

[19] 中华人民共和国国家知识产权局

[51] Int. Cl⁷
C09C 1/00



[12] 发 明 专 利 说 明 书

C09D 7/12 C08K 3/00
A61K 7/00 C04B 33/14
C03C 4/02 C09D 11/00

[21] ZL 专利号 98809228. X

[45] 授权公告日 2003 年 12 月 3 日 [11] 授权公告号 CN 1129651C

[22] 申请日 1998. 10. 14 [21] 申请号 98809228. X
[30] 优先权
[32] 1997. 10. 17 [33] DE [31] 19746067. 4
[86] 国际申请 PCT/EP98/06508 1998. 10. 14
[87] 国际公布 WO99/20695 德 1999. 4. 29
[85] 进入国家阶段日期 2000. 3. 17
[71] 专利权人 默克专利股份有限公司
地址 德国达姆施塔特
[72] 发明人 C · 施密特 G · 普法夫
C · 沙恩克 S · 邵恩
[56] 参考文献
US5456749 1995. 10. 10 C04B14/20
审查员 殷朝晖

[74] 专利代理机构 中国国际贸易促进委员会专利
商标事务所
代理人 段承恩

权利要求书 2 页 说明书 10 页

[54] 发明名称 干涉颜料
[57] 摘要

本发明涉及基于多重涂覆片状基材的干涉颜料，具有至少以下顺序层：A) 折射指数 $n \geq 2.0$ 的涂层，B) 折射指数 n 小于或等于 1.8 的无色涂层，和 C) 非吸收性高折射涂层，且视需要，D) 外保护层。

I S S N 1 0 0 8 - 4 2 7 4

1. 基于多层涂覆片状基材的干涉颜料, 包含以下的至少一个层序列, 该层序列包括:

- (A) 折射指数 $n \geq 2.0$ 的涂层,
- (B) 折射指数 n 小于或等于 1.8 的无色涂层, 和
- (C) 高折射指数的非吸收性涂层, 且如果需要
- (D) 外保护层。

2. 根据权利要求 1 的干涉颜料, 其特征在于, 在基材(S)和层(A)之间、层(A)和(B)之间、层(B)和(C)之间和/或层(C)和(D)之间另外存在有色或无色金属氧化物层(S1)、(A1)、(B1)和/或(C1)。

3. 根据权利要求 1 或 2 的干涉颜料, 其特征在于, 所述片状基材是天然或合成云母、玻璃、 Al_2O_3 片、 SiO_2 片或 TiO_2 片、以及涂有金属氧化物的片状材料。

4. 根据权利要求 1-3 中任何一项的干涉颜料, 其特征在于, 层(A)、(B)和(C)由金属氧化物组成。

5. 根据权利要求 1-4 中任何一项的干涉颜料, 其特征在于, 层(A)由二氧化钛、氧化铁、氧氯化铋、氧化锆、氧化锡、氧化锌、钛低价氧化物、钛酸铁、水合氧化铁、氧化铬、钒酸铋、铝酸钴、及其混合物组成。

6. 根据权利要求 1-5 中任何一项的干涉颜料, 其特征在于, 层(B)由二氧化硅、氧化铝、氟化镁或其混合物组成。

7. 根据权利要求 1-6 中任何一项的干涉颜料, 其特征在于, 层(C)由二氧化钛、氧氯化铋、氧化锆、氧化锡、氧化锌或其混合物组成。

8. 根据权利要求 1-7 中任何一项的干涉颜料, 其特征在于, 它们具有最高 4 次层序列(A)-(C)的特点。

9. 根据权利要求 8 的干涉颜料, 其特征在于, 它们仅包含一个层序列(A)-(C)。

10. 根据权利要求 1-8 中任何一项的干涉颜料的制备方法, 其特征

在于，通过金属盐在水介质中的水解分解作用，将金属氧化物以湿化学方式涂覆到片状基材上。

11. 根据权利要求 1 的干涉颜料在油漆、漆、印刷油墨、塑料、陶瓷材料、玻璃和化妆品配方中的应用。

干涉颜料

本发明涉及基于多重涂覆片状基材的干涉颜料。

光泽颜料或特效颜料已用于各种工业领域，尤其是汽车涂饰部门、装饰涂料、塑料、油漆、印刷油墨和化妆品配方。

在两种或多种干涉颜色之间随角颜色变化的光泽颜料具有一种颜色效应用，使得它们特别适用于汽车涂饰并涉及有价文件的防伪保护。这种基于多重涂覆片状基材的颜料是已知的。

干涉颜料一般由厚度为 200-1000 纳米的片状基材组成，该基材上涂有厚度为 50-300 纳米的高折射金属氧化物或金属氧化物混合物。这些颜料的光学性能主要由金属氧化物层的折射指数确定。除了可使用化学汽相沉积 (CVD) 或物理汽相沉积 (PVD) 技术来制备具有高密度且折射指数接近最佳的金属氧化物层，将金属氧化物沉积到细分散的片状基材上，往往采用在基材的存在下用氢氧化钠溶液滴定水溶液（通常是酸性的金属盐水溶液），如 DE 1467468 和 DE 2009566 所述。

蒸汽沉积技术的一个缺点在于其高成本。例如，美国专利 4434010 公开了一种多层干涉颜料，由反射金属（如，铝）中心层、和分别为高和低折射指数两种透明介电材料（如，二氧化钛和二氧化硅）的交替层组成。这种多层颜料优选用于防伪证券。

JP H7-759 公开了一种具有金属光泽的多层干涉颜料，其基材上涂有二氧化钛和二氧化硅的交替层。该基材包括铝、金或银的薄片、或涂有金属的云母或玻璃薄片。但不能产生作为干涉颜料所需特征的深度效果。这是因为光在构成核的金属层上完全反射。因此，干涉效果局限于金属层之上的那些层。此外，该基材缺少透明度，极大地限制了与其它颜料结合用于有关应用配方中的各种可能性。

例如，美国专利 3438796 和美国专利 5135812 描述了具有中心不透明铝膜的金属光泽颜料，该膜两侧交替涂有低折射指数介电膜（如，二

氧化硅或氟化镁)和部分透明金属膜(如, 铬或铝的膜)。由于制备工艺的原因, 这些颜料的中心金属膜仅涂覆在片材的顶端和底端, 而侧部则是边缘断开且朝向介质开放。

DE 4405494、DE 4437753、DE 19516181 和 DE 19515988 公开了光泽颜料, 它利用 CVD 或湿化学技术, 通过将金属片, 尤其是铝片涂上低折射指数金属氧化物层(如, 二氧化硅层)和非选择性吸收金属氧化物层或高折射指数金属层而制成。

基于金属基材的光泽颜料一般具有良好的使用性能, 包括良好的不透明度, 但在例如应用于油漆上, 往往产生一种通常非所需的“硬”金属光泽。

WO 93/12182 的主题则是没有这种“硬”金属光泽的基于透明片状基材的光泽颜料。云母片涂有高折射指数金属氧化物层, 如 TiO_2 和非选择性吸收层。根据 TiO_2 层的厚度, 这些颜料在直视时具有一种特殊的干涉颜色, 该颜色随着视角变斜而逐渐变弱且最后翻转成灰色或黑色。干涉颜色并未改变, 但是颜色饱和度有所下降。

JP 1992/93206 提出了基于涂有不透明金属层以及 SiO_2 和 TiO_2 交替层的玻璃片或云母颗粒的光泽颜料。

EP 0753545 公开了一种基于多层涂覆非金属片状基材的光泽颜料, 该基材具有高折射指数, 对可见光至少部分透明, 且具有包括低折射指数无色涂层与选择性或非选择性吸收的反射涂层的至少一层组。该发明的缺点在于, 技术非常复杂且制备工艺昂贵, 而且难以再现出具有所需产品质量的颜料。

本发明的一个目的是提供一种具有强干涉颜色和/或强的干涉颜色角度依赖性的基本上透明的干涉颜料, 它以其有利的使用性能而著称, 同时可通过简单方式制成。

现已令人惊奇地发现一种基于多重涂覆片状基材且包括特殊排列的光学功能层的干涉颜料, 由此特殊排列可达到特殊的光学效果。

因此, 本发明提供了基于多重涂覆片状基材的干涉颜料, 它包含以下的至少一个层序列, 该层序列包括:

- (A) 折射指数 $n \geq 2.0$ 的涂层,
- (B) 折射指数 n 小于或等于 1.8 的无色涂层, 和
- (C) 高折射指数非吸收性涂层, 且如果需要
- (D) 外保护层。

本发明还提供了本发明颜料在油漆、漆、印刷油墨、塑料、陶瓷材料、玻璃和化妆品配方中的应用。

适用于本发明多层颜料的基材首先是不透明的, 其次是透明的片状物质。优选的基材是叶硅酸盐和金属氧化物涂覆片状基材。特别合适的是天然和合成云母、滑石、高岭土、片状氧化铁、氯化铋、玻璃片、 SiO_2 片、 Al_2O_3 片或 TiO_2 片、合成陶瓷片、无载体合成片材、LCP 或其它相当材料。

基材的尺寸本身并不重要, 因此可根据特定的最终用途而调配。一般来说, 片状基材的厚度为 $0.1\text{--}5\mu\text{m}$, 尤其是 $0.2\text{--}4.5\mu\text{m}$ 。在其它二维上, 它们通常为 $1\text{--}250\mu\text{m}$, 优选 $2\text{--}200\mu\text{m}$, 尤其是 $5\text{--}50\mu\text{m}$ 。

具有高折射指数和低折射指数各层在基材上的厚度对颜料的光学性能至关重要。对于具有强干涉颜色的颜料, 各层的厚度必须相互间精确调节。

如果 n 为薄层的折射指数且 d 为其厚度, 那么该层的干涉颜色由 $n \cdot d$ ($n \cdot d$ = 光学厚度) 的乘积确定。该膜在垂直入射光的反射光下形成的颜色来自以下波长光的增强作用:

$$\lambda = \frac{4}{2N - 1} \cdot n \cdot d$$

以及以下波长光的减弱作用:

$$\lambda = \frac{2}{N} \cdot n \cdot d$$

其中 N 为正整数。

颜色随着膜厚度的增加而变化是某些光波长通过干涉作用而增强或减弱的结果，使得某些波长的光放大或减弱。如果多层颜料中的两层或多层具有相同的光学厚度，那么反射光的颜色就随着层数的增加而增强。此外，通过合适选择层厚度，作为视角函数的颜色变化可以特别强。可出现一种明显的所谓颜色突变。单个金属氧化物层的厚度与其折射指数无关，取决于应用领域，一般为 10-1000 纳米，优选 15-800 纳米，尤其是 20-600 纳米。

本发明光泽颜料的特征在于，将高折射指数涂层(A)与低折射指数无色涂层(B)结合在一起并且其上有高折射指数非吸收涂层。该颜料可包括两个或多个、相同或不同组合方式的层组，但优选仅用一个层组(A)+(B)+(C)来覆盖基材。为了获得更强的颜色突变，本发明颜料可包括最多 4 个层组，但基材上所有层的厚度应该不超过 3 μm 。

高折射指数层(A)的折射指数 n 大于或等于 2.0，优选大于或等于 2.1。适用作层(A)材质的材料是熟练技术人员已知具有高折射指数、膜状且可永久施用到基材颗粒上的任何材料。特别合适的材料是金属氧化物或金属氧化物混合物，如 TiO_2 、 Fe_2O_3 、 ZrO_2 、 ZnO 或 SnO_2 、或高折射指数化合物，如钛酸铁、水合氧化铁、钛低价氧化物、氧化铬、钒酸铋、铝酸钴、以及这些化合物相互或与其它金属氧化物的混合物或混合相。

层(A)的厚度为 10-550 纳米，优选 15-400 纳米；尤其是 20-350 纳米。

适用于涂层(B)的无色低折射指数材料优选金属氧化物或相应的氧化物水合物，例如 SiO_2 、 Al_2O_3 、 $\text{AlO}(\text{OH})$ 、 B_2O_3 、或这些金属氧化物的混合物。在一个优选实施方案中，涂层(B)基本由二氧化硅、氧化铝、氟化镁或其混合物组成。层(B)的厚度为 10-1000 纳米，优选 20-800 纳米，尤其是 30-600 纳米。

特别适用于高折射指数非吸收性涂层(C)的材料是无色金属氧化物，如 TiO_2 、 ZrO_2 、 SnO_2 、 ZnO 和 BiOCl 、及其混合物。层(C)的厚度为 10-550 纳米，优选 15-400 纳米，尤其是 20-350 纳米。

除了最多在本发明颜料中出现 4 次的标准层组 (A)+(B)+(C)，还有其它的优选实施方案。例如，在基材 (S) 和层 (A) 之间、层 (A) 和 (B) 之间、层 (B) 和 (C) 之间和/或层 (C) 和顶层 (D) 之间，本发明颜料可另外具有吸收性或非吸收性层 [(S1)、(A1)、(B1) 和/或 (C1)]。该中间层的厚度为 1-50 纳米，优选 1-40 纳米，尤其是 1-30 纳米。

一个特别优选的实施方案是具有以下层组的基材涂层：

(S1) 视需要， SnO_2

(A) TiO_2 或 Fe_2O_3

(B) SiO_2

(B1) 视需要， SnO_2

(C) TiO_2

(D) 与用途有关的最终涂层。

通过将基材涂上高折射指数层 (A) 和 (C)、低折射指数层 (B)、和根据需要的其它有色或无色涂层，可得到其颜色、光泽、不透明度和颜色角度依赖性在较宽限度内变化的颜料。

本发明的颜料易于生产，其方法是采用在细分散的片状基材上生成具有精确厚度和光滑表面的两层或多层高折射指数和低折射指数干涉层。

金属氧化物层优选湿化学方式施用，可通过开发用于生产珠光颜料的湿化学涂布法来施用；这些方法描述于，例如 DE 1467468、DE 1959988、DE 2009566、DE 2214545、DE 2215191、DE 2244298、DE 2313331、DE 2522572、DE 3137808、DE 3137809、DE 3151343、DE 3151354、DE 3151355、DE 3211602、DE 3235017 或其它专利文献和其它出版物。

在湿涂布时，将基材颗粒悬浮在水中，然后在合适水解的所选 pH 值下加入一种或多种可水解金属盐，这样金属氧化物或金属氧化物水合物就直接沉淀到片材上而绝不会二次沉淀。pH 值通常通过同时计量加入碱和/或酸而保持恒定。然后分离出颜料，洗涤并干燥，然后视需要煅烧，煅烧温度可根据特定涂层而加以优化。一般来说，煅烧温度为 250-1000℃，优选 350-900℃。如果需要，在涂覆各涂层之后，可

分离出该颜料，洗涤并干燥，如果需要在再悬浮以通过沉淀涂覆其它层之前进行煅烧。

还可在流化床反应器中通过气相涂布法进行涂布，这时，例如可适当采用 EP 0045851 和 EP 0106235 所提出的用于制备珠光颜料的方法。

所用的高折射指数金属氧化物优选二氧化钛和/或氧化铁，且所用的低折射指数金属氧化物优选为二氧化硅。

为了涂覆二氧化钛层，优选美国专利 3553001 所述的方法。

将钛盐水溶液慢慢加入所要涂覆的物质的悬浮液(加热至约 50-100℃)中，并通过同时计量加入碱，例如氨水溶液或碱金属氢氧化物水溶液来保持基本上恒定的 pH 值，约 0.5-5。一旦 TiO_2 沉淀物达到所需厚度，同时停止加入钛盐溶液和碱。

该技术也称作滴定法，因为避免了过量钛盐而著称。这通过仅提供单位时间的某一量用于水解而实现，该量是用水合 TiO_2 进行均匀涂覆所需的且为待涂覆颗粒的有效表面积在单位时间内可接受的量。因此，不会生产出不沉淀在待涂覆表面上的水合二氧化钛颗粒。

二氧化硅层的涂覆可，例如如下进行。将硅酸钾或硅酸钠溶液计量到待涂覆基材的悬浮液(加热至约 50-100℃)中。通过同时加入稀无机酸，如 HCl 、 HNO_3 或 H_2SO_4 而保持恒定 pH 值，约 6-9。一旦达到 SiO_2 的所需层厚度，停止加入硅酸盐溶液。随后搅拌该批料约 0.5 小时。

为了提高光稳定性和气候稳定性，通常建议根据最终用途将最终颜料进行后涂布或后处理。合适的这类方法，例如描述于 DE-C-2215191、DE-A-3151354、DE-A-3235017 或 DE-A-3334598。这种后涂布还可提高该颜料的化学稳定性或有助于其处理性能，尤其是将其加入不同介质时。

本发明的颜料与优选来自漆、油漆和印刷油墨领域，尤其是保密印刷油墨领域的多种彩色体系相容。由于这种不可复制的光学效果，本发明颜料尤其可用于生产有价防伪保护文件，如钞票、支票、支票卡、信用卡、身份证等。此外，该颜料还可用于纸和塑料的激光标记，并用于农业领域，如用于温室膜。

因此，本发明还提供了该颜料在各种配方，例如油漆、印刷油墨、漆、塑料、陶瓷材料和玻璃、以及化妆品制剂中的应用。

当然，对于各种目标用途，可有利地将该多层颜料与其它颜料(其例子为透明的和遮盖白色、彩色和黑色颜料)、以及与片状氧化铁、有机颜料、全息颜料、LCP(液晶聚合物)、以及常规的基于金属氧化物涂覆云母和 SiO_2 片材等的透明的、彩色的和黑色的光泽颜料进行混合使用。该多层颜料可与市售颜料和填料按任何比例进行混合。

以下实施例用于说明本发明，但绝不局限于此。

实施例：

实施例 1

将 2 升去离子水中的 100 克云母(PSD 为 10-60 μm)加热至 80 $^{\circ}\text{C}$ 。在该温度下，在剧烈搅拌下，计量加入 430 克三氯化铁(III)溶液(14.25 % Fe)。在该加料过程中，使用氢氧化钠水溶液(32 % NaOH)保持 pH 值恒定在 4.0。随后，使用氢氯酸(15 % HCl)将 pH 值降至 1.8，在此 pH 值下加入 30 毫升 TiCl_4 溶液(400 克 TiCl_4 /升)。使用氢氧化钠水溶液(32 % NaOH)保持 pH 值在加料过程中恒定。随后使用氢氧化钠水溶液(32 % NaOH)将 pH 值升至 7.5，在此 pH 值下加入 252 克硅酸钠(27 % SiO_2) 在 252 克去离子水中的溶液。在此加料过程中，使用氢氯酸(15 % HCl)保持 pH 值恒定。

随后，使用氢氯酸(15 % HCl)将 pH 值降至 2.0，然后在此 pH 值下计量加入 3 克 $\text{SnCl}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ 和 10 毫升氢氯酸(37 % HCl)在 90 毫升去离子水中的溶液。在此加料过程中，使用氢氧化钠水溶液(32 % NaOH)保持 pH 值恒定。随后使用氢氯酸(15 % HCl)将 pH 值降至 1.8，在此 pH 值下计量加入 655 毫升 TiCl_4 溶液(400 克/升)。在此加料过程中，使用氢氧化钠水溶液(32 % NaOH)保持 pH 值恒定。加入 TiCl_4 溶液之后，将该混合物搅拌 15 分钟，然后过滤出产物，用去离子水洗涤，在约 110 $^{\circ}\text{C}$ 下干燥并在 850 $^{\circ}\text{C}$ 下煅烧 45 分钟。所得干涉颜料具有强红紫色干涉颜色。

实施例 2

将 2 升去离子水中的 100 克云母(PSD 为 10-60 μ m)加热至 80℃。在该温度下,在剧烈搅拌下,计量加入 430 克三氯化铁(III)溶液(14.25 % Fe)。在该加料过程中,使用氢氧化钠水溶液(32 % NaOH)保持 pH 值恒定在 4.0。随后使用氢氧化钠水溶液(32 % NaOH)将 pH 值升至 7.5,在此 pH 值下加入 252 克硅酸钠(27 % SiO₂)在 252 克去离子水中的溶液。在此加料过程中,使用氢氯酸(15 % HCl)保持 pH 值恒定。

随后,使用氢氯酸(15 % HCl)将 pH 值降至 2.0,然后计量加入 3 克 SnCl₄ × 5H₂O 和 10 毫升氢氯酸(37 % HCl)在 90 毫升去离子水中的溶液。在此加料过程中,使用氢氧化钠水溶液(32 % NaOH)保持 pH 值恒定。随后使用氢氯酸(15 % HCl)将 pH 值降至 1.8,并计量加入 476 毫升 TiCl₄ 溶液(400 克/升)。在此加料过程中,使用氢氧化钠水溶液(32 % NaOH)保持 pH 值恒定。加入 TiCl₄ 溶液之后,将该混合物搅拌 15 分钟,然后过滤出产物,用去离子水洗涤,在 110℃ 下干燥并在 850℃ 下煅烧 30 分钟。所得干涉颜料具有强红色干涉颜色。

实施例 3

将 2 升去离子水中的 100 克白云母(粒径为 10-60 μ m)加热至 80℃。然后在剧烈搅拌下,在 pH 值 2.0 下加入 3 克 SnCl₄ × 5H₂O 和 10 毫升氢氯酸(37 % HCl)在 90 毫升去离子水中的溶液。在该加料过程中,使用氢氧化钠水溶液(32 % NaOH)保持 pH 值恒定。随后在 pH 值 1.8 下,加入 155 毫升 TiCl₄ 溶液(400 克 TiCl₄/升)。在此加料过程中,使用氢氧化钠水溶液(32 % NaOH)保持 pH 值恒定。随后使用氢氧化钠水溶液将 pH 值升至 2.6,然后在此 pH 值下加入 25 毫升 TiCl₄ 溶液(400 克 TiCl₄/升)、48 克 FeCl₃ 溶液(14.25 % Fe)和 4.8 克 AlCl₃ × 6H₂O 在去离子水中的 100 毫升溶液。在此加料过程中,使用氢氧化钠水溶液(32 % NaOH)保持 pH 值恒定。

随后,使用氢氧化钠水溶液(32 % NaOH)将 pH 值升至 7.5,然后在此 pH 值下计量加入 271 克硅酸钠(27 % SiO₂) 在 271 克去离子水中的溶液。使用氢氯酸(10 % HCl)保持 pH 值恒定。随后,使用氢氯酸(10 % HCl)将 pH 值降至 2.0,然后计量加入 3 克 SnCl₄ × 5H₂O 和 10 毫升氢氯酸(37

%HCl)在 90 毫升去离子水中的溶液。在此加料过程中,使用氢氧化钠水溶液(50 %NaOH)保持 pH 值恒定。随后,在 pH 值 1.8 下,加入 45 毫升 TiCl_4 溶液(400 克 TiCl_4 /升),再次使用氢氧化钠水溶液(32 %NaOH)保持 pH 值恒定。然后使用氢氧化钠水溶液(32 %NaOH)将 pH 值升至 2.6,然后在此 pH 值下,计量加入 129 毫升 TiCl_4 溶液(400 克 TiCl_4 /升)、206 克 FeCl_3 溶液(14.25 %Fe)和 10.2 克 $\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 在 157 毫升去离子水中的 230 毫升溶液。在此加料过程中,使用氢氧化钠水溶液(32%NaOH)保持 pH 值恒定。最后吸滤出颜料,用去离子水洗涤,在 110°C 下干燥并在 850°C 下煅烧 30 分钟。所得干涉颜料具有强红紫色,可从橙色翻转成强黄绿色。

实施例 4

在合成气体气氛(N_2/H_2 ; 85/15)下,将实施例 2 的干燥颜料在 850°C 下煅烧 30 分钟。如此制备的颜料具有强青铜效果和强光泽。

实施例 5

将 2 升去离子水中的 100 克白云母(粒径为 $10\text{--}60\mu\text{m}$)加热至 80°C 。然后在剧烈搅拌下,在 pH 值 2.0 下,以 4 毫升/分钟的速率计量加入 3 克 $\text{SnCl}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ 和 10 毫升氢氯酸(37 %HCl)在 90 毫升去离子水中的溶液。在该加料过程中,使用氢氧化钠水溶液(32 %NaOH)保持 pH 值恒定。随后在 pH 值 1.8 下,以 2 毫升/分钟的速率计量加入 155 毫升 TiCl_4 溶液(400 克 TiCl_4 /升)。在此加料过程中,使用氢氧化钠水溶液(32 %NaOH)保持 pH 值恒定。随后使用氢氧化钠水溶液将 pH 值升至 2.6,然后在此 pH 值下加入 25 毫升 TiCl_4 溶液(400 克 TiCl_4 /升)、48 克 FeCl_3 溶液(14.25 %Fe)和 4.8 克 $\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 在去离子水中的 100 毫升溶液。在此加料过程中,使用氢氧化钠水溶液(32 %NaOH)保持 pH 值恒定。

随后,使用氢氧化钠水溶液(32 %NaOH)将 pH 值升至 7.5,然后在此 pH 值下,以 2 毫升/分钟的速率计量加入 297 克硅酸钠(27 % SiO_2) 在 297 克去离子水中的溶液。使用氢氯酸(10 %HCl)保持 pH 值恒定。随后,使用氢氯酸(10 %HCl)将 pH 值降至 2.0,然后以 4 毫升/分钟的速率计量加入 3 克 $\text{SnCl}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ 和 10 毫升氢氯酸(37 %HCl)在 90 毫升去

离子水中的溶液。在此加料过程中，使用氢氧化钠水溶液(32 % NaOH)保持 pH 值恒定。随后，在 pH 值 1.8 下，以 2 毫升/分钟的速率加入 250.5 毫升 TiCl_4 溶液(400 克 TiCl_4 /升)，再次使用氢氧化钠水溶液(32 % NaOH)保持 pH 值恒定。

随后吸滤出颜料，用去离子水洗涤，并在 110℃ 下干燥。在此步骤之后，所得颜料具有红紫色，可翻转成黄绿色。

最后，将该颜料在 850℃ 下煅烧 30 分钟。所得干涉颜料具有黄红光泽，其颜色可翻转成黄绿色。

实施例 6

按照实施例 5，将金属氧化物层沉淀。此外，在 pH 值 2.6 下，以 1 毫升/分钟的速率计量加入 129 毫升 TiCl_4 溶液(400 克 TiCl_4 /升)、147 克 FeCl_3 溶液(14.08 % Fe)、10.2 克 $\text{AlCl}_3 \times 6\text{H}_2\text{O}$ 和 157 毫升去离子水的混合物 130 毫升。在此加料过程中，使用氢氧化钠水溶液(32 % NaOH)保持 pH 值恒定。

按照实施例 1-5 来处理该颜料。

干燥颜料具有高光泽的强红紫色，可翻转成橙色。煅烧之后，该颜料具有黄红色光泽，其颜色可翻转成强光泽黄色。

实施例 7

在合成气体气氛(N_2/H_2 ; 85/15)下，将实施例 4 的干燥颜料在 850℃ 下煅烧 30 分钟。如此制备的颜料具有红青铜效果和强光泽，而且不透明度增加。在翻转时，颜色变成强黄绿色。

实施例 8

在合成气体气氛(N_2/H_2 ; 85/15)下，将实施例 5 的干燥颜料在 850℃ 下煅烧 30 分钟。如此制备的颜料具有深红青铜效果和强光泽，而且不透明度增加。在翻转时，颜色变成强金黄色。