

公 告 本

申請日期	90 年 12 月 3 日
案 號	90129876
類 別	C09C 1/36, 1/00

A4
C4

555815

(以上各欄由本局填註)

發 明 專 利 說 明 書

一、發明 名稱	中 文	銀色光澤顏料
	英 文	Silver-coloured lustre pigment
二、發明 創作人	姓 名	(1) 克利斯多夫·舒密特 Schmidt, Christoph (2) 安竹亞·海倫 Heyland, Andrea (3) 卡絡狄亞·福爾諾福 Fornoff, Claudia
	國 籍	(1) 德國 (2) 德國 (3) 德國
	住、居所	(1) 德國達木士塔法蘭克福特路二五〇號 Frankfurter StraBe 250, 64293 Darmstadt, Germany (2) 德國達木士塔法蘭克福特路二五〇號 Frankfurter Str. 250, 64293 Darmstadt, Germany (3) 德國達木士塔法蘭克福特路二五〇號 Frankfurter Strasse 250, 64293 Darmstadt, Germany
三、申請人	姓 名 (名稱)	(1) 麥克專利有限公司 Merck Patent GmbH
	國 籍	(1) 德國
	住、居所 (事務所)	(1) 德國達木士塔法蘭克福特路二五〇號 Frankfurter Strasse 250, D-64293 Darmstadt Germany
	代 表 人 姓 名	(1) 俄曼 Eiermann, 史卡特勒 Schuttler,

裝 訂 線

申請日期	90 年 12 月 3 日
案 號	90129876
類 別	

A4
C4

(以上各欄由本局填註)

發 明 專 利 說 明 書

新 型

一、發明 名稱	中 文	
	英 文	
二、發明 創作人	姓 名	(4) 漢斯·迪特·布魯拿博士 Bruckner, Hans-Dieter
	國 籍	(4) 德國
	住、居所	(4) 德國達木士塔法蘭克福特路二五〇號 Frankfurter Strasse 250, 64293 Darmstadt, Germany
三、申請人	姓 名 (名稱)	
	國 籍	
	住、居所 (事務所)	
	代 表 人 姓 名	

(由本局填寫)

承辦人代碼：
大類：
IPC分類：

A6
B6

本案已向：

國(地區) 申請專利，申請日期： 案號： ，有 無主張優先權德國 2000年12月7日 100 61 178.8 有主張優先權

有關微生物已寄存於： ，寄存日期： ，寄存號碼：

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝

訂

線

經濟部智慧財產局員工消費合作社印製

五、發明說明(1)

本發明係關於以經多重塗覆的小片狀底質為基礎之銀色光澤顏料。

光澤或花色效應顏料被廣泛用於工業，特別是汽車塗層、裝飾層、塑料、塗漆、印刷墨水和化粧品調配物。

在數種干擾色間之顏色變化與角度有關的光澤顏料具有顏色相互作用，此使得它們特別可用於汽車塗層和防偽應用。

以前技術提出用以製造珠光顏料的方法，其中，折射指數高和低的交替層可用於經精細切割底質上。已經由

U . S . 4 , 4 3 4 , 0 1 0 、 J P H 7 - 7 5 6 、

U . S . 3 , 4 3 8 , 8 1 2 、

U . S . 5 , 1 3 5 , 7 9 6 、

D E 4 4 0 5 4 9 4 、 D E 4 4 3 7 7 5 3

、 D E 1 9 5 1 6 1 8 1 和

D E 1 9 5 1 5 9 8 8 知道此以經多層塗覆小片狀底質為基礎的顏料。

此處，特別重要的是以無機物為基礎的珠光顏料。珠光顏料是藉由在無機小片狀載體上塗覆折射性高者（通常是氧化物層）而製得。這些顏料的顏色因波長選擇性部分反射及折射的或穿透的光於介質 / 氧化物或氧化物 / 介質邊界干擾而引發。

氧化物層厚度決定這些顏料的干擾色。銀色顏料的干擾色調由單一（就光學認知而言）高折射層引發，此層的光學厚度使其於可見光範圍內的約 5 0 0 奈米之反射值最

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝

訂

五、發明說明 (2)

高 (一級) 。人體肉眼感知到的約 5 0 0 奈米波長是綠色。但其延著其波長軸之強度曲線的最高點過寬，使得過多的光反射至完全可見光區域，肉眼觀察到者是非常明亮但無色情況。

薄膜 (光學組份塗層) 的光學規則特別預測干擾的最高強度比單層系統提高約 6 0 % 。據此，干擾反射的光更為顯著，使得這樣的多層系統被認為會具有綠色反射顏色。

頃發現，令人訝異地，觀察到真實干擾系統 (以透明底質小片為基礎之交替高折射 TiO_2 層和低折射層形式) 並非綠色，而在某些層厚度時是銀色。

具此，本發明提出一種以經多重塗覆的小片狀底質為基礎之銀色光澤顏料，其包含至少一組下列層組

(A) 由 TiO_2 構成的高折射塗層，厚度是 5 - 2 0 0 奈米，

(B) 折射指數 $n \leq 1.8$ 且厚度 1 0 - 3 0 0 奈米的無色塗層，

(C) 由 TiO_2 構成的高折射塗層，厚度是 5 - 2 0 0 奈米，

及選用的

(D) 外在保護層。

根據本發明之銀色顏料優於目前已有之在銀色區域內的銀色光澤顏料，其原因在於：

- 於窄觀察角度的光澤 (特別是金屬光澤) 較為強烈

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (3)

- 於平面觀察角度的透光度較高，及
- 主色顏色較淡。

本發明另提出根據本發明之銀色顏料於塗漆、塗料、印刷墨水、塑膠、陶瓷材料、玻璃和化粧品調合物之使用，特別是於印刷墨水之使用。根據本發明之顏料亦可用以製備顏料調合物及用以製備無水產物形式，如：顆粒、片、丸、磚...等。此無水產物形式特別可用於印刷墨水。

可用於根據本發明之多層顏料的底質是選擇性地或非選擇性地具吸收力的小片狀底質。較佳底質是片狀矽酸鹽。特別有用的是天然和 / 或合成雲母、滑石、高嶺土、小片狀鐵或鋁氧化物、玻璃片、 SiO_2 片、 TiO_2 片、石墨片、合成之無載體的小片狀物、氮化鈦、矽化鈦、液晶聚合物 (L C P)、全息顏料、 BiOCl 、小片狀混合氧化物 (如： FeTiO_3 、 Fe_2TiO_5) 或其他相容材料。

為限制基礎底質尺寸，可視特別的最終用途採用。通常，小片狀底質厚度介於 0 . 0 0 5 和 1 0 微米之間，以介於 0 . 0 5 和 5 微米之間為佳。另兩種尺寸中，它們通常介於 1 和 5 0 0 微米之間，以介於 2 和 2 0 0 微米之間為佳，介於 5 和 6 0 微米之間特別佳。

在底質上之具高折射指數和低折射指數的各層 (A) 和 (B) 和 (C) 會影響顏料的光學性質。欲得到具高度光澤效果的銀色顏料，須精確調整各層彼此之間的厚度。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

五、發明說明 (4)

(A) 或 (C) 層厚度是 5 - 200 奈米，以 10 - 100 奈米為佳，特別是 20 - 70 奈米。TiO₂ 層 (A) 和 (C) 厚度可相同或不同。(B) 層厚度是 10 - 300 奈米，以 20 - 100 奈米為佳，特別是 30 - 80 奈米。

此顏料可以含有多組相同或不同的層組之組合，但以僅以一層組 (A) + (B) + (C) + 選用的 (D) 塗覆底質為佳。欲強化顏色強度，根據本發明之顏料可以含有高至 4 層組，但是其中，在底質上之所有層的厚度不超過 3 微米。以在小片狀底質上施以奇數層且最外層和最中間層是具高折射指數者為佳。特別佳的情況中，依 (A) (B) (C) 順序構築三個光學干擾層。

可以作為塗層 (B) 的無色低折射指數材料以金屬氧化物或相關氧水合物為佳，如：SiO₂、Al₂O₃、AlO(OH)、B₂O₃、MgF₂、MgSiO₃ 或它們的混合物。特別地，層 (B) 是 SiO₂ 層。

藉由在經精細切割的小片狀底質上形成多種具精確定義厚度和平滑表面的高和低折射指數干擾層，可簡便地製得根據本發明之顏料。

金屬氧化物層以化學方式潤濕施用 (如：使用發展用以製造珠光顏料的潤濕化學塗覆法) 為佳。這樣的方法述於，如：DE 14 67 468、
DE 19 59 988、DE 20 09 566
、DE 22 14 545、

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(5)

DE 22 15 191、DE 22 44 298
、DE 23 13 331、
DE 25 22 572、DE 31 37 808
、DE 31 37 809、
DE 31 51 343、DE 31 51 354
、DE 31 51 355、
DE 32 11 602、DE 32 35 017
或關於此技藝者知道的其他專利文獻或其他出版品。

潤濕塗覆法中，底質顆粒懸浮於水中並與一或多種可水解的金屬鹽或矽酸鹽溶液於適當的水解pH摻合，選擇的pH使得金屬氧化物或氧水合物直接沉積在小片上而不會有共沉澱情況發生。藉由同時添加鹼和/或酸地使pH維持穩定。之後分離此顏料，清洗及於50-150°C乾燥6-18小時，並視情況鍛燒0.5-3小時，此處，可以視所存在的特別塗層地調整最適合的鍛燒溫度。通常，此鍛燒溫度介於250和1000°C之間，以介於350和900°C之間為佳。有須要時，可以在施用各塗層之後分離顏料，乾燥和視情況地鍛燒，之後再懸浮以沉澱其他層。

此外，此塗覆亦可於流化床反應器中藉氣相塗覆而達成，例如，可以適當改變EP 0 045 851和EP 0 106 235中提出之用以製造珠光顏料的方法而達成。

視欲得到的銀色效果，藉由改變塗覆速率和所得層厚

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(6)

度，顏料色調變化範圍相當廣。可在肉眼或儀器控制下，以接近所欲顏色的方式，細部調整某些色調。

欲提高光、水和天候穩定性，通常建議視用途地對製得的顏料施以後塗覆或後處理。可資利用的後塗覆或後處理包括，如：D E - C 2 2 1 5 1 9 1、
D E - A 3 1 5 1 3 5 4、
D E - A 3 2 3 5 0 1 7 或
D E - A 3 3 3 4 5 9 8 中所述之方法。此後塗層（D層）進一步增強化學穩定性或者有助於顏料之操作（特別是摻入各式各樣的介質中）。

根據本發明之顏料與多種顏色系統（特別是用於塗層、塗漆和印刷墨水範圍者）相容。欲製造印刷墨水（如：凹版印刷、橡皮版印刷、間接印刷，間接上光塗覆），有多種適當黏合劑，特別是水溶性等級，如 BASF、Marabu、Proll、Sericol、Hartmann、Gebr. Schmidt、Sicpa、Aarberg、Siegberg、GSB-Wahl、Follmann、Ruco 或 Coates Screen INKS GmbH 銷售者。此印刷墨水可以是水性或溶劑性。此外，此顏料可用於紙和塑膠的雷射標記，亦可用於農業（如：溫室膜）及亦可用於防水布之著色。

因為根據本發明之銀色顏料兼具優良光澤和高透光率及淺淡主色顏色，所以它們可用以在各式各樣的應用介質（如：化粧品調合物（如：指甲亮光漆、唇膏、粉餅、凝膠、乳液、皂、牙膏）、塗料（如：汽車塗料、工業塗料和粉末塗料）及塑膠、陶瓷和裝飾（如：窗顏色））中得

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝

訂

線

五、發明說明 (7)

到特別的有效效果。

用於各式各樣的終用途，此多層顏料可以有利地與有機染料、有機顏料或其他顏料（如：透明和遮蓋白色、彩色和黑色顏料及片狀鐵氧化物）、有機顏料、全息顏料、L C P（液晶聚合物）和慣用之以經金屬氧化物塗覆的雲母和 $S i O_2$ 小片為基礎的透明、彩色和黑色光澤顏料……等併用。此多層顏料可以與市售顏料和填料以任何比例摻合。

根據本發明之顏料可進一步用以製造可流動顏料製劑和無水產物形式，特別是用於包含一或多種根據本發明之顏料、黏合劑和選用之一或多種添加物的印刷墨水。

因此，本發明亦提出顏料於調合物（如：塗漆、印刷墨水（包括安全印刷墨水）、塗料、塑膠、陶瓷材料、玻璃和化妝品調合物）中之使用。

現以下列實例說明本發明，但不欲限制本發明。

實例

實例 1

100 克粒徑 10 - 60 微米的雲母於 2 升去礦質水中加熱至 75 °C。達到此溫度時，將 3 克 $S n C l_4 \cdot 5 H_2 O$ 於 90 克水中之溶液逐漸加至攪拌的雲母懸浮液中。使用 32 % 氫氧化鈉水溶液使 pH 維持 2.0。之後將此 pH 降至 1.8 並於此 pH 添加 270

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝

訂

錄

五、發明說明 (8)

克 32% $TiCl_4$ 溶液，此時並以 32% 氫氧化鈉水溶液使 pH 維持穩定。之後將 pH 提高至 7.5，於此 pH 逐漸添加 270 克矽酸鈉溶液 (13.5 重量% SiO_2)，此時並以 10% HCl 使 pH 維持於 7.5。最後，於 pH 1.8 添加 300 克 32% $TiCl_4$ 溶液。於 pH 1.8 攪拌 0.5 小時之後，濾出經塗覆的雲母顏料，清洗並於 110°C 乾燥 16 小時。最後，顏料於 800°C 鍛燒 1 小時。

實例 2

100 克粒徑 10 - 60 微米的雲母於 2 升去礦質水中加熱至 75°C。達到此溫度時，將 3 克 $SnCl_4 \cdot 5H_2O$ 於 90 克水中之溶液逐漸加至劇烈攪拌的雲母懸浮液中。使用 32% 氫氧化鈉水溶液使 pH 維持 2.0。之後將此 pH 降至 1.8 並於此 pH 添加 380 克 32% $TiCl_4$ 溶液，此時並以 32% 氫氧化鈉水溶液使 pH 維持穩定。之後將 pH 提高至 7.5，於此 pH 逐漸添加 380 克矽酸鈉溶液 (13.5 重量% SiO_2)，此時並以 10% HCl 使 pH 維持於 7.5。最後，於 pH 1.8 添加 380 克 32% $TiCl_4$ 溶液。於 pH 1.8 攪拌 0.5 小時之後，濾出經塗覆的雲母顏料，清洗並於 110°C 乾燥 16 小時。最後，顏料於 800°C 鍛燒 1 小時。

(詳見說明書背面之注意事項再填寫本頁)

五、發明說明(9)

實例 3

100克粒徑10-60微米的雲母於2升去礦質水中加熱至75℃。達到此溫度時，將3克SnCl₄·5H₂O於90克水中之溶液逐漸加至劇烈攪拌的雲母懸浮液中。使用32%氫氧化鈉水溶液使pH維持2.0。之後將此pH降至1.8並於此pH添加220克32%TiCl₄溶液，此時並以32%水氫氧化鈉溶液使pH維持穩定。之後將pH提高至7.5，於此pH逐漸添加215克矽酸鈉溶液(13.5重量%SiO₂)，此時並以10%HCl使pH維持於7.5。最後，於pH1.8添加300克32%TiCl₄溶液。於pH1.8攪拌2.5小時之後，濾出經塗覆的雲母顏料，清洗並於110℃乾燥16小時。最後，顏料於800℃鍛燒1小時。

實例 4

100克粒徑10-60微米的雲母於2升去礦質水中加熱至75℃。達到此溫度時，添加330克32%TiCl₄溶液，此時，使用32%氫氧化鈉水溶液使pH維持穩定。之後將此pH提高至7.5並於此pH逐漸添加270克矽酸鈉溶液(13.5重量%SiO₂)，此時並以10%HCl使pH維持於7.5。最後，於pH2.2添加250克32%TiCl₄溶液。於pH2.2攪拌5小時之後，濾出經塗覆的雲母顏料，清洗並於

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

五、發明說明 (10)

1 1 0 °C 乾燥 1 6 小時。最後，銀色顏料於 8 0 0 °C 鍛燒 1 小時。

下面的附表列出根據本發明之顏料和以前技藝的銀色顏料之色度數據之比較，Phyma-Lab 值於黑色背景以光擇 2 2 . 5 ° / 2 2 . 5 ° 測得。

顏料	L	a	b	c	光澤值	遮蔽力
銀色珠光顏料 Iriodin®103(TiO ₂ 雲母顏料,粒徑 10-60 微米,得自 Merck KGaA)	83.6	-1.4	-1.9	2.4	58.5	30.6
實例 1 的銀色顏料	90.2	-8.1	-11.4	14.0	60.9	33.6
實例 2 的銀色顏料	93.0	-5.5	13.0	14.1	61.3	37.0
實例 3 的銀色顏料	79.2	-10.3	-23.3	25.5	59.8	25.4
實例 4 的干擾顏料	84.5	-8.1	-10.5	13.3	61.4	27.2

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

四、中文發明摘要(發明之名稱：銀色光澤顏料)

本發明係關於一種以經多重塗覆的小片狀底質為基礎之銀色光澤顏料，其包含至少一組下列層組

(A) 由 TiO_2 構成的高折射塗層，厚度是 5 - 200 奈米，

(B) 折射指數 $n \leq 1.8$ 且厚度 10 - 300 奈米的無色塗層，

(C) 由 TiO_2 構成的高折射塗層，厚度是 5 - 200 奈米，

及選用的

(D) 外在保護層，

及其於塗漆、塗料、印刷墨水(包括安全印刷墨水)、塑膠、陶瓷材料、玻璃和化粧品調合物及製造顏料製劑和無水產物形式方面之使用。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝

英文發明摘要(發明之名稱：)

Silver-coloured lustre pigment

The present invention relates to silver-coloured lustre pigments based on multiply coated platelet-shaped substrates, comprising at least one layer sequence of

(A) a high refractive coating consisting of TiO_2 and having a thickness of 5-200 nm,

(B) a colourless coating having a refractive index $n \leq 1.8$ and a thickness of 10-300 nm,

(C) a high refractive coating consisting of TiO_2 and having a thickness of 5-200 nm,

and optionally

(D) an outer, protective layer.

and to the use thereof in paints, coatings, printing inks, including security printing inks, plastics, ceramic materials, glasses and cosmetic formulations and for producing pigment preparations and dry product forms.

訂

線

92 / 30

公告

A8
B8
C8
D8

六、申請專利範圍

附件 2a: 第 90129876 號專利申請案 (修正後無劃線)

中文申請專利範圍 替換本

民國 92 年 1 月 30 日修正

1. 一種以經多重塗覆的小片狀底質為基礎之銀色光澤顏料，其特徵為其包含至少一組下列層組

(A) 由 TiO_2 構成的高折射塗層，厚度是 5 - 200 奈米，

(B) 折射指數 $n \leq 1.8$ 且厚度 10 - 300 奈米的無色塗層，

(C) 由 TiO_2 構成的高折射塗層，厚度是 5 - 200 奈米，

及任意的

(D) 外在保護層，

其中，層 (B) 基本上由二氧化矽、氧化鋁、氟化鎂或它們的混合物構成。

2. 如申請專利範圍第 1 項之光澤顏料，其中，小片狀底質是天然或合成雲母、玻璃片、 Al_2O_3 片、 SiO_2 片或 TiO_2 片。

3. 如申請專利範圍第 1 項之光澤顏料，其中，其包括的層組 (A) + (B) + (C)，至多四組。

4. 如申請專利範圍第 1 項之光澤顏料，其中，其包括的層組 (A) + (B) + (C)，僅一組。

5. 如申請專利範圍第 1 項之光澤顏料，其中，其包括外保護層 (D) 以增進光、熱和天候穩定性。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

六、申請專利範圍

6. 一種用以製備如申請專利範圍第 1 至 5 項中任一項之光澤顏料之方法，其特徵在於：藉金屬鹽於水性介質中之水解分解作用，以化學方式潤濕塗覆底質。

7. 如申請專利範圍第 1 項之光澤顏料，其中，其用於塗漆、塗料、印刷墨水（包括安全印刷墨水）、塑膠、陶瓷材料、玻璃和化粧品調合物及用以製造顏料製劑和乾燥產物形式。

8. 一種顏料製劑，其特徵為其包含一或多種黏合劑、一或多種任意的添加劑、和一或多種如申請專利範圍第 1 項之光澤顏料。

9. 如申請專利範圍第 1 項之光澤顏料，其係用於選
■ 丸、粒、片和磚之乾燥產物形式。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線