cinc y ácido octanoico (sal); y varios agentes antimicrobianos/bactericidas de base triazol, varios de base peróxido y varios de base activadora amina cuaternaria.

5 Los agentes mejoradores de la textura usados en la presente invención pueden ser otros pigmentos o polvos extensores como partículas de polímero sintético y partículas de polímero natural. Los ejemplos de los mismos incluyen: compuestos inorgánicos como talco, caolín, sericita, carbonato cálcico, silicato magnésico y silicatos; partículas de polímero sintético como polvos de nylon, polvos de polietileno, polvos de poliestireno, polvos de Tetron, polvos de resina epoxi y polvos de resina de silicona; y partículas de polímero natural como partículas de quitosano, partículas de almidón, partículas de celulosa, polvos de seda y polvos de celulosa cristalina.

10 Como aceites, en la presente invención se usan tanto aceites volátiles como no volátiles. Los ejemplos de los mismos incluyen aceites líquidos como aceites de hidrocarburo (p. ej., aceite mineral), aceites de éster (p. ej., miristato de isopropilo y triglicérido del ácido caprílico), aceites vegetales, aceites de silicona de baja viscosidad y aceites de silicona volátiles; parafina sólida y vaselina; ceramida, diéster de ácido graso de etilenglicol y dialquiléter; compuestos con un esqueleto silanol como metilpolisiloxano, metilfenilsiloxano y metilhidrogenopolisiloxano; y resinas de silicona y perlas de silicona.

15 Los estabilizadores de la espuma son activadores que estabilizan una membrana de espuma e incluyen polímeros solubles en agua y sólidos hidrófilos. Los polímeros solubles en agua incluyen polímeros no iónicos como metilcelulosa, hidroxipropilcelulosa, alcohol polivinílico y poli(acrilamida); polímeros aniónicos como sales de sodio de goma xantano y ácido poli(acrílico) y sal de sodio de carboximetilcelulosa; y polímeros catiónicos como cloruro de hidroxipropiltrimetilamonio goma guar y cloruro de hidroxipropiltrimetilamonio almidón.

Opcionalmente se usan perfumes en el cosmético de la presente invención. Además, se usan opcionalmente varias sodas, jabones suaves, varios jabones metálicos (cinc, calcio, magnesio), varios tensioactivos como éster de ácido graso de sorbitán, etc.

25 El relleno de la presente invención se puede usar preferiblemente en aplicaciones distintas de los cosméticos. Por ejemplo, el relleno se puede mezclar con resinas consistentes en resinas termoplásticas y resinas de termoajuste y con aceites consistentes en grasa y aceite y alcoholes y se puede usar en composiciones de resina o moldes de resina como botellas y juguetes. En este caso, el relleno se mezcla con la resina, bien directamente o tras ser incorporado antes como gránulos. Después, la mezcla se puede realizar en varios moldes mediante moldeo por extrusión, calandrado, soplado o similar. Los componentes de la resina para los que se usa el relleno pueden ser tanto resinas termoplásticas como resinas de termoajuste, como poliolefinas, epoxis, poliésteres, poliamidas, nylons, policarbonatos y poli(acrilatos).

30 Además, el relleno se puede mezclar con tinta de impresión y se puede usar como tinta con capacidad de impresión mejorada. Además, el relleno se puede mezclar con una pintura y se puede usar para pintar con capacidad de pintado y revestimiento mejoradas.

### [Ejemplos]

A continuación, la presente invención se describirá más detalladamente.

#### <Ejemplo 1>

40 En 1750 ml de agua se suspendieron 113 g de moscovita con un diámetro de partícula de 1 a 15  $\mu\text{m}$ . Esta suspensión se calentó a 80°C bajo agitación. A esta suspensión se añadieron gota a gota 470 g de solución acuosa que contenía 70 g de cloruro de aluminio hexahidratado disuelto en 400 ml de agua y solución acuosa de hidróxido sódico al 32% en peso, manteniendo simultáneamente el pH a 9,5.

45 Tras completar la adición gota a gota de la solución acuosa de cloruro de aluminio se usaron 1600 g de solución acuosa de silicato sódico ( $\text{SiO}_2$  al 7% en peso) y ácido clorhídrico diluido y se añadieron gota a gota manteniendo simultáneamente el pH a 9,2. Posteriormente, el pH de la suspensión se ajustó a ácido a 1,3 con ácido clorhídrico diluido. A esta suspensión se añadieron gota a gota 1000 ml de solución acuosa de tetracloruro de titanio (454 g/l) y solución acuosa de hidróxido sódico al 32% en peso manteniendo simultáneamente el pH a 1,6.

50 Tras completar la adición gota a gota de la solución acuosa de tetracloruro de titanio, se añadió gota a gota una solución acuosa de hidróxido sódico al 32% en peso para ajustar el pH de la suspensión a 5,0. Tras filtrar y lavar con agua, el producto resultante se secó a una temperatura de 110°C y después se calcinó a 700°C para producir un relleno de interés.

Basándose en los materiales de partida, las proporciones en peso del sustrato y cada capa de todo el relleno fueron 26,2 % moscovita, 3,4% Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 26,0% SiO<sub>2</sub>, y 44,4% TiO<sub>2</sub>.

Una imagen SEM de la sección transversal del relleno se muestra en la Figura 1. Se observa la aspereza de la superficie de la capa de sílica. En la Figura 2A se muestra una imagen SEM de la superficie del relleno. La Figura 2B es la misma imagen que la Figura 2A y muestra el tamaño de un agregado secundario de cristales de dióxido de titanio.

En la Tabla 1 se muestran los resultados de la medición de las propiedades ópticas del relleno. Su absorción de aceite medida usando aceite de linaza fue 110 ml/100 g, y su coeficiente de fricción promedio (valor MIU) como extensibilidad, capacidad de deslizamiento y adhesión correspondiente a la textura de la piel fue 0,66.

**<Ejemplo 2>**

10 En 1700 ml de agua se suspendieron 110 g de moscovita con un diámetro de partícula de 1 a 15 µm. Esta suspensión se calentó a 80°C bajo agitación. A esta suspensión se añadieron gota a gota 470 g de solución acuosa que contenía 70 g de cloruro de aluminio hexahidratado disuelto en 400 ml de agua y solución acuosa de hidróxido sódico al 32% en peso, manteniendo simultáneamente el pH a 9,5.

15 Tras completar la adición gota a gota de la solución acuosa de cloruro de aluminio se usaron 800 g de solución acuosa de silicato sódico (SiO<sub>2</sub> al 5% en peso) y ácido clorhídrico diluido y se añadieron gota a gota manteniendo simultáneamente el pH a 9,2. Posteriormente, el pH de la suspensión se ajustó a ácido a 1,3 con ácido clorhídrico diluido. A esta suspensión se añadieron gota a gota 825 ml de solución acuosa de tetracloruro de titanio (385 g/l) y solución acuosa de hidróxido sódico al 32% en peso manteniendo simultáneamente el pH a 1,6.

20 Tras completar la adición gota a gota de la solución acuosa de tetracloruro de titanio, se añadió gota a gota una solución acuosa de hidróxido sódico al 32% en peso para ajustar el pH de la suspensión a 5,0. Tras filtrar y lavar con agua, el producto resultante se secó a una temperatura de 110°C y después se calcinó a 700°C para producir un relleno de interés. Como en el Ejemplo 1, la capa de sílica tenía aspereza y había agregados secundarios de cristales de óxido de titanio presentes en la superficie del relleno.

25 Basándose en los materiales de partida, las proporciones en peso del sustrato y cada capa de todo el relleno fueron 36,8% moscovita, 5,0% Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 13,4% SiO<sub>2</sub>, y 44,8% TiO<sub>2</sub>.

En la Tabla 1 se muestran los resultados de la medición de las propiedades ópticas del relleno. Su absorción de aceite medida usando aceite de linaza fue 135 ml/100 g, y su valor MIU fue 0,68.

**<Ejemplo comparativo 1>**

30 Se preparó un relleno bajo las condiciones del Ejemplo 1 sin usar una sal metálica de Al correspondiente al primer metal. No se observó una capa de recubrimiento de una capa de óxido de Si hidratado.

**<Ejemplo comparativo 2>**

Se preparó Extender-W (producto disponible comercialmente de Merck Ltd., Japón, 50% en peso de mica recubierta de óxido de titanio, basado en la patente japonesa nº 2121498) como un relleno convencional. En la Tabla 1 se muestran los resultados de la medición de las propiedades ópticas del relleno.

35 [Tabla 1]

Muestra	Transmitancia luminosa perfecta (%) (τ)	Transmitancia de luz paralela (%)	Turbidez (valor de turbidez)
Ejemplo 1	79,8	36,1	54,8
Ejemplo 2	75,4	25,6	66,0
Ejemplo comparativo 2*)	69,8	16,2	76,8

\*) Extender-W: producto disponible comercialmente de Merck Ltd., Japón (basado en la patente japonesa nº 2121498), 50% en peso de mica recubierta de óxido de titanio

**<Ejemplo de formulación en base>**

Se preparó una base según la formulación siguiente:

- 5 38 partes en peso de talco
- 10 partes en peso del relleno del Ejemplo 1
- 10 partes en peso de mica (8 µm)
- 3 partes en peso de estearato magnésico
- 8 partes en peso de polvo de nylon 12
- 10 1,9 partes en peso de óxido de hierro amarillo
- 0,8 partes en peso de óxido de hierro rojo
- 1,0 partes en peso de óxido de titanio
- Cantidad apropiada de aceite mineral
- 3,3 partes en peso de triglicérido de (ácido caprílico, ácido cáprico)
- 15 0,1 partes en peso de butilparabén

**<Ejemplo de formulación en polvo compacto>**

Se preparó un polvo compacto según la formulación siguiente:

- 50 partes en peso de talco
- 10 partes en peso del relleno del Ejemplo 1
- 20 5 partes en peso de pigmento de color
- Cantidad apropiada de isopropilmiristato
- 2 partes en peso de estearato magnésico

[Aplicabilidad industrial]

- 25 Un relleno de la presente invención tiene efectos nebulosos, capacidad de deslizamiento suave sobre la piel, excelente adherencia a la piel, textura favorable a la piel y absorción de aceite moderada. Se puede usar preferentemente para un cosmético, en particular para usos en una base. Además, el relleno de la presente invención también se puede usar como relleno para una variedad de aplicaciones distintas.

[Breve descripción de las figuras]

[Figura 1]

- 30 La Figura 1 es una imagen SEM de la sección transversal del relleno producido en el Ejemplo 1. No se observa el óxido de aluminio (óxido de aluminio hidratado) correspondiente a la primera capa.

[Figura 2A]

La Figura 2A es una imagen SEM de la superficie del relleno producido en el Ejemplo 1.

[Figura 2B]

La Figura 2B es un diagrama que muestra un agregado de cristales de óxido de titanio en la imagen SEM de la Figura 2A. En el diagrama, un ejemplo representativo de los agregados se indica incluyéndolo en polígonos ligeramente mayores que los agregados.

5 [Descripción de los símbolos]

11 Sustrato

12 Capa de sílica

13 Capa de óxido de titanio

14 Agregado de cristales de óxido de titanio

10

**REIVINDICACIONES**

1. Un relleno que comprende:  
 un sustrato delgado en forma de escamas, transparente o semitransparente;  
 una capa de partícula o capa de recubrimiento (en adelante se denominará primera capa) que se forma en la superficie del sustrato delgado en forma de escamas y contiene un óxido hidratado, carbonato o producto calcinado de los mismos, de al menos un metal (en adelante se denominará primer metal) seleccionado del grupo consistente en Mg, Al y Ca;  
 una capa de recubrimiento (en adelante se denominará segunda capa) que recubre el sustrato delgado en forma de escamas que comprende la primera capa formada encima y contiene un óxido hidratado de Si o un producto calcinado del mismo; y una capa de recubrimiento (en adelante se denominará tercera capa) que recubre la segunda capa y contiene un óxido hidratado de Ti o un producto calcinado del mismo.
2. Un relleno según la reivindicación 1, en el que el sustrato delgado en forma de escamas tiene una forma con una relación de aspecto de 10 a 100 representada por el diámetro promedio de partícula/grosor promedio y un diámetro de partícula promedio de 5 a 20  $\mu\text{m}$ .
3. Un relleno según la reivindicación 1 o 2, en el que el sustrato delgado en forma de escamas se selecciona del grupo consistente en mica natural y sintética, alúmina delgada en forma de escamas, talco, escamas de vidrio, caolín y sílica delgada en forma de escamas.
4. Un relleno según cualquiera de las reivindicaciones de la 1 a la 3, en el que una interfaz entre la segunda capa y la tercera capa tiene, en un intervalo de distancia de 1  $\mu\text{m}$ , la aspereza de una segunda capa, donde una diferencia entre la altura mayor y la menor desde la superficie del sustrato va de 30 nm a 200 nm.
5. Un relleno según cualquiera de las reivindicaciones de la 1 a la 4, en el que el relleno comprende agregados de 70 nm a 500 nm formados por cristales de óxido de Ti hidratado o un producto calcinado del mismo en la superficie.
6. Un relleno según cualquiera de las reivindicaciones de la 1 a la 5, en el que la proporción en peso de cada capa respecto a todo el relleno es  
 1 a 7% en peso de la primera capa en términos de un óxido metálico del primer metal,  
 10 a 40% en peso de la segunda capa en términos de dióxido de silicio, y  
 20 a 50% en peso de la tercera capa en términos de dióxido de titanio.
7. Un relleno según cualquiera de las reivindicaciones de la 1 a la 6, en el que el relleno tiene una absorción de aceite de 80 a 150 ml/100 g.
8. Un relleno según cualquiera de las reivindicaciones de la 1 a la 7, en el que el relleno tiene un coeficiente de fricción (valor MIU) de 0,75 o inferior medido con un medidor de fricción KES.
9. Una película de recubrimiento seco caracterizada porque incluye un 20% en peso del relleno según cualquiera de las reivindicaciones de la 1 a la 8 y teniendo un grosor de película de 7,0 a 15  $\mu\text{m}$  muestra una transmitancia luminosa perfecta ( $\tau$ ) del 70% o superior, una transmitancia de luz paralela del 20% o superior, cada una según ISO 13468-1 (JIS K7361) y turbidez de 40 a 70 según ISO 14782 (JIS K7136).
10. Un proceso para producir un relleno según cualquiera de las reivindicaciones de la 1 a la 8, que comprende:  
 una etapa de formación de la primera capa de suspensión en agua de un sustrato delgado en forma de escamas transparente o semitransparente y la adición gradual a esta suspensión, bajo condiciones neutras o básicas, de una solución acuosa de una sal de al menos un metal (en adelante, se denominará primer metal) seleccionada del grupo consistente en soluciones acuosas de Mg, Al y Ca y una solución acuosa alcalina o solución acuosa de carbonato, depositándose de este modo un óxido hidratado y/o carbonato del primer metal en forma de partícula o capa sobre la superficie del sustrato delgado en forma de escamas;

una etapa de formación de la segunda capa, de adición gradual de una solución acuosa alcalina de ácido silícico y dilución del ácido mineral al mismo tiempo bajo condiciones neutras o básicas, recubriendo de este modo con un óxido de Si hidratado el sustrato delgado en forma de escamas que comprende la primera capa formada encima; y

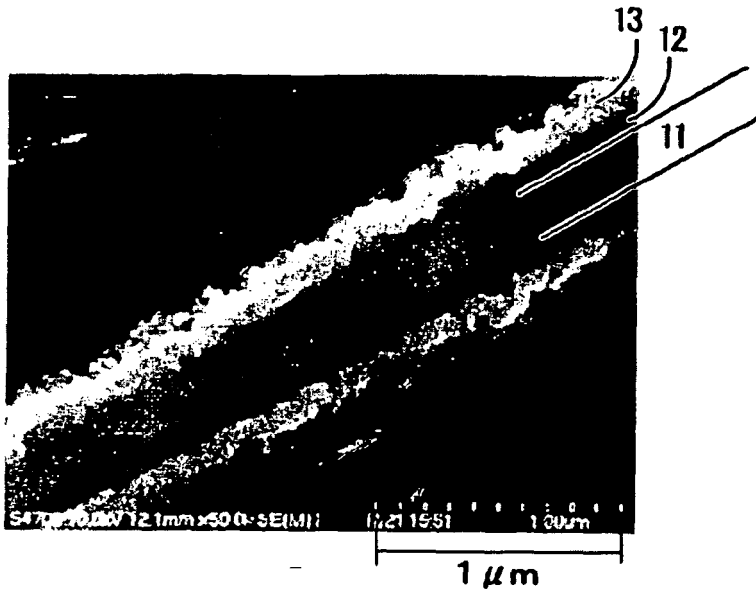
5 una etapa de formación de la tercera capa, de adición gradual de una solución acuosa de una sal de Ti y una solución acuosa alcalina al mismo tiempo bajo condiciones ácidas, recubriendo de este modo con un óxido de Ti hidratado el sustrato delgado similar a escamas que comprende la segunda capa formada encima.

11. Un proceso según la reivindicación 10, que comprende además una etapa de calcinado del sustrato delgado en forma de escamas tras la formación de la tercera capa.

10 12. Uso del relleno según cualquiera de las reivindicaciones de la 1 a la 8 en cosméticos, lacas, plásticos, tintas, tintas de impresión y recubrimientos.

13. Un cosmético que contiene 1-50 % en peso basado en la formulación cosmética de un relleno según cualquiera de las reivindicaciones de la 1 a la 8.

[Figura 1]



[Figura 2A]





[Figura 2B]

