

República Federativa do Brasil  
Ministério do Desenvolvimento, Indústria  
e do Comércio Exterior  
Instituto Nacional da Propriedade Industrial.

(21) **PI 0714364-8 A2**



(22) Data de Depósito: 11/07/2007  
(43) Data da Publicação: 12/03/2013  
(RPI 2201)

(51) *Int.Cl.:*  
C09B 57/04  
C09B 67/10  
C09B 67/54

(54) **Título:** PIGMENTO DE ISOINDOLINA, PROCESSO PARA A PREPARAÇÃO DE PIGMENTOS DE ISOINDOLINA, USO DE PIGMENTOS DE ISOINDOLINA, E, PLÁSTICO

(30) **Prioridade Unionista:** 18/07/2006 EP 06117360.5

(73) **Titular(es):** Basf SE

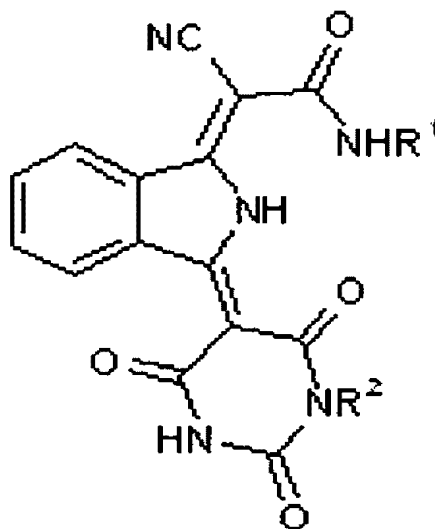
(72) **Inventor(es):** Andreas Stohr, Johannes Löbel, Peter Böttcher

(74) **Procurador(es):** Momsen, Leonardos & CIA.

(86) **Pedido Internacional:** PCT EP2007057078 de 11/07/2007

(87) **Publicação Internacional:** WO 2008/009597de 24/01/2008

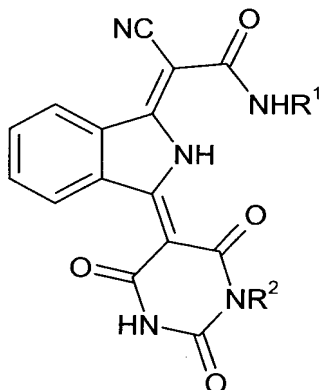
(57) **Resumo:** PIGMENTO DE ISOINDOLINA, PROCESSO PARA A PREPARAÇÃO DE PIGMENTOS DE ISOINDOLINA, USO DE PIGMENTOS DE ISOINDOLINA, E, PLÁSTICO. São apresentados pigmentos de isoindolina da fórmula geral (I), em que R<sup>1</sup> representa alquila C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub> e R<sup>2</sup> representa hidrogênio ou alquila C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>. Referidos pigmentos de isoindolina têm uma dureza de dispersão de ≤ 10 em LDPE e requer uma relação de branqueamento de ≥ 5 para ajustar a profundidade padrão do matiz de 1/3.



“PIGMENTO DE ISOINDOLINA, PROCESSO PARA A PREPARAÇÃO DE PIGMENTOS DE ISOINDOLINA, USO DE PIGMENTOS DE ISOINDOLINA, E, PLÁSTICO”

DESCRIÇÃO

5 A presente descrição diz respeito a pigmentos de isoindolina da fórmula geral I



em que as variáveis são definidas como a seguir:

R<sup>1</sup> é alquila C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>;

R<sup>2</sup> é hidrogênio ou alquila C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>,

10 cujo valor que expressa facilidade de dispersão em LDPE é ≤ 10 e o qual requer uma relação de redução ≥ 5 para se obter 1/3 de profundidade padrão do matiz.

15 A invenção ainda diz respeito à preparação dos pigmentos de isoindolina e a seu uso para a coloração de materiais orgânicos de elevado peso molecular, de origem natural e sintética, e também a plásticos coloridos com os pigmentos de isoindolina.

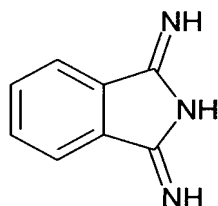
20 Os materiais comuns usados para a coloração amarela de plásticos, revestimentos e tintas de impressão são pigmentos inorgânicos, por exemplo o C.I. Pigment Yellow 34 ou 184, ou pigmentos orgânicos, por exemplo os pigmentos de quinoftalona, tais como o C.I. Pigment Yellow 138, pigmentos de isoindolina, tais como o C.I. Pigment Yellow 139, ou pigmentos azo, tais como o C.I. Pigment Yellow 74, 151 ou 180. A demanda quanto aos

colorantes, em particular pigmentos, isentos de metais pesados e de halogênios, tem sido elevada nitidamente nos tempos recentes por razões relacionadas ao ambiente.

O nível de interesse nos pigmentos de isoindolina, em particular o C.I. Pigment Yellow 185, o qual é agora conhecido por cerca de 30 anos, está, portanto, aumentando. Entretanto, os pigmentos em pó com base no C.I. Pigment Yellow 185, que se acham disponíveis no mercado por cerca de 25 anos, podem ser usados apenas como pigmentos para tintas de impressão e para revestimentos. Seu desempenho no teste de facilidade-de-dispersão, torna-os inadequados para uso direto nos plásticos, e, ao invés, eles primeiro têm de ser transformados em preparações de uma maneira complicada.

Nem mesmo os processos de preparação descritos na literatura de patentes oferecem C.I. Pigment Yellow 185 tendo as propriedades necessárias para uso direto em plásticos.

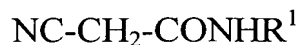
Por exemplo, a DE-A-29 14 086 descreve a preparação dos pigmentos de isoindolina da presente fórmula I em um meio aquoso mediante, em uma primeira etapa, a transformação da diiminoisoindolina (II)



II

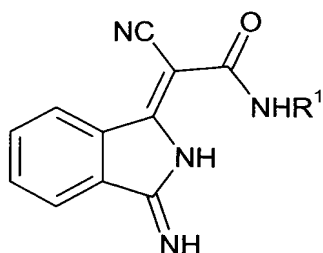
através da condensação com uma cianoacetamida da fórmula

20 III



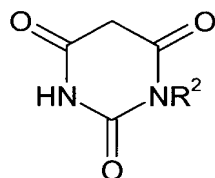
III

em um meio aquoso alcalino em 25 a 90°C até um semicondensado da fórmula IV



IV

o qual, sem isolamento intermediário, após a adicidificação da mistura de reação e nas temperaturas de 70 a 90°C, é reagido com um ácido barbitúrico da fórmula V



V

para dar o pigmento de isoindolina I.

5 O pigmento de isoindolina I é então isolado depois de 2 a 3 horas de agitação contínua da mistura de reação, em 90 a 95°C. O pigmento de isoindolina I assim obtido tem boa intensidade de cor, mas não pode ser usado diretamente em plástico, porque ele dá um valor de cerca de 50 no teste de facilidade-de-dispersão.

10 A DE-A-27 57 982 usa este processo de uma etapa para preparar pigmentos de isoindolina tendo um grupo de carbonamido ou grupo de (p-cloro)fenilcarbonamido [radical R<sup>1</sup>; hidrogênio ou (p-cloro)fenila]. Os pigmentos de isoindolina resultantes são descritos como facilmente dispersáveis nos plásticos. De modo a aumentar sua resistência à luz e

15 resistência às intempéries, o tratamento térmico posterior da mistura de reação aquosa em 110 a 140°C é recomendado.

De acordo com o procedimento descrito na EP-A-29 007, os pigmentos de isoindolina da presente fórmula I são preparados, como também é apresentado na DE-A-16 70 748, em dois estágios através de uma primeira

20 condensação para dar o semicondensado IV em metanol, isolamento intermediário, e outra reação em ácido acético diluído. A fim de preparar formas mais grosseiras de pigmento com maior propriedade de ocultação, um

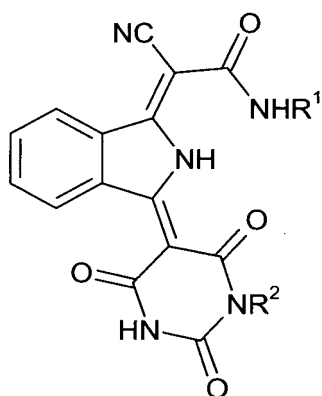
tratamento de calor subsequente da mistura de reação é também proposto. No entanto, se este processo de conversão for, como descrito nos exemplos, empreendido através do aquecimento do pigmento bruto por 3 horas em ácido acético aquoso a 120°C, o resultado é um C.I. Pigment Yellow 185 tendo

5 muito pouca intensidade de cor.

Um objeto subjacente à invenção foi, portanto, prover pigmentos de isoindolina que apresentem características de desempenho vantajosas globais e também, em particular, sejam facilmente dispersáveis nos plásticos.

10

Os pigmentos de isoindolina da fórmula geral I



I

foram consequentemente descobertos, em que as variáveis são definidas como segue:

$R^1$  é alquila  $C_1-C_4$ ;

$R^2$  é hidrogênio ou alquila  $C_1-C_4$ ,

15

cujo valor que expressa facilidade de dispersão em LDPE é  $\leq 10$  e o qual requer uma relação de redução  $\geq 5$  para se obter 1/3 de profundidade padrão de matiz.

20

Além disso, um processo para a preparação dos pigmentos de isoindolina I foi descoberto, o qual compreende submeter o pigmento bruto produzido durante a síntese do pigmento a um processo de cristalização na presença de um agente que meramente solvata as partículas do pigmento.

Finalmente, o uso dos pigmentos de isoindolina I para a

coloração de materiais orgânicos de elevado peso molecular, de origem natural e sintética, foi verificado.

Os pigmentos de isoindolina I da invenção apresentam excelentes características de desempenho. O C.I. Pigment Yellow 185 (R<sup>1</sup>: metila, R<sup>2</sup>: hidrogênio) é aqui de particular importância.

Os pigmentos de isoindolina I da invenção têm dispersabilidade muito boa em uma variedade muito ampla de meios de utilização, entre os quais se acham particularmente os plásticos, e seu valor expressando facilidade de dispersão em LDPE é  $\leq 10$  (determinado por um método com base na DIN EN 13900).

Ao mesmo tempo, eles têm excelentes propriedades de cor e, especialmente, elevada intensidade de cor. De acordo com a invenção, a intensidade de cor é definida através da relação de redução necessária para se obter 1/3 da profundidade padrão do ST do matiz (DIN 53235-1). A relação de redução no LDPE é portanto  $\geq 5$ , preferivelmente  $\geq 5,5$ , e no PVC é  $\geq 9$ , preferivelmente  $\geq 10,5$ ,

O tamanho médio de partículas primárias dos pigmentos de isoindolina I da invenção é geralmente de 50 a 180 nm.

A área superficial BET dos pigmentos de isoindolina I da invenção é usualmente de 25 a 40 m<sup>2</sup>/g.

Os pigmentos de isoindolina I da invenção podem compreender quantidades subordinadas de semicondensado IV não reagido e de semicondensado hidrolisado (hidrólise da função para dar o grupo de carbonila). A quantidade total destes componentes auxiliares situa-se geralmente abaixo dos 20 % em peso, em particular abaixo dos 15 % em peso.

Os pigmentos de isoindolina I da invenção são vantajosamente obteníveis pelo processo, também da invenção, de preparação em que o pigmento bruto produzido durante a síntese dos pigmentos é submetido a um processo de cristalização na presença de um agente que meramente solvata as

partículas de pigmentos.

O pigmento bruto aqui pode ser sintetizado pelos processos conhecidos com isolamento intermediário do semicondensado IV (variante A) ou por uma síntese de uma etapa (variante B), preferência sendo dada à variante B.

Na variante A, os solventes orgânicos são usados como meio de reação. Solventes adequados para a primeira etapa de condensação são ou os solventes próticos, em particular álcoois alifáticos, tais como metanol, etanol, isopropanol, isobutanol, álcool amílico, etileno glicol e éter monoetílico de etileno glicol, ou mesmo solventes apróticos, tais como a dimetilformamida, dimetilacetamida, N-metilpirrolidona, acetonitrila, sulfóxido de dimetila, dioxano, sulfolano, diclorobenzeno e nitrobenzeno, preferência sendo dada aos solventes alcoólicos. A segunda etapa de condensação preferivelmente tem lugar nos ácidos carboxílicos alifáticos, tais como o ácido fórmico, ácido acético, ácido propiônico e ácido mono- e dicloroacético. A temperatura de reação situa-se usualmente de 40 a 120 °C no primeiro estágio, e de 60 a 180 °C no segundo estágio.

Na variante B, as operações são realizadas em um meio aquoso, preferivelmente em água ou, mesmo, em misturas de água com etileno glicol. Se desejável, é também possível adicionar tensoativos. A primeira etapa de condensação é geralmente realizada em 10 a 180 °C, em particular em 10 a 90 °C, e em um pH > 7, em particular de 8 a 11. A outra reação do semicondensado é usualmente empreendida em 40 a 150 °C, especialmente em 40 a 100 °C, e em um pH < 7, em particular de 1 a 3. O pH é usualmente ajustado através da adição de amônia, preferivelmente de soluções de amônia aquosas concentradas, e, respectivamente, de ácidos inorgânicos, preferivelmente na forma diluída, preferência sendo dada ao ácido sulfúrico, ácido fosfórico e ácido clorídrico.

A preparação do pigmento bruto pela variante B é em

particular vantajosa quando o processo de cristalização da invenção é empreendido através do tratamento de calor do pigmento bruto em suspensão aquosa.

5 Nesta variante preferida do processo, a cristalização pode ter lugar sem isolamento intermediário do pigmento bruto diretamente na suspensão produzida durante a síntese.

10 Se demandas excepcionalmente elevadas são colocadas nos pigmentos de isoindolina I em relação à pureza, o pigmento bruto pode também ser isolado e, se apropriado, purificado, e pode também, depois, ser secado e cominuído.

No processo de cristalização da invenção em suspensão aquosa, o pigmento bruto é aquecido por 1 a 60 horas em uma temperatura T na faixa de 90 a 180 °C. A temperatura T [°C], aqui, depende do tempo de tratamento t [h] e deve ser calculado com a seguinte fórmula:

15 
$$T [^{\circ}\text{C}] = [148 - 14,4 \ln (t)] \pm 10$$

Para citar um exemplo, alguns tempos de tratamento t [h] são dados abaixo em relação às temperaturas T [°C] a serem selecionadas de forma correspondente:

Tempo de tratamento t [h]	Temperatura de tratamento T [°C]
2	138 ± 10
3	132 ± 10
12	112 ± 10
36	96 ± 10

20 O processo de cristalização da invenção é geralmente realizado em um meio que seja neutro ou que seja ácido, este último sendo particularmente aplicável se a suspensão de reação produzida durante a síntese for usada, seu pH neste estágio ficando abaixo de 7.

25 O ácido acético é inadequado aqui para ajuste do pH. Os ácidos orgânicos são geralmente menos adequados do que os ácidos inorgânicos, os ácidos inorgânicos preferidos sendo o ácido sulfúrico, o ácido fosfórico e o ácido clorídrico.

A relação em peso do meio aquoso para o pigmento bruto é geralmente de 5:1 a 50:1, em particular de 10:1 a 40:1.

Solventes orgânicos podem também ser adicionados à suspensão aquosa.

5 O resultado aqui pode ser desvios das temperaturas e, respectivamente, dos tempos de tratamento calculados a partir da fórmula acima. Em casos raros, o tempo de tratamento necessário pode tornar-se mais longo, mas ele geralmente se tornará mais curto, os valores estendendo-se para baixo até um terço do tempo calculado.

10 Exemplos de solventes adequados são os álcoois, os álcoois de éter, os éteres, as cetonas, as carboxamidas e os ésteres carboxílicos, e as misturas destes. Como exemplo, menção específica pode ser feita aos seguintes compostos:

15 álcoois alifáticos e aralifáticos, monoídricos ou poliídricos tendo até 10 átomos de carbono, por exemplo metanol, etanol, propanol, isopropanol, butanol, isobutanol, terc-butanol, álcool amílico, álcool isoamílico, hexanol, isoexanol, heptanol, octanol, 2-etilexanol, etileno glicol, propileno 1,2- e 1,3-glicol, cicloexanol, metilcicloexanol, álcool benzílico e 2-feniletanol;

20 éteres monoalquílicos  $C_1-C_4$  de mono- e dialquíleno glicol  $C_2-C_3$ , tais como o éter monometílico, monoetílico e monobutílico de etileno glicol, e o éter monometílico e monoetílico de dietileno glicol;

25 éteres alifáticos acíclicos e cíclicos tendo até 10 átomos de carbono, por exemplo o éter dipropílico, o éter diisopropílico, o éter dibutílico, o éter diisobutílico, tetraidrofurano, dioxano, éter dimetílico de dietileno glicol e éter dietílico de dietileno glicol.

cetonas alifáticas e aralifáticas acíclica e cíclica tendo até 10 átomos de carbono, por exemplo a acetona, cetona metil etílica, cetona metil propílica, cetona metil butílica, cetona dietílica, cetona metil isopropílica,

cetona metil isobutílica, ciclopentanona, cicloexanona, metilcicloexanona, acetofenona e propiofenona;

5 amidas e alquilamidas C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub> de ácidos carboxílicos alifáticos tendo até 4 átomos de carbono, por exemplo formamida, N,N-dimetil- e N,N-dietilformamida, N,N-dimetil- e N,N-dietilacetamida, N,N-dimetil- e N,N-dietilpropionamida e N-metilpirrolidona;

ésteres de ácidos carboxílicos aromáticos tendo um total de até 12 átomos de carbono, por exemplo o ftalato de dimetila e o ftalato de dietila.

10 Preferência é dada aqui ao uso dos solventes que possam ser facilmente removidos durante o processamento, por exemplo através da extração por meio de lavagem com água, destilação azeotrópica com água, destilação a vapor, ou secagem da mistura inteira.

Solventes particularmente preferidos são os glicóis e seus éteres mono- e dialquílicos.

15 Se o meio aquoso de cristalização contiver um solvente orgânico, a relação em peso da água para o solvente orgânico será usualmente de 99:1 a 50:50, em particular de 95:5 a 80:20.

20 O processo de cristalização pode ocorrer com a dispersão do pigmento bruto no meio aquoso ou mesmo simplesmente através de isolamento. É preferível que a mistura composta de pigmento bruto e meio aquoso seja agitada.

25 Tendo em vista que o processo de cristalização é empreendido nas temperaturas na faixa de ebulição do meio aquoso ou acima desta, é recomendável usar aparelho à prova de pressão, por exemplo vasos de pressão, ou operar em refluxo.

Os pigmentos de isoindolina I da invenção podem ser isolados convencionalmente através de filtração, lavagem e secagem. O produto secado é vantajosamente submetido à moagem de desaglomeração, por exemplo em moinhos giratórios, moinhos de roda dentada, ou moinhos de

jato. Como uma alternativa, o bolo de filtragem aquoso pode também ser secado por congelamento ou secado por pulverização.

5 Se desejável, é também possível usar no processo de cristalização da invenção um pigmento bruto que tenha sido submetido de antemão à moagem seca com o auxílio de um moinho debilmente básico. Isto pode dar pigmentos de isoindolina I da invenção com distribuição do tamanho de partículas primárias particularmente limitada, estas tendo coloração um tanto mais vermelha.

10 Exemplos de auxiliares de moagem adequados são os sais solúveis em água de ácidos inorgânicos fracos, em particular os carbonatos de metais alcalinos e os hidrogenocarbonatos de metais alcalinos, por exemplo o carbonato de sódio, o carbonato de potássio, o hidrogenocarbonato de sódio e o hidrogenocarbonato de potássio.

15 A relação em peso do auxiliar de moagem para o pigmento bruto é geralmente de 10:1 a 1:1, preferivelmente de 4:1 a 1:1.

20 Exemplos de aparelhos de moagem adequados são os moinhos de bola, os moinhos vibratórios, os moinhos de engrenagem planetária, e os equipamentos de atrito. Exemplos de meios de moagem adequados são o aço granulado, as contas de óxido de silício/alumínio/zircônio, as contas de vidro e as contas de ágata, seu diâmetro usualmente sendo de 0,1 a 5 cm.

Pode ser vantajoso realizar o processo de moagem sob uma atmosfera de gás inerte de modo a reduzir riscos.

25 É preferível moer o material até que o tamanho médio de partícula primária do material moído seja  $\leq 50$  nm, o tempo necessário para isto sendo geralmente de 1 a 40 horas, em particular de 4 a 20 horas.

O material moído é então misturado com água de modo a remover o auxiliar de moagem, isolado por filtração, lavado e isolado do meio de moagem. No caso do processo de moagem usando aço granulado, o material moído pode ser submetido a pós-tratamento com ácido clorídrico a

fim de remover qualquer material de ferro desgastado que possa estar presente.

5 A fim de controlar o tamanho dos cristais, pode ser também vantajoso realizar o processo de cristalização na presença de sinergistas pigmentares, a quantidade de sinergista usado por grama de pigmento bruto usualmente sendo de cerca de 0,01 a 0,1 g. Se uma etapa de pré-trituração for realizada, o sinergista pigmentar também pode ser adicionado antes que essa etapa fique completa.

10 Os sinergistas pigmentares são compostos cuja estrutura molecular compreende o cromóforo pigmentar em alguma extensão ou inteiramente. A estrutura dos sinergistas pigmentares aqui não tem de ser idêntica à estrutura do pigmento cuja cristalização se pretenda seja afetada. Por exemplo, no presente caso, é possível usar não apenas sinergistas pigmentares cuja estrutura se baseie na estrutura da isoindolina, mas também,  
15 por exemplo, aqueles com base na estrutura da quinoftalona.

Exemplos de sinergistas pigmentares particularmente adequados são os derivados de quinoftalona conhecidos da WO-A-02/00643, preferência sendo dada aos sinergistas pigmentares derivados do C.I. Pigment Yellow 138 e tendo uma ou mais funções de ácido sulfônico sobre os anéis de  
20 naftaleno.

A presença dos sinergistas pigmentares pode também ter um efeito favorável sobre a dispersabilidade dos pigmentos de isoindolina I da invenção no meio de aplicação.

25 A dispersabilidade dos pigmentos de isoindolina I da invenção pode além disso ser melhorada através do contato com aditivos convencionais. Ao lado dos derivados de ácido sulfônico aromáticos, tais como os ácidos sulfônicos de naftaleno e seus sais, e aditivos à base de derivados de colofônio, os aditivos à base de ceras naturais e sintéticas são particularmente adequados para coloração dos plásticos. Como exemplo,

menção pode ser feita das ceras à base de polietileno e de polipropileno, os quais também tenham sido oxidados, de óxido de polietileno, de álcoois graxos etoxilados, de copolímeros de bloco de óxido de polietileno-óxido de polipropileno, de ésteres de ácidos graxos (por exemplo as ceras montanha (ceras de linhito), de amidas de ácido graxo e de copolímeros de etileno-acetato de vinila.

Se aditivos destes tipos forem usados, sua quantidade será usualmente de 2 a 30 % em peso, com base no pigmento.

Os pigmentos de isoindolina da invenção I têm excelente adequabilidade quanto à coloração de materiais orgânicos de elevado peso molecular de origem natural e sintética.

Exemplos que podem ser mencionados de materiais daqueles tipos são os plásticos, os revestimentos de pó, tintas, tonalizadores e filtros de cores.

Os pigmentos de isoindolina I da invenção são particularmente importantes para a coloração de plásticos.

Exemplos específicos de plásticos a serem coloridos com vantagem são:

poliolefinas, tais como o polietileno, polipropileno, poliisobutileno e poli-4-metil-1-penteno, copolímeros de poliolefina, tais como o Luflexen<sup>®</sup> (Basell), o Nordel<sup>®</sup> (Dow) e o Engage<sup>®</sup> (DuPont), copolímeros de cicloolefina, tais como Topas<sup>®</sup> (Celanese); politetrafluoroetileno (PTFE), copolímeros de etileno-tetrafluoroetileno (ETFE); difluoreto de polivinilideno (PVDF), cloreto de polivinila (PVC), cloreto de polivinilideno, álcoois polivinílicos, ésteres polivinílicos, tais como o acetato de polivinila, copolímeros de ésteres vinílicos, tais como os copolímeros de etileno-acetato de vinila (EVA), alcanais de polivinila, tais como o acetal de polivinila e o butiral de polivinila (PVB), cetais de polivinila, poliamidas, tais como o Nylon<sup>®</sup> [6], Nylon [12] e Nylon [6,6]

(DuPont), poliimidaz, policarbonato, copolímeros de policarbonato e misturas físicas de policarbonatos com copolímeros de butadieno-estireno acrílicos, com copolímeros de acrilonitrila-estireno-acrilato, com metacrilatos de polimetila, com acrilatos de polibutila, com metacrilatos de polibutila, com tereftalatos de polibutileno, e com tereftalatos de polietileno; outros exemplos são os poliésteres, tais como o polietileno (PEN), copolímeros, produtos de transesterificação e misturas físicas (combinações) dos tereftalatos de polialquileno acima mencionados, poli(met)acrilatos, poli(acrilamidas, poli(acrilonitrila, misturas de poli(met)-acrilato/difluoreto de polivinilideno, poliuretanos, poliestireno, copolímeros de estireno tais como os copolímeros de estireno-butadieno, os copolímeros de estireno-acrilonitrila (SAN), os copolímeros de estireno-metacrilato de etila, os copolímeros de estireno-butadieno-acrilato de etila, os copolímeros de estireno-acrilonitrila/metacrilato, os copolímeros de acrilonitrila-butadieno-estireno (ABS), e os copolímeros de metacrilato-butadieno-estireno (MBS), poliéteres tais como o óxido de polifenileno, as cetonas de poliéter, polissulfonas, sulfonas de poliéter, poliglicóis tais como o polioximetileno (POM), poli(arenovinileno)s, siliconas, ionômeros, poliuretanos termoplásticos e de termocura, e também misturas destes, ênfase sendo dada sobre as poliolefinas, especialmente o polietileno (LDPE, MDPE, HDPE), e cloreto de polivinila.

Qualquer dos métodos conhecidos pode ser usado para incorporar os pigmentos de isoindolina I da invenção nos plásticos, exemplos sendo a extrusão dos materiais juntos (preferivelmente com o uso de uma extrusora de rosca única ou dupla), laminação, amassamento, compressão ou moagem, em que os plásticos podem ser processados para dar moldagens de plásticos, ou para dar perfis contínuos, ou para dar lâminas, folhas, fibras, películas e revestimentos.

É da mesma forma vantajoso usar preparações de pigmentos separadamente preparadas de antemão e com base em um polímero, ou em

uma mistura de polímeros, ou em uma ou mais ceras de poliolefina, ou em misturas destes, para dar colorações homogêneas com boa intensidade de cor em polímeros de baixo ponto de fusão (por exemplo, as poliolefinas mais familiares) ou naquelas tendo baixa viscosidade de fusão (por exemplo, PVC e PVB plastificados, e também PET moldável por assopro). Considerando que o polímero portador (mistura) usado nas preparações de pigmentos com base polimérica (“mistura padrão”, “composto”) é geralmente idêntico ao material orgânico sintético de elevado peso molecular a ser colorido, os materiais portadores particularmente usados para a preparação das composições de pigmentos à base de cera de poliolefina são as ceras de PE homo- e copoliméricas e as ceras de PP homo- e copoliméricas, por exemplo Luwax<sup>®</sup> (um homopolímero de etileno; BASF), Luwax EVA (copolímero de etilenoacetato de vinila; BASF) e Licowax<sup>®</sup> PP 230 (homopolímero de propileno; Clariant).

## 15 EXEMPLOS

### A. Preparação dos pigmentos de isoindolina I da invenção

#### EXEMPLO 1

100 g de um bolo comprimido de C.I. Pigment Yellow 185 (conteúdo de sólidos de cerca de 50 % em peso; preparado de acordo com o Exemplo 1 da DE-A-29 14 086) umedecidos com água foram homogeneamente colocados em suspensão em 1125 ml de água por um período de 1 hora. A suspensão foi então aquecida a 115 °C dentro de um período de 2 horas em um vaso de pressão de 2,4 litros (Juchheim) com agitador de âncora (velocidade de rotação de 150 rpm) e agitada nesta temperatura por 12 horas.

Após esfriamento até 60 °C durante um período de 1 hora, o pigmento foi isolado por filtração e lavado com 5 litros de água que havia sido aquecida a 60 °C (condutividade da água de descarga < 100 µS). O bolo úmido comprimido foi secado em 70 °C em uma cabina de secagem com

circulação de ar e, para desaglomeração, moído em um moinho de roda dentada (moinho ultracentrífugo ZM 100, Retsch; classe de roda dentada: 12, peneira de 1,0 mm, 10.000 rpm). O rendimento foi de 100 %.

#### EXEMPLO 2

5                   Após a adição de 100 g de éter monobutílico de etileno glicol, 570 g de uma suspensão de síntese de C.I. Pigment Yellow 185 (conteúdo de pigmento: 5,4 % em peso) obtidos de acordo com o Exemplo 1 da DE-A-29 14 086 foram aquecidos, com agitação, a 100 °C (temperatura de refluxo) e agitados nesta temperatura por 12 horas.

10                   O material granular formado após o esfriamento por uma hora até 70 °C foi isolado por filtração e lavado com 5 litros de água aquecida a 60 °C (condutividade da água descarregada < 50 µS). O bolo úmido comprimido foi secado em 120 °C em uma cabina de secagem com circulação de ar e, para a desaglomeração, moído como no Exemplo 1. O rendimento foi de 90 %.

#### 15                   EXEMPLO 3

                      570 g de uma suspensão de síntese de C.I. Pigment Yellow 185 (conteúdo de pigmento: 5,4 % em peso) obtidos de acordo com o Exemplo 1 da DE-A-29 14 086 foram aquecidos a 130 °C dentro de um período de 2 horas em um vaso de pressão de 2,4 litros (Juchheim) com  
20                   agitador de âncora (velocidade de rotação de 150 rpm) e agitada nesta temperatura por 3 horas.

                      Após esfriamento até 60 °C durante um período de 1 hora, o pigmento foi isolado por filtração e lavado com 5 litros de água que havia sido aquecida a 60 °C (condutividade da água de descarga < 50 µS). O bolo  
25                   úmido comprimido foi secado em 70 °C em uma cabina de secagem com circulação de ar e, para a desaglomeração, moído como no Exemplo 1. O rendimento foi de 100 %.

#### EXEMPLO 4

                      600 g de uma suspensão de síntese de C.I. Pigment Yellow

185 (conteúdo de pigmento: 5,1 % em peso) obtidos de acordo com o Exemplo 1 da DE-A-29 14 086 foram aquecidos a 95 °C dentro de um período de 2 horas em um reator de vidro de 1 litro (Normag) com agitador de âncora (velocidade de rotação de 150 rpm) e agitada nesta temperatura por 36 horas.

Após o esfriamento até 60 °C durante um período de 1 hora, o pigmento foi isolado por filtração e lavado com 5 litros de água que havia sido aquecida a 60 °C (condutividade da água de descarga < 50 µS). O bolo úmido comprimido foi secado em 70 °C em uma cabina de secagem com circulação de ar e, para a desaglomeração, moído como no Exemplo 1. O rendimento foi de 100 %.

#### B. Teste dos pigmentos da invenção em plásticos

Os pigmentos obtidos foram incorporados em polietileno (LDPE) e PVC flexível para testar suas características de desempenho.

As propriedades da cor e a facilidade de dispersão foram determinadas sobre lâminas moídas produzidas como segue, em cada caso com o uso de uma redução branca de 1:10:

#### Lâmina moída de LDPE:

80 g de pelotas de LDPE coloridas de branco (pelotas brancas 00/24729 Sicolen<sup>®</sup> com 5 % em peso de dióxido de titânio) e 0,4 g do respectivo pigmento, foram pesados separadamente e ainda processados como segue em rolos de mistura Collin:

As pelotas de LDPE coloridas de branco foram usadas como carga inicial na temperatura dos rolos de 150 °C ( $\pm 2$  °C). Logo que uma lâmina moída foi formada, o pigmento foi adicionado em porções e processado para dar uma lâmina moída de espessura de 0,4 mm ( $\pm 10$  %) em uma temperatura dos rolos de 150 °C ( $\pm 2$  °C) com o uso de 250 revoluções dos rolos. Após o corte para remover cerca de 10 g (lâmina moída 1), a lâmina moída remanescente foi dividida e, logo que as duas metades haviam

sido mutuamente superpostas, o material foi moído por outras 220 revoluções dos rolos em 150 °C ( $\pm 2$  °C) (lâmina moída 2).

Lâmina moída de PVC:

5 80 g da mistura precursora de PVC colorida de branco referente à DIN 53775-B (48,7 g de homopolímero de cloreto de vinila, 25,1 g de ftalato de diisodecila, 1,12 g de óleo de soja epoxidado, 0,97 g de estabilizador, 0,15 g de ácido esteárico, e 4,0 g de dióxido de titânio) e 0,4 g do pigmento respectivo foram homogeneizado em um misturador Turbula<sup>®</sup>.

10 A mistura resultante foi processada para dar uma lâmina moída de espessura de 0,4 mm ( $\pm 10$  %) em um moinho de rolos Collin em uma temperatura dos rolos de 150 °C ( $\pm 2$  °C) com o uso de 165 revoluções dos rolos. Após cerca de 10 g terem sido removidos por corte (lâmina moída 1), a lâmina moída remanescente foi dividida e, logo que as duas metades haviam sido mutuamente superpostas, o material foi moído por outras 225 revoluções  
15 dos rolos em 150 °C ( $\pm 2$  °C) (lâmina moída 2).

A cor dos espécimes (lâmina moída 2) foi medida de acordo com a DIN 5033 (geometria da medição de 0/0°) usando-se um espectrofotômetro Teleflash (Optronik).

20 A relação de redução RR foi determinada conforme a DIN 53235-1 mediante o uso do método FIAF para combinar a profundidade do matiz do espécime a ser testado com 1/3 da profundidade padrão do matiz. As coordenadas de cromaticidade CIELAB na tabela quanto a Nuança [°], Saturação  $C^*$ , Luminosidade  $L^*$ ,  $a^*$  (componente vermelho e, respectivamente, verde), e  $b^*$  (componente azul e, respectivamente, amarelo) foram  
25 determinadas após a combinação da profundidade do matiz de acordo com a DIN 6174 (modo de luz padrão D65, observador padrão 10°).

Os valores (DH) expressando a facilidade de dispersão foram calculados pela fórmula abaixo, a partir das relações respectivas de redução obtidas no teste:

$$DH = \left[ \frac{RR2}{RR1} - 1 \right] \times 100$$

em que: RR1 = relação de redução para a lâmina moída 1

RR2 = relação de redução para a lâmina moída 2

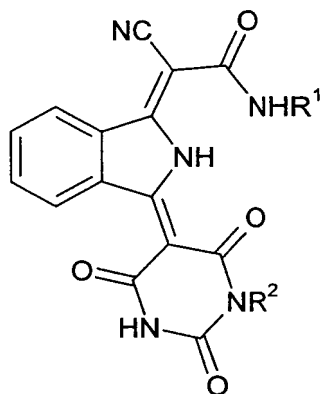
Os resultados dos testes obtidos (coordenadas de cromaticidade CIELAB e valores expressando a facilidade de dispersão) são dispostos na tabela abaixo. Para comparação (comp.) aqui, os resultados dos testes obtidos em LDPE no Exemplo 14 da EP-A-29 007 foram também relacionados.

**TABELA**

Pigmento (Ex.)	Matiz [°]	C*	L*	a*	b*	RR2	DH
LDPE							
1	92,2	74,1	87,5	-3,8	73,8	6,7	2
2	91,8	73,3	86,8	-3,3	73,2	5,4	6
3	91,8	72,9	87,0	-3,3	72,8	5,3	4
4	91,1	73,0	86,7	-3,3	74,0	5,2	2
Comp.	84,4	56,3	73,6	5,0	56,1	2,1	4
PVC flexível							
4	91,0	74,3	87,4	2,5	74,3	11,7	6

## REIVINDICAÇÕES

1. Pigmento de isoindolina, caracterizado pelo fato de que tem a fórmula geral I



em que as variáveis são definidas como a seguir:

5

$R^1$  é alquila  $C_1-C_4$ ;

$R^2$  é hidrogênio ou alquila  $C_1-C_4$ ,

cujo valor que expressa facilidade de dispersão em LDPE é  $\leq 10$  e o qual requer uma relação de redução  $\geq 5$  para se obter 1/3 de profundidade padrão do matiz.

10

2. Pigmento de isoindolina de fórmula I de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo fato de que  $R^1$  é metila e  $R^2$  é hidrogênio.

15

3. Processo para a preparação de pigmentos de isoindolina como definidos nas reivindicações 1 ou 2, caracterizado pelo fato de que compreende submeter o pigmento bruto produzido durante a síntese do pigmento a tratamento térmico por 1 a 60 horas em uma temperatura T na faixa de 90 a 180 °C, em suspensão aquosa, a qual solventes orgânicos do grupo de álcoois, éter álcoois, éteres, cetonas, carboxamidas, e ésteres carboxílicos podem ser adicionados, e o material é então isolado convencionalmente, em que a temperatura T [°C] deva ser calculada a partir do tempo de tratamento t [h] pela seguinte fórmula, com o uso do tempo de

20

tratamento selecionado:

$$T [^{\circ}\text{C}] = [148 - 14,4 \ln(t)] \pm 10$$

4. Processo de acordo com a reivindicação 3, caracterizado pelo fato de que a suspensão produzida durante a síntese do pigmento aquoso é submetida ao tratamento térmico.

5. Uso de pigmentos de isoindolina da fórmula I como definido nas reivindicações 1 ou 2, caracterizado pelo fato de ser para a coloração dos materiais orgânicos de elevado peso molecular de origem natural e sintética.

10 6. Uso de acordo com a reivindicação 5, caracterizado pelo fato de que os materiais de elevado peso molecular são plásticos, revestimentos de pó, tintas, tonalizadores e filtros de cores.

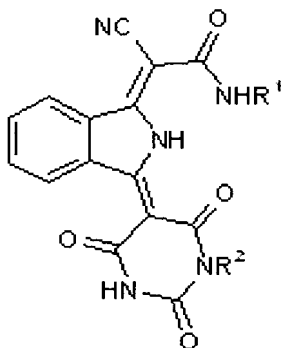
7. Uso de acordo com a reivindicação 5, caracterizado pelo fato de que os materiais de elevado peso molecular são plásticos.

8. Plástico, caracterizado pelo fato de ser colorido com pigmentos de isoindolina como definidos nas reivindicações 1 ou 2.

RESUMO

“PIGMENTO DE ISOINDOLINA, PROCESSO PARA A PREPARAÇÃO DE PIGMENTOS DE ISOINDOLINA, USO DE PIGMENTOS DE ISOINDOLINA, E, PLÁSTICO”

5 São apresentados pigmentos de isoindolina da fórmula geral (I),



I

em que R<sup>1</sup> representa alquila C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub> e R<sup>2</sup> representa hidrogênio ou alquila C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>. Referidos pigmentos de isoindolina têm uma dureza de dispersão de ≤ 10 em LDPE e requer uma relação de branqueamento de ≥ 5 para ajustar a profundidade padrão do matiz de 1/3.

10