

19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 381 763**

51 Int. Cl.:

C09C 1/62 (2006.01)

A61K 8/19 (2006.01)

A61Q 1/10 (2006.01)

A61Q 3/02 (2006.01)

A61Q 5/06 (2006.01)

C09C 3/06 (2006.01)

C09D 7/12 (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

96 Número de solicitud europea: **07713994 .7**

96 Fecha de presentación: **09.02.2007**

97 Número de publicación de la solicitud: **1990377**

97 Fecha de publicación de la solicitud: **12.11.2008**

54 Título: **Pigmento metálico coloreado, procedimiento para producir el mismo, y composición de recubrimiento y preparación cosmética que contienen dicho pigmento metálico coloreado**

30 Prioridad:
14.02.2006 JP 2006036379

45 Fecha de publicación de la mención BOP:
31.05.2012

45 Fecha de la publicación del folleto de la patente:
31.05.2012

73 Titular/es:
**TOYO ALUMINIUM KABUSHIKI KAISHA
6-8, KYUTARO-MACHI 3-CHOME, CHUO-KU
OSAKA-SHI, OSAKA 541-0056, JP**

72 Inventor/es:
**MORIMITSU, Taro;
NAKAO, Takayuki;
HASHIZUME, Yoshiki;
MINAMIYAMA, Hideaki y
NAKAMURA, Masakazu**

74 Agente/Representante:
Manzano Cantos, Gregorio

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).

ES 2 381 763 T3

DESCRIPCIÓN

Pigmento metálico coloreado, procedimiento para producir el mismo, y composición de recubrimiento y preparación cosmética que contienen dicho pigmento metálico coloreado

Campo técnico

La presente invención se refiere a un pigmento metálico coloreado excelente en su aspecto acabado y un procedimiento para producir el mismo, así como a una composición de recubrimiento y a una preparación cosmética que contienen el mismo.

Técnica anterior

Como un pigmento metálico coloreado que tiene un efecto metálico excelente en su efecto estético, se conoce en general, un pigmento obtenido mediante la unión de un pigmento coloreado a un pigmento metálico. En este pigmento metálico coloreado, un pigmento orgánico tal como un pigmento a base de dicetopirrololpirrol, a base de quinacridona, a base de dioxazina, a base de isoindolinona, de base azoica condensado, de base treno, a base de perinona, a base de perileno, a base de ftalona o a base de ftalocianina o un pigmento inorgánico tal como óxido de hierro o negro de humo como el pigmento coloreado unido al pigmento metálico.

En el pigmento metálico coloreado mencionado anteriormente, sin embargo, el pigmento coloreado unido a la superficie experimenta fotodeterioro fácilmente de manera desfavorable debido a la reflexión óptica sobre la superficie del pigmento metálico. Para resolver este problema, debe seleccionarse un pigmento tal como azul de ftalocianina, verde de ftalocianina u óxido de hierro que tiene una resistencia a la luz relativamente excelente, y el efecto estético del pigmento metálico coloreado obtenido está limitado en las presentes circunstancias.

En relación con un pigmento perlado tal como mica, por otro lado, se conoce bien un pigmento al que se le suministran colores de interferencia formando una película de óxido de silicio, óxido de titanio o metal sobre la superficie. Sin embargo, el

poder cubriente de un pigmento perlado de este tipo es tan pequeño que una subcapa no puede cubrirse suficientemente aunque se combine la misma en una pintura o tinta. Aunque se da a conocer un pigmento metálico cubierto con una película de interferencia de óxido de silicio, óxido de aluminio o óxido de titanio que
5 va a colorearse como un pigmento metálico que tiene alto poder cubriente para evitar esta desventaja, ninguno es suficiente como el medio de resolución.

Cada una de la patente japonesa abierta a consulta por el público n.º 1-110568 (documento de patente 1) y la patente japonesa abierta a consulta por el público n.º
10 2-669 (documento de patente 2) da a conocer un método de deposición de óxido de titanio sobre la superficie de un pigmento metálico mediante un procedimiento sol-gel. Según este método, sin embargo, no puede obtenerse ningún pigmento metálico que tenga alto croma, y la capa de óxido de titanio puede formar una fase de anatasa sumamente activa, para provocar la degradación de la resina y reducir
15 la resistencia a la intemperie cuando se combina en una pintura o similar.

Cada una de la patente japonesa abierta a consulta por el público n.º 56-120771 (documento de patente 3), la patente japonesa abierta a consulta por el público n.º 1-311176 (documento de patente 4) y la patente japonesa abierta a consulta por el
20 público n.º 6-32994 (documento de patente 5) da a conocer un método de formación de una fase compuesta de óxido de hierro, óxido de titanio y un óxido metálico y carbono, metal y un óxido metálico sobre la superficie de un pigmento metálico mediante un procedimiento en fase de vapor. Cuando se emplea el procedimiento en fase de vapor, sin embargo, el pigmento metálico debe fluidizarse
25 para suministrar un precursor del óxido metálico y depositar térmicamente el mismo sobre la superficie del pigmento metálico. Esta deposición requiere un aparato específico y se encuentra en peligro de manera extrema de explosión de polvo del pigmento metálico, y el precursor del óxido metálico es generalmente difícil de manejar debido a su fuerte toxicidad.

30

La patente japonesa abierta a consulta por el público n.º 8-209024 (documento de patente 6) da a conocer un pigmento metálico multirrecubierto a base de una estructura de dos capas de una capa de recubrimiento incoloro que tiene un índice de refracción no superior a 1,8 y una capa de absorción selectiva que tiene un
35 índice de refracción de al menos 2,0. La patente japonesa abierta a consulta por el

público n.º 8-209024 (documento de patente 6) también da a conocer un método de formación de una capa de óxido metálico sobre la superficie del pigmento metálico mediante CVD (deposición química en fase de vapor) o mediante hidrólisis de un compuesto metálico en una disolución. Sin embargo, CVD tiene la desventaja mencionada anteriormente. En el método de formación de la capa de óxido metálico mediante hidrólisis del compuesto metálico en la disolución, se realiza una reacción hidrolítica en una atmósfera básica o ácida que contiene una gran cantidad de agua, y así el pigmento metálico reacciona con agua en la etapa de tratamiento para dar como resultado un problema tal como agregación del pigmento metálico o una reacción incontrolada.

La patente japonesa abierta a consulta por el público n.º 7-258579 (documento de patente 7) da a conocer un pigmento de lustre preparado recubriendo un sustrato de escamas de aluminio o similares con una película multicapa formada por una primera capa que consiste en óxido de silicio, un hidrato de óxido de silicio, óxido de aluminio y un hidrato de óxido de aluminio, una segunda capa que consiste en metal y/o un óxido metálico de tipo de absorción no selectiva y una tercera capa que consiste en un óxido metálico de tipo de absorción selectiva o incoloro según se desee.

En el método dado a conocer en la patente japonesa abierta a consulta por el público n.º 7-258579 (documento de patente 7), sin embargo, el grosor de la primera capa tiende a ser no uniforme, y no puede obtenerse un croma excelente. Además, los óxidos metálicos no se depositan sobre la superficie de un sustrato sino que tienden a liberarse cuando se forma la primera capa, se dispersa la luz reflejada por las partículas de óxido metálico liberadas, y no puede obtenerse un lustre metálico excelente. Además, aunque la CVD y el revestimiento por vía química se dan a conocer como métodos de formación de una capa de metal sobre la primera capa, la CVD es peligrosa y es tan difícil depositar homogéneamente la capa de metal que generalmente se forman partículas no unidas con el metal. Además en el revestimiento por vía química, es tan difícil depositar de forma fina y homogéneamente la capa de metal que la capa de metal se deposita heterogéneamente de manera dispersa, y así no puede obtenerse un croma preferible.

35

La patente japonesa abierta a consulta por el público n.º 2003-49093 (documento de patente 8) da a conocer un pigmento de lustre multicapa que incluye una base metálica y una pluralidad de capas que encierran cada una por completo la base, que incluye al menos un paquete de capas que consiste en una capa dieléctrica
5 incolora de un material que tiene un índice de refracción no superior a 1,8 y otra capa dieléctrica incolora de un material que tiene un índice de refracción superior a 1,8 y una capa de absorción selectiva o no selectiva. La patente japonesa abierta a consulta por el público n.º 2003-131029 (documento de patente 9) da a conocer un sistema óptico multicapa que incluye una capa de metal y una pluralidad de capas
10 aplicadas a ambos lados y a un lado del mismo, que incluye al menos un paquete de capas que consiste en una capa dieléctrica incolora de un material que tiene un índice de refracción no superior a 1,8 y otra capa dieléctrica incolora de un material que tiene un índice de refracción superior a 1,8 y una capa de absorción selectiva o no selectiva de modo que tanto el paquete de capas como la capa de absorción
15 selectiva o no selectiva no encierran por completo la capa de metal. La patente japonesa abierta a consulta por el público n.º 2003-89758 (documento de patente 10) da a conocer un pigmento escamoso de alta saturación preparado cubriendo la superficie global de un sustrato escamoso cubierto con óxido metálico que presenta colores de interferencia debidos al óxido metálico que cubre el mismo con una
20 película delgada de metal translúcida para intensificar los colores de interferencia. La patente japonesa abierta a consulta por el público n.º 2003-41150 (documento de patente 11) da a conocer un pigmento metálico escamoso sumamente anticorrosivo que tiene una capa de recubrimiento que comprende un óxido de metal de hidrato metálico seleccionado de un grupo que consiste en silicio,
25 aluminio, zirconio, titanio y estaño sobre la superficie de un sustrato metálico escamoso tratado con un compuesto de ácido fosfórico y/o un compuesto de ácido bórico. Según el método dado a conocer en cada una de las patentes japonesas abiertas a consulta por el público n.º 2003-49093 (documento de patente 8), la patente japonesa abierta a consulta por el público n.º 2003-131029 (documento de
30 patente 9), la patente japonesa abierta a consulta por el público n.º 2003-89758 (documento de patente 10) y la patente japonesa abierta a consulta por el público n.º 2003-41150 (documento de patente 11), sin embargo, el grado de cambio de los colores de interferencia o el desarrollo de alto croma es limitado, y de manera desfavorable es difícil obtener un pigmento metálico coloreado que tiene un efecto
35 estético excelente de un nivel que puede satisfacerse.

Documento de patente 1: la patente japonesa abierta a consulta por el público n.º 1-110568

5 Documento de patente 2: la patente japonesa abierta a consulta por el público n.º 2-669

Documento de patente 3: la patente japonesa abierta a consulta por el público n.º 56-120771

10

Documento de patente 4: la patente japonesa abierta a consulta por el público n.º 1-311176

15 Documento de patente 5: la patente japonesa abierta a consulta por el público n.º 6-32994

Documento de patente 6: la patente japonesa abierta a consulta por el público n.º 8-209024

20 Documento de patente 7: la patente japonesa abierta a consulta por el público n.º 7-258579

Documento de patente 8: la patente japonesa abierta a consulta por el público n.º 2003-49093

25

Documento de patente 9: la patente japonesa abierta a consulta por el público n.º 2003-131029

30 Documento de patente 10: la patente japonesa abierta a consulta por el público n.º 2003-89758

Documento de patente 11: la patente japonesa abierta a consulta por el público n.º 2003-41150

35 **Descripción de la invención**

Problemas que ha de resolver la invención

Un objeto de la presente invención es proporcionar un pigmento metálico coloreado
 5 que puede desarrollar una variedad de colores y colores de interferencia variados
 mientras que se mantiene de manera excelente resistencia a la luz, resistencia a la
 intemperie y poder cubriente y un procedimiento para producir el mismo así como
 una composición de recubrimiento que comprende el pigmento metálico coloreado y
 10 que puede proporcionar una película de recubrimiento que tiene un aspecto
 acabado excelente y una preparación cosmética que comprende el pigmento
 metálico coloreado, que tiene un poder cubriente excelente y que puede
 proporcionar tonalidades vivas, resolviendo los problemas mencionados
 anteriormente.

Medios para resolver los problemas

La presente invención se refiere a un pigmento metálico coloreado que comprende
 al menos un pigmento metálico, a una capa de película de óxido de silicio amorfo
 dotada sobre la superficie del pigmento metálico, a una capa de metal dotada sobre
 20 la superficie de la capa de película de óxido de silicio amorfo y a partículas
 metálicas dotadas sobre la superficie de la capa de metal, proporcionándose las
 partículas metálicas de modo que cubran directamente parte de la capa de metal.

En el pigmento metálico coloreado según la presente invención, la capa de metal
 25 mencionada anteriormente comprende preferiblemente al menos un elemento
 seleccionado de Sn, Pd, Pt y Au.

Las partículas metálicas comprenden preferiblemente al menos un elemento
 seleccionado de Cu, Ni y Ag.

30

En el pigmento metálico coloreado según la presente invención, se forma además
 preferiblemente una subcapa entre el pigmento metálico y la capa de película de
 óxido de silicio amorfo. Esta subcapa consiste preferiblemente en una película
 individual o una película de mezcla de al menos uno cualquiera de un óxido, un
 35 hidróxido y un hidrato que comprende molibdeno y/o fósforo.

En el pigmento metálico coloreado según la presente invención, una capa de modificación de la superficie que comprende un óxido del elemento metálico que constituye el pigmento metálico se forma preferiblemente sobre la superficie del pigmento metálico.

En el pigmento metálico coloreado según la presente invención, el grosor de la capa de película de óxido de silicio amorfo está preferiblemente en el intervalo de 10 a 500 nm, y el diámetro de partícula promedio de las partículas metálicas no es superior preferiblemente a 50 nm.

En el pigmento metálico coloreado según la presente invención, una capa de inhibición de la corrosión que consiste en un inhibidor de la corrosión se forma preferiblemente sobre las partículas metálicas.

En el pigmento metálico coloreado según la presente invención, una capa de recubrimiento resistente a la intemperie se forma además preferiblemente sobre las partículas metálicas. Esta capa de recubrimiento resistente a la intemperie consiste preferiblemente en una película individual o una película de mezcla de al menos uno cualquiera de un óxido, un hidróxido y un hidrato que comprende al menos un elemento seleccionado de aluminio, silicio y cerio.

En el pigmento metálico coloreado según la presente invención, se forma además preferiblemente una capa de resina de cobertura como la capa más exterior.

La presente invención también se refiere a un procedimiento para producir un pigmento metálico coloreado, para obtener el pigmento metálico coloreado mencionado anteriormente, que comprende al menos una etapa de formar una capa de película de óxido de silicio amorfo de formación de una capa de película de óxido de silicio amorfo sobre la superficie de un pigmento metálico mediante hidrólisis de un compuesto de silicio orgánico en un disolvente que se compone principalmente de un disolvente hidrófilo para depositar óxido de silicio amorfo, una etapa de formar una capa de metal de deposición de una capa de metal sobre la superficie de la capa de película de óxido de silicio amorfo y una etapa de formar partículas metálicas de formación de partículas metálicas sobre la superficie de la

capa de metal mediante revestimiento por vía química.

En el procedimiento para producir un pigmento metálico coloreado según la presente invención, la capa de metal mencionada anteriormente comprende
5 preferiblemente al menos un elemento seleccionado de Sn, Pd, Pt y Au.

El procedimiento para producir un pigmento metálico coloreado según la presente invención comprende además preferiblemente una etapa de formar una subcapa de realización de un pretratamiento sobre la superficie del pigmento metálico con ácido
10 inorgánico que comprende molibdeno y/o fósforo para formar una subcapa que consiste en una película individual o una película de mezcla de al menos uno cualquiera de un óxido, un hidróxido y un hidrato que comprende el molibdeno y/o el fósforo antes de la etapa de formar una capa de película de óxido de silicio amorfo.

15 El procedimiento para producir un pigmento metálico coloreado según la presente invención comprende además preferiblemente una etapa de formar una capa de modificación de la superficie de formación de una capa de modificación de la superficie que comprende un óxido del elemento metálico que constituye el
20 pigmento metálico tratando la superficie del pigmento metálico con peróxido de hidrógeno antes de la etapa de formar una capa de película de óxido de silicio amorfo.

El procedimiento para producir un pigmento metálico coloreado según la presente
25 invención comprende además preferiblemente una etapa de formar una capa de inhibición de la corrosión de formación de una capa de inhibición de la corrosión que consiste en un inhibidor de la corrosión tras la etapa de formar partículas metálicas.

30 El procedimiento para producir un pigmento metálico coloreado según la presente invención comprende además preferiblemente una etapa de formar una capa de recubrimiento resistente a la intemperie de formación de una capa de recubrimiento resistente a la intemperie que consiste en una película individual o una película de mezcla de al menos uno cualquiera de un óxido, un hidróxido y un hidrato que
35 comprende al menos un elemento seleccionado de aluminio, silicio y cerio tras la

etapa de formar partículas metálicas, y una etapa de tratamiento de acoplamiento de tratamiento de la capa de recubrimiento resistente a la intemperie con un agente de acoplamiento que comprende silicio y/o titanio.

- 5 La presente invención también se refiere a una composición de recubrimiento y a una preparación cosmética que comprenden al menos el pigmento metálico coloreado mencionado anteriormente o un pigmento metálico coloreado obtenido mediante el procedimiento mencionado anteriormente.

10 Efectos de la invención

- Según la presente invención, puede obtenerse un pigmento metálico coloreado que puede desarrollar una variedad de colores y colores de interferencia variados mientras que se mantiene de manera excelente resistencia a la luz, resistencia a la
- 15 intemperie y poder cubriente a través de medios relativamente sencillos y de bajo precio formando al menos una capa de película de óxido de silicio amorfo, una capa de metal y partículas metálicas sobre la superficie de un pigmento metálico. Además, puede proporcionarse una composición de recubrimiento que puede proporcionar una película de recubrimiento que tiene un aspecto acabado excelente
- 20 y una preparación cosmética que comprende el pigmento metálico coloreado, que tiene un poder cubriente excelente y que puede obtener tonalidades vivas empleando el pigmento metálico coloreado.

Breve descripción de los dibujos

25

La figura 1 muestra la forma superficial de un pigmento de aluminio coloreado obtenido en el ejemplo 2.

- La figura 2 muestra la forma superficial de un pigmento de aluminio obtenido en el
- 30 ejemplo comparativo 1.

La figura 3 muestra la forma en sección del pigmento de aluminio coloreado obtenido en el ejemplo 2.

- 35 La figura 4 muestra la forma en sección del pigmento de aluminio coloreado

obtenido en el ejemplo 2

Mejores modos de llevar a cabo la invención

5 El pigmento metálico coloreado según la presente invención es un pigmento metálico coloreado que comprende un pigmento metálico, una capa de película de óxido de silicio amorfo formada sobre la superficie del pigmento metálico, una capa de metal formada sobre la superficie de la capa de película de óxido de silicio amorfo y partículas metálicas formadas sobre la superficie de la capa de metal. El
10 pigmento metálico coloreado según la presente invención se caracteriza porque la superficie de la capa de metal sólo está cubierta directamente de manera parcial con las partículas metálicas. En otras palabras, las partículas metálicas no se forman como capa que cubre completamente el pigmento metálico de base, mediante lo cual el pigmento metálico coloreado según la presente invención tiene
15 zonas cubiertas con las partículas metálicas y zonas no cubiertas. Se forman las partículas metálicas de modo que cubran parcialmente el pigmento metálico de base, mediante lo cual sólo la luz reflejada que pasa a través de las partículas metálicas se reconoce como luz visible en la luz reflejada por el pigmento metálico de base. Por consiguiente, se deduce que el brillo de la luz reflejada por el
20 pigmento metálico se debilita, y se desarrolla croma, es decir, colores. En el pigmento metálico coloreado según la presente invención, además, se desarrollan colores de interferencia que tienen alto croma mediante la interferencia entre la luz reflejada por la superficie del pigmento metálico de base y la luz reflejada por las superficies de las partículas metálicas.

25 Según la presente invención, se forman las partículas metálicas de modo que cubran directamente de manera parcial la capa de metal, mediante lo cual se impide la exfoliación de las partículas metálicas mediante una adhesividad excelente entre la capa de metal y las partículas metálicas, y puede obtenerse de
30 manera fiable un pigmento metálico coloreado que desarrolla una variedad de colores y colores de interferencia variados.

El pigmento metálico coloreado según la presente invención se obtiene formando al menos la capa de película de óxido de silicio amorfo, la capa de metal y las
35 partículas metálicas sobre la superficie del pigmento metálico, mediante lo cual el

mismo puede producirse a través de medios relativamente sencillos, y se le suministra ventajosamente un aspecto acabado excelente sin sacrificar la resistencia a la luz, la resistencia a la intemperie y el poder cubriente.

5 <Pigmento metálico>

Por ejemplo, pueden ilustrarse aluminio, cobre, zinc, titanio, hierro, níquel, cromo y una aleación de los mismos preferiblemente como el pigmento metálico usado en la presente invención, y preferiblemente se emplea particularmente aluminio en el
10 punto de efecto estético entre éstos. Cuando se emplea aluminio, por ejemplo, puede obtenerse un pigmento metálico multicoloreado que presenta colores de interferencia formando la capa de película de óxido de silicio amorfo y superponiendo adicionalmente las partículas metálicas.

15 Puede ilustrarse el intervalo de 2 a 300 μm como el diámetro de partícula promedio preferible del pigmento metálico. Puede obtenerse un pigmento metálico coloreado que suministra un aspecto acabado excelente y un poder cubriente excelente a una película de recubrimiento si el diámetro de partícula promedio es al menos de 2 μm , mientras que puede obtenerse un pigmento metálico coloreado que puede impedir
20 la reducción del aspecto acabado de la película de recubrimiento que resulta de la dispersión defectuosa del pigmento metálico coloreado, si el diámetro de partícula promedio no es superior a 300 μm . El diámetro de partícula promedio se fija además preferiblemente en el intervalo de 5 a 100 μm . El diámetro de partícula promedio del pigmento metálico en esta memoria descriptiva significa el eje mayor
25 promedio.

Puede ilustrarse el intervalo de 0,01 a 5 μm como el grosor preferible del pigmento metálico. Se obtiene un pigmento metálico coloreado que puede mantener de manera excelente su aspecto acabado sin dañar la resistencia a la luz y la
30 resistencia a la intemperie de la película de recubrimiento si el grosor es al menos de 0,01 μm , mientras que puede obtenerse un pigmento metálico coloreado que suministra un efecto estético excelente y una variedad de colores a la película de recubrimiento, si el grosor no es superior a 5 μm . El grosor se fija además preferiblemente en el intervalo de 0,02 a 1 μm .

- Puede ilustrarse una forma escamosa (es decir, en copos) que tiene una razón (A)/(B) entre el diámetro de partícula promedio (A) y el grosor promedio (B) en el intervalo de 5 a 1000 preferiblemente como la forma preferible del pigmento metálico. El efecto estético de la película de recubrimiento es excelente y pueden desarrollarse colores más diversos si la razón mencionada anteriormente (A)/(B) es al menos de 5, mientras que la deformación del pigmento metálico en el procedimiento de producir el pigmento metálico coloreado o la reducción de la dispersabilidad del pigmento metálico coloreado en la composición de recubrimiento preferiblemente apenas se produce si la razón no es superior a 1000. La razón (A)/(B) se fija más preferiblemente en el intervalo de 15 a 500. Como la forma del pigmento metálico, es particularmente preferible una forma de moneda que tiene una superficie lisa y una superficie de extremo redondeada.
- El pigmento metálico usado en la presente invención se obtiene como polvo atomizado o polvo preparado mediante la pulverización de escamas metálicas mediante molienda con bolas en húmedo (es decir, el proceso Hall) o molienda con bolas en seco, por ejemplo. Alternativamente, el pigmento metálico se obtiene mediante la evaporación de una película delgada de metal sobre una película o similar y después la separación/pulverización de las mismas.

<Capa de película de óxido de silicio amorfo>

- En el pigmento metálico coloreado según la presente invención, la capa de película de óxido de silicio amorfo se forma sobre la superficie del pigmento metálico. Aunque la capa de película de óxido de silicio amorfo puede formarse directamente sobre la superficie del pigmento metálico, preferiblemente se interpone otra capa entre el pigmento metálico y la capa de película de óxido de silicio amorfo como una subcapa. Aunque puede ilustrarse una capa que consiste en una película individual o una película de mezcla de al menos uno cualquiera de un óxido, un hidróxido y un hidrato que comprende molibdeno y/o fósforo tal como se describirá más adelante, como la subcapa, la presente invención no se limita a esto. Pueden formarse una o al menos dos subcapas, y pueden apilarse capas que tienen diferentes composiciones si se forman al menos dos subcapas.

En la presente invención, puede formarse una capa de modificación de la superficie que comprende un óxido del elemento metálico que constituye el pigmento metálico, tal como se describirá más adelante, sobre la superficie del pigmento metálico, de modo que esta capa de modificación de la superficie se interpone entre
5 el pigmento metálico y la capa de película de óxido de silicio amorfo. Cuando la capa de modificación de la superficie se forma en la presente invención y la capa de película de óxido de silicio amorfo se forma sobre esta capa de modificación de la superficie, la película de óxido de silicio amorfo ventajosamente crece fácilmente desde la capa de modificación de la superficie.

10

En la presente invención, puede formarse una cualquiera de la capa de modificación de la superficie y la subcapa, o pueden formarse tanto la capa de modificación de la superficie como la subcapa. Se forman tanto la capa de modificación de la superficie como la subcapa, la capa de modificación de la
15 superficie se forma sobre la superficie del pigmento metálico y la subcapa se forma sobre la misma, mediante lo cual se mejora la adhesividad entre el pigmento metálico y la subcapa.

En la presente invención, la capa de película de óxido de silicio amorfo se forma de
20 modo que proporcione un índice de refracción arbitrario, obteniéndose de ese modo un efecto de desarrollo de colores de interferencia. Como método de formación de la capa de película de óxido de silicio amorfo, puede emplearse un método que agita o que amasa el pigmento metálico y una disolución que contiene un compuesto de silicio en un estado de suspensión espesa o un estado de pasta
25 mientras que se mantiene el mismo básico o ácido, por ejemplo, de modo que la capa de película de óxido de silicio amorfo puede formarse sobre la superficie del pigmento metálico o la superficie del pigmento metálico dotada de la subcapa.

Pueden ilustrarse metiltriethoxisilano, metiltrimetoxisilano, tetraethoxisilano, tetrametoxisilano, tetraisopropoxisilano o un condensado de los mismos, γ -aminopropil-triethoxisilano, N-2-aminoetil-3-aminopropil-triethoxisilano, N-2-aminoetil-3-aminopropilmetil-dimetoxisilano o similar como el mencionado anteriormente
30 silicio compuesto.

35 Un disolvente hidrófilo tal como alcohol metílico, alcohol etílico, alcohol isopropílico,

alcohol n-propílico, alcohol t-butilico, alcohol n-butilico, alcohol isobutilico, etil-cellosolve, butil-cellosolve, monobutil éter de propilenglicol, monometil éter de dipropilenglicol, monopropil éter de propilenglicol o acetona se emplea preferiblemente como el disolvente para disolver el compuesto de silicio. Además
 5 se combina de manera deseable agua suficiente para hidrolizar el alcóxido de silicio, en este disolvente.

El grosor de la capa de película de óxido de silicio amorfo se fija preferiblemente en el intervalo de 10 a 500 nm, más preferiblemente en el intervalo de 10 a 100 nm.
 10 Puede formarse una película de recubrimiento que mejora el estado de adsorción de las partículas metálicas en la superficie del pigmento metálico y que presenta mayor croma, si el grosor es al menos de 10 nm, mientras que se mejora el poder cubriente de la película de recubrimiento y el peligro de dañar excesivamente el aspecto metálico del pigmento metálico es pequeño si el grosor no es superior a
 15 500 nm.

<Capa de metal>

En la presente invención, la capa de metal se forma sobre la superficie de la capa de película de óxido de silicio amorfo. Esta capa de metal se forma de modo que
 20 pueden desarrollarse colores de interferencia que tienen alto croma depositando de manera densa y homogéneamente las partículas metálicas debido a un estado de adsorción excelente entre las partículas metálicas y la capa de metal. La capa de metal comprende preferiblemente al menos un elemento seleccionado de Sn
 25 (estaño), Pd (paladio), Pt (platino) y Au (oro), y particularmente comprende preferiblemente al menos uno cualquiera de Sn y Pd.

Aunque la capa de metal puede formarse directamente sobre la superficie de la capa de película de óxido de silicio amorfo, puede interponerse todavía otra capa
 30 entre la capa de película de óxido de silicio amorfo y la capa de metal. Puede ilustrarse una capa que consiste en un óxido o un hidróxido de aluminio o cerio, por ejemplo, como esta capa. Aunque un método de deposición de la capa de metal no está particularmente limitado, un método de deposición de manera hidrolítica de alcóxido de metal para formar la capa de metal mediante un procedimiento sol-gel o
 35 un método de neutralización/deposición de la capa de metal añadiendo álcali a una

disolución de sal metálica que contiene el metal para formar la capa de metal es adecuado, por ejemplo. Cuando se forman las partículas metálicas mediante revestimiento por vía química, se usa preferiblemente una sal metálica soluble en agua que contiene el metal para formar la capa de metal.

5

Pueden ilustrarse tetraetoxiestaño o similar como el alcóxido de metal usado en el método de deposición de manera hidrolítica, y puede usarse preferiblemente una disolución coloidal en la que el alcóxido de metal se dispersa. Pueden ilustrarse agua amoniacal, etilendiamina, monoetanolamina, dietanolamina, hidrazina, urea o similar como el catalizador hidrolítico para el alcóxido de metal.

10

Pueden ilustrarse cloruro de estaño, fluoruro de estaño o similar como la sal metálica usada en el método de neutralización/deposición. Pueden ilustrarse agua amoniacal, hidróxido de sodio, monoetanolamina, dietanolamina o similar como un neutralizador para la sal metálica. Pueden ilustrarse agua, etanol, alcohol isopropílico, metilpropilenglicol, butil-cellosolve o similar como un disolvente reactivo.

15

Cuando las partículas metálicas en la presente invención se forman mediante revestimiento por vía química con sal metálica soluble en agua, la capa de metal puede formarse mediante un método empleado como pretratamiento para el revestimiento electrolítico. El pretratamiento para el revestimiento electrolítico incluye generalmente el proceso con catalizador (también denominado acelerador de la catálisis (también denominado acelerador) y el proceso de sensibilización-activación, y puede emplearse cualquier proceso. Además, puede realizarse sólo el proceso con catalizador o el proceso de sensibilización.

20

25

El proceso con catalizador-acelerador es un método que emplea una disolución mixta que contiene Sn y uno cualquiera de Pd, Pt y Au como catalizador, que sumerge el pigmento metálico dotado de la capa de película de óxido de silicio amorfo en este catalizador, que adsorbe un compuesto de complejo de uno cualquiera de Pd, Pt y Au y Sn en la superficie del pigmento metálico, que emplea después una disolución ácida tal como ácido sulfúrico o ácido clorhídrico o una disolución alcalina tal como hidróxido de sodio o amoníaco como acelerador, que sumerge el pigmento metálico mencionado anteriormente en este acelerador,

30

35

eliminando el Sn y activando cualquiera de Pd, Pt y Au.

El proceso de sensibilización-activación es un método que emplea una disolución de Sn como disolución de sensibilización, que sumerge el pigmento metálico dotado de la capa de película de óxido de silicio amorfo en esta disolución de sensibilización, que adsorbe Sn en la superficie del pigmento metálico, que emplea después una disolución que contiene uno cualquiera de Pd, Pt y Au como disolución de activación y soportando uno cualquiera de Pd, Pt y Au sobre la superficie del pigmento metálico mencionado anteriormente.

10

El proceso de sensibilización es un método que emplea una disolución de Sn como disolución de sensibilización y que sumerge el pigmento metálico dotado de la capa de película de óxido de silicio amorfo en esta disolución de sensibilización para adsorber Sn en la superficie del pigmento metálico, soportando de ese modo Sn sobre la superficie del pigmento metálico.

15

Puede usarse una sal metálica soluble en agua que contiene uno cualquiera de Sn, Pd, Pt y Au como fuente de metal para la capa de metal formada en el método empleado como el pretratamiento para el revestimiento por vía química. Pueden ilustrarse cloruro de estaño, oxalato de estaño, sulfato de estaño, bromuro de estaño, acetato de estaño, borofluoruro de estaño, fluoruro de estaño, estannato de sodio, estannato de potasio, mesilato de estaño, sulfuro de estaño, silicofluoruro de estaño, cloruro de paladio, acetato de paladio, bromuro de paladio, hidróxido de paladio, nitrato de paladio, óxido de paladio, paladio sulfato, bromuro de oro, cloruro de oro, cloruro de platino, óxido de platino o similar como sal metálica específica.

20

Según el método mencionado anteriormente, una capa de catalizador de Sn, Pd, Pt, Au o similar se soporta como la capa de metal en la presente invención. Después, las partículas metálicas pueden formarse sobre la superficie de esta capa de metal mediante revestimiento por vía química. Cuando el pigmento metálico dotado de la capa de metal se sumerge en una disolución de revestimiento por vía química, un agente reductor en la disolución de revestimiento se oxida sobre la superficie de la capa de metal debido a la actividad catalítica de la capa de metal. Se reducen iones metálicos en la disolución de revestimiento por vía química por electrones emitidos en ese momento, se deposita el metal sobre la superficie de la capa de metal, y se

30

35

forman las partículas metálicas.

En la presente invención, el grosor de la capa de metal se fija preferiblemente en no superior a 30 nm. En este caso, se proporcionan un croma y colores de interferencia más excelentes mediante el pigmento metálico coloreado obtenido. El grosor de la capa de metal se fija además preferiblemente en el intervalo de 0,1 a 10 nm. El grosor de la capa de metal puede confirmarse como la capa de metal formada entre la capa de película de óxido de silicio amorfo y las partículas metálicas en observación a alto aumento de aproximadamente 3 millones de aumentos en un microscopio electrónico de transmisión (TEM), por ejemplo. También puede confirmarse la presencia del elemento mediante EDS local (espectroscopia de dispersión de energía de rayos X). La capa de metal se forma normalmente por una capa continua de agregados de partículas.

La capa de metal puede depositarse homogéneamente o depositarse heterogéneamente sobre la superficie de la capa de película de silicio amorfo. Aunque el grosor de la capa de metal sea tan pequeño que la misma no pueda observarse con un TEM, por ejemplo, las partículas metálicas pueden depositarse de manera densa y homogéneamente cuando se deposita la capa de metal.

<Partículas metálicas>

En el pigmento metálico coloreado según la presente invención, las partículas metálicas se depositan de modo que cubran directamente de manera parcial la superficie de la capa de metal. El pigmento metálico coloreado según la presente invención tiene zonas en las que no se forman partículas metálicas, es decir, zonas no cubiertas con las partículas metálicas. Por tanto, se provoca interferencia entre la luz reflejada por las superficies de las partículas metálicas y la luz reflejada por la superficie del pigmento metálico de base para que pase a través de la capa de película de óxido de silicio amorfo, mediante lo cual se obtiene un pigmento metálico coloreado que presenta colores de interferencia que tienen alto croma. Además, las partículas metálicas se forman directamente sobre la superficie de la capa de metal de modo que se mejora la adhesividad entre la capa de metal y las partículas metálicas, y puede obtenerse de manera fiable un pigmento metálico coloreado que tiene una variedad de colores y colores de interferencia variados.

Por ejemplo, pueden ilustrarse partículas que comprenden al menos un elemento seleccionado de Al (aluminio), Ti (titanio), Cr (cromo), Fe (hierro), Co (cobalto), Ni (níquel), Cu (cobre), Zn (zinc), Ru (rutenio), Rh (rodio), Pd (paladio), Ag (plata), Sn (estaño), Pt (platino), Au (oro) y aleaciones de los mismos preferiblemente como el material para las partículas metálicas en la presente invención. Cuando las partículas metálicas comprenden al menos un elemento seleccionado de estos metales y aleaciones de metales, se obtiene un pigmento metálico coloreado que presenta colores de interferencia que tienen alto croma. Partículas que comprenden al menos un elemento seleccionado de Cu, Ni y Ag pueden enumerarse como partículas particularmente preferibles.

El diámetro de partícula promedio de las partículas metálicas se fija preferiblemente en no superior a 50 nm. En este caso, la forma superficial de la superficie del pigmento metálico coloreado que tiene zonas dotado de las partículas metálicas y zonas no dotadas de las partículas metálicas es relativamente lisa, y se obtiene un pigmento metálico coloreado que puede proporcionar una película metálica excelente en su aspecto acabado. El diámetro de partícula promedio de las partículas metálicas se fija más preferiblemente en no superior a 30 nm.

En el pigmento metálico coloreado según la presente invención, además, es particularmente preferible que el grosor de la capa de película de óxido de silicio amorfo esté en el intervalo de 10 a 500 nm y el diámetro de partícula promedio de las partículas metálicas no sea superior a 50 nm. En este caso, se desarrollan colores de interferencia que tienen croma particularmente alto.

Aunque las partículas metálicas formadas en el pigmento metálico coloreado según la presente invención se forman de modo que no cubren por completo la capa de metal sino que cubren parcialmente la capa de metal, el intervalo entre las partículas metálicas se fija preferiblemente en no superior a 10 nm, en un punto en que se obtiene un pigmento metálico coloreado que tiene mayor croma. En la presente invención, al menos dos partículas metálicas pueden depositarse sobre la capa de metal de manera superpuesta, aunque las partículas metálicas se depositan preferiblemente como partículas individuales de una manera en una sola capa. En este caso, se dispersa la luz en la capa de película de óxido de silicio

amorfo debido a la luz reflejada por el pigmento metálico de base y la luz reflejada por las partículas metálicas, y se proporcionan colores de interferencia que tienen alto croma mediante la interferencia de la luz reflejada que pasa a través de las partículas metálicas. Además, las partículas metálicas respectivas se depositan preferiblemente sobre la capa de metal sin entrar en contacto entre sí. De la manera más normal, las partículas metálicas respectivas se depositan preferiblemente sobre la capa de metal en de una manera en una sola capa sin entrar en contacto entre sí de modo que el intervalo entre las partículas metálicas no es superior a 10 nm.

10

El estado depositado de las partículas metálicas, el diámetro de partícula promedio de las mismas y el intervalo entre las partículas metálicas pueden evaluarse mediante observación en sección con un microscopio electrónico de transmisión (TEM), por ejemplo. En este caso, puede emplearse preferiblemente un método de realización de FIB (haz iónico focalizado) que trabaja en una sección del pigmento metálico coloreado dotado de las partículas metálicas para preparar una muestra para observación. Según este método, puede decidirse la parte trabajada mientras se observa una imagen de microscopía iónica de barrido (SIM), mediante lo cual puede trabajarse una parte específica de la muestra. Se realiza el trabajo mediante el método mencionado anteriormente, para observar secciones de las partículas metálicas con un microscopio electrónico de transmisión (TEM) de 30 a 3 millones de aumentos.

Aunque el método de formación de las partículas metálicas no está particularmente limitado, la evaporación a vacío, bombardeo catódico, deposición química en fase de vapor, revestimiento por vía química o similar es adecuado. Entre estos métodos, es particularmente adecuado el revestimiento por vía química que puede depositar homogéneamente las partículas metálicas y obtener un croma excelente.

Cuando se emplea deposición química en fase de vapor, las partículas metálicas pueden depositarse introduciendo directamente óxido de hierro o similar sobre la superficie de la capa de metal mediante un método bien conocido descrito en la patente japonesa abierta a consulta por el público n.º 56-120771, la patente japonesa abierta a consulta por el público n.º 1-311176 o la patente japonesa abierta a consulta por el público n.º 6-32994, por ejemplo.

<Subcapa>

En la presente invención, una subcapa, particularmente una subcapa que
 5 comprende molibdeno y/o fósforo se forma además preferiblemente entre el
 pigmento metálico y la capa de película de óxido de silicio amorfo. Esta subcapa se
 forma de modo que la capa de película de óxido de silicio amorfo formada sobre la
 misma puede depositarse más homogéneamente. Por tanto, el grosor de la capa de
 película de óxido de silicio amorfo se vuelve uniforme, y puede obtenerse un
 10 pigmento metálico coloreado que presenta colores de interferencia que tienen
 mayor croma. La subcapa que comprende molibdeno y/o fósforo tiene una
 resistencia a la corrosión excelente, mediante lo cual también se logra un efecto de
 impedir una reacción anómala entre la disolución de tratamiento y el pigmento
 metálico en la etapa de formar la capa de película de óxido de silicio amorfo
 15 formando esta subcapa.

Aunque el método de formación de la subcapa que comprende molibdeno y/o
 fósforo sobre la superficie del pigmento metálico no está particularmente limitado,
 un método que agita o que amasa el pigmento metálico y una disolución que
 20 contiene un compuesto de molibdeno y/o un compuesto de fósforo en un estado de
 suspensión espesa o un estado de pasta formando de ese modo una película de
 hidrato que contiene molibdeno y/o fósforo sobre la superficie del pigmento metálico
 y que forma después una película de óxido película mediante calentamiento se
 ilustra como un método preferible. En cuanto a los detalles del método de formación
 25 de la subcapa, puede emplearse el método bien conocido dado a conocer en la
 patente japonesa abierta a consulta por el público n.º 9-328629, la patente japonesa
 abierta a consulta por el público n.º 63-054475 o similar.

Ácido polimolibdico peroxídico expresado en una formula de composición
 30 $\text{Mo}_x\text{O}_y \cdot m\text{H}_2\text{O}_2 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ (en la que x representa 1 ó 2, y representa un número entero
 de 2 a 5, y m y n representan números positivos arbitrarios), molibdato de amonio,
 ácido fosfomolibdico o similar se ilustra como el compuesto de molibdeno empleado
 para formar la subcapa. El ácido polimolibdico peroxídico puede prepararse
 disolviendo polvo de molibdeno metal u óxido de molibdeno en una disolución
 35 acuosa de peróxido de hidrógeno (concentración: del 5 al 40% en masa). Este

compuesto se disuelve en un disolvente hidrófilo tal como alcohol metílico, alcohol etílico, alcohol isopropílico, alcohol n-propílico, alcohol t-butílico, alcohol n-butílico, alcohol isobutílico, etil-cellosolve, butil-cellosolve, monobutil éter de propilenglicol, monometil éter de dipropilenglicol, monopropil éter de propilenglicol, acetona o
 5 similar para preparar la disolución de tratamiento. La disolución de tratamiento puede contener agua.

Ácido fosfórico normal, ácido fosforoso, ácido hidrofosforoso, ácido fosfínico, ácido pirofosfórico, ácido polifosfórico o similar se ilustra como el compuesto de fósforo
 10 empleado para formar la subcapa. Este compuesto se disuelve en un disolvente hidrófilo tal como alcohol metílico, alcohol etílico, alcohol isopropílico, alcohol n-propílico, alcohol t-butílico, alcohol n-butílico, alcohol isobutílico, etil-cellosolve, butil-cellosolve, monobutil éter de propilenglicol, monometil éter de dipropilenglicol, monopropil éter de propilenglicol, acetona o similar para preparar la disolución de
 15 tratamiento. La disolución de tratamiento puede contener agua.

La cantidad de molibdeno y/o fósforo en la subcapa es preferiblemente de 0,01 a 3,0 partes en masa, más preferiblemente de 0,05 a 2,0 partes en masa con respecto a 100 partes en masa del pigmento metálico. La cantidad de molibdeno
 20 y/o fósforo se varía de manera deseable con el área superficial específica del pigmento metálico tratado. La cantidad de molibdeno y/o fósforo se aumenta preferiblemente con respecto a un pigmento metálico que tiene una gran área superficial específica y se reduce si el área superficial específica es pequeña. La uniformidad del grosor de la capa de película de óxido de silicio amorfo y la
 25 estabilidad química del pigmento metálico en formación de la capa de película de óxido de silicio amorfo son excelentes si la cantidad de molibdeno y/o fósforo es al menos de 0,01 partes en masa con respecto a 100 partes en masa del pigmento metálico, mientras que se impiden una reducción en el tono tal como lustre metálico, por ejemplo, del pigmento metálico y la agregación del pigmento metálico
 30 y se mantienen de manera excelente propiedades de película tales como resistencia a la humedad, adhesividad y resistencia a la intemperie si la cantidad no es superior a 3,0 partes en masa.

El grosor de la subcapa se fija preferiblemente en el intervalo de 0,5 a 10 nm. La
 35 uniformidad del grosor de la capa de película de óxido de silicio amorfo y la

estabilidad química del pigmento metálico en formación de la capa de película de óxido de silicio amorfo son excelentes si el grosor de la subcapa es al menos de 0,5 nm, mientras que se impiden la reducción en el tono tal como lustre metálico, por ejemplo, del pigmento metálico y la agregación del pigmento metálico y se
 5 mantienen de manera excelente propiedades de película tales como resistencia a la humedad, adhesividad y resistencia a la intemperie si el grosor no es superior a 10 nm.

<Capa de modificación de la superficie>

10

En la presente invención, una capa de modificación de la superficie que comprende un óxido del elemento metálico que constituye el pigmento metálico se forma preferiblemente sobre la superficie del pigmento metálico. Cuando se forma una capa de modificación de la superficie de este tipo y se forma la capa de película de
 15 óxido de silicio amorfo sobre la misma, la superficie del pigmento metálico se modifica a un estado que hace crecer fácilmente la capa de película de óxido de silicio amorfo mediante la capa de modificación de la superficie, mediante lo cual puede formarse una capa de película de óxido de silicio amorfo más homogénea y puede obtenerse un pigmento metálico coloreado que presenta colores de
 20 interferencia que tienen mayor croma.

La capa de modificación de la superficie se forma normalmente tratando la superficie del pigmento metálico con peróxido de hidrógeno. La superficie del pigmento metálico se trata con peróxido de hidrógeno de modo que se elimina el
 25 ácido alifático adsorbido en la superficie del pigmento metálico, se oxida la superficie del pigmento metálico y se forma la capa de modificación de la superficie que comprende el óxido del elemento metálico que constituye el pigmento metálico. Por tanto, la superficie del pigmento metálico se modifica al estado de superficie que hace crecer fácilmente la capa de película de óxido de silicio amorfo desde la
 30 capa de modificación de la superficie.

Aunque el método de formación de la capa de modificación de la superficie sobre la superficie del pigmento metálico no está particularmente limitado, puede ilustrarse un método que agita o que amasa el pigmento metálico y una disolución que
 35 contiene peróxido de hidrógeno en un estado de suspensión espesa o un estado de

pasta formando de ese modo una película de hidrato que comprende el elemento metálico que constituye el pigmento metálico sobre la superficie del pigmento metálico y después convirtiendo la película de hidrato en una película de óxido mediante calentamiento o similar como un método preferible.

5

Cuando se usa un pigmento de aluminio como el pigmento metálico y se agita o se amasa este pigmento de aluminio y una disolución que contiene peróxido de hidrógeno en un estado de suspensión espesa o un estado de pasta, por ejemplo, una película de hidrato que comprende aluminio se forma sobre la superficie del pigmento de aluminio, y una película de óxido tal como una película de óxido de aluminio o una película de boehmita se forma mediante calentamiento.

Una disolución preparada disolviendo peróxido de hidrógeno en un disolvente puede usarse normalmente como la disolución que contiene peróxido de hidrógeno. Alcohol, glicol, éter de glicol, un disolvente orgánico cetónico o similar pueden usarse como el disolvente además de agua, y también puede usarse un disolvente mixto de agua y un disolvente orgánico o similar. La concentración de peróxido de hidrógeno en la disolución está preferiblemente en el intervalo del 0,0001 al 45% en masa.

20

El grosor de la capa de modificación de la superficie se fija preferiblemente en el intervalo de 0,5 a 10 nm. La uniformidad del grosor de la capa de película de óxido de silicio amorfo y la estabilidad química del pigmento metálico en formación de la capa de película de óxido de silicio amorfo son excelentes si el grosor de la capa de modificación de la superficie es al menos de 0,5 nm, mientras que se impiden la reducción en el tono tal como lustre metálico, por ejemplo, del pigmento metálico y la agregación del pigmento metálico y propiedades de película tales como resistencia a la humedad, adhesividad y resistencia a la intemperie son excelentes si el grosor no es superior a 10 nm. El grosor de la capa de modificación de la superficie es más preferiblemente al menos de 1 nm, y además preferiblemente no superior a 5 nm. El grosor de la capa de modificación de la superficie puede confirmarse mediante ESCA (Espectroscopia electrónica para análisis químico). La medición de una película de óxido mediante ESCA puede realizarse tal como sigue, por ejemplo: en otras palabras, se emplea "SSX-100" de SSI, U.S.A., y se emplea una radiación de $AlK\alpha$ espectral de monocristal como fuente de rayos X. El grosor

de la película de óxido se mide hasta una profundidad de aproximadamente 63 nm (en cuanto a SiO_2) desde la superficie más exterior de la muestra a través de análisis de perfil de profundidad mediante ataque con iones de Ar. La medición se realiza con una inclinación del ángulo de detección de 35° con respecto a la superficie de la muestra. Se calcula una profundidad tal que la razón (AlO_x/Al^0) entre el componente de aluminio metal (Al^0) y el componente de óxido (AlO_x) de un pico de $\text{Al}2p$ no sea superior a 1, a partir del resultado del perfil de profundidad como el grosor de la película de óxido (en cuanto a SiO_2).

10 <Capa de inhibición de la corrosión>

En el pigmento metálico coloreado según la presente invención, una capa de inhibición de la corrosión que consiste en un inhibidor de la corrosión se forma preferiblemente sobre las partículas metálicas. Aunque la capa de inhibición de la corrosión puede contener una sustancia que tiene una función de inhibición de la corrosión con respecto a las partículas metálicas, una capa de inhibición de la corrosión que consiste en una película individual que comprende al menos uno cualquiera de un compuesto orgánico que tiene una función de inhibición de la corrosión con respecto al metal y un agente tensioactivo que tiene una función de inhibición de la corrosión con respecto al metal o una película de mezcla que comprende al menos dos de los compuestos orgánicos mencionados anteriormente y el agente tensioactivo normalmente se forma preferiblemente.

Cuando se usa un metal tal como plata o cobre que se oxidan o sulfuran fácilmente como el material para las partículas metálicas, se proporciona eficazmente resistencia a la intemperie formando la capa de inhibición de la corrosión.

Aunque el método de formación de la capa de inhibición de la corrosión no está particularmente limitado, se emplea preferiblemente un método que añade un inhibidor de la corrosión a una suspensión de un estado de suspensión espesa o un estado de pasta preparada suspendiendo el pigmento metálico al menos dotado de las partículas metálicas en un disolvente hidrófilo y que agita o que amasa la mezcla uniéndolo de ese modo el inhibidor de la corrosión a la superficie del pigmento metálico mencionado anteriormente.

35

Aunque puede usarse cualquier inhibidor de la alteración del color bien conocido como el inhibidor de la corrosión, benzotriazoles tales como benzotriazol, 1-metilbenzotriazol, 4-metilbenzotriazol, 1-etilbenzotriazol, 1-hidroxibenzotriazol, 4-carboxibenzotriazol, 1-clorobenzotriazol, 5-clorobenzotriazol, N-acetil-benzotriazol, N-butiril-benzotriazol, N-pivaloilbenzotriazol, N-nonanoil-benzotriazol, N-caproilbenzotriazol, N-caprilil-benzotriazol, N-lauroil-benzotriazol, N-estearil-benzotriazol, N-oleoil-benzotriazol, naftotriazol, toliltriazol, 2-(2'-hidroxi-5'-metilfenil)benzotriazol, 2-(2'-hidroxi-3,5'-di-terc-butilfenil) benzotriazol, (di)etilaminometil-benzotriazol, (di)butilaminometil-benzotriazol, (di)octilaminometil-benzotriazol, (di)tridecilaminometil-benzotriazol, (di)octadecilaminonietil-benzotriazol, (di)ciclohexilaminometil-benzotriazol, (di)alilaminometil-benzotriazol, (di)bencilaminometil-benzotriazol, (di)octilaminoetil-benzotriazol, (di)octilaminodecilbenzotriazol y (di)octilaminobencil-benzotriazol, tetrazoles tales como 1-fenil-5-mercaptotetrazol, bromuro de 3-(4,5-dimetil-2-tiazolil)-2,5-difenil-2H-tetrazolio y 5-amino-1H-tetrazol, imidazoles tales como 2-fenilimidazol, 2-fenil-4-metilimidazol, 2-fenil-4-propilimidazol, 2-fenil-5-yodoimidazol, 2-bencilimidazol, 2-bencil-4-metilimidazol, 2-(3-cloro)bencilimidazol, 2-(3-yodo)bencilimidazol, 2-naftilimidazol, 2-naftil-4-metilimidazol, 2-naftil-4-metil-5-bromimidazol, 2-(3,5-dibromo)naftilimidazol, 2-(2,6-dicloro)naftil-4-metilimidazol, 2-mercaptobenzoimidazol, 2-mercaptometilbenzoimidazol, 2-amilimidazol, 2-heptilimidazol, 2-decilimidazol, 2-undecilimidazol, 2-dodecilimidazol, 2-tridecilimidazol, 2-tetradecilimidazol, 2-heptadecilimidazol, 2-undecil-4-metilimidazol y 2-heptadecil-4-metilimidazol, alcilamino-riazoles tales como 3-amino-1,2,4-triazol, 3-amino-5-metil-1,2,4-triazol, 3-amino-5-etil-1,2,4-triazol, 3-amino-5-propil-1,2,4-triazol, 3-amino-5-butil-1,2,4-triazol, 3-amino-5-pentil-1,2,4-triazol, 3-amino-5-hexil-1,2,4-triazol, 3-amino-5-heptil-1,2,4-triazol, 3-amino-5-octil-1,2,4-triazol, 3-amino-5-nonil-1,2,4-triazol, 3-amino-5-decil-1,2,4-triazol, 3-amino-5-undecil-1,2,4-triazol y 3-amino-5-dodecil-1,2,4-triazol, compuestos de α - o β -dicarbonilo tales como glioxal, piruvaldehído, diacetilo, 2,3-pentanodiona, 3,4-hexanodiona, 3,4-heptanodiona, 3,4-octanodiona, 4,5-nonanodiona, 4,5-decanodiona, 5,6-undecanodiona, 1,2-ciclohexanodiona, acetilacetona, 2,4-hexanodiona, 2,4-heptanodiona, 2,4-octanodiona, 3,5-octanodiona, 4,6-decanodiona, 5,7-undecanodiona, acetoacetato de metilo, acetoacetato de etilo, 3-metil-2,4-pentanodiona, 2-acetilciclopentanona, α -acetil- γ -butirolactona, 2-etilcarbonil-ciclopentanona, α -etilcarbonil- γ -butirolactona, 2-propilcarbonil-

ciclopentanona, α -propilcarbonil- γ -butirolactona, 2-butilcarbonil-ciclopentanona, α -butilcarbonil- γ -butirolactona, 2-acetilciclohexanona, α -acetil- δ -pentilolactona, 2-etilcarbonil-ciclohexanona, α -etilcarbonil- γ -pentilolactona, 2-propilcarbonil-ciclohexanona, α -propilcarbonil- γ -pentilolactona, 2-butilcarbonil-ciclohexanona y α -butilcarbonil- γ -pentilolactona o aductos de amina de los mismos y compuestos de mercaptano tales como mercaptoimidazolina, naftilmercaptano, alcilmercaptano C₆ a C₂₂ pueden enumerarse como materialse empleas de manera particularmente preferible.

Además, también pueden enumerarse alclaminas superiores tales como dodecilamina, octadecilamina, icosilamina y nonilamina y aductos de óxido de etileno de las mismas.

Además, también pueden enumerarse benzotiazoles tales como 2-metilbenzotiazol, 2-mercaptobenzotiazol, 2-(4'-morfolinoditio)benzotiazol, N-ciclohexil-2-benzotiazolil-sulfenamida, N-oxidietilen-2-benzotiazolil-sulfenamida y N-terc-butil-2-benzotiazolil-sulfenamida.

Aunque el contenido del inhibidor de la corrosión no está particularmente limitado en la medida en que no se dañen los efectos del pigmento metálico coloreado según la presente invención, el inhibidor de la corrosión se emplea preferiblemente de modo que el contenido en 1 kg de la disolución esté generalmente en el intervalo de 1 ppm al 5% en masa.

El inhibidor de la corrosión se añade preferiblemente a la suspensión mencionada anteriormente junto con un disolvente apropiado. Aunque el disolvente no está particularmente limitado, pueden enumerarse agua, alcohol metílico, alcohol etílico, alcohol isopropílico, alcohol n-propílico, alcohol t-butílico, alcohol n-butílico, alcohol isobutílico, etil-cellosolve, butil-cellosolve, monobutil éter de propilenglicol, propilenglicol monometil éter, monopropil éter de propilenglicol, monoetil éter de etilenglicol, acetona o benceno.

El pH de la disolución que contiene el inhibidor de la corrosión puede fijarse en un amplio intervalo de pH 1 a pH 13, el efecto de inhibición de la corrosión se logra de

manera suficiente en la zona de ácido débil a base débil, y así la disolución se emplea de manera deseable con pH 4 a pH 11 en vista a la seguridad. Aunque puede usarse ácido y/o álcali bien conocido cuando se ajusta el pH, el ácido clorhídrico o ácido nítrico pueden corroer el metal de base si se emplea en gran
 5 cantidad, y así se emplea preferiblemente ácido sulfúrico o ácido sulfónico como ácido, y se emplea preferiblemente hidróxido de sodio, hidróxido de potasio como álcali.

<Capa de recubrimiento resistente a la intemperie>

10

En la presente invención, una capa de recubrimiento resistente a la intemperie que consiste en una película individual o una película de mezcla de al menos uno cualquiera de un óxido, un hidróxido y un hidrato, particularmente una capa de recubrimiento resistente a la intemperie que consiste en una película individual o
 15 una película de mezcla de al menos uno cualquiera de un óxido, un hidróxido y un hidrato que comprende al menos un elemento cualquiera seleccionado de aluminio, silicio y cerio se forma además preferiblemente sobre las partículas metálicas. La capa de recubrimiento resistente a la intemperie se forma de modo que se suministre un efecto de prevención de la alteración del color a una película
 20 combinada con el pigmento metálico coloreado según la presente invención y puede mejorarse la resistencia a la intemperie de la película. Particularmente cuando se usa metal tal como plata o cobre que se oxidan o se sulfuran fácilmente como el material para las partículas metálicas, se suministra eficazmente resistencia a la intemperie formando la capa de recubrimiento resistente a la
 25 intemperie.

En un caso de formación de la capa de inhibición de la corrosión mencionada anteriormente sobre las partículas metálicas en la presente invención, la capa de recubrimiento resistente a la intemperie se forma preferiblemente sobre esta capa
 30 de inhibición de la corrosión. En este caso, se mejora el efecto de resistencia a la intemperie en la exposición prolongada, y pueden suprimirse ventajosamente la oxidación o sulfuración resultantes del calentamiento, en particular.

Aunque el método de formación de la capa de recubrimiento resistente a la
 35 intemperie no está particularmente limitado, se emplea preferiblemente un método

que añade un compuesto de silicio y/o un compuesto de aluminio a una suspensión de un estado de suspensión espesa o un estado de pasta preparada suspendiendo el pigmento metálico al menos dotado de la capa de película de óxido de silicio amorfo y las partículas metálicas en un disolvente hidrófilo y que agita o que amasa
 5 la misma mientras se mantiene el pH de la suspensión básico o ácido formando de ese modo una película de hidrato que contiene silicio y/o aluminio como el/los elemento(s) sobre la superficie del pigmento metálico mencionado anteriormente y que convierte finalmente la película de hidrato en una película individual o una película de mezcla de al menos uno cualquiera de un óxido, un hidróxido y un
 10 hidrato mediante tratamiento térmico del mismo a una temperatura alta, cuando la capa de recubrimiento resistente a la intemperie comprende aluminio y/o silicio, por ejemplo. Se recomienda realizar previamente una separación sólido-líquido de la pasta que contiene el pigmento metálico que tiene la película de hidrato de la suspensión mencionada anteriormente antes del tratamiento térmico final.

15

Aunque el compuesto de silicio y/o el compuesto de aluminio empleados en el método mencionado anteriormente no están particularmente limitados, pueden enumerarse metil-trietoxisilano, metil-trimetoxisilano, tetraetoxisilano, tetrametoxisilano o tetraisopropoxisilano o un condensado de los mismos, γ -
 20 aminopropil-trietoxisilano, N-2-aminoetil-3-aminopropil-trietoxisilano, N-2-aminoetil-3-aminopropilmetil-dimetoxisilano, silicato de sodio, ácido silicotúngstico, ácido silicomolíbico, trietoxi-aluminio, trimetoxi-aluminio o triisopropoxi-aluminio o un condensado de los mismos o nitrato de aluminio.

25 Aunque el disolvente hidrófilo empleado para la suspensión en el caso mencionado anteriormente no está particularmente limitado, pueden enumerarse alcohol metílico, alcohol etílico, alcohol isopropílico, alcohol n-propílico, alcohol t-butílico, alcohol n-butílico, alcohol isobutílico, etil-cellosolve, butil-cellosolve, propilenglicol, monobutil éter, monometil éter de dipropilenglicol, monopropil éter de propilenglicol,
 30 acetona o similar. La suspensión mencionada anteriormente puede contener agua.

Cuando la capa de recubrimiento resistente a la intemperie comprende cerio, puede emplearse preferiblemente un método que añade el pigmento metálico al menos dotado de la capa de película de óxido de silicio amorfo y las partículas metálicas a
 35 una disolución en la que se disuelve o se dispersa acetato de cerio, nitrato de cerio,

alcóxido de cerio o sol de cerio y que calienta/que agita o que amasa el mismo mientras que se mantiene una atmósfera básica.

El grosor de la capa de recubrimiento resistente a la intemperie se fija
5 preferiblemente en el intervalo de 1 a 100 nm. La resistencia al agua, la resistencia al calor y la resistencia a la intemperie de una película formada con el pigmento metálico coloreado según la presente invención son excelentes si el grosor es al menos de 1 nm, mientras que el lustre del pigmento metálico de base se desarrolla de manera excelente en la película si el grosor no es superior a 100 nm. El grosor
10 de la capa de recubrimiento resistente a la intemperie se fija más preferiblemente en el intervalo de 20 a 50 nm.

<Agente de acoplamiento>

15 En la presente invención, la capa de recubrimiento resistente a la intemperie se trata además preferiblemente con un agente de acoplamiento, particularmente un agente de acoplamiento que comprende silicio y/o titanio cuando se forman las partículas metálicas o la capa de recubrimiento resistente a la intemperie mencionada anteriormente. En este caso, se mejora la afinidad entre el pigmento
20 metálico coloreado y la resina de recubrimiento cuando se prepara una película a partir de una composición de recubrimiento que comprende el pigmento metálico coloreado según la presente invención y la resina de recubrimiento, mediante lo cual se logra un efecto de mejora de la adhesividad de la película. Por ejemplo, un agente de acoplamiento de silano es preferible como el agente de acoplamiento.

25 Pueden ilustrarse $R_A-Si(OR_B)_3$ o $R_A-SiR_B(OR_B)_2$ (R_A : grupo acilo o grupo arilo o grupo alquenilo que tiene un número de carbonos de 2 a 18, R_B : grupo acilo que tiene un número de carbonos de 1 a 3) preferiblemente como el agente de acoplamiento de silano. También es preferible que R_A en la fórmula anterior tenga un grupo funcional. Un grupo amino, un grupo ureido, un grupo epoxi, un grupo
30 sulfuro, un grupo vinilo, un grupo metacriloxilo (metacrílico), un grupo acriloxilo (acrílico), un grupo mercapto o un grupo cetimino pueden enumerarse como el grupo funcional.

Metiltrietoxisilano, metiltrimetoxisilano, tetraetoxisilano, tetrametoxisilano,
35 tetraisopropoxisilano, 3-aminopropil-trimetoxisilano, n-metil-3-aminopropil-

trimetoxisilano, 3-aminopropil-trietoxisilano, 3-aminopropil-tris(2-metoxi-epoxi-silano), n-aminoetil-3-aminopropil-trimetoxisilano, 3-metacriloxipropil-trimetoxisilano, 3-acriloxipropil-trimetoxisilano, 3-glicidiloxipropil-trimetoxisilano, 3-mercaptopropil-trimetoxisilano, 3-mercaptopropil-trietoxisilano, 3-mercaptopropil-metildimetoxisilano, viniltriclorosilano, viniltrimetoxisilano, viniltrietoxisilano o vinil-tris(2-metoxietoxi)silano o un condensado de los mismos pueden enumerarse como un ejemplo específico preferible de un compuesto de silicio orgánico empleado como el agente de acoplamiento de silano.

- 10 Un agente de acoplamiento de titanio, menor en el número de tipos en comparación con el agente de acoplamiento de silano, puede emplearse preferiblemente como el agente de acoplamiento en la presente invención. El agente de acoplamiento de titanio tiene generalmente un grupo hidrolizable hidrófilo y un grupo funcional orgánico de cadena lateral hidrófobo. Normalmente, un grupo alcóxido está
- 15 contenido como el grupo hidrolizable hidrófilo, y un grupo éster alcilfosfórico, un grupo amino o un grupo sulfuro está contenido como el grupo funcional orgánico de cadena lateral hidrófobo. Prene Act KR46B de Ajinomoto Fine-Techno Co., Inc. o similar puede enumerarse como un producto disponible comercialmente preferible a modo de ejemplo del agente de acoplamiento de titanio. Por ejemplo, Prene Act
- 20 KR46B tiene una estructura tal que $C_8H_{17}O-$ y $HO-P(OC_{13}H_{27})_2$, $C_8H_{17}O-$ se coordinan con Ti como el grupo hidrolizable y el grupo funcional orgánico de cadena lateral hidrófobo, respectivamente.

Cuando se realiza el tratamiento de acoplamiento, el contenido del agente de

25 acoplamiento se fija preferiblemente para que esté en el intervalo del 0,1 al 30% en masa del pigmento antes del tratamiento de acoplamiento. Un efecto de mejora de la adhesividad de la película es excelente si el contenido del agente de acoplamiento es al menos del 0,1% en masa del pigmento antes del tratamiento de acoplamiento, aunque la estabilidad con el envejecimiento del pigmento metálico

30 coloreado, particularmente un efecto de impedir la agregación es preferiblemente excelente si el contenido no es superior al 30% en masa. El contenido del agente de acoplamiento se fija más preferiblemente en el intervalo del 1 al 5% en masa del pigmento antes del tratamiento de acoplamiento.

35 El tratamiento de acoplamiento puede realizarse mediante un método que dispersa

el pigmento metálico dotado de las partículas metálicas o el pigmento metálico además dotado de la capa de recubrimiento resistente a la intemperie sobre las partículas metálicas en un disolvente tal como alcohol isopropílico, que prepara una suspensión espesa del mismo y que añade después el agente de acoplamiento a la
5 misma o similar.

<Capa de resina de cobertura>

Una capa de resina de cobertura se forma preferiblemente sobre el pigmento metálico coloreado según la presente invención como la capa más exterior. Cuando
10 se forma una película con la composición de recubrimiento preparada combinando el pigmento metálico coloreado según la presente invención y la resina de recubrimiento, se mejora la adhesividad entre el pigmento metálico coloreado y la resina de recubrimiento y se mejoran ventajosamente las propiedades de película
15 en este caso. Además, también se mejora ventajosamente la resistencia química de la película debido a la formación de la capa de resina de cobertura.

Aunque el método de formación de la capa de resina de cobertura no está particularmente limitado, puede emplearse preferiblemente un método que somete
20 a separación sólido-líquido el pigmento metálico dotado de las partículas metálicas, que limpia/que filtra el mismo con un disolvente apolar si es necesario, que dispersa después el mismo en el disolvente apolar, que añade un monómero polimerizable y un iniciador de la polimerización, el monómero mediante agitación y calentamiento del mismo y que deposita una capa de resina sobre la superficie del pigmento
25 metálico al menos dotado de las partículas metálicas con referencia al caso en que se forman las partículas metálicas mediante revestimiento por vía química. La polimerización se realiza de manera deseable en una atmósfera no oxidante tal como gas inerte de nitrógeno o argón, por ejemplo. Si se emplea una atmósfera oxidante, los radicales que contribuyen a la polimerización desaparecen fácilmente
30 y la eficacia de polimerización para el monómero tiende a disminuir. La temperatura de reacción apropiada es de 50 a 150°C, más preferiblemente de 70 a 100°C. La eficacia de polimerización es excelente si la temperatura de reacción es al menos de 50°C, mientras que se impide una evaporación excesiva del disolvente preferiblemente considerando la seguridad y el entorno de trabajo si la temperatura
35 no es superior a 150°C.

Un disolvente a base de hidrocarburo es particularmente preferible como el disolvente apolar mencionado anteriormente empleado como disolvente para dispersión. Puede ilustrarse un disolvente tal como alcohol mineral, bencina de petróleo, nafta disolvente, isoparafina, parafina normal, benceno, tolueno, xileno, ciclohexano, hexano, heptano, octano, clorobenceno, triclorobenceno, percloroetileno, tricloroetileno o similar preferiblemente como un ejemplo preferible del disolvente apolar. Cuando se emplea el disolvente apolar como disolvente para dispersión, la eficacia de deposición de la capa de resina es excelente, y la capa más exterior puede cubrirse fácilmente con una cantidad suficiente de resina.

Aunque el material para la capa de resina de cobertura no está particularmente limitado, puede ilustrarse un copolímero sintetizado a partir de al menos dos tipos de monómeros que incluye un monómero reactivo que tiene un grupo carboxilo y/o un grupo ácido fosfórico y monómero de éster acrílico multifuncional al menos trifuncional y/o un monómero polimerizable que tiene un núcleo de benceno, por ejemplo.

Se ilustran las siguientes sustancias como ejemplos del monómero reactivo que tiene un grupo carboxilo y/o un grupo ácido fosfórico. El contenido del monómero reactivo que tiene un grupo carboxilo y/o un grupo ácido fosfórico se fija preferiblemente en el intervalo del 0,1 al 10% en masa, más preferiblemente en el intervalo del 0,5 al 5% en masa del componente de monómero cargado. Si el contenido está fuera de este intervalo, tiende a ser difícil lograr una resistencia química de la película excelente.

Como ejemplos del monómero reactivo que tiene un grupo carboxilo y/o un grupo ácido fosfórico, pueden enumerarse ácido acrílico, ácido metacrílico, ácido maleico, ácido crotónico, ácido itacónico, ácido fumárico, fosfato ácido de 2-metacriloiloxietilo, fosfato ácido de di-2-metacriloiloxietilo, fosfato ácido de tri-2-metacriloiloxietilo, fosfato ácido de 2-acriloiloxietilo, fosfato ácido de di-2-acriloiloxietilo, fosfato ácido de tri-2-acriloiloxietilo, fosfato ácido de difenil-2-metacriloiloxietilo, fosfato ácido de difenil-2-acriloiloxietilo, fosfato ácido de dibutil-2-metacriloiloxietilo, fosfato ácido de dibutil-2-acriloiloxietilo, fosfato ácido de dioctil-2-metacriloiloxietilo, fosfato ácido de dioctil-2-acriloiloxietilo, fosfato ácido de 2-

metacriloiloxipropilo, fosfonato de bis(2-cloroetil)vinilo, fosfosuccinato de dialildibutilo y similares.

Se ilustran las siguientes sustancias como ejemplos del monómero de éster de
 5 ácido acrílico multifuncional al menos trifuncional. El contenido del monómero de
 éster de ácido acrílico multifuncional al menos trifuncional se fija preferiblemente en
 el intervalo del 30 al 90% en masa, más preferiblemente en el intervalo del 40 al
 80% en masa del componente de monómero cargado. Si el contenido está fuera de
 este intervalo, tiende a ser difícil lograr una resistencia química de la película
 10 excelente.

Como ejemplos del monómero de éster de ácido acrílico multifuncional al menos
 trifuncional, pueden enumerarse triacrilato de trimetilolpropano, trimetacrilato de
 trimetilolpropano, triacrilato de tetrametilolpropano, tetraacrilato de
 15 tetrametilolpropano, trimetacrilato de tetrametilolpropano, tetrametacrilato de
 tetrametilolpropano, triacrilato de pentaeritritol, tetraacrilato de pentaeritritol,
 hexaacrilato de pentaeritritol, tetraacrilato de ditrimetilolpropano y similares.

Este monómero de éster de ácido acrílico multifuncional tiene los efectos de
 20 contribuir a la reticulación tridimensional de la resina y la insolubilización de la capa
 de resina de cobertura con respecto al disolvente orgánico y agua.

Se ilustran las siguientes sustancias como ejemplos del monómero polimerizable
 que tiene un núcleo de benceno. El contenido del monómero polimerizable que
 25 tiene un núcleo de benceno se fija preferiblemente en el intervalo del 5 al 50% en
 masa, más preferiblemente en el intervalo del 10 al 30% en masa del componente
 de monómero cargado. Si el contenido está fuera de este intervalo, tiende a ser
 difícil lograr una resistencia química de la película excelente.

30 Estireno, α -metilestireno, viniltolueno, divinilbenceno, fenilvinil cetona, fenilvinil éter,
 monóxido de divinilbenceno acrilato de fenoxietilo, acrilato de fenoxi-poli(etilenglicol),
 acrilato de 2-hidroxi-3-fenoxipropilo y similares pueden enumerarse como los
 ejemplos del monómero polimerizable que tiene un núcleo de benceno.

35 Este monómero polimerizable que tiene un núcleo de benceno se copolimeriza de

modo que se mejora un efecto de barrera de la capa de resina de cobertura frente a productos químicos y se logra una alta resistencia química cuando el pigmento metálico coloreado según la presente invención se trabaja para dar una película.

- 5 En el pigmento metálico coloreado según la presente invención, la cantidad de la capa de resina de cobertura se fija preferiblemente en el intervalo de 1 a 100 partes en masa, más preferiblemente de 5 a 50 partes en masa con respecto a 100 partes en masa del pigmento metálico. Se logra una resistencia química excelente si la cantidad de la capa de resina de cobertura es al menos de 1 parte en masa,
10 mientras que el lustre del pigmento metálico coloreado es difícil de dañar si la cantidad no es superior a 100 partes en masa.

La capa de resina de cobertura puede sintetizarse a partir del monómero mencionado anteriormente y el iniciador de la polimerización. Pueden ilustrarse
15 peróxidos tales como peróxido de benzoílo, peróxido de lauroílo, peróxido de isobutilo y peróxido de metil etil cetona y un compuesto azoico tal como azobis-isobutilonitrilo preferiblemente como ejemplos del iniciador de la polimerización.

El contenido del iniciador de la polimerización es preferiblemente al menos de 0,1
20 partes en masa, más preferiblemente al menos de 0,5 partes en masa en particular, con respecto a 100 partes en masa del componente de monómero cargado. Este contenido no es superior preferiblemente a 10 partes en masa, más preferiblemente no superior a 8 partes en masa en particular, con respecto a 100 partes en masa del componente de monómero cargado. Si el contenido es al menos de 0,1 partes
25 en masa, la polimerización avanza de manera excelente y puede formarse fácilmente una película de una cantidad esperada. Aunque no pueda seguir la adsorción del polímero formado en el pigmento metálico, aumenta bruscamente la viscosidad del sistema global debido a la formación de partículas de polímero libres y tiende a resultar fácilmente agregación si la polimerización avanza bruscamente,
30 se impide un avance brusco de la polimerización si el contenido no es superior a 10 partes en masa, mediante lo cual apenas tiene lugar la inconveniencia mencionada anteriormente.

Aunque se ha descrito la estructura principal del pigmento metálico coloreado
35 según la presente invención, la capa de metal y las partículas metálicas pueden

formarse simplemente en contacto directo entre sí en este pigmento metálico coloreado, y además puede formarse una capa o una sustancia granular además de las mencionadas anteriormente, en un intervalo que no dañe los efectos de la presente invención.

5

<Composición de recubrimiento>

La presente invención también se refiere a una composición de recubrimiento obtenida combinando el pigmento metálico coloreado mencionado anteriormente en una pintura o tinta. La composición de recubrimiento según la presente invención incluye pintura y una película de la misma, o tinta y una impresión de la misma, por ejemplo. Pueden emplearse tanto materiales de tipo de disolvente orgánico como a base de agua como la pintura y la tinta, es importante mejorar la resistencia a la luz y la resistencia a la intemperie en una pintura a base de agua o tinta a base de agua, y así el pigmento metálico coloreado según la presente invención se combina eficazmente en la pintura a base de agua o tinta a base de agua, en particular.

El contenido del pigmento metálico coloreado en la composición de recubrimiento se fija preferiblemente en el intervalo del 0,1 al 30% en masa de la composición de recubrimiento. Un efecto decorativo tal como un efecto metálico es excelente si el contenido es al menos del 0,1% en masa, mientras que la resistencia a la intemperie, la resistencia a la corrosión, la resistencia mecánica etc. de la composición de recubrimiento son excelentes si el contenido no es superior a 30% en masa. El contenido del pigmento metálico coloreado en la composición de recubrimiento se fija más preferiblemente en el intervalo del 1 al 20% en masa de la composición de recubrimiento.

La composición de recubrimiento se obtiene combinando apropiadamente la resina de recubrimiento en el pigmento metálico coloreado según la presente invención. Pueden ilustrarse resina acrílica, resina alquídica, resina de poliéster, resina de poliuretano, resina de poli(acetato de vinilo), resina de nitrocelulosa, fluororresina o similar como la resina de recubrimiento.

Para la composición de recubrimiento según la presente invención, puede emplearse otro pigmento coloreado o un pigmento de carga o una material

colorante además del pigmento metálico coloreado y la resina de recubrimiento. Como el pigmento coloreado empleado, pueden ilustrarse ftalocianina, quinacridona, isoindolinona, perileno, laca azoica, óxido de hierro, amarillo de cromo, negro de humo, óxido de titanio, mica perlada o similar.

5

En la composición de recubrimiento según la presente invención, pueden combinarse apropiadamente agua, un disolvente orgánico, un agente activo interfacial, un endurecedor, un absorbente de ultravioleta, un eliminador estático, un espesante etc., como aditivos, además de los componentes mencionados

10

Cuando se forma una película con la composición de recubrimiento según la presente invención, la película puede formarse sobre una capa de recubrimiento base o una capa de recubrimiento intermedia formada mediante recubrimiento por

15

electrodeposición o similar, mientras que puede formarse además una capa de recubrimiento superior sobre la película preparada a partir de la composición de recubrimiento según la presente invención.

<Preparación cosmética>

20

La presente invención también se refiere a una preparación cosmética obtenida combinando el pigmento metálico coloreado mencionado anteriormente. Aunque se emplea generalmente un pigmento perlado o un pigmento de aluminio para suministrar lustre y brillo a una preparación cosmética, el pigmento perlado es

25

inferior en cuanto al poder cubriente, y el pigmento de aluminio presenta tonalidades grises y por tanto no pueden obtenerse tonalidades vivas combinando un pigmento coloreado. Además, el pigmento de aluminio reacciona fácilmente con agua de modo que no puede usarse el mismo para una preparación cosmética que contiene agua.

30

Una preparación cosmética que tiene un poder cubriente excelente y que muestra tonalidades vivas puede obtenerse combinando el pigmento metálico coloreado según la presente invención. Además, el pigmento metálico coloreado según la presente invención es un pigmento metálico coloreado estable que apenas

35

reacciona con agua, mediante lo cual el pigmento metálico coloreado según la

presente invención puede aplicarse preferiblemente también a una preparación cosmética que contiene agua.

El tipo de la preparación cosmética combinada con el pigmento metálico coloreado según la presente invención no está particularmente limitado, se enumeran las siguientes preparaciones cosméticas como realizaciones específicas:

(Realizaciones de preparación cosmética combinada con pigmento metálico coloreado según la presente invención)

10

(1) Se enumeran las siguientes como los tipos de preparaciones cosméticas:

Preparaciones de maquillaje (barra de labios, base de maquillaje, colorete, sombra de ojos, esmalte de uñas, etc.), preparaciones capilares (gel capilar, cera capilar, tratamiento capilar, champú, gel de manicura capilar etc.) y preparaciones básicas (crema de día, etc.).

15

(2) Se enumeran las siguientes sustancias como componentes que constituyen la preparación cosmética, además del pigmento metálico coloreado según la presente invención:

20

(Aceite)

Aceites y grasas (aceite de oliva, aceite de ricino, etc.), cera (cera de abejas, cera carnauba, lanolina, etc.), aceites hidrocarbonados (parafina líquida, escualano, polibuteno, etc.), ésteres grasos (miristato de isopropilo, 2-etilhexanato de cetilo, adipato de diisopropilo, trimiristato de glicerilo, etc.), ácidos grasos superiores (ácido oleico, ácido isoesteárico etc.), alcoholes superiores (alcohol isoestearílico, alcohol oleílico, etc.) y aceites de silicona (dimetil-polisiloxano, metilfenil-polisiloxano, octametil-ciclotetrasiloxano, etc.) y compuestos de flúor (perfluoropoliéter, etc.).

30

(Otros)

Agente activo interfacial, humectante, alcohol polivalente, polímero soluble en agua,

35

formador de película, polímero insoluble en agua, emulsión de polímero, polvo, pigmento, materia colorante, laca, alcohol inferior, absorbente de ultravioleta, vitaminas, antioxidante, agente antifúngico, perfume, agua, etc.

5 (Contenido)

Como contenido preferible del pigmento metálico coloreado en la preparación cosmética, puede ilustrarse el intervalo del 0,1 al 99% en masa, y puede ilustrarse más preferiblemente el intervalo del 1 al 80% en masa.

10

(3) Método de mezclado de la preparación cosmética

Puede aplicarse un método general de preparación cosmética sin limitación particular. Un dispersador o una molienda con rodillos es preferible como método de dispersión.

15

<Etapa de producción>

El pigmento metálico coloreado según la presente invención puede producirse a lo largo de las siguientes etapas, por ejemplo: cuando la subcapa se forma entre el pigmento metálico y la capa de película de óxido de silicio amorfo en la presente invención, la subcapa se forma en primer lugar sobre la superficie del pigmento metálico. Normalmente, puede emplearse un método que agita o que amasa el pigmento metálico y una disolución que contiene un compuesto de molibdeno y/o un compuesto de fósforo en un estado de suspensión espesa o un estado de pasta, que forma una película de hidrato que comprende molibdeno y/o fósforo sobre la superficie del pigmento metálico y después que forma una subcapa mediante calentamiento o similar.

20

25

Como el método de formación de la capa de modificación de la superficie en el caso en el que la capa de modificación de la superficie se forma sobre la superficie del pigmento metálico, puede emplearse un método que forma una película de hidrato que comprende el elemento metálico que constituye el pigmento metálico sobre la superficie del pigmento metálico agitando o amasando el pigmento metálico y una disolución que contiene peróxido de hidrógeno en un estado de suspensión espesa

30

35

o un estado de pasta y después convirtiendo la película de hidrato en una película de óxido mediante calentamiento o similar.

Entonces, la capa de película de óxido de silicio amorfo se forma sobre la subcapa
5 o la capa de modificación de la superficie (etapa de formación de capa de película de óxido de silicio amorfo). La capa de película de óxido de silicio amorfo se forma sobre la superficie del pigmento metálico mediante hidrólisis de un compuesto de silicio orgánico en un disolvente que se compone principalmente de un disolvente hidrófilo para depositar óxido de silicio amorfo. Por ejemplo, pueden emplearse
10 alcohol metílico, alcohol etílico, alcohol isopropílico, alcohol n-propílico, alcohol t-butílico, alcohol n-butílico, alcohol isobutílico, etil-cellosolve, butil-cellosolve, monobutil éter de propilenglicol, monometil éter de dipropilenglicol, monopropil éter de propilenglicol, acetona o similar al disolvente hidrófilo. Cuando se emplea alcohol como el disolvente hidrófilo, se forma la capa de película de óxido de silicio
15 amorfo formando silicato de alcóxido sobre la superficie del pigmento metálico e hidrolizando y deshidratando/condensando el mismo. Se emplea preferiblemente ácido o base como el catalizador para la hidrólisis mencionada anteriormente.

Entonces, la capa de metal se forma sobre la superficie del pigmento metálico
20 cubierto con la capa de película de óxido de silicio amorfo mediante el método mencionado anteriormente (etapa de formación de capa de metal). La capa de metal puede formarse como se llevó a cabo una etapa previa para se llevó a cabo una etapa de formación de partículas metálicas descrita más adelante. En otras palabras, la capa de metal se forma sobre la superficie del pigmento metálico
25 dotado de la capa de película de óxido de silicio amorfo mediante un método de depositar hidrolíticamente alcóxido de metal que comprende al menos un metal seleccionado de Sn, Pd, Pt y Au, por ejemplo, como especie de metal que puede formar un sitio activo para depositar las partículas metálicas en la etapa de formación de partículas metálicas que se llevó a cabo una etapa posterior mediante
30 un procedimiento sol-gel o un método que añade álcali a una disolución de sal metálica que contiene este metal y neutralizar/depositar la misma.

Entonces, se forman las partículas metálicas sobre la superficie de la capa de metal como materia nanoparticulada homogénea mediante revestimiento por vía química
35 o similar (etapa de formación de partículas metálicas). El revestimiento por vía

química puede realizarse mediante un método que prepara una suspensión espesa del pigmento metálico dotado de la capa de metal con agua que sirve como medio de dispersión y que después añade una disolución de revestimiento por vía química, por ejemplo. La disolución de revestimiento por vía química normalmente
5 contiene al menos una fuente de metal empleada principalmente para formar las partículas metálicas, un agente reductor y un agente de complejación.

Puede usarse una sal metálica soluble en agua que comprende uno cualquiera de Al, Ti, Cr, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Ru, Rh, Rd, Ag, Sn, Pt y Au como la fuente de metal.
10 Puede usarse nitrato, nitrito, sulfato, oxalato, carbonato, cloruro, acetato, lactato, sulfamato, fluoruro, yoduro, cianuro o similar como la sal soluble en agua.

Puede usarse ácido hipofosforoso, formaldehído, hidruro de boro, dimetil-aminaborano, trimetil-aminaborano, hidrazina, glucosa, ácido tartárico o una sal de
15 metal alcalino de los mismos como el agente reductor.

Puede usarse un ácido carboxílico tal como ácido succínico, ácido oxicarboxílico tal como ácido cítrico o ácido tartárico, ácido orgánico tal como glicina, EDTA o ácido aminoacético, o una sal de metal alcalino o sal de amonio de tal ácido como el
20 agente de complejación. Las partículas metálicas pueden formarse de manera estable empleando el agente de complejación.

El procedimiento para producir un pigmento metálico coloreado según la presente invención incluye además preferiblemente una etapa de formar una capa de
25 inhibición de la corrosión de formación de una capa de inhibición de la corrosión sobre las partículas metálicas. Aunque el método de formación de la capa de inhibición de la corrosión no está particularmente limitado, puede emplearse un método de formación de la capa de inhibición de la corrosión añadiendo un inhibidor de la corrosión a una suspensión de un estado de suspensión espesa o un estado
30 de pasta preparada suspendiendo el pigmento metálico al menos dotado de la capa de película de óxido de silicio amorfo y las partículas metálicas en un disolvente hidrófilo y que agita o que amasa el mismo uniéndolo de ese modo el inhibidor de la corrosión a la superficie del pigmento metálico mencionado anteriormente, por ejemplo.

35

En la presente invención, se proporciona preferiblemente se llevó a cabo una etapa de formación de una capa de recubrimiento resistente a la intemperie de formación de una capa de recubrimiento resistente a la intemperie tras la etapa de formación de partículas metálicas. Cuando la capa de recubrimiento resistente a la intemperie comprende aluminio y/o silicio, una capa de recubrimiento resistente a la intemperie que consiste en una película individual o una película de mezcla de al menos uno cualquiera de un óxido, un hidróxido y un hidrato puede formarse agitando o amasando el pigmento metálico al menos dotado de las partículas metálicas y una disolución que contiene aluminio y/o silicio en un estado de suspensión espesa o un estado de pasta para formar una película de hidrato y después calentando el mismo, tal como se describió anteriormente en el presente documento. Cuando la capa de recubrimiento resistente a la intemperie comprende cerio, una capa de recubrimiento resistente a la intemperie que consiste en una película individual o una película de mezcla de al menos uno cualquiera de un óxido, un hidróxido y un hidrato puede formarse añadiendo el pigmento metálico al menos dotado de las partículas metálicas a una disolución en la que se disuelve o se dispersa acetato de cerio, nitrato de cerio, alcóxido de cerio, sol de cerio o similar y calentando/agitando o amasando la misma mientras que se mantiene una atmósfera básica.

20 Cuando se forma la capa de recubrimiento resistente a la intemperie mencionada anteriormente, se combina además preferiblemente una etapa de tratamiento de acoplamiento. El tratamiento de acoplamiento se realiza mediante un método que agita o que amasa el pigmento metálico dotado de las partículas metálicas y una disolución que contiene aluminio y/o silicio en un estado de suspensión espesa o un estado de pasta y que añade después un agente de acoplamiento si la capa de recubrimiento resistente a la intemperie comprende aluminio y/o silicio, o mediante un método que añade el pigmento metálico dotado de las partículas metálicas a una disolución o una dispersión de un compuesto de cerio, que calienta/que agita o que amasa la misma mientras que se mantiene una atmósfera básica y que añade después un agente de acoplamiento si la capa de recubrimiento resistente a la intemperie comprende cerio, por ejemplo. También puede emplearse un método que prepara una suspensión espesa del pigmento metálico dotado de la capa de recubrimiento resistente a la intemperie dispersando el mismo en un disolvente tal como alcohol isopropílico y añadiendo un agente de acoplamiento a esta suspensión espesa.

El pigmento metálico coloreado según la presente invención puede prepararse mediante el procedimiento mencionado anteriormente. Además, la composición de recubrimiento según la presente invención puede prepararse mezclando el pigmento metálico coloreado obtenido con la resina de recubrimiento y otro pigmento coloreado, un pigmento de carga, una materia colorante, un aditivo, etc. si es necesario mediante un método bien conocido. Además, la preparación cosmética según la presente invención puede prepararse mezclando el pigmento metálico coloreado obtenido con otros componentes y dispersando el mismo mediante un método bien conocido que emplea dispersador o molienda con rodillos.

[Ejemplos]

Aunque la presente invención se describe ahora con más detalle con referencia a los ejemplos, la presente invención no se limita a éstos.

(Ejemplo 1)

Se disolvió una disolución obtenida añadiendo 0,3 g de polvo de molibdeno metal poco a poco a 3 g de peróxido de hidrógeno-agua que contenía el 30% en masa de peróxido de hidrógeno y haciendo reaccionar la misma, en 500 g de alcohol isopropílico (a continuación en el presente documento abreviado como IPA), se le añadió un pigmento de aluminio disponible comercialmente (5422NS de Toyo Aluminium Kabushiki Kaisha - contenido en sólidos: 75% en masa, diámetro de partícula promedio: 19 μm , grosor promedio: 1 μm) en 40 g (es decir, 30 g como contenido en aluminio) como pigmento metálico, y se agitaron y se mezclaron los materiales a 75°C durante 1 hora, para obtener una suspensión espesa.

Después se añadieron agua amoniacal y 80 g de agua a la suspensión espesa mencionada anteriormente, para ajustar el pH de la suspensión espesa a 10,0. Se añadió por goteo gradualmente una sustancia preparada disolviendo 40 g de tetraetoxisilano en 40 g de IPA, a la suspensión espesa con el pH ajustado, y se agitaron/mezclaron adicionalmente los materiales a 75°C durante 2 horas. Después se sometió la suspensión espesa a separación sólido-líquido a través de un filtro y se formó una capa de película de óxido de silicio amorfo sobre la superficie del

pigmento metálico (etapa de formación de capa de película de óxido de silicio amorfo), preparando de ese modo un pigmento de aluminio con recubrimiento de sílice.

- 5 Se dispersaron 10 g del pigmento de aluminio con recubrimiento de sílice obtenido en 300 g de una disolución acuosa que contenía 40 g de cloruro de estaño y 2 g de ácido clorhídrico a 30°C durante 1 hora, se sometió de nuevo a separación sólido-líquido y se limpió con agua, y se formó una capa de metal sobre la superficie del pigmento de aluminio con recubrimiento de sílice (etapa de formación de capa de metal), para preparar un pigmento de aluminio cubierto con una capa de metal.

- Se dispersó el pigmento de aluminio cubierto con una capa de metal obtenido en 800 g de una disolución de plateado por vía química que contenía 3 g de nitrato de plata, 2 g de formaldehído y 10 g de agua amoniacal y se mantuvo a 30°C durante 1 hora para formar partículas metálicas sobre la superficie de la capa de metal (etapa de formar partículas metálicas), obteniéndose de ese modo un pigmento de aluminio unido a partículas metálicas. Se obtuvo un pigmento de aluminio de color azul correspondiente al pigmento metálico coloreado según la presente invención sometiéndolo a separación sólido-líquido y secando el pigmento de aluminio unido a partículas metálicas obtenido. Cuando se observó visualmente, este pigmento de aluminio coloreado presentaba colores de interferencia que cambiaban de morado azulado a marrón oscuro dependiendo de los ángulos de observación, y tenía un efecto metálico excelente.

25 (Ejemplo 2)

- Se dispersaron 10 g de un pigmento de aluminio con recubrimiento de sílice obtenido a través de una etapa de formación de una capa de película de óxido de silicio amorfo similar a la del ejemplo 1 en 500 g de una disolución acuosa que contenía 50 g de fluoruro de estaño a 40°C durante 30 minutos para formar una capa de metal sobre la superficie de una capa de película de óxido de silicio amorfo (etapa de formación de capa de metal), se sometió de nuevo a separación sólido-líquido y se limpió con agua, después se dispersó en 900 g de una disolución de plateado por vía química que contenía 3 g de nitrato de plata, 40 g de glucosa y 20 g de agua amoniacal y se mantuvo a 40°C durante 10 minutos para formar

partículas metálicas sobre la superficie de la capa de metal (etapa de formación de partículas metálicas), obteniéndose de ese modo un pigmento de aluminio unido a partículas metálicas. Se obtuvo un pigmento de aluminio de color azul correspondiente al pigmento metálico coloreado según la presente invención
5 sometiénolo a separación sólido-líquido y secando el pigmento de aluminio unido a partículas metálicas obtenido. Cuando se observó visualmente, este pigmento de aluminio coloreado presentaba colores de interferencia que cambiaban de azul a azul oscuro dependiendo de los ángulos de observación, y tenía un efecto metálico excelente.

10

(Ejemplo 3)

Se dispersaron 10 g de un pigmento de aluminio con recubrimiento de sílice obtenido a través de una etapa de formación de una capa de película de óxido de silicio amorfo similar a la del ejemplo 1 en 400 g de una disolución acuosa que
15 contenía 30 g de estannato de sodio a 50°C durante 50 minutos para formar una capa de metal sobre la superficie de una capa de película de óxido de silicio amorfo (etapa de formación de capa de metal), se sometió de nuevo a separación sólido-líquido y se limpió con agua, después se dispersó en 200 g de una disolución de
20 plateado por vía química que contenía 3 g de nitrato de plata, 15 g de tartrato de sodio y potasio y 15 g de agua amoniacal y se mantuvo a 35°C durante 40 minutos para formar partículas metálicas sobre la superficie de la capa de metal (etapa de formación de partículas metálicas), obteniéndose de ese modo un pigmento de aluminio unido a partículas metálicas. Se obtuvo un pigmento de aluminio de color
25 azul correspondiente al pigmento metálico coloreado según la presente invención sometiénolo a separación sólido-líquido y secando el pigmento de aluminio unido a partículas metálicas obtenido. Cuando se observó visualmente, este pigmento de aluminio coloreado presentaba colores de interferencia que cambiaban de morado azulado a marrón oscuro dependiendo de los ángulos de observación, y tenía un
30 efecto metálico excelente.

(Ejemplo 4)

Se dispersaron 10 g de un pigmento de aluminio con recubrimiento de sílice
35 obtenido a través de una etapa de formación de una capa de película de óxido de

silicio amorfo similar a la del ejemplo 1 en 200 g de una disolución acuosa que contenía 40 g de cloruro de estaño, 5 g de cloruro de paladio y 20 g de ácido clorhídrico a 30°C durante 1 hora para formar una capa de metal sobre la superficie de una capa de película de óxido de silicio amorfo (etapa de formación de capa de metal), se sometió de nuevo a separación sólido-líquido y se limpió con ácido sulfúrico al 5%, después se dispersó en 500 g de una disolución de niquelado por vía química que contenía 10 g de sulfato de níquel, 5 g de hipofosfito de sodio y 5 g de citrato de sodio y se mantuvo a 80°C durante 1 hora para formar partículas metálicas sobre la superficie de la capa de metal (etapa de formación de partículas metálicas), obteniéndose de ese modo un pigmento de aluminio unido a partículas metálicas. Se obtuvo un pigmento de aluminio de color azul correspondiente al pigmento metálico coloreado según la presente invención sometiéndolo a separación sólido-líquido y secando el pigmento de aluminio unido a partículas metálicas obtenido. Cuando se observó visualmente, este pigmento de aluminio coloreado presentaba colores de interferencia que cambiaban de azul pálido a azul oscuro dependiendo de los ángulos de observación, y tenía un efecto metálico excelente.

(Ejemplo 5)

Se dispersaron 10 g de un pigmento de aluminio con recubrimiento de sílice obtenido a través de una etapa de formación de una capa de película de óxido de silicio amorfo similar a la del ejemplo 1 en 300 g de una disolución acuosa que contenía 50 g de cloruro de estaño, 1 g de cloruro de paladio y 30 g de ácido clorhídrico a 40°C durante 30 minutos para formar una capa de metal sobre la superficie de una capa de película de óxido de silicio amorfo (etapa de formación de capa de metal), se sometió de nuevo a separación sólido-líquido y se limpió con ácido clorhídrico al 1%, después se dispersó en 500 g de una disolución de cobreado por vía química que contenía 5 g de sulfato de cobre, 2 g de formaldehído y 15 g de EDTA-2Na y se mantuvo a 60°C durante 1 hora para formar partículas metálicas sobre la superficie de la capa de metal (etapa de formación de partículas metálicas), obteniéndose de ese modo un pigmento de aluminio unido a partículas metálicas. Se obtuvo un pigmento de aluminio de color azul correspondiente al pigmento metálico coloreado según la presente invención sometiéndolo a separación sólido-líquido y secando el pigmento de aluminio unido a partículas

metálicas obtenido. Cuando se observó visualmente, este pigmento de aluminio coloreado presentaba colores de interferencia que cambiaban de azul pálido verdoso a azul oscuro verdoso dependiendo de los ángulos de observación, y tenía un efecto metálico excelente.

5

(Ejemplo 6)

Se añadieron 5 g de tetraetoxisilano y 15 g de una disolución acuosa del 10% en masa de urea a una suspensión espesa preparada dispersando 30 g del pigmento metálico coloreado obtenido en el ejemplo 1 en 200 g de IPA y se agitó/mezcló a 75°C durante 5 horas para hacer reaccionar el mismo (etapa de formación de capa de recubrimiento resistente a la intemperie). Se filtró esta suspensión espesa, para obtener un pigmento de aluminio cubierto con capa de recubrimiento resistente a la intemperie que tenía un contenido en sólidos del 60% en masa. Además, se añadieron 2 g de γ -aminopropil-trietoxisilano a una suspensión espesa preparada dispersando 30 g de este pigmento de aluminio cubierto con capa de recubrimiento resistente a la intemperie en 400 g de IPA y se agitó/mezcló a 75°C durante 1 hora para hacer reaccionar el mismo (etapa de tratamiento de acoplamiento). Se filtró esta suspensión espesa, para obtener un pigmento de aluminio coloreado correspondiente al pigmento metálico coloreado según la presente invención que tenía un contenido en sólidos del 60% en masa. El pigmento de aluminio coloreado obtenido presentaba tonalidades similares a las del ejemplo 1.

(Ejemplo 7)

25

Se llevó a cabo una etapa de formación de una capa de recubrimiento resistente a la intemperie similar a la del ejemplo 6 con 30 g del pigmento de aluminio coloreado obtenido en el ejemplo 1, se llenó con 30 g del pigmento de aluminio cubierto con capa de recubrimiento resistente a la intemperie obtenido un matraz separable de 1 litro con la adición de 180 g de alcohol mineral y se agitó mientras que se introducía gas nitrógeno, y se aumentó la temperatura en el sistema hasta 80°C. Entonces, se añadieron 0,06 g de ácido acrílico, 1,2 g de polibutadieno epoxidado, 1,5 g de triacrilato de trimetilolpropano, 0,54 g de divinilbenceno y 0,23 g de azobisisobutilonitrilo y se polimerizaron a 80°C durante 6 horas (etapa de formación de capa de resina de cobertura). Tras la finalización de polimerización, se filtró esta

35

suspensión espesa, para obtener un pigmento de aluminio coloreado correspondiente al pigmento metálico coloreado según la presente invención que tenía un contenido en sólidos del 60% en masa. El pigmento de aluminio coloreado obtenido presentaba tonalidades similares a las del ejemplo 1.

5

(Ejemplo 8)

Se llevó a cabo una etapa de formación de una capa de recubrimiento resistente a la intemperie similar a la del ejemplo 6 con 30 g del pigmento de aluminio coloreado
10 obtenido en el ejemplo 2, para obtener un pigmento de aluminio coloreado correspondiente al pigmento metálico coloreado según la presente invención que tenía un contenido en sólidos del 60% en masa. El pigmento de aluminio coloreado obtenido presentaba tonalidades similares a las del ejemplo 2.

15 (Ejemplo 9)

Se llevó a cabo una etapa de formación de una capa de recubrimiento resistente a la intemperie similar a la del ejemplo 6 con 30 g del pigmento de aluminio coloreado
20 obtenido en el ejemplo 3, para obtener un pigmento de aluminio coloreado correspondiente al pigmento metálico coloreado según la presente invención que tenía un contenido en sólidos del 60% en masa. El pigmento de aluminio coloreado obtenido presentaba tonalidades similares a las del ejemplo 3.

(Ejemplo 10)

25

Se llevó a cabo una etapa de formación de una capa de recubrimiento resistente a la intemperie similar a la del ejemplo 6 con 30 g del pigmento de aluminio coloreado
30 obtenido en el ejemplo 5, para obtener un pigmento de aluminio coloreado correspondiente al pigmento metálico coloreado según la presente invención que tenía un contenido en sólidos del 60% en masa. El pigmento de aluminio coloreado obtenido presentaba tonalidades similares a las del ejemplo 5.

(Ejemplo 11)

35 Se disolvieron 10 g de peróxido de hidrógeno-agua que contenía el 30% en masa

de peróxido de hidrógeno en 500 g de IPA, se añadieron además 40 g de un pigmento de aluminio (5422NS de Toyo Aluminium Kabushiki Kaisha) como pigmento metálico, y se agitó/mezcló a 75°C durante 1 hora para obtener una suspensión espesa (etapa de formación de capa de modificación de la superficie).

5

Se llevaron a cabo una etapa de formación de una capa de película de óxido de silicio amorfo y una etapa de revestimiento por vía química de manera similar al ejemplo 1. Se sometió el pigmento de aluminio coloreado obtenido a separación sólido-líquido y se secó, obteniéndose de ese modo un pigmento de aluminio coloreado que presenta tonalidades similares a las del ejemplo 1.

10

(Ejemplo 12)

Se añadieron 0,1 g de benzotriazol, 1 g de alcohol metílico y 0,1 g de hidróxido de sodio a una suspensión espesa preparada dispersando 30 g del pigmento de aluminio coloreado obtenido en el ejemplo 1 en agua y se dispersó a 30°C durante 10 minutos para formar una capa de inhibición de la corrosión sobre las superficies de las partículas metálicas (etapa de formación de capa de inhibición de la corrosión), obteniéndose de ese modo un pigmento de aluminio coloreado. Se sometió el pigmento de aluminio coloreado obtenido a separación sólido-líquido y se secó, obteniéndose de ese modo un pigmento de aluminio coloreado que presenta tonalidades similares a las del ejemplo 1.

15

20

(Ejemplo 13)

Se llevó a cabo una etapa de formación de una capa de recubrimiento resistente a la intemperie similar a la del ejemplo 6 con 30 g del pigmento de aluminio coloreado obtenido en el ejemplo 12, para obtener un pigmento de aluminio coloreado correspondiente al pigmento metálico coloreado según la presente invención que tenía un contenido en sólidos del 60% en masa. El pigmento de aluminio coloreado obtenido presentaba tonalidades similares a las del ejemplo 1.

25

30

(Ejemplo comparativo 1)

Se dispersaron 10 g de un pigmento de aluminio con recubrimiento de sílice

35

obtenido a través de una etapa de formación de una capa de película de óxido de silicio amorfo similar a la del ejemplo 1, en 800 g de una disolución de plateado por vía química que contenía 3 g de nitrato de plata, 2 g de formaldehído y 10 g de agua amoniacal y se mantuvo a 30°C durante 1 hora. Se sometieron las escamas
5 obtenidas a separación sólido-líquido y se secaron, para obtener un pigmento de aluminio que presentaba un color azul pálido. Cuando se observó visualmente este pigmento de aluminio, la inversión de color era débil, y el croma era bajo.

(Ejemplo comparativo 2)

10

Se dispersaron 10 g de un pigmento de aluminio con recubrimiento de sílice obtenido a través de una etapa de formación de una capa de película de óxido de silicio amorfo similar a la del ejemplo 1, en 500 g de una disolución de niquelado por vía química que contenía 10 g de sulfato de níquel, 5 g de hipofosfito de sodio y 5 g
15 de citrato de sodio y se mantuvo a 80°C durante 1 hora. Se sometieron las escamas obtenidas a separación sólido-líquido y se secaron, para obtener un pigmento de aluminio que presentaba el color del metal de la matriz. Cuando se observó visualmente este pigmento de aluminio, no se desarrolló ni inversión de color ni croma.

20

(Ejemplo comparativo 3)

Se dispersaron 10 g de un pigmento de aluminio con recubrimiento de sílice obtenido a través de una etapa de formación de una capa de película de óxido de silicio amorfo similar a la del ejemplo 1, en 500 g de una disolución de cobreado por
25 vía química que contenía 5 g de sulfato de cobre, 2 g de formaldehído y 15 g de EDTA-4Na y se mantuvo a 60°C durante 1 hora. Se sometieron las escamas obtenidas a separación sólido-líquido y se secaron, para obtener un pigmento de aluminio que presentaba el color del metal de la matriz. Cuando se observó
30 visualmente este pigmento de aluminio, no se desarrolló ni inversión de color ni croma.

La tabla 1 muestra las tonalidades y efectos de interferencia de los pigmentos de aluminio coloreados y los pigmentos de aluminio obtenidos en los respectivos
35 ejemplos y los respectivos ejemplos comparativos.

Tabla 1

	Material de partida para capa de metal	Material de partida para partículas metálicas	Tonalidad	Efecto de interferencia (Nota 1)
Ejemplo 1	Cloruro de estaño	Nitrato de plata	Morado azulado - marrón oscuro	A
Ejemplo 2	Fluoruro de estaño	Nitrato de plata	Azul - azul oscuro	A
Ejemplo 3	Estannato de sodio	Nitrato de plata	Morado azulado - marrón oscuro	A
Ejemplo 4	Cloruro de estaño Cloruro de paladio	Sulfato de níquel	Azul pálido - azul oscuro	A
Ejemplo 5	Cloruro de estaño Cloruro de paladio	Sulfato de cobre	Azul pálido verdoso -azul oscuro verdoso	A
Ejemplo comparativo 1	-	Nitrato de plata	Morado azulado pálido – marrón	B
Ejemplo comparativo 2	-	Sulfato de níquel	Plata (no coloreado)	C
Ejemplo comparativo 3	-	Sulfato de cobre	Plata (no coloreado)	C
Nota 1) A: que tiene inversión de color B: que tiene ligeramente inversión de color C: que no tiene inversión de color				

Tal como se muestra en la tabla 1, los ejemplos 1 a 5 fueron excelentes tanto en las tonalidades como en el efecto de interferencias en comparación con los ejemplos comparativos 1 a 3. A partir de estos resultados, se entiende que al pigmento metálico coloreado según la presente invención se le suministran tonalidades vivas

y un alto efecto de interferencia debido a la capa metálica y las partículas metálicas formadas sobre esta capa metálica.

<Evaluación de la resistencia a la intemperie>

5

Se empleó cada uno de los pigmentos de aluminio coloreados obtenidos en los ejemplos 2 y 4 y 6 a 13 y el pigmento de aluminio obtenido en el ejemplo comparativo 1 para preparar una composición de recubrimiento (a continuación en el presente documento denominada composición de recubrimiento de base coloreada) que tiene la siguiente composición, y se aplicó la composición de recubrimiento a la superficie de una chapa de acero obtenida realizando un recubrimiento intermedio a base de resina de melamina sobre una chapa de acero tratada en la superficie (preparada realizando una conversión química basada en fosfato de zinc en una chapa de acero de la norma JISG3310) en la que se electrodepositó una pintura de electrodeposición catiónica para un automóvil.

Se recubrió mediante pulverización con aire la chapa de acero mencionada anteriormente sometida a recubrimiento por electrodeposición y recubrimiento intermedio, con la composición de recubrimiento de base coloreada y una composición de recubrimiento transparente que tenía la siguiente composición en un sistema de dos capas de recubrimiento y una cocción (*two-coat one-bake*) y se coció a 140°C durante 30 minutos, para preparar una película metálica que tenía una capa de recubrimiento de base coloreada y una capa de recubrimiento transparente. Los grosores de la capa de recubrimiento de base coloreada y la capa de recubrimiento transparente tras endurecimiento/secado fueron de 15 µm y 35 µm, respectivamente.

(Composición de recubrimiento de base coloreada)

30 pigmento de aluminio coloreado o pigmento de aluminio (contenido en sólidos): 10 partes en masa

resina acrílica termoendurecible (contenido en sólidos): 80 partes en masa

35 resina de melamina butilada (contenido en sólidos): 20 partes en masa

acetato de etilo: 100 partes en masa

tolueno: 100 partes en masa

5

IPA: 100 partes en masa

(Composición de recubrimiento transparente)

10 resina acrílica termoendurecible (contenido en sólidos): 80 partes en masa

resina de melamina butilada (contenido en sólidos): 20 partes en masa

acetato de etilo: 50 partes en masa

15

tolueno: 50 partes en masa

IPA: 50 partes en masa

20 En cuanto a la resistencia a la intemperie de la chapa recubierta obtenida, se evaluó el grado de alteración del color de la chapa recubierta sometida a prueba con un aparato de pruebas de exposición a la intemperie acelerada Superxenon (Superxenon Weather Meter SX75 de Suga Test Instruments) durante 1000 horas como la diferencia de color (es decir, la raíz cuadrada de la suma de cuadrados de los valores respectivos de L^* , a^* y b^* de la chapa recubierta antes y después de la prueba: ΔE . sin unidades) de un medidor de la diferencia de color ("CR300" de Minolta Co., Ltd.) según la norma JIS K5400-1990. La tabla 2 muestra los resultados.

30

Tabla 2

	Material de partida para capa de metal	Material de partida para partículas metálicas	Capa de inhibición de la corrosión	Capa de recubrimient o resistente	Tratamiento de acoplamient o-intemperie	Capa de resina	Evaluación de resistencia a la
--	---	--	---	---	--	----------------------	---

							intemperie (ΔE)
Ejemplo comparativo 1	-	Nitrato de plata	no	no	no	no	9,8
Ejemplo 2	Fluoruro de estaño	Nitrato de plata	no	no	no	no	12,5
Ejemplo 4	Cloruro de estaño Cloruro de paladio	Sulfato de níquel	no	no	no	no	0,5
Ejemplo 6	Cloruro de estaño	Nitrato de plata	no	sí	sí	no	0,7
Ejemplo 7	Cloruro de estaño	Nitrato de plata	no	sí	no	sí	0,5
Ejemplo 8	Idéntico al ejemplo 2		no	sí	no	no	0,9
Ejemplo 9	Idéntico al ejemplo 3		no	sí	no	no	0,8
Ejemplo 10	Idéntico al ejemplo 5		no	sí	no	no	1,5
Ejemplo 11	Idéntico al ejemplo 1		no	no	no	no	8,9
Ejemplo 12	Idéntico al ejemplo 1		sí	no	no	no	2,6
Ejemplo 13	Idéntico al ejemplo 1		sí	sí	no	no	0,3

En la chapa recubierta según el ejemplo 2 que emplea el pigmento de aluminio coloreado no dotado ni de la capa de recubrimiento resistente a la intemperie ni de la capa de resina de cobertura entre los ejemplos 2, 4 y 6 a 13 cada uno recubierto con la composición de recubrimiento que comprende el pigmento de aluminio coloreado correspondiente al pigmento metálico coloreado según la presente invención, no se logró ningún efecto de mejora de la resistencia a la intemperie también en comparación con la chapa recubierta según el ejemplo comparativo 1 que emplea el pigmento de aluminio no dotado ni de la capa de metal, ni de la capa

de recubrimiento resistente a la intemperie ni de la capa de resina de cobertura. En cada una de las chapas recubiertas según los ejemplos 6 a 10 que emplean el pigmento de aluminio coloreado dotado de la capa de recubrimiento resistente a la intemperie, por otro lado, el resultado de la evaluación de la resistencia a la intemperie (ΔE) es notablemente excelente en comparación con el ejemplo comparativo 1 y el ejemplo 2. A partir de estos resultados, se entiende que puede lograrse el efecto de mejora de la resistencia a la intemperie proporcionando la capa de recubrimiento resistente a la intemperie.

El ejemplo 12 mostró una resistencia a la intemperie más excelente que la del ejemplo 11, y el ejemplo 13 mostró una resistencia a la intemperie más excelente que la del ejemplo 12. A partir de estos resultados, se entiende que se logra el efecto de mejora de la resistencia a la intemperie proporcionando la capa de inhibición de la corrosión, y se logra un efecto particularmente excelente de mejora de la resistencia a la intemperie cuando se combinan la capa de inhibición de la corrosión y la capa de recubrimiento resistente a la intemperie entre sí.

La evaluación de la resistencia a la intemperie del ejemplo 4 fue particularmente excelente de manera concebible porque el material de partida para las partículas metálicas era sulfato de níquel y el Ni que no se oxida ni sulfura tan fácilmente como Ag o Cu se depositó como las partículas metálicas.

<Evaluación del cambio de tonalidad>

Entonces, se realizó una evaluación comparativa en cuanto a los cambios de tonalidad en casos de formación y no formación de capas de metal. En primer lugar, se prepararon composiciones de recubrimiento mezclando el pigmento de aluminio coloreado obtenido en el ejemplo 2 y el pigmento de aluminio obtenido en el ejemplo comparativo 1 con la resina de recubrimiento, respectivamente. Se preparó cada composición de recubrimiento añadiendo 5 partes en masa del pigmento de aluminio coloreado o el pigmento de aluminio a 100 partes en masa de la resina de recubrimiento (Nippe Acryl Autoclear: de Nippon Paint Co., Ltd.) y agitando el mismo. Se midió el color de papel estucado obtenido mediante la aplicación de la composición de recubrimiento preparada a papel de arte con un aplicador de 225 μm en húmedo y secando el mismo a temperatura ambiente durante al menos 1

hora.

Se realizó la evaluación de la tonalidad midiendo el brillo y croma de la chapa recubierta con un espectrocolorímetro multiangular X-Rite MA68II. Se expresaron los valores colorimétricos en el sistema colorimétrico $L^*a^*b^*$ (CIE1976), y se evaluó particularmente la inversión de color mientras se observaban los cambios de los valores de a^*b^* . Además, el pigmento de aluminio coloreado según el ejemplo 2 y el pigmento de aluminio según el ejemplo comparativo 1 presentan colores azulados, y por tanto también se observaron los valores de b^* . En colorimetría, se detectaron los componentes de la luz que se desvían de la luz reflejada regular en 15°, 25°, 45°, 75° y 110° con respecto a la luz incidente. La tabla 3 muestra los valores medidos. En referencia a la tabla 3, las direcciones + y - de los valores de b^* muestran amarillo y azul, respectivamente.

15

Tabla 3

	15°	25°	45°	75°	110°
Ejemplo comparativo 1	-42,24	-28,09	-4,76	10,56	15,18
Ejemplo 2	-94,52	-67,92	-26,75	-4,75	1,55

A partir de los resultados mostrados en la tabla 3, las tonalidades azules fueron mayores en todos los ángulos colorimétricos en el ejemplo 2 que tiene la capa de metal de Sn proporcionada entre la capa de película de óxido de silicio amorfo y las partículas metálicas en comparación con el ejemplo comparativo 1 no dotado de capa de metal. En el ejemplo 2, además, la inversión de color también fue más excelente en comparación con el ejemplo comparativo 1. Esto es concebible porque las partículas metálicas se depositaron de forma más fina en un estado denso debido a la provisión de la capa de metal.

25

<Preparación de la preparación cosmética>

Se prepararon diversos tipos de preparaciones cosméticas con el pigmento metálico coloreado del ejemplo 1 según las siguientes prescripciones, y se compararon con preparaciones cosméticas disponibles comercialmente convencionales:

30

(Ejemplo 14)

Sombra de ojos (de tipo barra)

5

(1) talco: 5,0 partes en masa

(2) dióxido de titanio: 3,0 partes en masa

10 (3) pigmento metálico coloreado: 50,0 partes en masa

(4) cera carnauba: 10,0 partes en masa

(5) parafina sólida: 5,0 partes en masa

15

(6) derivado de lanolina: 5,0 partes en masa

(7) escualano: 20,9 partes en masa

20 (8) sesquioleato de sorbitano: 1,0 parte en masa

(9) perfume: 0,1 partes en masa

(Ejemplo 15)

25

Preparación capilar (gel capilar)

(1) polímero de carboxivinilo: 5,0 partes en masa

30 (2) alcohol etílico: 2,0 partes en masa

(3) PEG1500: 1,0 parte en masa

(4) aminometil-propanol: 1,5 partes en masa

35

(5) metilparabeno: 0,1 partes en masa

(6) pigmento metálico coloreado: 7,0 partes en masa

5 (7) agua refinada: 83,4 partes en masa

(Ejemplo 16) Esmalte de uñas

(1) nitrocelulosa (1/2 sec): 6,5 partes en masa

10

(2) nitrocelulosa (1/8 sec): 11,0 partes en masa

(3) resina de toluenosulfonamida: 12,5 partes en masa

15 (4) citrato de acetotributilo: 5,3 partes en masa

(5) alcanfor: 1,0 parte en masa

(6) alcohol n-butílico: 0,5 partes en masa

20

(7) alcohol etílico: 4,5 partes en masa

(8) acetato de etilo: 15,0 partes en masa

25 (9) acetato de butilo: 30,0 partes en masa

(10) pigmento metálico coloreado: 13,7 partes en masa

En cualquier caso, se obtuvo una preparación cosmética superior en cuanto al
30 poder cubriente y lustre con respecto a las preparaciones cosméticas
convencionales mientras que mostraba tonalidades vivas.

<Observación de la forma del pigmento de aluminio coloreado y el pigmento de
aluminio>

35

Se observaron las superficies del pigmento de aluminio coloreado obtenido en el ejemplo 2 y el pigmento de aluminio obtenido en el ejemplo comparativo 1 con un microscopio electrónico de barrido (FE-SEM). La figura 1 muestra la forma superficial del pigmento de aluminio coloreado obtenido en el ejemplo 2, y la figura 2 muestra la forma superficial del pigmento de aluminio obtenido en el ejemplo comparativo 1. Además, se observaron secciones del pigmento de aluminio coloreado obtenido en el ejemplo 2 y el pigmento metálico inmediatamente tras la etapa de formación de una capa de metal en el ejemplo 2 con el microscopio electrónico de transmisión (TEM). Las figuras 3 y 4 muestran las formas en sección del pigmento de aluminio coloreado obtenido en el ejemplo 2.

Tal como se entiende a partir de la forma mostrada en la figura 1, se forman las partículas metálicas sobre la superficie del pigmento de aluminio coloreado obtenido en el ejemplo 2 en estados granulares independientes. Además, las partículas metálicas se depositan de manera relativamente homogénea sobre la superficie del pigmento de aluminio coloreado. Tal como se entiende a partir de la forma mostrada en la figura 2, por otro lado, las partículas metálicas se depositan de forma agregada sobre la superficie del pigmento de aluminio obtenido en el ejemplo comparativo 1 y las partículas metálicas también se depositan bajo las partículas metálicas más exteriores de manera superpuesta, y por tanto las partículas metálicas se disponen en capas de modo que la superficie del pigmento de aluminio se cubre con las partículas metálicas en las partes en las que se depositan las partículas metálicas. Además, el pigmento de aluminio obtenido en el ejemplo comparativo 1 tiene un gran número de partes en las que las partículas metálicas se exfolian en el rango del nivel de μm .

En otras palabras, no se forma una capa de metal que sirva como sitio de adsorción para las partículas metálicas entre la capa de película de óxido de silicio amorfo y las partículas metálicas en el pigmento de aluminio según el ejemplo comparativo 1, y por tanto se estima que las partículas metálicas depositadas meramente se adsorben físicamente en partes distintas a la superficie de la capa de película de óxido de silicio amorfo y la adsorción entre las partículas metálicas y la capa de película de óxido de silicio amorfo es tan débil que resultaron partes con exfoliación a partir de la compartición mecánica en la etapa de formación de partículas metálicas. Por tanto, es concebible que un efecto de interferencia por la luz que

pasa a través de las partículas metálicas no se logre de manera suficiente sino que se debilita la inversión de color y se reduce el croma en el ejemplo comparativo 1.

Por otro lado, se depositan partículas metálicas densas y finas en el ejemplo 2, y esto se estima como un efecto que resulta de la capa de metal, dotada entre la capa de película de óxido de silicio amorfo y las partículas metálicas, que sirve como sitio de adsorción para las partículas metálicas. En el pigmento de aluminio coloreado según el ejemplo 2, es concebible que se disperse luz en la capa de película de óxido de silicio amorfo por la luz reflejada por el pigmento metálico de base y la luz reflejada por las partículas metálicas mientras que la luz reflejada por las partículas metálicas y la luz reflejada que pasa a través de las partículas metálicas interfieren entre sí, mediante lo cual se suministran una alta inversión de color y un alto croma, y se desarrolla un efecto de interferencia excelente.

Cuando se midió a partir de la imagen de forma en sección mostrada en la figura 3, el diámetro de partícula promedio de las partículas de Ag correspondientes a las partículas metálicas formadas en la presente invención fue de 20 nm, y el grosor de la capa de película de óxido de silicio amorfo fue de 100 nm. Cuando se midió a partir de la imagen de forma en sección mostrada en la figura 4, el grosor de una capa de Sn correspondiente a la capa de metal formada en la presente invención fue de aproximadamente 20 a 30 nm. Aunque no fue posible observar claramente la capa de metal debido al límite de la observación en sección de la forma en la figura 3, se observó claramente la capa de metal en la figura 4. En otras palabras, se reconoce que el pigmento de aluminio coloreado según el ejemplo 2 está dotado de la capa de metal y las partículas metálicas.

Aplicabilidad industrial

El pigmento metálico coloreado según la presente invención tiene ventajosamente una variedad de colores y colores de interferencia variados mientras que mantiene de manera excelente la resistencia a la luz, la resistencia a la intemperie y el poder cubriente. Puede formarse una composición de recubrimiento que proporciona una película de recubrimiento excelente en su aspecto acabado usando el pigmento metálico coloreado según la presente invención para diversos tipos de pintura y tinta. Además, puede formarse una preparación cosmética que tiene un poder

cubriente excelente y que puede obtener tonalidades vivas usando el pigmento metálico coloreado según la presente invención para la preparación cosmética. Este pigmento metálico coloreado se emplea preferiblemente para una tinta o pintura a base de agua, en particular.

REIVINDICACIONES

1. Pigmento metálico coloreado que comprende al menos un pigmento metálico, una capa de película de óxido de silicio amorfo dotada sobre la superficie de dicho pigmento metálico, una capa de metal dotada sobre la superficie de dicha capa de película de óxido de silicio amorfo y partículas metálicas dotadas sobre la superficie de dicha capa de metal, en el que dichas partículas metálicas se proporcionan de modo que se cubra directamente parte de dicha capa de metal.
2. Pigmento metálico coloreado según la reivindicación 1, en el que dicha capa de metal comprende al menos un elemento seleccionado de Sn, Pd, Pt y Au.
3. Pigmento metálico coloreado según la reivindicación 1, en el que dichas partículas metálicas comprenden al menos un elemento seleccionado de Cu, Ni y Ag.
4. Pigmento metálico coloreado según la reivindicación 1, en el que se forma una subcapa entre dicho pigmento metálico y dicha capa de película de óxido de silicio amorfo, y dicha subcapa comprende una película individual o una película de mezcla de al menos uno cualquiera de un óxido, un hidróxido y un hidrato que comprende molibdeno y/o fósforo.
5. Pigmento metálico coloreado según la reivindicación 1, en el que una capa de modificación de la superficie que comprende un óxido del elemento metálico que constituye dicho pigmento metálico se forma sobre la superficie de dicho pigmento metálico.
6. Pigmento metálico coloreado según la reivindicación 1, en el que el grosor de dicha capa de película de óxido de silicio amorfo está en el intervalo de 10 a 500 nm, y el diámetro de partícula promedio de dichas partículas metálicas no es superior a 50 nm.
7. Pigmento metálico coloreado según la reivindicación 1, en el que una capa de inhibición de la corrosión que comprende un inhibidor de la corrosión se

forma sobre dichas partículas metálicas.

8. Pigmento metálico coloreado según la reivindicación 1, en el que una capa de recubrimiento resistente a la intemperie se forma además sobre dichas partículas metálicas, y dicha capa de recubrimiento resistente a la intemperie comprende una película individual o una película de mezcla de al menos uno cualquiera de un óxido, un hidróxido y un hidrato que comprende al menos un elemento seleccionado de aluminio, silicio y cerio.

9. Pigmento metálico coloreado según la reivindicación 1, en el que una capa de resina de cobertura se forma además como la capa más exterior.

10. Procedimiento para producir un pigmento metálico coloreado, para obtener el pigmento metálico coloreado según la reivindicación 1, que comprende al menos:

una etapa de formar una capa de película de óxido de silicio amorfo de formación de una capa de película de óxido de silicio amorfo sobre la superficie de un pigmento metálico mediante hidrólisis de un compuesto de silicio orgánico en un disolvente que se compone principalmente de un disolvente hidrófilo para depositar óxido de silicio amorfo;

una etapa de formar una capa de metal de deposición de una capa de metal sobre la superficie de dicha capa de película de óxido de silicio amorfo; y

una etapa de formar partículas metálicas de formación de partículas metálicas sobre la superficie de dicha capa de metal mediante revestimiento por vía química.

11. Procedimiento para producir un pigmento metálico coloreado según la reivindicación 10, en el que dicha capa de metal comprende al menos un elemento seleccionado de Sn, Pd, Pt y Au.

12. Procedimiento para producir un pigmento metálico coloreado según la reivindicación 10, que comprende además una etapa de formar una subcapa

de realización de un pretratamiento sobre la superficie de dicho pigmento metálico con ácido inorgánico que comprende molibdeno y/o fósforo para formar una subcapa que comprende una película individual o una película de mezcla de al menos uno cualquiera de un óxido, un hidróxido y un hidrato que comprende dicho molibdeno y/o dicho fósforo antes de dicha etapa de formar una capa de película de óxido de silicio amorfo.

13. Procedimiento para producir un pigmento metálico coloreado según la reivindicación 10, que comprende además una etapa de formar una capa de modificación de la superficie de formación de una capa de modificación de la superficie que comprende un óxido del elemento metálico que constituye dicho pigmento metálico tratando la superficie de dicho pigmento metálico con peróxido de hidrógeno antes de dicha etapa de formar una capa de película de óxido de silicio amorfo.

14. Procedimiento para producir un pigmento metálico coloreado según la reivindicación 10, que comprende además una etapa de formar una capa de inhibición de la corrosión de formación de una capa de inhibición de la corrosión que comprende un inhibidor de la corrosión tras dicha etapa de formar partículas metálicas.

15. Procedimiento para producir un pigmento metálico coloreado según la reivindicación 10, que comprende además:

una etapa de formación de una capa de recubrimiento resistente a la intemperie de formación de una capa de recubrimiento resistente a la intemperie que comprende una película individual o una película de mezcla de al menos uno cualquiera de un óxido, un hidróxido y un hidrato que comprende al menos un elemento seleccionado de aluminio, silicio y cerio tras dicha etapa de formar partículas metálicas, y una etapa de tratamiento de acoplamiento de tratamiento de dicha capa de recubrimiento resistente a la intemperie con un agente de acoplamiento que comprende silicio y/o titanio.

16. Composición de recubrimiento que comprende al menos el pigmento

metálico coloreado según cualquiera de las reivindicaciones 1 a 9 o un pigmento metálico coloreado obtenido mediante el procedimiento según cualquiera de las reivindicaciones 10 a 15.

- 5 17. Preparación cosmética que comprende al menos el pigmento metálico coloreado según cualquiera de las reivindicaciones 1 a 9 o un pigmento metálico coloreado obtenido mediante el procedimiento según cualquiera de las reivindicaciones 10 a 15.

FIG.1



FIG.2

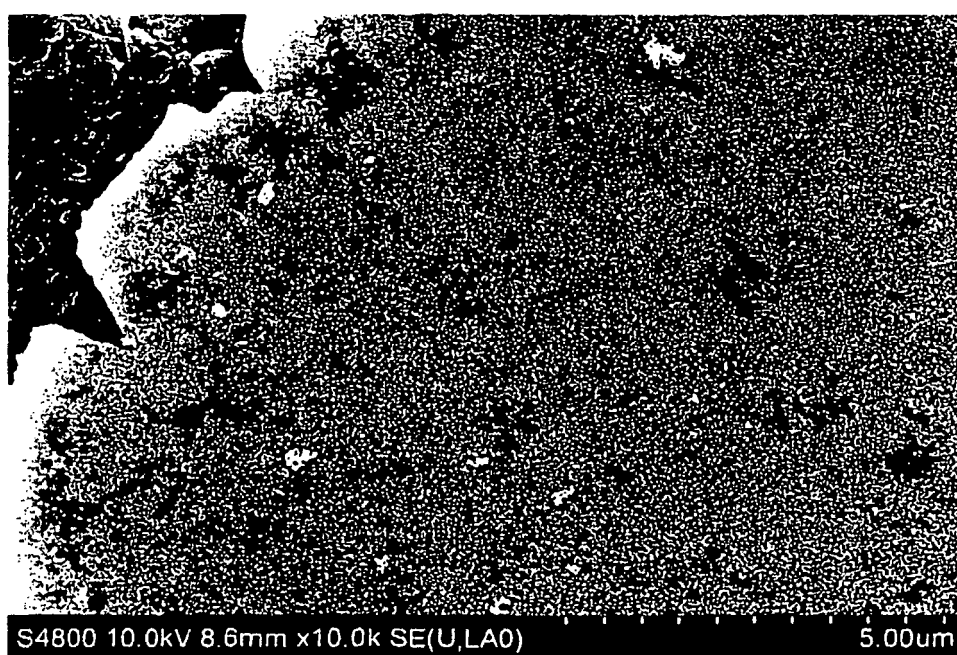


FIG.3



FIG.4

