



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS  
ESPAÑA



(11) Número de publicación: **2 900 620**

(51) Int. Cl.:

**C09C 3/06** (2006.01)

**C09C 1/00** (2006.01)

(12)

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

(96) Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **21.05.2015 E 19181921 (8)**

(97) Fecha y número de publicación de la concesión europea: **01.09.2021 EP 3578610**

---

(54) Título: **Pigmentos de efecto**

(30) Prioridad:

**28.05.2014 US 201462004007 P**  
**25.03.2015 US 201562137918 P**

(45) Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:  
**17.03.2022**

(73) Titular/es:

**BASF SE (100.0%)**  
**Carl-Bosch-Strasse 38**  
**67056 Ludwigshafen am Rhein, DE**

(72) Inventor/es:

**JONES, STEVEN;**  
**MCGUIRE, MEAGHAN CLARK;**  
**SI OSS, JAMES;**  
**SICHMELLER, CHRISTOPHER y**  
**SALTZMAN, MARTIN**

(74) Agente/Representante:

**CARVAJAL Y URQUIJO, Isabel**

**ES 2 900 620 T3**

---

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín Europeo de Patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre Concesión de Patentes Europeas).

## DESCRIPCIÓN

- Pigmentos de efecto
- 5 Campo técnico
- Esta divulgación se refiere a pigmentos de efecto recubiertos con capas de alto índice de refracción y difusión de material de bajo índice en el mismo para aumentar el croma del pigmento de efecto, a métodos de fabricación y usos de los mismos en pintura, tinta de chorro de tinta, tintas de impresión, recubrimientos, recubrimientos industriales, 10 recubrimientos para automóviles, tintas de impresión, plásticos, cosméticos o formulaciones cosméticas y esmaltes para cerámica o vidrio.
- Técnica antecedente
- 15 Los pigmentos de efecto también se han denominado pigmentos brillantes, pigmentos lustrosos, pigmentos nacarados o pigmentos de interferencia. Tales pigmentos que tienen un núcleo que consiste en un material transparente o no transparente son conocidos, tal como, por ejemplo, mica natural o sintética,  $\text{SiO}_2$ , aluminio o vidrio. Estos núcleos están recubiertos con un material de alto índice de refracción, generalmente un óxido metálico con un índice de refracción superior a aproximadamente 1,65.
- 20 Además, es posible obtener pigmentos que son de color más intenso (es decir, que tienen un mayor croma) aplicando capas alternas de índice de refracción alto y bajo sobre un sustrato.
- 25 Sin embargo, aumentar el croma de los pigmentos de efecto formados a partir de un diámetro de plaquetas ( $d_{50}$ ) igual o inferior a aproximadamente 15 micrómetros es difícil utilizando capas distintas alternas de índice de refracción alto/bajo. La deposición o codeposición de una capa distinta de índice de refracción bajo sobre la capa de índice de refracción alto a menudo conduce a la aglomeración cuando el diámetro de las plaquetas es de 15 micrómetros o menos. Por tanto, sería útil desarrollar nuevas formas de fabricar pigmentos de alto efecto cromático en lugar del método convencional de apilar capas independientes y separadas alternas de índice de refracción alto/bajo sobre un sustrato.
- 30 El documento WO03/006558A2 describe pigmentos de efecto multicapa basados en sustratos escamosos que consisten en una secuencia de recubrimientos que tienen índices de refracción altos y bajos. El documento EP1469745B1 describe el uso de pigmentos multicapa basados en sustratos escamosos con índices de refracción alternativos para colorear productos alimenticios o farmacéuticos. El documento US2007/056470A1 se refiere a un pigmento de efecto multicapa que incluye un sustrato transparente, una capa de material de índice de refracción alto y capas alternas de materiales de índice de refracción alto y bajo.
- 35 Breve descripción de la invención
- 40 Sorprendentemente, el croma de los pigmentos de efecto puede mejorarse por la presencia de un óxido de un tercer material difundido entre una primera y una segunda capa de alto índice de refracción, donde el tercer material difundido tiene un rango de difusión entre el 100% y la difusión parcial en una o tanto la primera como la segunda capa de alto índice de refracción.
- 45 Además, se han descubierto ventajas secundarias cuando el tercer material difundido está tan difundido. Ejemplos de estas otras ventajas incluyen, un uso más eficiente de la(s) materia(s) prima (s) y/o un pigmento de efecto más eficiente durante el uso, es decir, se requiere un % en peso más bajo de material de recubrimiento (es decir, menos material(es) de índice de refracción alto) para lograr la misma apariencia que los pigmentos de efecto tradicionales con 50 capas distintas alternas de materiales de índice de refracción alto y bajo en una aplicación determinada. El presente método también proporciona una ventaja en la formación de pigmentos de alto croma cuyo tamaño de plaquetas es de aproximadamente 15 micrones o menos en que la deposición de un material de bajo índice de refracción como  $\text{SiO}_2$  no causa aglomeración.
- 55 Por consiguiente, en el presente documento se describe un pigmento de efecto que comprende una plaqueta recubierta con un recubrimiento óptico y el recubrimiento óptico comprende:
- una primera capa de alto índice de refracción;
- 60 una segunda capa de alto índice de refracción formada sobre la primera capa de alto índice de refracción; y un tercer material difundido en el que el tercer material difundido tiene un intervalo de difusión entre el 100% y la difusión parcial en una o ambas de la primera y la segunda capa de alto índice de refracción;
- 65 donde la primera y segunda capas de alto índice de refracción se forman a partir de materiales de alto índice que tienen un índice de refracción de aproximadamente  $> 1,65$ , por ejemplo, la primera y segunda capas de alto índice de refracción se seleccionan independientemente del grupo que consiste en  $\text{SnO}_2$ ,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ,  $\text{ZnO}$ ,  $\text{ZrO}_2$ , óxidos de hierro

(como  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ), óxidos de cobre, óxidos de cobalto, óxidos de manganeso, alúmina y mezclas de los mismos; el tercer material difundido es  $\text{SiO}_2$  o un óxido de metal, por ejemplo, el tercer material difundido se selecciona del grupo que consiste en  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SnO}_2$ ,  $\text{SiO}_2$ , óxidos de cobalto, óxido de magnesio, óxido de manganeso, óxidos de cobre, óxidos de hierro (es decir,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ),  $\text{B}_2\text{O}_3$ ,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ,  $\text{ZnO}$ ,  $\text{ZrO}_2$  y mezclas de los mismos;

5 con la condición de que el tercer material difundido sea diferente de la primera y segunda capas de alto índice de refracción.

Una realización especial cubre:

10 Un pigmento de efecto que comprende

una plaqueta recubierta con  
un recubrimiento óptico y el recubrimiento óptico comprende:

15 una primera capa de  $\text{TiO}_2$ ;

una segunda capa de  $\text{TiO}_2$  formada en la primera capa de  $\text{TiO}_2$ ; y un tercer material difundido es  $\text{SiO}_2$  entre la primera capa de  $\text{TiO}_2$  y la segunda capa de  $\text{TiO}_2$  y tiene un rango de difusión entre el 100% y la difusión parcial en uno o ambos de la primera y segunda capas de  $\text{TiO}_2$ . Las capas de  $\text{TiO}_2$  pueden ser de rutilo o anatasa.

20 Además, se describen varios métodos. Estos métodos incluyen la fabricación del pigmento de efecto anterior y un método para aumentar el croma de un pigmento de efecto como se describe anteriormente recubriendo una plaqueta con un recubrimiento óptico que comprende las etapas de incorporar un tercer material difundido entre una primera capa de alto índice de refracción y una segunda capa de alto índice de refracción donde la segunda capa de alto índice de refracción se forma sobre la primera capa de alto índice de refracción y el tercer material difundido tiene un rango de difusión entre el 100% y la difusión parcial en una o ambas de la primera y la segunda capas de alto índice de refracción.

25

Breve descripción de los dibujos

30 La Figura 1A es una microscopía electrónica de transmisión (TEM por sus siglas en inglés) de alta resolución de una sección transversal del pigmento de efecto del Ejemplo 2.

La figura 1B es una espectroscopía de rayos X de dispersión de energía (EDXS por sus siglas en inglés) en tandem con el TEM de una sección transversal del pigmento de efecto mostrado en la figura 1A.

35 La figura 2A es una micrografía electrónica de transmisión (TEM) de alta resolución de una sección transversal del pigmento de efecto preparado en Ejemplo 8, el aumento fue de 200.000.

La figura 2B es una imagen de espectroscopía de rayos X de dispersión de energía (EDXS) en tandem con el TEM de la sección transversal del pigmento de efecto mostrado en la figura 2A.

La figura 3A es una micrografía electrónica de transmisión (TEM) de alta resolución de una sección transversal del pigmento de efecto preparado en Ejemplo 9 el aumento a 200.00.

40 La figura 3B es una imagen de espectroscopía de rayos X de dispersión de energía (EDXS) en tandem con el TEM de una sección transversal del pigmento de efecto mostrado en la figura 3A.

La figura 4A es una micrografía electrónica de transmisión (TEM) de alta resolución de una sección transversal del pigmento de efecto preparado en Ejemplo 13 con un aumento de 200000.

45 La figura 4B es una imagen de espectroscopía de rayos X de dispersión de energía (EDXS) en tandem con TEM de una sección transversal del pigmento de efecto mostrado en la figura 4A.

La figura 5A muestra una vista en sección transversal del presente pigmento de efecto inventivo que tiene difusión parcial que incluye bolsas de un tercer material difundido.

La figura 5B muestra una vista en sección transversal del pigmento de efecto de la presente invención que tiene una difusión completa del tercer material difundido en la primera y segunda capas.

50 Descripción detallada

Las Figuras 1-5 muestran un pigmento de efecto que incluye un sustrato 4, que tiene un recubrimiento óptico 11 sobre el mismo.

55 El sustrato 4 es un sustrato de plaquetas o laminar que tiene un diámetro que es mayor que el espesor del sustrato, tal como plaquetas (escamas). Un sustrato de plaquetas incluye sustratos laminados, en forma de placa y escamosos.

60 La plaqueta es generalmente un sustrato de plaquetas y no es esférica. En un ejemplo, la dimensión más grande del sustrato de plaquetas varía de aproximadamente 1  $\mu\text{m}$  (micra) a aproximadamente 1 mm (milímetro).

El diámetro se define por ejemplo como la distribución del tamaño de partícula  $d_{50}$  determinada mediante dispersión de luz estática utilizando un Malvern Mastersizer® Hydro2000S.

65 Existen ventajas especiales en la formación de un pigmento de efecto que tiene un  $d_{50}$  de aproximadamente 15 micrones o menos con el presente método. El presente método para formar el recubrimiento óptico de mayor croma es

- ventajoso para sustratos de aproximadamente 15 micrones o menos porque, en contraste con la formación típica de capas de índice de refracción alto/bajo sobre tales sustratos, la aglomeración se minimiza mediante el presente método.
- Por lo tanto, el pigmento de efecto puede formarse utilizando un diámetro de placa ( $d_{50}$ ) de aproximadamente 15 micrones o menos, por ejemplo, alrededor de 15 micrones a 1 micrón.
- El sustrato puede ser transparente o no transparente.
- Ejemplos de sustratos de placas adecuados incluyen materiales laminados como óxido de aluminio, vidrio laminado, perlita, aluminio, mica natural, mica sintética, oxícloruro de bismuto, óxido de hierro laminado, grafito laminado, sílice laminado, bronce, acero inoxidable, perla natural, nitrógeno de boro, cobre escamas, escamas de aleación de cobre, escamas de zinc, escamas de aleación de zinc, óxido de zinc, esmalte, arcilla china, porcelana, óxido de titanio, dióxido de titanio laminado, subóxido de titanio, zeolitas, talco, caolín, escamas de cerámica sintética y combinaciones de los mismos.
- En una realización, el sustrato puede seleccionarse del grupo que consiste en mica natural, mica sintética, perlita, vidrio laminado, oxícloruro de bismuto y aluminio. La mica (natural y sintética) es de especial importancia.
- Como se definió anteriormente, el sustrato puede tratarse o no. Por ejemplo, el sustrato puede tratarse con óxido de estaño como director de rutilo para la primera capa de alto índice de refracción. Por ejemplo, el sustrato se puede tratar con prácticamente cualquier agente, tales como siliconas y agentes de acoplamiento. Alternativamente, el sustrato puede tratarse mecánicamente para suavizar la superficie, o tratamientos con plasma o radiación para activar la superficie antes de la aplicación del recubrimiento óptico.
- Las figuras 1-5 muestran el sustrato 4 recubierto con un recubrimiento óptico 11. El recubrimiento óptico 11 incluye dos capas adyacentes, distintas y separadas de alto índice de refracción, 1 y 2, respectivamente, y un tercer material difundido 3 que tiene un rango de difusión entre el 100% y la difusión parcial en una o ambas de la primera y la segunda capa de alto índice de refracción 1 y 2, respectivamente. Cada una de las capas de alto índice de refracción es una capa distinta separada que se extiende desde la superficie de interfaz respectiva hasta la superficie remota con material entre ellas.
- El recubrimiento óptico 11 tiene un espesor físico total después de la calcinación. Este espesor físico total incluye el espesor de la primera capa 1 de alto índice de refracción, el espesor de la segunda capa 2 de alto índice de refracción y el tercer material difundido 3 en una o ambas de la primera y segunda capas de alto índice de refracción, incluidas las bolsas discontinuas 5 de tercer material difundido entre la primera y la segunda capa de alto índice. El espesor físico total se mide en un lado del sustrato de placas. Como tal, el espesor físico total es equivalente a la distancia desde la superficie remota 8 de la primera capa 1 de alto índice de refracción más cercana a la superficie de la placa 4 hasta una superficie remota 9 de la segunda capa 2 de alto índice de refracción más alejada de la superficie del sustrato de placas 4. El espesor físico total después de la calcinación del recubrimiento óptico varía de aproximadamente 10 nm a aproximadamente 700 nm. En otros ejemplos, el espesor físico total después de la calcinación del recubrimiento óptico varía de aproximadamente 15 nm a aproximadamente 600 nm, o de aproximadamente 20 nm a aproximadamente 550 nm. El espesor del recubrimiento óptico anterior después de la calcinación varía de aproximadamente 15 nm a aproximadamente 600 nm o de aproximadamente 20 nm a aproximadamente 550 nm no incluiría por ejemplo una capa protectora exterior formada sobre el pigmento de efecto, capas adicionales formadas antes o después de las deposiciones de la primera y segunda capas de alto índice de refracción anteriores.
- Cada capa de alto índice de refracción está formada por un material o materiales que tienen un índice de refracción mayor de aproximadamente 1,65. En una realización, las capas de índice de refracción primera y segunda son del mismo material, y en otra realización, las capas de índice de refracción primera y segunda son materiales diferentes. Ejemplos de las capas de índice de refracción primera y/o segunda incluyen  $\text{SnO}_2$ ,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ,  $\text{ZnO}$ ,  $\text{ZrO}_2$ , óxidos de hierro (p. ej.,  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ), óxidos de cobre, óxidos de cobalto, óxidos de manganeso, alúmina y mezclas de los mismos.
- En un ejemplo, el recubrimiento óptico incluye  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  como la primera capa de alto índice de refracción,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  como la segunda capa de alto índice de refracción, y  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SnO}_2$ ,  $\text{SiO}_2$ , o mezclas de los mismos como el tercer material difundido que tiene un intervalo de difusión entre el 100% y la difusión parcial en una o ambas, la primera y la segunda capa de alto índice de refracción. En otro ejemplo específico, el recubrimiento óptico incluye rutilo o anatasa  $\text{TiO}_2$  como la primera capa de alto índice de refracción, rutilo o anatasa  $\text{TiO}_2$  como la segunda capa de alto índice de refracción, y  $\text{SiO}_2$  o  $\text{SnO}_2$  como el tercer material difundido. En cualquiera de estos ejemplos, se puede usar cualquiera de los materiales en placas como sustrato.
- En otro ejemplo, tanto la primera capa de alto índice de refracción como la segunda capa de alto índice de refracción se seleccionan del grupo que consiste en  $\text{TiO}_2$  (rutilo o anatasa),  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  y mezclas de los mismos con  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{SnO}_2$  o  $\text{Al}_2\text{O}_3$  como tercer material difundido. Por tanto, una realización prevé un pigmento de efecto que comprende una placa recubierta con un recubrimiento óptico en el que el recubrimiento óptico es al menos:

- la primera o la segunda capa de alto índice de refracción son  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ;  
la primera o la segunda capa de alto índice de refracción son  $\text{TiO}_2$ ;  
la primera y la segunda capa de alto índice de refracción son  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  o  
la primera y la segunda capa de alto índice de refracción son  $\text{TiO}_2$ .
- 5 Cada una de las capas de alto índice de refracción (1 y 2) es una capa separada y distinta que se define y se extiende entre una superficie de interfaz (6 y 7, respectivamente) a una superficie remota (8 y 9, respectivamente).
- 10 Las superficies remotas son las superficies lejanas (superficies no adyacentes) de las primeras capas 1 de alto índice de refracción y las segundas capas 2 de alto índice de refracción. Las figuras 5A y 5B muestran la primera superficie remota 8 de la primera capa de índice de refracción 1 más cercana al sustrato 4 y la segunda superficie remota 9 de la segunda capa de índice de refracción 2 más alejada del sustrato.
- 15 Además, cada capa de alto índice de refracción también incluye una superficie de interfaz que está opuesta y separada de la superficie remota. La primera capa 1 de alto índice de refracción y la segunda capa 2 de alto índice de refracción son adyacentes entre sí en sus respectivas superficies de interfaz, 6 y 7, respectivamente. La segunda capa 2 de alto índice de refracción está formada en la superficie de interfaz 6 de la primera capa 1 de alto índice de refracción y no hay una capa distinta o separada entre la primera y la segunda capa de alto índice de refracción, 1 y 2, respectivamente.
- 20 20 Las Figuras 5A y 5B muestran la primera superficie de interfaz 6 de la primera capa 1 de alto índice de refracción adyacente a la segunda superficie de interfaz 7 de la segunda capa 2 de alto índice de refracción. La primera superficie de interfaz 6 es adyacente y está en contacto con la segunda superficie de interfaz 7 en varios puntos. La figura 5B muestra la dispersión completa del tercer material 5 difundido en la primera capa 1 de alto índice de refracción y la segunda capa 2 de alto índice de refracción, y las superficies de interfaz, 6 y 7, respectivamente, están continuamente en contacto y adyacentes entre sí en todos los puntos. La figura 5A muestra bolsas discontinuas 3 del tercer material 5 difundido entre la primera superficie de interfaz 6 y la segunda superficie de interfaz 7. Las superficies de interfaz primera y segunda, 6 y 7, respectivamente, tocan en varios puntos y envuelven el tercer material 5 difundido allí entre la formación de burbujas o bolsas 3 individuales del tercer material 5 difundido entre las superficies de interfaz 6 y 7, como se muestra en las Figuras 5A. y 3B.
- 25 30 Las figuras muestran el tercer material 5 difundido que tiene un rango de difusión entre el 100% difundido y parcialmente difundido en una o en ambas, la primera y la segunda capa de alto índice de refracción, 1 y 2, respectivamente. El tercer material 5 difundido es un óxido y puede ser  $\text{SiO}_2$  o un material de óxido metálico que es diferente de la primera capa 1 de alto índice de refracción y la segunda capa 2 de alto índice de refracción. Algunos ejemplos del óxido adecuado para su uso como tercer material difundido incluyen  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SnO}_2$ ,  $\text{SiO}_2$ , óxidos de cobalto, óxido de magnesio, óxido de manganeso, óxidos de cobre, óxidos de hierro (es decir,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ),  $\text{B}_2\text{O}_3$ ,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ,  $\text{ZnO}$ ,  $\text{ZrO}_2$ , y mezclas de los mismos, por ejemplo,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SnO}_2$ ,  $\text{SiO}_2$ , óxidos de cobalto, óxido de magnesio, óxido de manganeso,  $\text{B}_2\text{O}_3$ ,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{ZnO}$  y  $\text{ZrO}_2$ .
- 35 40 45 El tercer material 5 difundido está presente en el recubrimiento óptico 11 en una cantidad que varía de aproximadamente 0,5% en peso a aproximadamente 11% en peso, donde el % en peso se basa en el peso total del recubrimiento óptico sobre el sustrato de plaqetas. Por ejemplo, el tercer material 5 difundido está presente en el recubrimiento óptico en una cantidad que varía de aproximadamente 1% en peso a aproximadamente 9% en peso, que varía entre aproximadamente 1,5% en peso a aproximadamente 8% en peso, donde el % en peso se basa en el peso total del recubrimiento óptico sobre el sustrato de plaqetas.
- 50 Como tal, este rango de % peso es aplicable para  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SnO}_2$ ,  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{B}_2\text{O}_3$ ,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ,  $\text{ZnO}$ ,  $\text{ZrO}_2$ , óxidos de cobalto, óxido de magnesio, óxido de manganeso, óxidos de cobre, óxidos de hierro y sus mezclas, por ejemplo,  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{SnO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  o mezclas de los mismos como tercer material difundido.
- 55 60 65 El tercer material 5 difundido está presente en el recubrimiento óptico 11 al menos parcialmente difundido en una o ambas de las capas 1 y 2 de alto índice de refracción con o sin bolsas 3 del tercer material 5 difundido dependiendo de la cantidad de difusión. La difusión del tercer material 5 difundido es la migración del tercer material 5 difundido a una o ambas capas adyacentes de las primeras capas 1 de alto índice de refracción y/o las segundas capas 2 de alto índice de refracción de modo que el tercer material difundido 3 se convierta en parte de la capa de alto índice de refracción entre la capa de interfaz y la capa remota de esa capa de alto índice de refracción. El rango de difusión es entre la difusión completa del tercer material difundido o una difusión del 100% sin bolsas de tercer material concentrado difundido hasta la difusión parcial del tercer material 5 difundido que incluye bolsas 3 aisladas de tercer material 5 difundido entre las interfaces 6 y 7. El rango de difusión se determina mediante una micrografía electrónica de transmisión de alta resolución (TEM aumento de 200000) y/o una espectroscopía de rayos X de dispersión de energía de sección transversal (EDXS) en tandem con TEM del pigmento de efecto calcinado. La dirección de difusión o desplazamiento del tercer material difundido es desde las superficies de interfaz, 6 y/o 7, de las capas adyacentes de alto índice de refracción 1 y/o 2 hacia las superficies remotas 8 y/o 9. Esto se muestra en las Figuras 1B, 2B, 3B y 4B que muestran las imágenes en sección transversal del pigmento de efecto calcinado usando EDXS en tandem con TEM. La figura 1B muestra gráficamente la distribución de silicio en las superficies de interfaz de la primera y segunda capas de alto índice de refracción hacia las superficies remotas. Tenga en cuenta la difusión de silicio en el  $\text{TiO}_2$  segunda capa

de alto índice de refracción indicada por el elemento 10.

El rango de difusión del tercer material 5 difundido afecta la naturaleza de las capas 1 y 2 de alto índice de refracción y, a su vez, afecta las propiedades ópticas del pigmento de efecto resultante. Como ejemplos, el tercer material 5 difundido afecta cómo una o ambas capas de alto índice de refracción se depositan sobre una placa o sustrato y/o cómo una o ambas de las capas de alto índice de refracción interactúan cuando se calcinan. En general, el tercer material 5 difundido afecta a las propiedades ópticas, en particular al croma, del pigmento de efecto resultante.

La difusión parcial del tercer material 5 difundido produciría bolsas discontinuas 3 del tercer material 5 difundido debido al hecho de que el tercer material 5 difundido no se difunde al 100% en una o ambas capas 1 y 2 de alto índice de refracción primera y segunda, respectivamente.

La figura 3B muestra unas pocas bolsas 3 aisladas e independientes o discontinuas de tercer material 5 concentrado difundido entre las superficies de interfaz 6 y 7. Las bolsas 3 discontinuas no son una capa separada que se extiende continuamente entre la primera capa 1 de alto índice de refracción y la segunda capa 2 de alto índice de refracción. De hecho, las bolsas discontinuas 3 del tercer material concentrado difundido no son una capa en absoluto, ya que una capa continua no proporcionaría los beneficios que se describen en el presente documento.

Se contempla además que el recubrimiento óptico puede incluir además capas adicionales, tales como capas de alto índice de reflexión o de bajo índice de refracción, por encima o por debajo de la primera superficie remota 8 o la segunda superficie remota 9. Además, se puede añadir un recubrimiento transparente o de tratamiento superficial como capa superior para proteger el pigmento de efecto contra la intemperie y similares. También es posible tener múltiples del recubrimiento óptico 11 apilados uno encima del otro.

Todos los ejemplos de los pigmentos de efecto descritos en este documento pueden incorporarse en una variedad de productos y usarse en una variedad de aplicaciones. Como ejemplos, los pigmentos de efecto pueden incluirse en pinturas, tintas de chorro de tinta u otras tintas de impresión, recubrimientos, recubrimientos para automóviles, plásticos, formulaciones cosméticas y esmaltes para composiciones de cerámica o vidrios.

Por tanto, el pigmento de efecto puede comprender el sustrato de placas y un recubrimiento óptico que tiene, por ejemplo, las estructuras a continuación.

Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/ rango de difusión entre el 100% y la difusión parcial de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/ Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>;

Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/ rango de difusión entre el 100% y la difusión parcial de SnO<sub>2</sub>/ Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>;

Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/ rango de difusión entre el 100% y la difusión parcial de SiO<sub>2</sub>/ Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>;

TiO<sub>2</sub> (rutile o anatasita)/rango de difusión entre el 100% y la difusión parcial de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/ Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>;

Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/ rango de difusión entre el 100% y la difusión parcial de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/ TiO<sub>2</sub> (rutile o anatasita);

Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/ rango de difusión entre el 100% y la difusión parcial de SnO<sub>2</sub>/ TiO<sub>2</sub> (rutile o anatasita);

TiO<sub>2</sub> (rutile o anatasita)/rango de difusión entre el 100% y la difusión parcial de SnO<sub>2</sub>/ Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>;

Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/ rango de difusión entre el 100% y la difusión parcial de SiO<sub>2</sub>/ TiO<sub>2</sub> (rutile o anatasita);

TiO<sub>2</sub> (rutile o anatasita)/rango de difusión entre el 100% y la difusión parcial de SiO<sub>2</sub>/ Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>;

Rutile TiO<sub>2</sub>/ rango de difusión entre el 100% y la difusión parcial de SiO<sub>2</sub>/ Rutile TiO<sub>2</sub>;

TiO<sub>2</sub> (rutile o anatasita)/rango de difusión entre el 100% y la difusión parcial de SnO<sub>2</sub>/ TiO<sub>2</sub> (rutile o anatasita); y

TiO<sub>2</sub> (rutile o anatasita)/rango de difusión entre el 100% y la difusión parcial de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/ TiO<sub>2</sub> (rutile o anatasita).

La anterior "difusión entre el 100% y la difusión parcial del tercer material difundido" no indica una capa como se explicó anteriormente, sino que es una forma abreviada de decir que el tercer material difundido tiene un rango de difusión entre el 100% y la difusión parcial desde las interfaces 6 y/o 7 de la primera o segunda capas de alto índice de refracción hacia las superficies remotas 8 y/o 9 de las capas de alto índice de refracción.

Método para hacer los pigmentos de efecto

Los pigmentos de efecto descritos en el presente documento se fabrican recubriendo una placa 4 con un recubrimiento óptico 11. También se contempla que la placa se pueda pretratar con un recubrimiento y luego recubrir

posteriormente con el recubrimiento óptico 11 inventivo. Por lo tanto, el recubrimiento óptico 11 de la invención puede estar o no en contacto directo con la superficie de la placa, sino que puede estar en una placa pretratada o en una placa prerrecubierta. El método para formar el recubrimiento inventivo puede implicar precipitación, coprecipitación o deposición química en fase de vapor (CVD por sus siglas en inglés). Por tanto, el uso del término "deposición" abarca la precipitación, la coprecipitación y la deposición de vapor químico.

Un ejemplo de una precipitación acuosa se describe a continuación.

Se prepara una suspensión acuosa que incluye las placas. En un ejemplo, la suspensión acuosa incluye agua y placas. Esta suspensión se puede calentar y agitar. El pH de la suspensión se puede ajustar a un pH predeterminado, dependiendo del material a precipitar sobre la placa (es decir, se pueden formar diferentes precursores de la primera o segunda capas de alto índice de refracción o del tercer material difundido a diferentes pH).

Este ajuste de pH se puede realizar añadiendo un ácido o una base adecuados a la suspensión acuosa. Despues del ajuste del pH, el pH de la suspensión puede oscilar entre aproximadamente 1 y aproximadamente 12.

Al pH apropiado dependiendo del material a precipitar, la primera capa de alto índice de refracción se precipita sobre la 5  
plaqueta en la suspensión acuosa. Puede añadirse un precursor de la primera capa de alto índice de refracción a la suspensión acuosa y puede mantenerse el pH apropiado añadiendo una base/ácido apropiado. Como ejemplos, una solucion acuosa de  $TiCl_4$  (por ejemplo, 40%) puede ser un precursor adecuado para  $TiO_2$  y una solucion acuosa de  $FeCl_3$  (por ejemplo, 39%) puede ser un precursor adecuado para  $Fe_2O_3$ . El precursor se puede añadir a una velocidad 10  
adecuada mientras se mantiene el pH. La primera capa de alto índice de refracción recubre la plaqeta del precipitado o del óxido metálico formado.

Cuando se forma una cantidad deseable del precipitado, el pH se puede ajustar hacia arriba o hacia abajo hasta el pH apropiado para introducir el precursor del tercer material difundido en la suspensión. Un ácido adecuado (p. ej., HCl, 15  
 $H_2SO_4$ ) para reducir el pH, y se puede utilizar una base adecuada (por ejemplo, NaOH) para aumentar el pH. Al pH apropiado, se añade a la suspensión acuosa un precursor del tercer material difundido. La cantidad de precursor añadido y el momento de la precipitación pueden depender, al menos en parte, del material o materiales usados en el método y del intervalo de difusión deseado. En algunos ejemplos del método, puede ser deseable aumentar el pH cuando se utiliza un precursor de un  $SiO_2$  tercer material difundido o un precursor de un  $Al_2O_3$  un tercer material difundido, y puede ser deseable reducir el pH cuando se utiliza un precursor de un  $SnO_2$  se utiliza un tercer material 20  
difundido.

Cuando se añade una cantidad deseable de un tercer material difundido a la suspensión, el pH se puede ajustar de 25  
nuevo a o cerca del pH apropiado. A este pH, el tercer material difundido puede precipitarse sobre la primera capa de alto índice de refracción. El precipitado, un precursor de la segunda capa de alto índice de refracción, se puede añadir a la suspensión acuosa y el pH se puede mantener añadiendo una base/ácido apropiado. El precursor se puede añadir a una velocidad adecuada mientras se mantiene el pH. La segunda capa de alto índice de refracción se forma sobre la primera capa de alto índice de refracción.

30 Cuando se logra un tono final deseable del pigmento de efecto, la suspensión se puede filtrar y los sólidos resultantes se pueden lavar y calcinar. Durante todo el método, la suspensión acuosa se puede agitar.

Aunque lo anterior ejemplo describe un método particular de precipitación acuosa y secuencias de adiciones, las 35  
realizaciones del pigmento de efecto se pueden lograr mediante cualquier número de métodos bien conocidos por los expertos en la técnica, tales como deposición química de vapor, precipitación acuosa (como se detalla arriba) y coprecipitación, siempre que se logre la estructura definida por el recubrimiento óptico. Por ejemplo, la adición del tercer material difundido puede tener lugar después de depositar la primera capa de alto índice de refracción y antes de precipitar la segunda capa de alto índice de refracción. Alternativamente, la adición del tercer material difundido puede 40  
tener lugar durante la deposición de la primera o segunda capas de alto índice de refracción. El óxido del tercer material difundido tiene un intervalo de difusión desde el 100% hasta la difusión parcial en la primera capa de alto índice de refracción y/o la segunda capa de alto índice de refracción tras la precipitación y/o tras la calcinación. El método descrito en este documento también se puede usar para aumentar el croma de un pigmento de efecto en un tono dado.

Respectivamente,

45 un método para hacer un pigmento de efecto que comprende:

recubrir una plaqeta con un recubrimiento óptico que comprende los pasos:

depositar una primera capa de alto índice de refracción sobre la plaqeta; 50  
depositar una segunda capa de alto índice de refracción; y  
depositar un tercer material difundido después de depositar la primera capa de alto índice de refracción y antes de depositar la segunda capa de alto índice de refracción

o  
55 codepositar un tercer material difundido durante la deposición de la primera o segunda capas de alto índice de refracción y el tercer material difundido depositado tiene un rango de difusión entre el 100% y la difusión parcial en una o ambas de la primera capa de alto índice de refracción y la segunda capa de alto índice de refracción,  
con la condición de que el tercer material difundido sea diferente de la primera y la segunda capa de alto índice de refracción.

60 En el método anterior para hacer el pigmento de efecto inventivo, la primera y segunda capas de alto índice de refracción se forman a partir de materiales de alto índice que tienen un índice de refracción de aproximadamente  $> 1,65$ , por ejemplo la primera y segunda capas de alto índice de refracción se seleccionan independientemente del grupo que consiste en  $SnO_2$ ,  $TiO_2$ ,  $Cr_2O_3$ ,  $ZnO$ ,  $ZrO_2$ , óxidos de hierro (como  $Fe_3O_4$ ,  $Fe_2O_3$ ), óxidos de cobre, óxidos de cobalto, óxidos de manganeso, alúmina y mezclas de los mismos;  
65 el tercer material difundido es  $SiO_2$  o un óxido de metal, por ejemplo, el tercer material difundido se selecciona del grupo

que consiste en  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SnO}_2$ ,  $\text{SiO}_2$ , óxidos de cobalto, óxido de magnesio, óxido de manganeso, óxidos de cobre, óxidos de hierro (es decir,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ),  $\text{B}_2\text{O}_3$ ,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ,  $\text{ZnO}$ ,  $\text{ZrO}_2$  y mezclas de los mismos.

Una realización importante es cuando el tercer material es  $\text{SnO}_2$ ,  $\text{SiO}_2$  o  $\text{Al}_2\text{O}_3$  y la primera y la segunda capa de alto índice de refracción son  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  o  $\text{TiO}_2$ .

Además, como se explicó anteriormente, se describe un método para aumentar un croma en un tono dado para un pigmento de efecto, que comprende:

10 recubrir una placa con un recubrimiento óptico que comprende los pasos:

depositar una primera capa de alto índice de refracción sobre el sustrato de placa;  
depositar una segunda capa de alto índice de refracción;

y

15 depositar un tercer material difundido después de depositar la primera capa de alto índice de refracción y antes de depositar la segunda capa de alto índice de refracción o co-depositar el tercer material difundido durante la deposición de la primera o segunda capa de alto índice de refracción y el tercer material difundido depositado tiene un rango de difusión entre el 100% de difusión y la difusión parcial en la primera capa de alto índice de refracción y la segunda capa de alto índice de refracción o en ambas,

20 con la condición de que el tercer material difundido sea diferente de la primera y segunda capas de alto índice de refracción.

25 En el método anterior para aumentar el croma en un tono dado, la primera y la segunda capas de alto índice de refracción se forman a partir de materiales de alto índice que tienen un índice de refracción de aproximadamente > 1,65, por ejemplo el primer y segundo materiales de alto índice de refracción se seleccionan independientemente del grupo que consiste en  $\text{SnO}_2$ ,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ,  $\text{ZnO}$ ,  $\text{ZrO}_2$ , óxidos de hierro (como  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ), óxidos de cobre, óxidos de cobalto, óxidos de manganeso, alúmina y mezclas de los mismos;

30 el tercer material difundido es  $\text{SiO}_2$  o un óxido de metal, por ejemplo, el tercer material difundido se selecciona del grupo que consiste en  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SnO}_2$ ,  $\text{SiO}_2$ , óxidos de cobalto, óxido de magnesio, óxido de manganeso, óxidos de cobre, óxidos de hierro (es decir,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ),  $\text{B}_2\text{O}_3$ ,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ,  $\text{ZnO}$ ,  $\text{ZrO}_2$  y mezclas de los mismos. El tercer material difundido es especialmente  $\text{SnO}_2$ ,  $\text{SiO}_2$  o  $\text{Al}_2\text{O}_3$  y la primera y la segunda capa de alto índice de refracción son  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  o  $\text{TiO}_2$ .

35 En ambos métodos descritos anteriormente, cuando se usa precipitación en lugar de CVD, la primera y segunda capas de alto índice de refracción y el tercer material difundido se llevan a cabo en condiciones de pH conducentes a la precipitación del material particular que variará dependiendo del material precipitado.

40 Cuando sea apropiado, se puede aplicar una capa protectora sobre el segundo material de alto índice de refracción. Como un ejemplo, la capa (protectora) de  $\text{SiO}_2$  se puede aplicar sobre la capa de  $\text{TiO}_2$  (segunda capa de alto índice de refracción). En este ejemplo, se puede utilizar el siguiente método. Se dosifica una solución de silicato de sodio en una suspensión del material que se está recubriendo, cuya suspensión se ha calentado a aproximadamente 50°C - 100°C, especialmente 70°C - 80°C. El pH se mantiene entre 4 y 10, preferiblemente entre 6,5 y 8,5, añadiendo simultáneamente ácido clorhídrico (HCl) al 10%. Despues de la adición de la solución de vidrio soluble, se agita durante 30 minutos.

45 45 Para mejorar la estabilidad a la intemperie y a la luz, los pigmentos de efecto/escamas recubiertas (multicapa) pueden, según el campo de aplicación, someterse a un tratamiento de superficie. El tratamiento superficial puede facilitar la manipulación del pigmento, especialmente su incorporación en diversas composiciones para diversas aplicaciones.

50 50 Dependiendo del método de acondicionamiento o aplicación pretendida, puede ser ventajoso agregar ciertas cantidades de agentes mejoradores de la textura al pigmento de efecto antes o después del proceso de acondicionamiento, siempre que esto no tenga un efecto adverso sobre el uso de los pigmentos de efecto para colorear diversas composiciones para diversas aplicaciones. Los agentes adecuados incluyen ácidos grasos que contienen al menos 18 átomos de carbono, por ejemplo ácido esteárico o behénico, o amidas o sales metálicas de los mismos, especialmente 55 sales de magnesio, y también plastificantes, ceras, ácidos resínicos, como ácido abiético, jabón de colofonia, alquilenoles o alcoholes alifáticos, como alcohol estearílico, o compuestos alifáticos 1,2-dihidroxi que contienen de 8 a 22 átomos de carbono, tales como 1,2-dodecanodiol, y también resinas de maleato de colofonia o resinas de colofonia de ácido fumárico modificadas. Los agentes mejoradores de la textura se añaden en cantidades que oscilan entre el 0,1 y el 30% en peso, especialmente del 2 al 15% en peso, referido al producto final.

60 60 Para ilustrar más la presente divulgación, se dan aquí ejemplos. Debe entenderse que estos ejemplos se proporcionan con fines ilustrativos y no deben interpretarse como limitantes del alcance de la presente divulgación.

**Ejemplos****Ejemplo 1**

Se calentó una suspensión acuosa al 6,5% que contenía 130 g de escamas de mica (tamaño medio de partícula de aproximadamente 20  $\mu\text{m}$ ) a 82°C y se agitó. El pH de la suspensión se ajustó a 1,6 con HCl al 28%. Luego, 15 g de  $\text{SnCl}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  al 20% se añadieron a una velocidad de 2,0 g/min mientras se mantenía el pH a 1,60 mediante la adición de NaOH al 10%. Se dejó agitar la suspensión durante 30 minutos. Luego se añadió 40% de  $\text{TiCl}_4$  a una velocidad de 2,0 g/min mientras se mantenía el pH a 1,50 mediante la adición de NaOH al 35%. En el tono perla deseado, el pH de la suspensión se elevó a 7,8 con NaOH al 35%. Luego, 150 g de  $\text{Na}_2\text{SiO}_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  al 20% se añadieron a una velocidad de 2,0 g/min mientras se mantenía el pH a 7,80 mediante la adición de HCl al 28%. Despues de la adición del 20% de  $\text{Na}_2\text{SiO}_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  se completó, el pH de la suspensión se ajustó a 1,7 con HCl al 28%. Luego, 28 g de  $\text{SnCl}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  al 20% se añadieron a una velocidad de 2,0 g/min mientras se mantenía el pH a 1,70 mediante la adición de NaOH al 10%. Se dejó agitar la suspensión durante 30 minutos. Luego se añadió 40% de  $\text{TiCl}_4$  a una velocidad de 2,0 g/min mientras se mantenía el pH a 1,50 mediante la adición de NaOH al 35%.

Al tono deseado, se filtraron 50 ml de la suspensión y la torta prensada se lavó con agua y se calcinó a 850°C durante 20 minutos. La muestra se extrajo para medir el color. El tono resultante fue 322 y el croma 79. El % en peso de  $\text{SiO}_2$  basado en el peso total del recubrimiento óptico calcinado en los pigmentos de efecto del Ejemplo 1 fue del 7,4%.

**Ejemplo 2**

El Ejemplo 2 se ejecutó con el mismo procedimiento establecido en el Ejemplo 1, excepto que se añadieron 75 g del  $\text{Na}_2\text{SiO}_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  al 20%. En el tono deseado, se filtraron 50 ml de la suspensión y la torta prensada se lavó con agua y se calcinó a 850°C durante 20 min. La muestra se extrajo para medir el color. El tono resultante fue 321 y el croma fue 79,5. El % en peso de  $\text{SiO}_2$  basado en el peso total del recubrimiento óptico calcinado en los pigmentos de efecto de Ejemplo 2 fue 3,7%.

El pigmento de efecto preparado en Ejemplo 2 se añadió a una laca de acetato al 5% en peso, se secó y luego se cortó en cruz para dar una muestra de sección transversal, que se examinó mediante microscopía electrónica de transmisión de alta resolución (TEM). Esta imagen se muestra en la Fig. 1A. La misma muestra también se examinó mediante espectroscopía de rayos X de dispersión de energía (EDXS) para examinar la distribución de los diversos elementos recubiertos sobre la mica. La gráfica del corte elemental se muestra en la Fig.1B y muestra claramente que  $\text{SiO}_2$  se difunde al menos parcialmente dentro del  $\text{TiO}_2$  capa de alto índice de refracción.

La micrografía TEM en la Figura 1A, muestra la estructura de grano de las capas del primer y segundo material de alto índice de refracción ( $\text{TiO}_2$ ) (1 y 2) sobre el sustrato de mica. El corte elemental EDXS (Figura 1B), muestra que el tercer material difundido  $\text{SiO}_2$  no existe como una capa distinta entre el primer y el segundo material de alto índice de refracción, sino más bien como una capa difundida en la segunda capa de alto índice de refracción. Por consiguiente, el tercer material difundido se difunde al menos parcialmente en uno del primer y segundo materiales de alto índice de refracción.

**Ejemplo 3**

El Ejemplo 3 se ejecutó con el mismo procedimiento establecido en Ejemplo 1, excepto que se añadieron 50 g del  $\text{Na}_2\text{SiO}_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  al 20%. En el tono deseado, se filtraron 50 mL de la suspensión y la torta prensada se lavó con agua y se calcinó a 850 °C durante 20 min. La muestra se extrajo para medir el color. El tono resultante fue 324 y el croma fue 75. El % en peso de  $\text{SiO}_2$  basado en el peso total del recubrimiento óptico calcinado en los pigmentos de efecto de Ejemplo 2 fue del 2,5%.

**Ejemplo 4**

El Ejemplo 4 se ejecutó con el mismo procedimiento establecido en Ejemplo 1, excepto que se añadieron 25 g del  $\text{Na}_2\text{SiO}_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  al 20%. En el tono deseado, se filtraron 50 mL de la suspensión y la torta prensada se lavó con agua y se calcinó a 850 °C durante 20 min. La muestra se extrajo para medir el color. El tono resultante fue 322 y el croma fue 76. El % en peso de  $\text{SiO}_2$  basado en el peso total del recubrimiento óptico calcinado en los pigmentos de efecto de Ejemplo 3 fue 1,2%.

**Ejemplo comparativo 4**

El Ejemplo Comparativo 4 se ejecutó con el mismo procedimiento establecido en Ejemplo 1, excepto que no se añadió  $\text{Na}_2\text{SiO}_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  al 20% y el pH no se elevó a 7,8. En el tono deseado, se filtraron 50 mL de la suspensión y la torta prensada se lavó con agua y se calcinó a 850 °C durante 20 min. La muestra comparativa se extrajo para medir el color. El tono resultante fue 324 y el croma fue 72.

Los resultados de croma para los ejemplos 1-4 y Ejemplo comparativo 4 ilustran que se puede obtener un croma más alto cuando el  $\text{SiO}_2$  descrito en el presente documento se difunde al menos parcialmente en una o ambas capas de alto índice de refracción.

**Ejemplo 5**

El Ejemplo 5 se ejecutó con el mismo procedimiento establecido en Ejemplo 1, excepto que se añadieron 125 g del  $\text{Na}_2\text{SiO}_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  al 20%. En el tono deseado, se filtraron 50 mL de la suspensión y la torta prensada se lavó con agua y se calcinó a 850 °C durante 20 min. La muestra se extrajo para medir el color. El tono resultante fue 325,2. El % en peso de  $\text{SiO}_2$  basado en el peso total del recubrimiento óptico calcinado en los pigmentos de efecto de Ejemplo 5 fue del 6,1%.

#### Ejemplo 6

- 10 El Ejemplo 6 se ejecutó con el mismo procedimiento establecido en Ejemplo 1, excepto que se añadieron 50 g del  $\text{Na}_2\text{SiO}_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  al 20%. En el tono deseado, se filtraron 50 mL de la suspensión y la torta prensada se lavó con agua y se calcinó a 850 °C durante 20 min. La muestra se extrajo para medir el color. El tono resultante fue 324,6. El % en peso de  $\text{SiO}_2$  basado en el peso total del recubrimiento óptico calcinado en los pigmentos de efecto del Ejemplo 6 fue 2,4%.
- 15 Los pigmentos de los Ejemplos de 5 y 6 y el Ejemplo comparativo 4 fueron expuestos a experimentos de calcinación adicionales. Cada una de las tortas de prensa de los Ejemplos de 5 y 6 y el Ejemplo comparativo 4 también se calcinaron a 625 °C durante 20 min. La Tabla 1 ilustra el tono medido después de la calcinación a 850 °C, el tono medido después de la calcinación a 625 °C y el tono delta entre las dos temperaturas de calcinación.

20

TABLA 1

Muestra	Tono después de 850 °C	Tono después de 625 °C	Delta de tono
Ej. Comp. 4	324	291	33
Ej. 5	325,2	315	10,2
Ej. 6	324,6	321	3,6

El delta de tono es indicativo de la cantidad de densificación que experimenta la muestra en la posterior calcinación. Un delta de tono grande indica que la muestra experimentó más contracción/densificación durante el proceso de calcinación adicional. Para los ejemplos 5 y 6, una mayor calcinación no provocó significativamente una mayor contracción/densificación, mientras que para el Ejemplo Comparativo 4, una mayor calcinación provocó una contracción/densificación significativamente mayor. Como tal, los resultados que se muestran en la Tabla 1 indican que la pequeña cantidad de  $\text{SiO}_2$  (tercer material difundido) de los Ejemplos 5 y 6 permitieron una deposición de  $\text{TiO}_2$  más efectiva. En el Ejemplo comparativo 4, donde no se utilizó  $\text{SiO}_2$ , se observó un delta de tono más grande de la capa de  $\text{TiO}_2$ , con 33 grados de tono entre las calcinaciones de 625 °C y 850 °C. Como tal, para lograr el espesor óptico deseado del recubrimiento y el tono después de la calcinación para el Ejemplo Comparativo 4, tendría que utilizarse aproximadamente un 19% más de la solución  $\text{TiCl}_4$ .

Con base en estos resultados, se puede concluir en este ejemplo que la pequeña cantidad de  $\text{SiO}_2$  difundido permite obtener el espesor deseado del recubrimiento óptico (espesor total del primer y segundo materiales de índice de refracción y tercer material difundido) y, por lo tanto, obtener el tono objetivo, con menos solución de  $\text{TiCl}_4$  (u otra solución precursora) de la que se necesitaría para obtener el mismo espesor óptico y tono objetivo sin el tercer material difundido  $\text{SiO}_2$ .

#### Ejemplo 7

40

Se calentó una suspensión acuosa al 5% que contenía 100 g de escamas de mica (tamaño medio de partícula de aproximadamente 10  $\mu\text{m}$ ) a 82°C y se agitó. El pH de la suspensión se ajustó a 1,6 con HCl al 28%. Luego, se añadieron 27 g de  $\text{SnCl}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  al 20% a una velocidad de 0,8 g/min mientras se mantenía el pH a 1,60 mediante la adición de NaOH al 35%. Se dejó agitar la suspensión durante 90 minutos antes de agregar 40% de  $\text{TiCl}_4$  a una velocidad de 1,1 g/min mientras que el pH se mantuvo en 1,60 mediante la adición de NaOH al 35%.

En el tono perla deseado, el pH de la suspensión se elevó a 7,8 con NaOH al 35%. Luego, se añadieron 40 g de  $\text{SnCl}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  al 20% a una velocidad de 0,5 g/min mientras se mantenía el pH a 7,80 mediante la adición de HCl al 28%. Despues de que se completó la adición del  $\text{Na}_2\text{SiO}_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  20%, el pH de la suspensión se ajustó a 1,6 con HCl al 28%. 50 Luego, se añadieron 40 g de  $\text{SnCl}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  al 20% a una velocidad de 0,5 g/min mientras se mantenía el pH a 1,60 mediante la adición de NaOH al 35%. Se dejó agitar la suspensión durante 30 minutos antes de agregar 40% de  $\text{TiCl}_4$  a una velocidad de 1,1 g/min mientras que el pH se mantuvo en 1,60 mediante la adición de NaOH al 35%.

En el tono deseado, se filtraron 60 ml de la suspensión y la torta prensada se lavó con agua y se calcinó a 850 °C durante 20 minutos. La muestra se extrajo para medir el color. El tono resultante fue 277 y el croma fue 68. El nivel de  $\text{SiO}_2$  en los óxidos recubiertos es 1,48%. Basado en difracción de rayos X en polvo, 100% del  $\text{TiO}_2$  está en la fase de rutilo.

**Ejemplo comparativo 7**

Este ejemplo comparativo se llevó a cabo como en Ejemplo 7, excepto que no se añadió  $\text{SnCl}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  al 20% para la segunda capa de  $\text{TiO}_2$  después de la adición de la solución 20% de  $\text{Na}_2\text{SiO}_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ .

- 5 El tono resultante fue 276 y el croma fue 58. El nivel de  $\text{SiO}_2$  en los óxidos recubiertos es del 2,30%. Basado en difracción de rayos X de polvo, 72% del  $\text{TiO}_2$  está en la fase de rutilo, y el 28% del  $\text{TiO}_2$  está en la fase anatasa. Así, la segunda capa de  $\text{TiO}_2$  está en la fase anatasa.

**Ejemplo 8**

- 10 Se calentó una suspensión acuosa al 5% que contenía 100 g de escamas de mica (tamaño medio de partícula de aproximadamente 20  $\mu\text{m}$ ) a 82°C y se agitó. El pH de la suspensión se ajustó a 3,2 con HCl al 28%. Entonces,  $\text{FeCl}_3$  39% se añadió a una velocidad de 1,3 g/min mientras se mantenía el pH en 3,2 mediante la adición de NaOH al 35%.

- 15 Con el tono de bronce deseado, el pH de la suspensión se elevó a 6,0 con NaOH al 35% y la suspensión se enfrió a 30°C. Luego, se añadieron 25 g de  $\text{Na}_2\text{Al}_2\text{O}_4$  al 20% a una velocidad de 0,5 g/min mientras que el pH se mantuvo en 6,0 mediante la adición de  $\text{H}_2\text{SO}_4$  al 25%. Una vez completada la adición, el pH de la suspensión se ajustó a 3,2 con HCl al 28% y la suspensión se calentó a 82°C. Se añadió  $\text{FeCl}_3$  39% a una velocidad de 1,3 g/min mientras se mantenía el pH en 3,2 mediante la adición de NaOH al 35%.

- 20 20 En el tono deseado, se filtraron 55 mL de la suspensión y la torta prensada se lavó con agua y se calcinó a 850 °C durante 20 min. La muestra se extrajo para medir el color. El tono resultante fue 49,7 y el croma fue 87,8. El % en peso de  $\text{Al}_2\text{O}_3$  basado en el peso total del recubrimiento óptico calcinado en los pigmentos de efecto del Ejemplo 8 fue 4%.

- 25 25 El pigmento de efecto preparado en Ejemplo 8 se añadió a una laca de acetato al 5% en peso, se secó y luego se cortó en cruz para dar una muestra de sección transversal, que se examinó mediante microscopía electrónica de transmisión de alta resolución (TEM). Esta imagen se muestra en la Fig. 2A. La misma muestra también se examinó mediante espectroscopía de rayos X de dispersión de energía (EDXS) para examinar la distribución de los diversos elementos recubiertos sobre la mica. Esta imagen se muestra en la Fig. 2B.

- 30 30 En la Figura 2A, hay claramente un recubrimiento de hematita denso de 70 nm a 95 nm formado sobre el sustrato de mica. Adyacente a esta densa capa de hematita hay de 20 nm a 50 nm de partículas esféricas de óxido de hierro (hematita) dispuestas libremente. Como lo demuestra el EDXS (Figura 2B), el óxido de aluminio 5 se difunde en las partículas esféricas de óxido de hierro de la hematita 2. Además, también está claro que la deposición de óxido de aluminio no conduce a una capa intermedia o recubrimiento separados entre los dos materiales 1 y 2 de alto índice de refracción primero y segundo, sino que muestra que el óxido de aluminio está completamente difundido en el segundo material de índice de refracción alto 2 y la difusión se produce entre la interfaz 7 y la superficie remota 9 de la segunda capa 2 de alto índice de refracción.

**Ejemplo 9**

40 Se calentó una suspensión acuosa al 5% que contenía 100 g de escamas de mica (tamaño medio de partícula de aproximadamente 20  $\mu\text{m}$ ) a 82°C y se agitó. El pH de la suspensión se ajustó a 3,2 con HCl al 28%. Entonces,  $\text{FeCl}_3$  39% se añadió a una velocidad de 1,3 g/min mientras se mantenía el pH en 3,2 mediante la adición de NaOH al 35%.

45 45 En el tono de bronce deseado, el pH de la suspensión se redujo a 1,5 con HCl al 28%. Luego, se añadieron 60 g de  $\text{SnCl}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  al 20% a una velocidad de 1,0 g/min mientras se mantenía el pH en 1,5 mediante la adición de NaOH al 35%. Una vez completada la adición, el pH de la suspensión se ajustó a 3,2 con NaOH al 35%. Se añadió  $\text{FeCl}_3$  39% a una velocidad de 1,3 g/min mientras se mantenía el pH en 3,2 mediante la adición de NaOH al 35%.

50 50 En el tono deseado, se filtraron 55 mL de la suspensión y la torta prensada se lavó con agua y se calcinó a 850 °C durante 20 min. La muestra se extrajo para medir el color. El tono resultante fue 52,7 y el croma fue 96. El % en peso de  $\text{SnO}_2$  basado en el peso total del recubrimiento óptico calcinado en los pigmentos de efecto del Ejemplo 9 fue del 6%.

- 55 55 Vea las Figuras 3A y 3B. La capa exterior de hematita es similar a la de las Figuras 2A y 2B. Es menos denso que la primera capa de  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ . El  $\text{SnO}_2$  se difunde parcialmente en la capa de  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ . Ver Figura 3B elemento 3.

**Ejemplo 10**

- 60 60 Se calentó una suspensión acuosa al 5% que contenía 100 g de escamas de mica (tamaño medio de partícula de aproximadamente 20  $\mu\text{m}$ ) a 82°C y se agitó. El pH de la suspensión se ajustó a 1,5 con HCl al 28%. Luego, se añadió  $\text{SnCl}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  al 20% a una velocidad de 0,8 g/min mientras se mantenía el pH en 1,5 mediante la adición de NaOH al 10%. La solución se agitó durante 30 minutos y luego 40% de  $\text{TiCl}_4$  se añadió a una velocidad de 1,9 g/min. El pH se mantuvo en 1,5 mediante la adición de HCl al 35%.

65 65 Con el tono perla deseado, el reactor se enfrió a 30°C y el pH se elevó a 6,0 con NaOH al 35%. Luego, se añadieron 25

g de  $\text{Na}_2\text{Al}_2\text{O}_4$  al 20% a una velocidad de 0,5 g/min mientras que el pH se mantuvo en 6,0 mediante la adición de  $\text{H}_2\text{SO}_4$  al 25%. Una vez completada la adición, la suspensión se calentó a 82°C. El pH de la suspensión se ajustó a 3,2 con  $\text{FeCl}_3$  al 39% y el  $\text{FeCl}_3$  se añadió a una velocidad de 1,3 g/min. El pH se mantuvo a 3,2 mediante la adición de NaOH al 35%.

5

En el tono deseado, se filtraron 55 mL de la suspensión y la torta prensada se lavó con agua y se calcinó a 850 °C durante 20 min. La muestra se extrajo para medir el color. El tono resultante fue 48 y el croma 79. El % en peso de  $\text{Al}_2\text{O}_3$  basado en el peso total del recubrimiento óptico calcinado en los pigmentos de efecto del Ejemplo 10 era 2%.

10 **Ejemplo comparativo 11**

Mica recubierta con  $\text{Fe}_2\text{O}_3$

15 Se calentó una suspensión acuosa al 16% que contenía 160 g de escamas de mica (tamaño medio de partícula de aproximadamente 20  $\mu\text{m}$ ) a 76°C y se agitó. El pH de la suspensión se ajustó a 3,3 con HCl al 28%. Entonces, se añadió  $\text{FeCl}_3$  39% a una velocidad de 1,3 g/min mientras se mantenía el pH en 3,3 mediante la adición de NaOH al 35%. No se utilizó un precursor  $\text{Al}_2\text{O}_3$  o  $\text{SnO}_2$ .

20 En el tono deseado, se filtraron 55 mL de la suspensión y la torta prensada se lavó con agua y se calcinó a 850 °C durante 20 min. La muestra comparativa se extrajo para medir el color. El tono resultante fue 53,9 y el croma fue 66.

**Ejemplo 12**

25 Se calentó una suspensión acuosa al 10% que contenía 200 g de escamas de mica (tamaño medio de partícula de aproximadamente 10  $\mu\text{m}$ ) a 82°C y se agitó. El pH de la suspensión se ajustó a 3,2 con HCl al 28%. Entonces, se añadió 39%  $\text{FeCl}_3$  a una velocidad de 2,0 g/min mientras se mantenía el pH en 3,2 mediante la adición de NaOH al 35%.

30 Con el tono de bronce deseado, el pH de la suspensión se elevó a 6,0 con NaOH al 35% y la suspensión se enfrió a 30°C. Luego, se añadieron 60 g de  $\text{Na}_2\text{Al}_2\text{O}_4$  al 20% a una velocidad de 1,5 g/min mientras que el pH se mantuvo en 6,0 mediante la adición de  $\text{H}_2\text{SO}_4$  al 25%. Una vez completada la adición, el pH de la suspensión se ajustó a 3,2 con HCl al 28% y la suspensión se calentó a 82°C. Se añadió  $\text{FeCl}_3$  39% a una velocidad de 2,0 g/min mientras se mantenía el pH en 3,2 mediante la adición de NaOH al 35%.

35 En el tono deseado, se filtraron 55 mL de la suspensión y la torta prensada se lavó con agua y se calcinó a 850 °C durante 20 min. La muestra se extrajo para medir el color. El tono resultante fue 59,3 y el croma fue 78,2. El % en peso de  $\text{Al}_2\text{O}_3$  basado en el peso total del recubrimiento óptico calcinado en los pigmentos de efecto de Ejemplo 11 fue del 3%.

40 **Ejemplo comparativo 13**

45 Se calentó una suspensión acuosa al 20% que contenía 400 g de escamas de mica (tamaño medio de partícula de aproximadamente 10  $\mu\text{m}$ ) a 76°C y se agitó. El pH de la suspensión se ajustó a 3,3 con HCl al 28%. Entonces, se añadió  $\text{FeCl}_3$  39% a una velocidad de 2,0 g/min mientras se mantenía el pH en 3,3 mediante la adición de NaOH al 35%. No se utilizó un precursor  $\text{Al}_2\text{O}_3$  o  $\text{SnO}_2$ .

En el tono deseado, se filtraron 55 ml de la suspensión, se lavó la torta prensada con agua y se calcinó a 850 °C durante 20 min. La muestra comparativa se extrajo para medir el color. El tono resultante fue 59,9 y el croma fue 53,4.

50 Cada uno de los ejemplos 8, 9 y 10-12 incluyó  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  como las capas de alto índice de refracción en el recubrimiento óptico. El Ejemplo 10 incluyó rutilo  $\text{TiO}_2$  y  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  como los materiales de alto índice de refracción en el recubrimiento óptico. La Tabla 2 ilustra el tercer material difundido usado (si lo hay), el porcentaje en peso del tercer material difundido, el tamaño de partícula del sustrato, el tono y el croma para cada uno de los Ejemplos 8, 9, 10 y 11, y los Ejemplos comparativos 10 y 12 después de la calcinación a 850 °C.

55 **Ejemplo 14**

60 Se calentó una suspensión acuosa al 10% que contenía 200 g de escamas de mica (tamaño medio de partícula de aproximadamente 10  $\mu\text{m}$ ) a 82°C y se agitó. El pH de la suspensión se ajustó a 3,2 con HCl al 28%. Entonces, se añadió  $\text{FeCl}_3$  39% a una velocidad de 2,0 g/min mientras se mantenía el pH en 3,2 mediante la adición de NaOH al 35%.

65 En el tono de bronce deseado, el pH de la suspensión se elevó a 7,8 con NaOH al 35%. Luego, se añadieron 60 g de  $\text{Na}_2\text{SiO}_3$  al 20% a una velocidad de 0,5 g/min mientras se mantenía el pH a 7,8 mediante la adición de HCl al 28%. Una vez completada la adición, el pH de la suspensión se ajustó a 3,2 con HCl al 28%. Se añadió  $\text{FeCl}_3$  39% a una velocidad de 2,0 g/min mientras se mantenía el pH en 3,2 mediante la adición de NaOH al 35%.

En el tono deseado, se filtraron 55 mL de la suspensión y la torta prensada se lavó con agua y se calcinó a 850 °C durante 20 min. La muestra se extrajo para medir el color. El tono resultante fue 60,23 y el croma fue 76,82. El % en peso de SiO<sub>2</sub> basado en el peso total del recubrimiento óptico calcinado en los pigmentos de efecto fue del 2,2%.

5

TABLA 2

Muestra	Tercer material difundido	como % en peso de recubrimiento óptico total	Tamaño de partícula de sustrato (μm)	Tono después de 850 °C	Croma después de 850 °C
Ej. 8	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	4	20	49,7	87,8
Ej. 9	SnO <sub>2</sub>	6	20	52,7	96
Ej. 10	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2	20	48	79
Ej. Comp. 11	Ninguno	0	20	53,9	66
Ej. 12	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3	10	59,3	78,2
Ej. Comp. 13	Ninguno	0	10	59,9	53,4
Ej. 14	SiO <sub>2</sub>	2,2	10	60,23	76,82

Comparando los Ejemplos 8, 9, 10, 12 y 14 con los Ejemplos comparativos 11 y 13, se puede concluir que la hematita (Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) o hematita y dióxido de titanio rutilo (TiO<sub>2</sub>) con Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> SnO<sub>2</sub> o SiO<sub>2</sub> como terceros materiales difundidos mejora significativamente el croma del pigmento resultante. Como tal, el método descrito en el presente documento puede usarse para aumentar el croma en un tono dado para un pigmento de efecto. A partir de estos resultados, también se puede concluir que el tamaño del sustrato subyacente no afecta negativamente a la mejora en el croma.

### Ejemplo 15

15 Se calentó una suspensión acuosa al 11,5% que contenía 230 g de escamas de vidrio (tamaño medio de partícula de aproximadamente 45 micrones) a 80°C y se agitó. El pH de la suspensión se ajustó a 1,4 con HCl al 28% y se añadió SnCl<sub>4</sub>· 5H<sub>2</sub>O al 20% a una velocidad de 2,2 g/min. El pH se mantuvo en 2,2 mediante la adición de NaOH al 35%. La solución se agitó durante 30 minutos y luego se añadió TiCl<sub>4</sub> 40% a un pH de 1,4. El pH se mantuvo en 2,2 mediante la adición de HCl al 35%.

20 En el tono perla deseado, el pH se elevó a 3,2 con NaOH al 35%. Se añadió FeCl<sub>3</sub> 39% a 1,1 g/min y el pH se mantuvo en 3,2 con NaOH al 35%. En el tono de bronce deseado, el pH se redujo a 1,4 con HCl al 28% y se añadieron 80 g de SnCl<sub>4</sub>· 5H<sub>2</sub>O al 20% a 2,2 g/min mientras se mantenía el pH a 1,4 con NaOH al 35%. Una vez completada la adición, el pH de la suspensión se ajustó a 3,2 con NaOH al 35%. Se añadió FeCl<sub>3</sub> 39% a una velocidad de 1,1 g/min mientras se mantenía el pH a 3,2 mediante la adición de NaOH al 35%.

25 En el tono deseado, se filtraron 55 ml de la suspensión, se lavó la torta prensada con agua y se calcinó a 625 °C durante 20 min. La muestra se extrajo para medir el color. El tono resultante fue 65 y el croma 67.

30 El % en peso del tercer material difundido SnO<sub>2</sub> basado en el peso total del recubrimiento óptico calcinado en los pigmentos de efecto del Ejemplo 14 fue del 7%. El peso total del recubrimiento óptico calcinado en este Ejemplo incluido 77% Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 14% SnO<sub>2</sub> (7% SnO<sub>2</sub> como director de rutilo y 7% como tercer material difundido), y 9% TiO<sub>2</sub>.

### Ejemplo 16

35 Se calentó una suspensión acuosa al 10% que contenía 200 g de escamas de mica (tamaño medio de partícula de aproximadamente 10 μm) a 76°C y se agitó. El pH de la suspensión se ajustó a 3,2 con HCl al 28%. Entonces, 39% FeCl<sub>3</sub> se añadió a una velocidad de 2,0 g/min mientras se mantenía el pH en 3,2 mediante la adición de NaOH al 35%. En el tono de bronce deseado, el pH de la suspensión se elevó a 7,8 con NaOH al 35%. Luego, se añadieron 60 g de Na<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub> al 20% a una velocidad de 0,5 g/min mientras se mantenía el pH a 7,8 mediante la adición de HCl al 28%.

40 Después de que se completó la adición, el pH de la suspensión se ajustó a 3,2 con HCl al 28%. Se añadieron 100 g de FeCl<sub>3</sub> al 39% a una velocidad de 2,0 g/min mientras se mantenía el pH en 3,2 mediante la adición de NaOH al 35%.

45 En el tono deseado, se filtraron 55 mL de la suspensión y la torta prensada se lavó con agua y se calcinó a 850 °C durante 20 min. La muestra se extrajo para medir el color. El tono resultante fue 68,34 y el croma fue 48. El % en peso de SiO<sub>2</sub> basado en el peso total del recubrimiento óptico calcinado en los pigmentos de efecto fue del 6,5%.

**Ejemplo comparativo 17**

Una suspensión acuosa al 5% que contenía 100 g de escamas de mica (tamaño medio de partícula de aproximadamente 10  $\mu\text{m}$ ) se calentó a 82°C y se agitó. El pH de la suspensión se ajustó a 3,2 con HCl al 28%. Entonces, se añadió  $\text{FeCl}_3$  39% a una velocidad de 1,0 g/min mientras se mantenía el pH en 3,2 mediante la adición de NaOH al 35%.

- 5 En el tono de bronce deseado, el pH de la suspensión se elevó a 7,8 con NaOH al 35%. Luego, se añadieron 702 g de  $\text{Na}_2\text{SiO}_3$  al 20% a una velocidad de 0,5 g/min mientras se mantenía el pH a 7,8 mediante la adición de HCl al 28%. Se añadieron 300 g de  $\text{FeCl}_3$  al 39% a una velocidad de 1,0 g/min mientras se mantenía el pH en 3,2 mediante la adición de NaOH al 35%.
- 10 En el tono deseado, se filtraron 55 mL de la suspensión y la torta prensada se lavó con agua y se calcinó a 850 °C durante 20 min. La muestra se extrajo para medir el color. El tono resultante fue 68,95 y el croma fue 47,45. El % en peso de  $\text{SiO}_2$  basado en el peso total del recubrimiento óptico calcinado en los pigmentos de efecto fue del 25,4%.

15 Comparando el ejemplo 16 con el ejemplo comparativo 17 muestra que hay una progresión de color más rápida utilizando el presente proceso. Tenga en cuenta que el ejemplo 16 muestra que se requieren 60 g de  $\text{SiO}_2$  y 100 g de cloruro férrico para alcanzar un tono de 68 en 200 g de mica, mientras que en una pila multicapa típica se requieren 700 g de  $\text{SiO}_2$  y se necesitan 300 g de cloruro férrico sobre 100 g de mica para alcanzar el mismo tono.

20 La referencia a lo largo de la especificación a "un ejemplo", "otro ejemplo", "un ejemplo", "una realización", etc., significa que un elemento particular (por ejemplo, rasgo, estructura y/o característica) descrito en relación con el ejemplo/realización está incluida en al menos un ejemplo/realización descrita en este documento, y puede o no estar presente en otros ejemplos/realizaciones. Además, debe entenderse que los elementos descritos para cualquier ejemplo/realización pueden combinarse de cualquier manera adecuada en los diversos ejemplos/realizaciones, a menos que el contexto indique claramente lo contrario.

25 Debe entenderse que los intervalos proporcionados en este documento incluyen el intervalo indicado y cualquier valor o subintervalo dentro del intervalo indicado. Por ejemplo, se debe interpretar que un rango de aproximadamente 10 nm a aproximadamente 700 nm incluye no solo los límites enumerados explícitamente de aproximadamente 10 nm a aproximadamente 700 nm, sino también para incluir valores individuales, tales como 11 nm, 125 nm, 404,5 nm, etc., y 30 subrangos, tales como de aproximadamente 15 nm a aproximadamente 400 nm, de aproximadamente 30 nm a aproximadamente 375 nm, etc. Además, cuando se utiliza "aproximadamente" para describir un valor, se pretende que abarque variaciones menores (hasta +/- 10%) del valor indicado.

35 Mientras que varios ejemplos han sido descritos en detalle, debe entenderse que los ejemplos pueden ser modificados. Por lo tanto, la descripción anterior debe considerarse no limitativa.

## REIVINDICACIONES

1. Un pigmento de efecto, que comprende:
- 5 una placa recubierta con un recubrimiento óptico y el recubrimiento óptico comprende:  
una primera capa de alto índice de refracción;  
una segunda capa de alto índice de refracción formada sobre la primera capa de alto índice de refracción; y  
10 un tercer material difundido entre la primera capa de alto índice de refracción y la segunda capa de alto índice de refracción;

donde:  
el tercer material difundido se difunde parcialmente en una o ambas primera y segunda capas de alto índice de refracción, y no forma una capa separada que se extienda continuamente entre la primera capa de alto índice de refracción y la segunda capa de alto índice de refracción;  
la primera y la segunda capa de alto índice de refracción están formadas por materiales que tienen un índice de refracción de > 1,65;  
el tercer material difundido es  $\text{SiO}_2$  o un óxido de metal; y  
20 el tercer material difundido es diferente de la primera y segunda capas de alto índice de refracción.

2. El pigmento de efecto de acuerdo con la reivindicación 1, donde la primera y segunda capas de alto índice de refracción se seleccionan entre el grupo formado por  $\text{SnO}_2$ ,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ,  $\text{ZnO}$ ,  $\text{ZrO}_2$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , óxidos de cobre, óxidos de cobalto, óxidos de manganeso, alúmina y mezclas de los mismos.
- 25 3. El pigmento de efecto de acuerdo con la reivindicación 1 o 2, donde el tercer material difundido se selecciona del grupo que consiste en  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SnO}_2$ ,  $\text{SiO}_2$ , óxidos de cobalto, óxido de magnesio, óxido de manganeso, óxidos de cobre,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ,  $\text{B}_2\text{O}_3$ ,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ,  $\text{ZnO}$ ,  $\text{ZrO}_2$  y mezclas de los mismos.
- 30 4. El pigmento de efecto de acuerdo con la reivindicación 3, donde el tercer material difundido se selecciona del grupo que consiste en  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SnO}_2$ ,  $\text{SiO}_2$  y mezclas de los mismos.
5. El pigmento de efecto de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones 2 a 4, donde la primera y segunda capas de alto índice de refracción se seleccionan del grupo que consiste en  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  y mezclas de los mismos.
- 35 6. El pigmento de efecto de acuerdo con la reivindicación 1, donde si la primera y segunda capas de alto índice de refracción son  $\text{TiO}_2$  y el tercer material difundido es  $\text{SiO}_2$ , entonces la primera y segunda capas de alto índice de refracción de  $\text{TiO}_2$  son rutilo  $\text{TiO}_2$ .
- 40 7. El pigmento de efecto de acuerdo con la reivindicación 1, donde los materiales del recubrimiento óptico se seleccionan entre las siguientes combinaciones:

Material del que está formada la primera capa	Tercer material difundido	Material del que está formada la segunda capa
$\text{Fe}_2\text{O}_3$	$\text{Al}_2\text{O}_3$	$\text{Fe}_2\text{O}_3$
$\text{Fe}_2\text{O}_3$	$\text{SnO}_2$	$\text{Fe}_2\text{O}_3$
$\text{Fe}_2\text{O}_3$	$\text{SnO}_2$	$\text{Fe}_2\text{O}_3$
$\text{TiO}_2$ (rutilo o anatasa)	$\text{Al}_2\text{O}_3$	$\text{Fe}_2\text{O}_3$
$\text{Fe}_2\text{O}_3$	$\text{Al}_2\text{O}_3$	$\text{TiO}_2$ (rutilo o anatasa)
$\text{Fe}_2\text{O}_3$	$\text{SnO}_2$	$\text{TiO}_2$ (rutilo o anatasa)
$\text{TiO}_2$ (rutilo o anatasa)	$\text{SnO}_2$	$\text{Fe}_2\text{O}_3$
$\text{Fe}_2\text{O}_3$	$\text{SnO}_2$	$\text{TiO}_2$ (rutilo o anatasa)
$\text{TiO}_2$ (rutilo o anatasa)	$\text{SnO}_2$	$\text{Fe}_2\text{O}_3$
Rutilo $\text{TiO}_2$	$\text{SnO}_2$	Rutilo $\text{TiO}_2$
$\text{TiO}_2$ (rutilo o anatasa)	$\text{SnO}_2$	$\text{TiO}_2$ (rutilo o anatasa)
$\text{TiO}_2$ (rutilo o anatasa)	$\text{Al}_2\text{O}_3$	$\text{TiO}_2$ (rutilo o anatasa)

8. El pigmento de efecto de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 7, donde la placa se

selección del grupo que consiste en micas naturales y sintéticas, talco, caolín, óxidos de hierro, oxícloruro de bismuto, escamas de vidrio,  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , escamas de cerámica sintética, perlita, aluminio y grafito.

9. El pigmento de efecto de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 8, donde el tercer material difundido está presente en el recubrimiento óptico en una cantidad que varía entre 0,5% en peso a 11% en peso y el % en peso se basa en el peso total del recubrimiento óptico después de la calcinación.

10. El pigmento de efecto de acuerdo con la reivindicación 1, donde:

10 la primera capa de alto índice de refracción es  $\text{TiO}_2$ ;  
la segunda capa de alto índice de refracción es una capa de  $\text{TiO}_2$ ; y  
el tercer material difundido es  $\text{SiO}_2$ .

15 11. Una pintura, tinta de chorro de tinta, recubrimiento, recubrimiento para automóviles, tinta de impresión, plástico, cosmético, esmalte para cerámicas o composiciones de vidrio que contienen los pigmentos de efecto de acuerdo con una cualquiera de las reivindicaciones anteriores.

12. Un método para hacer un pigmento de efecto de acuerdo con cualquiera de las reivindicaciones 1-10 que comprende:

20 recubrir una placa con un recubrimiento óptico que comprende las etapas:

depositar una primera capa de material de alto índice de refracción sobre la placa;

depositar una segunda capa de alto índice de refracción; y

25 depositar un tercer material difundido después de depositar la primera capa de alto índice de refracción y antes de depositar la segunda capa de alto índice de refracción o co-depositar el tercer material difundido durante la deposición de la primera capa de alto índice de refracción o segunda capa de alto índice de refracción y el tercer material difundido depositado parcialmente difundido en ya sea una o ambas de la primera capa de alto índice de refracción y la segunda capa de alto índice de refracción con la condición de que el tercer material difundido sea diferente de la primera y segunda capas de alto índice de refracción.

30 13. Un método para aumentar un croma en un tono dado para un pigmento de efecto según cualquiera de las reivindicaciones 1 a 10, comprendiendo el método:

recubrir una placa con un recubrimiento óptico que comprende las etapas:

35 depositar una primera capa de alto índice de refracción sobre la placa;

depositar una segunda capa de alto índice de refracción; y

depositar un tercer material difundido después de depositar la primera capa de alto índice de refracción y antes de depositar la segunda capa de alto índice de refracción o co-depositar el tercer material difundido durante la deposición de la primera o segunda capas de alto índice de refracción y el tercer material difundido depositado se difunde parcialmente en ya sea una o en ambas de la primera capa de alto índice de refracción y la segunda capa de alto índice de refracción con la condición de que el tercer material difundido es diferente de la primera y segunda capas de alto índice de refracción.

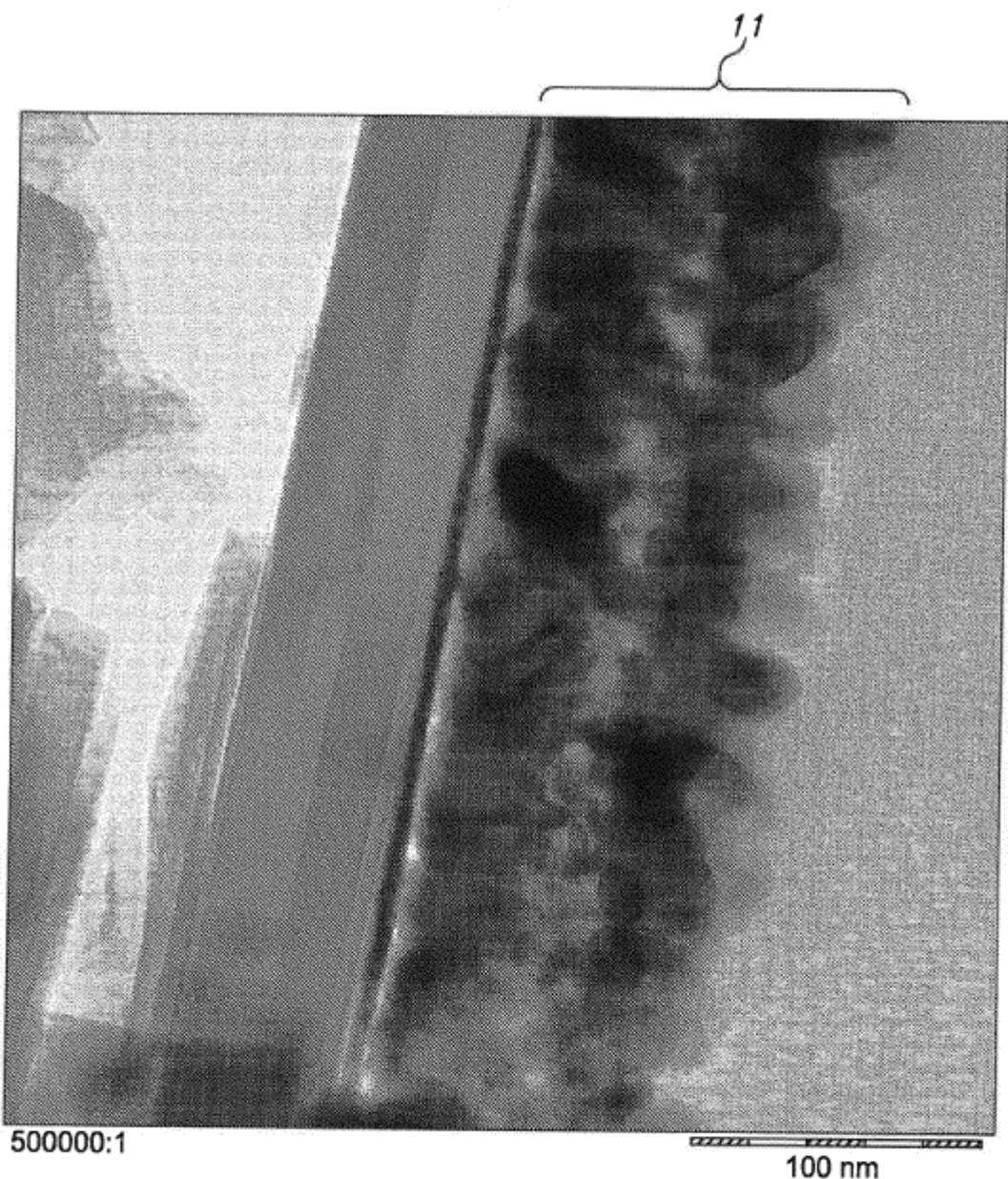


FIG. 1A

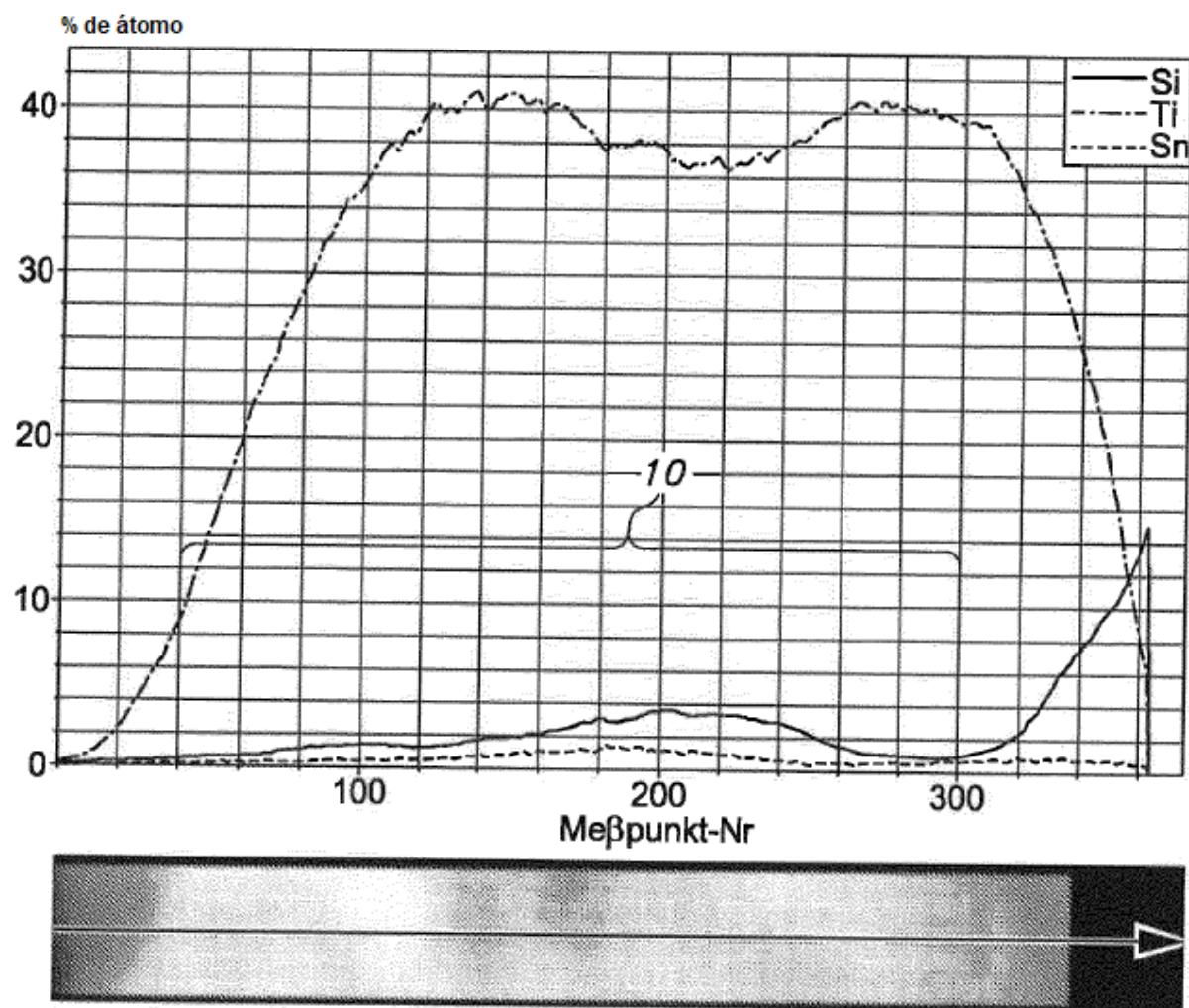


FIG. 1B

ES 2 900 620 T3



**FIG. 2A**

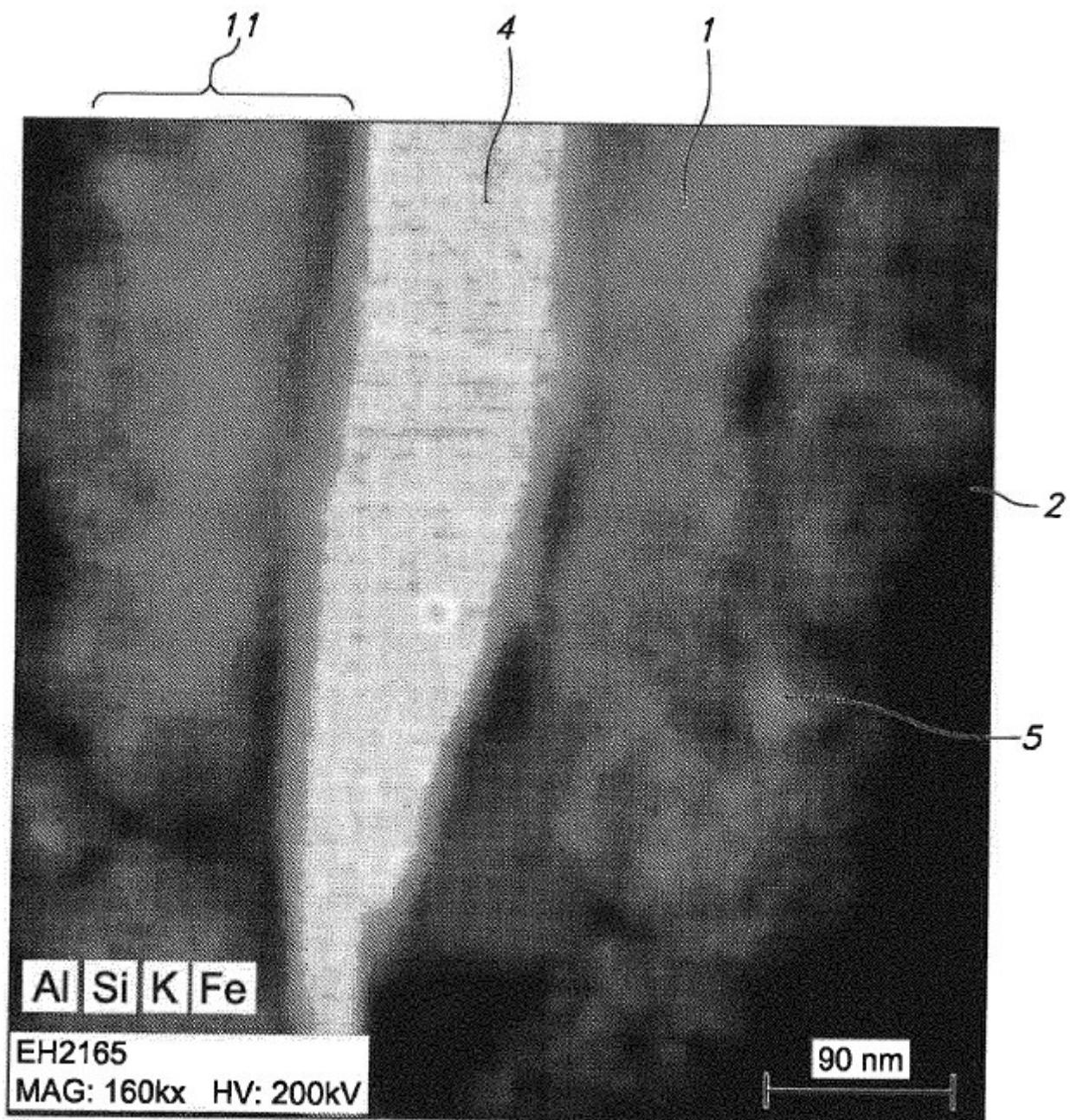


FIG. 2B



**FIG. 3A**

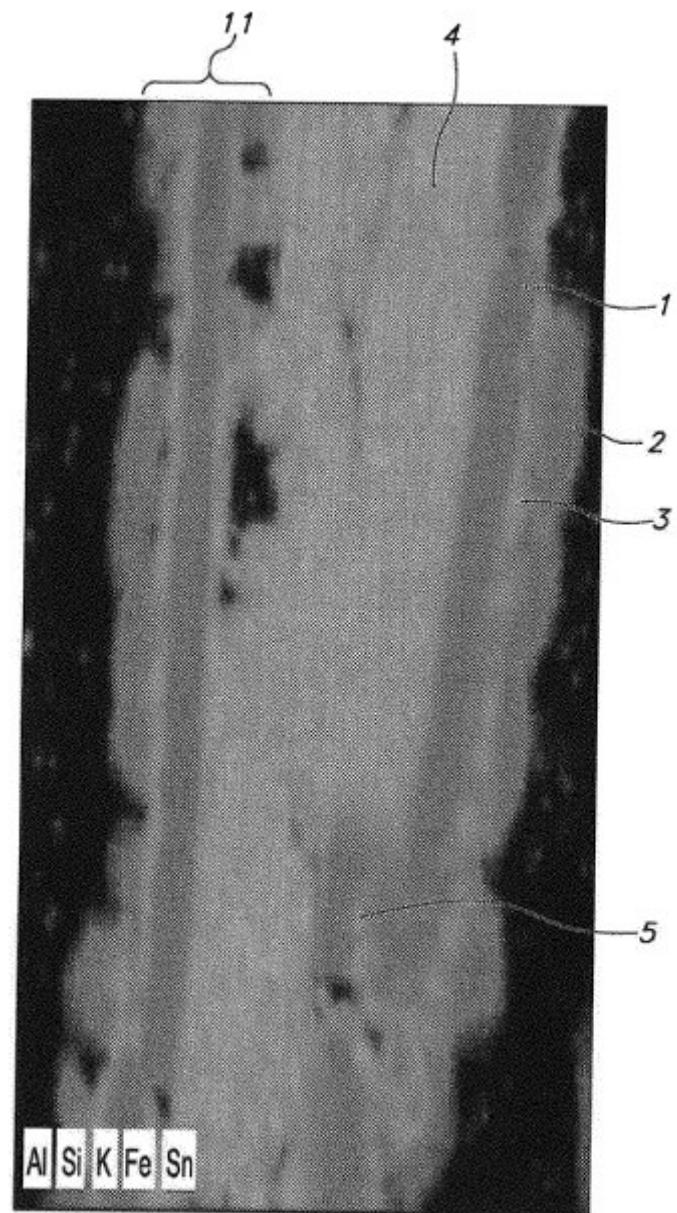
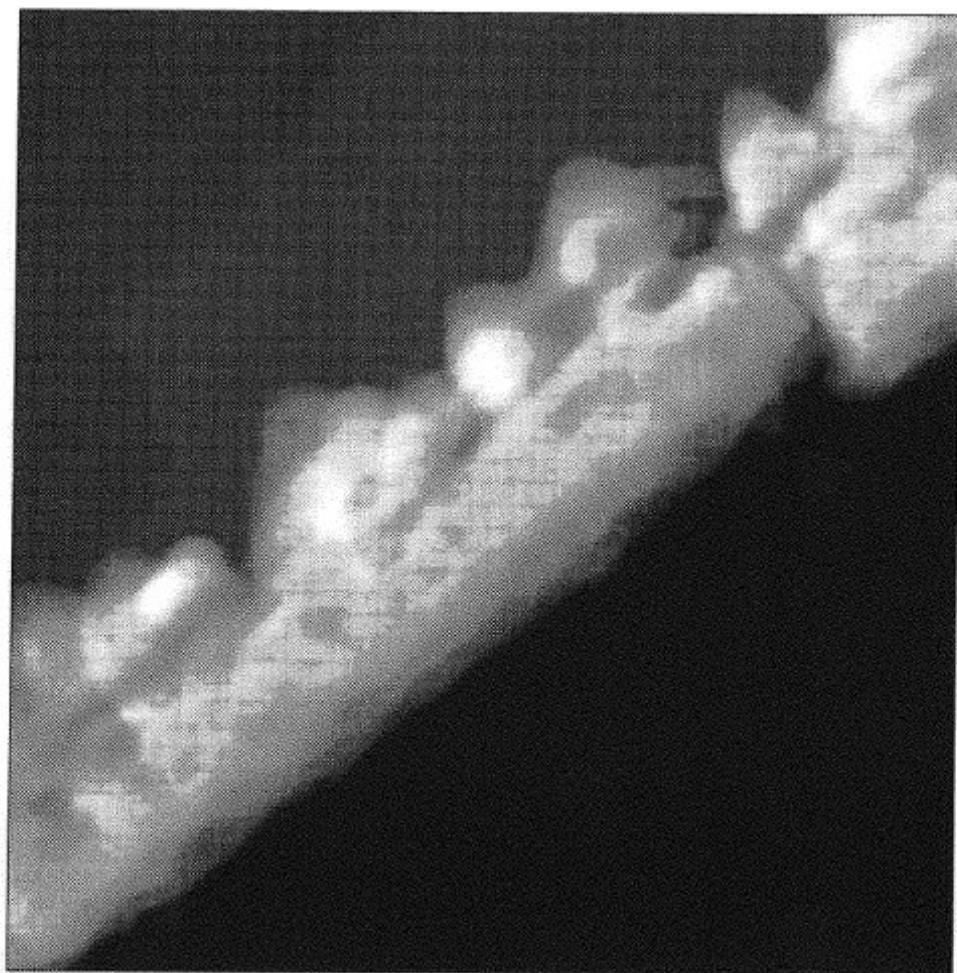


FIG. 3B



**FIG. 4A**

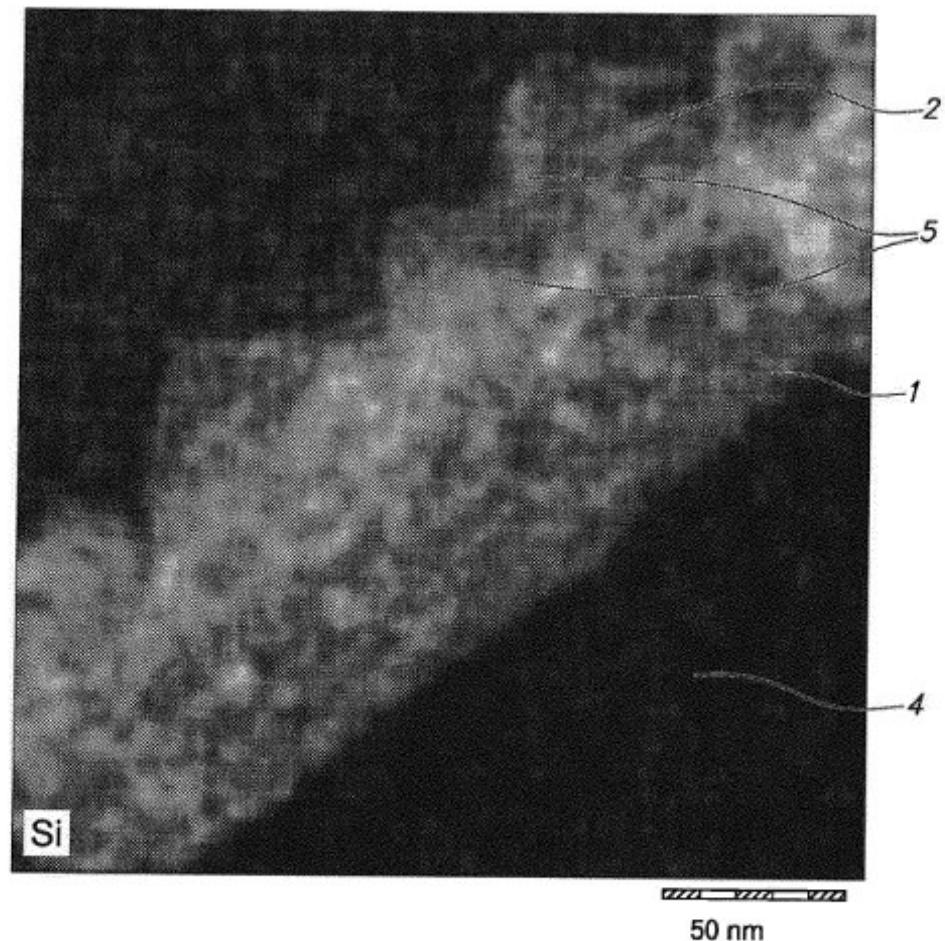
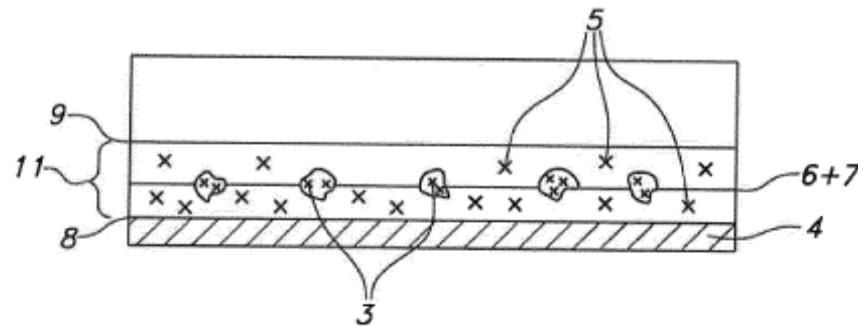
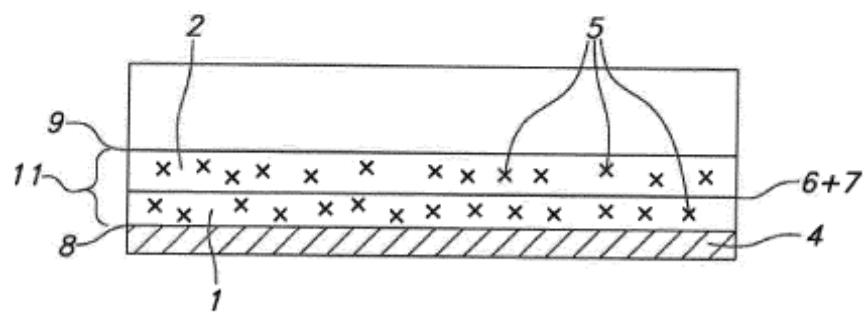


FIG. 4B



**FIG. 5A**



**FIG. 5B**