



República Federativa do Brasil  
Ministério da Economia  
Instituto Nacional da Propriedade Industrial

**(11) BR 112016005534-9 B1**



**(22) Data do Depósito: 12/09/2014**

**(45) Data de Concessão: 01/02/2022**

**(54) Título: PIGMENTOS COMPÓSITOS**

**(51) Int.Cl.: C08K 3/22; C08K 3/34; C09D 1/00; C09C 1/04; C09C 1/28; (...).**

**(30) Prioridade Unionista: 13/09/2013 GB 1316316.7.**

**(73) Titular(es): SHAYONANO SINGAPORE PTE LTD.**

**(72) Inventor(es): MAHESH DAHYABHAI PATEL; VARADALAMBEDU SRINIVASAN NITHIANANDAM.**

**(86) Pedido PCT: PCT SG2014000432 de 12/09/2014**

**(87) Publicação PCT: WO 2015/038073 de 19/03/2015**

**(85) Data do Início da Fase Nacional: 11/03/2016**

**(57) Resumo:** PIGMENTOS COMPÓSITOS. Proporciona-se uma formulação de tinta compreendendo um pigmento compósito, o referido pigmento compósito sendo selecionado a partir do grupo que consiste de óxido de metal / sílica, óxido de metal / silicato, óxido de metal / alumina, o óxido de metal / óxido de metal e óxido metálico / zircônio, em que o tamanho e a quantidade do referido pigmento compósito são selecionados para aumentar a opacidade da referida formulação de tinta.

Relatório Descritivo da Patente de Invenção para:

**"PIGMENTOS COMPÓSITOS"**

Campo da Técnica

[1] A presente invenção refere-se, de modo geral, a pigmentos compósitos. Os pigmentos compósitos podem ser usados em uma formulação de tinta com a finalidade de aumentar a opacidade da formulação de tinta.

Antecedentes

[2] A aplicação de nanomateriais em vários usos industriais obteve interesse substancial tanto industrial quanto academicamente. A força motivadora principal para esse momentum é a capacidade dos nanomateriais, com suas dimensões quase atômicas, de aprimorarem substancialmente as propriedades dos produtos finais.

[3] Por exemplo, nanomateriais foram usados em aplicações de revestimento. Os óxidos de metal como dióxido de nanotitânio e dióxido de silício foram usados extensivamente para formular revestimentos poliméricos para fornecer propriedades como fotocatálise e excelente resistência à abrasão.

[4] O dióxido de titânio ( $TiO_2$ ) é o pigmento pervasivo e incontestável na indústria de revestimento principalmente devido à sua excelente capacidade de dispersar luz visível. Portanto,  $TiO_2$  tem um índice de refração alto e tem sido usado comumente para acentuar a opacidade das tintas.

Entretanto, o preço de TiO<sub>2</sub> nos últimos anos flutuou de forma muito extensa e aumentou substancialmente. Isso impede que as tintas à base de TiO<sub>2</sub> sejam economicamente competitivas. Ademais, as tintas convencionais para uso arquitetural externo experimentam com frequência o “amarelamento” devido à exposição à radiação solar. A umidade alta e chuvas frequentes na região tropical também resultam na proliferação de bactérias e de algas nas paredes.

[5] A opacidade ou poder de cobertura das tintas depende de vários fatores como tamanho de partícula, fase cristalina do pigmento, índice de refração dos pigmentos e polímero, e a dispersão ou aglomeração de partículas de pigmento individuais. Todos esses fatores influenciam a retrodifusão da luz por partículas de pigmento individuais. A aglomeração de pigmento de TiO<sub>2</sub> é a consideração mais importante no projeto de tintas. Isso se deve ao fato de que embora o TiO<sub>2</sub> confira opacidade às tintas, aumentando-se o teor de TiO<sub>2</sub> na tinta acima de um determinado ponto, as partículas de pigmento são colocadas em extrema proximidade entre si, interferindo assim com a capacidade desses pigmentos de difundirem luz de forma eficaz.

[6] Para solucionar o problema de aglomeração de pigmento, os pigmentos estendedores que possuem dimensões menores são usados como unidades espaçadoras para isolar pigmentos de TiO<sub>2</sub> e aumentar o poder de cobertura das tintas.

[7] O conceito de uso do material espaçador em conjunto com pigmentos de TiO<sub>2</sub> para aprimorar a opacidade da tinta é conhecido há algum tempo. Por exemplo, há um produto conhecido que usa diferenças de índice de refração entre os materiais diferentes para aumentar a difusão. Outros produtos conhecidos revestem fisicamente o pigmento de TiO<sub>2</sub> para acentuar a separação. As argilas também podem ser usadas para tal aplicação, visto que as mesmas têm área superficial alta. Entretanto, tem sido difícil por em prática tais aplicações comercialmente devido ao requisito da grande quantidade de material espaçador, o que leva ao custo comparativo alto da tinta. Ademais, as argilas como material espaçador também tendem a reduzir o brilho da película de tinta final e alterar as propriedades reológicas da tinta.

[8] Alternativamente, as partículas de óxido de zinco dimensionadas em micron comerciais com um índice de refração de 2,01 podem ser usadas como o pigmento. Entretanto, o óxido de zinco dimensionado em micron comercial possui dimensões médias de partícula maiores e, portanto, sofre de área superficial inferior. Como um resultado, o óxido de zinco dimensionado em micron comercial tem pouco ou nenhum poder para influenciar a opacidade fornecida por pigmentos de TiO<sub>2</sub>. Além disso, embora as partículas de óxido de zinco nanodimensionadas tenham a capacidade de aumentar a opacidade de uma formulação de tinta, mostrou-se que tais

formulações de tinta são instáveis (conforme evidenciado pelo aumento na viscosidade da formulação de tinta até o ponto de gelificação) quando armazenadas por longos períodos de tempo como dois a três meses. Além disso, a formulação de tintas à base de água com o uso de ZnO requer uma consideração cuidadosa de vários parâmetros e materiais. A interação de ZnO com TiO<sub>2</sub> é muito forte sob a faixa de pH alcalino que normalmente prevalece nas tintas à base de água. Isso invariavelmente resulta em estabilidade insatisfatória da tinta, levando ao aumento progressivo em viscosidade e possível gelificação irreversível em temperatura ambiente. A tinta falha com frequência no teste de armazenamento acelerado conduzido a 60 °C por 14 dias.

[9] Adicionalmente, outros pigmentos como alvaiade, sulfeto de zinco, litopone e óxido de antimônio também foram usados como pigmentos alternativos em tintas. Entretanto, os pigmentos de TiO<sub>2</sub> são sempre, em última análise, escolhidos devido ao seu índice de refração superior.

[10] Há, portanto, uma necessidade para fornecer formulações de tinta que solucionam, ou pelo menos atenuam, uma ou mais das desvantagens descritas acima. Há uma necessidade para fornecer formulações de tinta estáveis que solucionam, ou pelo menos atenuam, uma ou mais das desvantagens descritas acima.

#### Descrição Resumida

[11] De acordo com um primeiro aspecto, é fornecida uma formulação de tinta compreendendo um pigmento compósito, sendo que o referido pigmento compósito é selecionado a partir do grupo que compreende óxido de metal/sílica, óxido de metal/silicato, óxido de metal/alumina, óxido de metal/óxido de metal e óxido metálico/zircônio, em que o tamanho e a quantidade do referido pigmento compósito são selecionados para aumentar a opacidade da referida formulação de tinta.

[12] O pigmento compósito pode ter propriedades opacas e, por conseguinte, pode ser usado para manter ou acentuar a opacidade da tinta ou formulação de tinta. O pigmento compósito pode reduzir a quantidade de dióxido de titânio que é requerido na formulação de tinta devido às propriedades opacas do pigmento compósito. Por conseguinte, o pigmento compósito pode ser uma alternativa ao dióxido de titânio. Devido à substituição do dióxido de titânio mais dispendioso pelo compósito, os custos de produção da tinta ou formulação de tinta podem ser reduzidos de forma eficaz.

[13] Conforme o pigmento compósito acentua a opacidade da formulação de tinta, o pigmento compósito pode não afetar a estabilidade da formulação de tinta. Por conseguinte, o pigmento compósito pode pelo menos manter a estabilidade da formulação de tinta ou pode aumentar a estabilidade da formulação de tinta. Por conseguinte, o pigmento compósito

pode ter a capacidade de acentuar a opacidade da formulação de tinta ao mesmo tempo que não afeta a estabilidade da formulação de tinta, ou tem qualquer efeito prejudicial sobre a estabilidade da formulação de tinta. Isso é comparado aos agentes acentuadores de opacidade da técnica anterior nos quais a estabilidade da formulação de tinta diminui ao longo do tempo.

[14] O pigmento compósito pode ter a capacidade de manter ou acentuar a estabilidade da tinta ou formulação de tinta quando armazenados por um período de tempo. O compósito pode possibilitar que a tinta ou formulação de tinta seja resistente a mudanças de viscosidade. O compósito pode impedir ou pelo menos reduzir a gelificação ou aglomeração da tinta ou formulação de tinta durante o armazenamento por um período de tempo.

[15] Em um segundo aspecto, é fornecido um método para preparar uma formulação de tinta que compreende as estapas de incorporação na formulação de tinta de uma quantidade eficaz de um pigmento compósito selecionado a partir do grupo que compreende óxido de metal/sílica, óxido de metal/silicato, óxido de metal/alumina, óxido de metal/metal e óxido metálico/zircônio, a fim de aumentar a opacidade da referida formulação.

[16] Em um terceiro aspecto, é fornecido um pigmento compósito que compreende um óxido de metal como um primeiro

componente e um segundo componente selecionado a partir do grupo que compreende sílica, silicato, alumina e zircônio.

#### Definições

[17] As seguintes palavras e termos usados no presente documento terão o significado indicado:

[18] O termo "nanodimensionado" deve ser interpretado amplamente para se referir a um tamanho médio de partícula de uma partícula menor do que cerca de 1.000 nm, menor do que cerca de 300 nm, entre cerca de 200 nm e cerca de 300 nm, entre cerca de 5 nm e cerca de 200 nm ou menor do que cerca de 100 nm. O tamanho de partícula pode se referir ao diâmetro das partículas quando as mesmas forem substancialmente esféricas. As partículas podem ser não esféricas e a faixa de tamanho de partícula pode se referir ao diâmetro equivalente das partículas em relação a partículas esféricas.

[19] O termo "opacidade", e variantes gramaticais do mesmo, são usados para denotar a impermeabilidade de um revestimento à luz.

[20] O termo "estável", quando se refere a uma tinta ou formulação de tinta, se refere à capacidade da tinta ou formulação de tinta de ser agitada para formar um líquido homogêneo até mesmo quando armazenada por longos períodos de tempo. A viscosidade da tinta ou formulação de tinta pode ser uma medida da estabilidade da tinta ou formulação de

tinta de modo que uma tinta ou formulação de tinta estável seja considerada uma em que a viscosidade permanece substancialmente constante ou não aumenta substancialmente durante o armazenamento da tinta ou formulação de tinta. Durante os experimentos de armazenamento acelerado, uma tinta estável é uma que tem um aumento de viscosidade de cerca de menos do que 20 unidades KU. Para evitar dúvidas, qualquer tinta ou formulação de tinta que resulta na gelificação ou aglomeração quando armazenada por um período de tempo é considerada como "instável".

[21] A palavra "substancialmente" não exclui "completamente", por exemplo, uma composição que é "substancialmente isenta" de Y pode ser completamente isenta de Y. Quando necessário, a palavra "substancialmente" pode ser omitida da definição da invenção.

[22] Salvo especificado em contrário, os termos "que comprehende" e "comprehende", e variantes gramaticais dos mesmos, são destinados a representar uma linguagem "aberta" ou "inclusiva" de modo que os mesmos incluem elementos citados, mas também permitem a inclusão de elementos não citados adicionais.

[23] Conforme usado no presente documento, o termo "cerca de", no contexto de concentrações de componentes das formulações, significa tipicamente +/- 5% do valor declarado, mais tipicamente +/- 4% do valor declarado, mais

tipicamente +/- 3% do valor declarado, mais tipicamente, +/- 2% do valor declarado, ainda mais tipicamente +/- 1% do valor declarado, e ainda mais tipicamente +/- 0,5% do valor declarado.

[24] Por toda esta divulgação divulgação, determinadas modalidades podem ser divulgadas divulgadas em uma faixa. Deve-se compreender que a descrição em faixa é meramente para conveniência e brevidade e não deveria ser interpretada como uma limitação inflexível sobre o escopo das faixas divulgadas divulgadas. Consequentemente, a descrição de uma faixa deveria ser considerada como tendo revelado todas as possíveis subfaixas bem como valores numéricos individuais dentro daquela faixa. Por exemplo, a descrição de uma faixa como de 1 a 6 deveria ser considerada como tendo revelado especificamente todas as subfaixas como de 1 a 3, de 1 a 4, de 1 a 5, de 2 a 4, de 2 a 6, de 3 a 6 etc., bem como números individuais dentro daquela faixa, por exemplo, 1, 2, 3, 4, 5 e 6. Isso se aplica independentemente da amplitude da faixa.

[25] Determinadas modalidades também podem ser descritas de forma ampla ou genérica no presente documento. Cada uma dentre as espécies mais limitadas e agrupamentos subgenéricos que estão abrangidos na divulgação genérica também faz parte da divulgação. Isso inclui a descrição genérica das modalidades com a condição ou limitação negativa

que remove qualquer matéria do gênero, independentemente da possibilidade de o material excisado ser especificamente recitado no presente documento.

Divulgação Detalhada das Modalidades

[26] As modalidades não limitadoras exemplificativas de uma formulação de tinta serão divulgadas agora. A formulação de tinta compreende um pigmento compósito, sendo que o referido pigmento compósito é selecionado a partir do grupo que compreende óxido de metal/sílica, óxido de metal/silicato, óxido de metal/alumina, óxido de metal/óxido de metal e óxido metálico/zircônio, em que o tamanho e quantidade do referido pigmento de compósito são selecionados para aumentar a opacidade da referida formulação de tinta.

[27] Também é fornecido um pigmento compósito que compreende um óxido de metal como um primeiro componente e um segundo componente selecionado a partir do grupo que compreende sílica, silicato, alumina, óxido metálico e zircônio. O óxido de metal no referido compósito pode ser selecionado a partir do grupo que compreende óxido de zinco, óxido de alumínio, óxido de antimônio, óxido de magnésio, óxido de bário e óxido de zircônio. Em uma modalidade, o óxido de metal é óxido de zinco.

[28] A % em peso do pigmento compósito na formulação de tinta pode estar na faixa de cerca de 1% em peso a cerca de

5% em peso, com base no peso total da formulação de tinta. A % em peso do pigmento compósito na composição pode estar na faixa selecionada a partir do grupo que comprehende cerca de 1% em peso a cerca de 4% em peso, cerca de 1% em peso a cerca de 3% em peso, cerca de 1% em peso a cerca de 2% em peso, cerca de 2% em peso a cerca de 5% em peso, cerca de 2% em peso a cerca de 4% em peso e cerca de 2% em peso a cerca de 3% em peso. Em uma modalidade, a % em peso do pigmento compósito pode ser cerca de 2% em peso.

[29] O tamanho de partícula do óxido de metal no pigmento compósito pode estar na nanofaixa. O tamanho de partícula do óxido de metal no compósito pode estar na faixa selecionada a partir do grupo que comprehende cerca de 5 nm a cerca de 100 nm, cerca de 5 nm a cerca de 80 nm, cerca de 5 nm a cerca de 60 nm, cerca de 5 nm a cerca de 40 nm, cerca de 5 nm a cerca de 20 nm, cerca de 20 nm a cerca de 100 nm, cerca de 40 nm a cerca de 100 nm, cerca de 60 nm a cerca de 100 nm e cerca de 80 nm a cerca de 100 nm. Em uma modalidade, o tamanho de partícula do óxido de metal no compósito pode ser cerca de 10 nm.

[30] A área superficial do compósito pode ser selecionada a partir da faixa de cerca de 20 m<sup>2</sup>/g a cerca de 100 m<sup>2</sup>/g, cerca de 20 m<sup>2</sup>/g a cerca de 80 m<sup>2</sup>/g, cerca de 20 m<sup>2</sup>/g a cerca de 60 m<sup>2</sup>/g, cerca de 20 m<sup>2</sup>/g a cerca de 40 m<sup>2</sup>/g, cerca de 40 m<sup>2</sup>/g a cerca de 100 m<sup>2</sup>/g, cerca de 60 m<sup>2</sup>/g a cerca

de 100 m<sup>2</sup>/g ou cerca de 80 m<sup>2</sup>/g a cerca de 100 m<sup>2</sup>/g.

[31] O compósito pode ser produzido em um método de duas etapas ou em um método de uma etapa. No método de duas etapas, as partículas de óxido de metal são formadas em primeiro lugar seguido pela precipitação ou revestimento com sílica ou alumina sobre o óxido de metal. Quando o óxido de metal é óxido de zinco, o óxido de zinco pode ser produzido misturando-se sais de zinco em uma base e coletando os precipitados de óxido de zinco formados. Um tensoativo ou dispersante pode ser adicionado para reduzir o tamanho de partícula de modo que as partículas de óxido de zinco formadas estejam na nanofaixa. O sal de zinco usado pode ser selecionado a partir do grupo que compreende sal de nitrato de zinco (como nitrato de zinco hexahidratado), acetato de zinco e cloreto de zinco. A base pode ser selecionada a partir do grupo que compreende hidróxido de sódio, hidróxido de potássio ou hidróxido de cálcio. Deve ser entendido que o método para produzir o óxido de zinco não é limitado ao método acima e pode abranger qualquer método conhecido para formar partículas de óxido de zinco nanodimensionadas. Em seguida, um tensoativo de amina pode ser adicionado para criar uma carga sobre as partículas de óxido de zinco. Sílica ou alumina (ou seus precursores) é, então, adicionada para formar um compósito com o óxido de zinco. Para acentuar a precipitação ou revestimento da sílica ou alumina sobre as

partículas de óxido de zinco, um modificador de carga pode ser adicionado. O modificador de carga pode ser uma solução de cloreto de alumínio que funciona para precipitar ou revestir sílica sobre as partículas de óxido de zinco perturbando-se sua carga residual.

[32] O método de etapa única pode envolver uma mistura de reação que compreende um sal de metal, uma solução de base e um precursor de sílica ou alumina. Quando o óxido de metal a ser formado for óxido de zinco, o sal de metal pode ser sal de zinco selecionado a partir do grupo que compreende sal de nitrato de zinco (como nitrato de zinco hexahidratado), acetato de zinco e cloreto de zinco. Um tensoativo ou dispersante pode ser adicionado para reduzir o tamanho de partícula das partículas de óxido de zinco de modo que as partículas de óxido de zinco formadas estejam na nanofaixa. A base pode ser selecionada a partir do grupo que compreende hidróxido de sódio, hidróxido de potássio ou hidróxido de cálcio. Durante a formação do compósito, o pH da mistura de reação pode ser ajustado de forma adequada. O pH da reação pode estar na faixa de 7 a 10. Ajustando-se o pH da reação durante a formação do compósito, o revestimento uniforme das partículas de óxido de metal pode ser alcançado. O precursor de sílica pode ser a solução de silicato de sódio enquanto o precursor de alumina pode ser um cloreto de alumínio hexahidratado, aluminato de sódio ou alumina

coloidal.

[33] Uma vez que o compósito é formado, o compósito pode ser separado da mistura de reação por filtração ou centrifugação. O compósito pode ser lavado com água e submetido à secagem.

[34] A sílica, silicato, zircônio ou alumina pode ser formada como um revestimento que circunda pelo menos parcialmente a partícula de óxido de metal. Por conseguinte, o componente de óxido de metal pode ser coberto pelo menos parcialmente pela sílica, silicato, zircônio ou alumina (isto é, o segundo componente).

[35] A partícula de óxido de metal pode ser dispersa ou incorporada na fase de sílica, silicato, zircônio ou alumina. A fase de sílica, silicato, zircônio ou alumina pode ser uma fase contínua. A fase de sílica pode ser uma fase amorfa contínua.

[36] O compósito pode ter uma morfologia homogênea ou uma morfologia não homogênea. O compósito pode ter uma morfologia homogênea multifacetada. O compósito pode ser uma mistura de nanobastões e morfologia multifacetada (não homogênea).

[37] Quando o óxido de metal no compósito for óxido de zinco, o óxido de zinco pode ter uma estrutura hexagonal.

[38] O pigmento compósito pode ser da estrutura de núcleo-casca. O núcleo da estrutura núcleo-casca pode ser

oco ou vazio enquanto as cascas da estrutura de núcleo-casca são compostas de camadas alternadas da camada de óxido de metal (ou camada de primeiro componente) e da camada de sílica, silicato, zircônio, óxido de metal ou alumina (ou camada de segundo componente). A camada de sílica, silicato, zircônio, óxido de metal ou alumina (ou camada de segundo componente) pode cobrir pelo menos parcialmente a camada de óxido de metal (ou camada de primeiro componente). O número de camadas não é particularmente limitado.

[39] Nas modalidades acima, a diferença em índices de refração de materiais em camadas diferentes aprimora a retrodifusão de luz. Na estrutura de núcleo-casca, diferenças mais substanciais em índice de refração são criadas formando-se um pigmento compósito inorgânico em camadas oco. Tal pigmento mediante a secagem deixa um espaço oco que ajuda na melhor retrodifusão de luz, levando à melhor opacidade.

[40] O compósito pode agir como um substituto para o dióxido de titânio na formulação de tinta ao mesmo tempo que mantém a opacidade da formulação de tinta substancialmente igual ou até mesmo maior em comparação a uma formulação de tinta convencional sem o compósito. O compósito pode manter ou acentuar a estabilidade da formulação de tinta ao mesmo tempo que mantém ou aumenta a opacidade da formulação de tinta.

[41] O compósito pode agir como um substituto para substituir até 30% das partículas de dióxido de titânio na formulação de tinta. O compósito pode substituir até 29%, 28%, 27%, 26%, 25%, 24%, 23%, 22%, 21%, 20%, 19%, 18%, 17%, 16%, 15%, 14%, 13%, 12%, 11%, 10%, 9%, 8%, 7%, 6%, 5%, 4%, 3%, 2% ou 1% das partículas de dióxido de titânio na formulação de tinta.

[42] A formulação de tinta pode ter uma opacidade na faixa selecionada a partir do grupo que compreende maior do que 85%, maior do que 86%, maior do que 87%, maior do que 88%, maior do que 89%, maior do que 90%, maior do que 91%, maior do que 92%, maior do que 93%, maior do que 94%, maior do que 95%, maior do que 96%, maior do que 97%, maior do que 98% e maior do que 99%. Por conseguinte, a substituição de partículas de dióxido de titânio convencionais pelo compósito pode não afetar substancialmente a opacidade da formulação de tinta. Consequentemente, é possível usar uma quantidade menor do dióxido de titânio, que é usado tipicamente para produzir revestimentos de tinta opacos, sem comprometer a opacidade e/ou estabilidade da formulação de tinta.

[43] A formulação de tinta pode ter substancialmente a mesma opacidade ou opacidade aumentada em comparação a outra formulação de tinta sem o compósito.

[44] O óxido de metal no referido compósito pode ser

selecionado a partir do grupo que compreende óxido de zinco, óxido de bário, óxido de alumínio, óxido de antimônio, óxido de magnésio e óxido de zircônio. Em uma modalidade, o óxido de metal é óxido de zinco.

[45] O pigmento compósito pode ser tóxico a micróbios e, por conseguinte, pode ter um efeito antimicrobiano (como antibacteriano ou antifúngico). Por conseguinte, o pigmento compósito em uma formulação de tinta pode ter a capacidade de acentuar a opacidade da formulação de tinta ao mesmo tempo que mantém ou acentua a estabilidade da formulação de tinta. Ao mesmo tempo, o pigmento compósito pode ter a capacidade de exercer um efeito antimicrobiano com a finalidade de aumentar a durabilidade e tempo de vida útil da formulação de tinta. Quando a formulação de tinta for aplicada a uma superfície e submetida à secagem, o efeito antimicrobiano do pigmento compósito também pode ser expandido para a tinta seca.

[46] O compósito que tem um óxido de metal como óxido de zinco pode funcionar como um absorvente de UV e pode conferir propriedades antimicrobianas à formulação de tinta. Isso pode ocorrer devido ao tamanho de partícula do óxido de zinco, como menor do que 40 nm, o que resulta nessas propriedades. Por conseguinte, a durabilidade geral da formulação de tinta pode ser aprimorada com a incorporação do compósito na formulação de tinta.

[47] A formulação de tinta pode ser uma tinta acrílica à base de água, uma tinta de vinila à base de água, uma tinta de poliuretano, uma tinta alquídica, uma tinta termofixa e uma tinta à base de solvente.

[48] Também é fornecido um método para a preparação de uma formulação de tinta que compreende as etapas de incorporação na formulação de tinta de uma quantidade eficaz de um pigmento compósito selecionado a partir do grupo que compreende óxido de metal/sílica, óxido de metal/silicato, óxido de metal/alumina, o óxido de metal/metal e óxido metálico/zircônio, a fim de aumentar a opacidade da referida formulação.

[49] A quantidade eficaz do pigmento compósito na formulação de tinta pode estar na faixa de 1% em peso a 5% em peso, com base no peso total da formulação de tinta.

#### Breve Descrição dos Desenhos

[50] Os desenhos anexos ilustram uma modalidade divulgada e serve para explicar os princípios da modalidade divulgada. Deve ser compreendido, entretanto, que os desenhos são projetados somente para propósitos de ilustração, e não como uma definição dos limites da invenção.

[51] A Figura 1 mostra o padrão de difração de raios X (DRX) da sílica revestida sobre o compósito de nano óxido de zinco formado de acordo com o Exemplo 2.

[52] A Figura 2 mostra um micrográfico eletrônico de

transmissão (MET) da sílica revestida sobre o compósito de nano óxido de zinco formado de acordo com o Exemplo 2. A Figura 2(a) é em baixa ampliação, a Figura 2(b) está em uma ampliação superior e a Figura 2(c) está em alta resolução. As ampliações dessas figuras são indicadas indiretamente pela “linha de escala” correspondente ao tamanho no nanomedidor.

[53] A Figura 3 mostra um padrão de DRX de alumina revestida sobre o compósito de nano óxido de zinco formado de acordo com o Exemplo 3.

[54] A Figura 4 mostra um MET de alumina revestida sobre o compósito de nano óxido de zinco formado de acordo com o Exemplo 3. A Figura 4(a) é em baixa ampliação, a Figura 4(b) está em ampliação superior e a Figura 4(c) está em alta resolução. As ampliações dessas figuras são indicadas indiretamente pela “linha de escala” correspondente ao tamanho no nanomedidor.

[55] A Figura 5 é um padrão de difração de raios X do nano óxido de zinco obtido no Exemplo Comparativo 1.

[56] As Figuras 6 e 7 são imagens de microscopia eletrônica de varredura que mostram as partículas de compósito à base de sílica ocas.

### Exemplos

[57] Os exemplos não limitadores da invenção serão descritos adicionalmente em maiores detalhes a título de

referência a Exemplos específicos e um exemplo comparativo, que não deveriam ser interpretados de qualquer forma como limitadores do escopo da invenção.

Exemplo 1

Preparação In-situ Direta de Compósito de nano-ZnO-sílica

[58] Foram dissolvidas 204 gramas de cloreto de zinco anidro (obtido junto à Mega chemicals, Singapura) em 150 gramas de água e 0,5 grama de CO-02 Indoemul foi adicionada a essa solução e agitada a 1.500 RPM por 5 minutos. Por um período de 2,5 horas, 300 gramas de hidróxido de sódio a 40% foram adicionadas a essa solução agitada. A mistura de reação foi, então, agitada por mais 2 horas. O pH da mistura de reação foi, então, ajustado para 7 a 7,5 com o uso de ácido acético glacial e 15,6 gramas de solução de silicato de sódio (óxido de sódio a 10% e dióxido de silício a 28%, obtidos junto à SD Fine chemicals Ltd, Mumbai da Índia) foram adicionadas. O pH foi ajustado de 10 para 8,5 e a mistura de reação foi agitada por uma hora até que o pH atingir gradualmente 9,5. O pH foi ajustado novamente para 7,5 e a mistura de reação foi agitada por mais uma hora. A mistura de reação foi, então, filtrada e lavada com água. O sólido filtrado foi submetido à secagem em um forno a 80 °C por 24 horas.

[59] O sólido seco foi pulverizado e distinguido com o

uso da análise de área superficial de BET ( $21,97 \text{ m}^2/\text{g}$ ), DRX (consulte a Figura 1) e MET (Figura 2).

[60] A partir do padrão de DRX da Figura 1, os picos principais estão em cerca de  $31,76$ ,  $34,39$ ,  $36,24$ ,  $47,52$ ,  $56,59$ ,  $62,81$ ,  $66,37$  e  $67,92$  ( $^\circ 2\theta$ ), o que confirmou a presença de ZnO com estrutura hexagonal (grupo de espaço - P63mc). Com o uso da equação de Scherrer, o tamanho cristalino de  $23,5 \text{ nm}$  foi calculado. Os picos remanescentes correspondem a SiO<sub>2</sub> e Zn(OH)<sub>2</sub>. A partir do padrão, é evidente que a formação de SiO<sub>2</sub> foi amorfa. Após o revestimento de sílica sobre ZnO, isso deslocou os picos de ZnO  $0,02 \text{ \AA}$  em direção ao lado esquerdo, o que confirmou a presença de SiO<sub>2</sub>.

[61] A partir da imagem de MET da Figura 3(a), pode ser visto que o pó sintetizado teve uma morfologia não homogênea, que é uma mistura de nanobastões e morfologia multifacetada. A ampliação superior (consulte a Figura 3(b)) mostrou que os nanobastões consistiam em ZnO a  $\sim 10 \text{ nm}$  incorporado em uma fase de SiO<sub>2</sub> amorfa contínua. O espaçamento interplanar (consulte a Figura 3(c)) foi  $3,3 \text{ \AA}$  e estava próximo ao espaçamento interplanar do (100) plano de ZnO ( $3,25 \text{ \AA}$ ).

### Exemplo 2

#### Síntese de compósito de nano óxido de zinco-sílica

[62] Cerca de 90 gramas de nano ZnO (obtido a partir do Exemplo 1) foram suspensas e agitadas em 105 ml de água com 0,1 grama de tensoativo de amina terciária-coco bis(hidroxil

etila) amina (Indoemul CO-02, obtida junto à Indoamine Ltd, Baroda da Índia). Adicionou-se 15 gramas de uma solução a 30% de Sílica Coloidal comercial (Bindzil, obtida junto à Akzo Nobel, Holanda) a essa suspensão e agitou-se a 1.500 rpm por 15 minutos. Então 0,7 grama de solução de cloreto de alumínio a 10% (obtida a junto à Access Chemicals, Singapura) foi adicionada à umidade de reação e agitada por 1 hora. A pasta espessa obtida foi submetida à secagem em um forno e usada para distinção. A área superficial do pó foi 23,43 m<sup>2</sup>/g.

### Exemplo 3

#### Formulação de Tinta com o uso de compósito de nano-ZnO-sílica

[63] O compósito de nano-ZnO-sílica obtido a partir do Exemplo 1 em conjunto com dióxido de titânio (TiO<sub>2</sub>) como o pigmento principal foi usado para formular uma tinta acrílica à base de água. A formulação foi nomeada "Formulação de compósito de N-ZnO-sílica". O peso do TiO<sub>2</sub> presente nessa formulação foi reduzido em comparação àquele presente na Formulação Padrão descrita abaixo. Uma formulação de tinta acrílica à base de água comparativa à base somente de pigmentos de TiO<sub>2</sub> foi produzida. Essa formulação foi nomeada "Formulação Padrão".

[64] Quando o TiO<sub>2</sub> foi substituído na "Formulação de compósito de N-ZnO-sílica" pelo compósito, houve uma redução

no volume de pigmento total. Essa redução no volume de pigmento foi compensada aumentando-se a quantidade de sílica e/ou talco para manter a concentração de volume de pigmento idêntica nas formulações mostradas na Tabela 1 abaixo.

[65] A razão de contraste foi medida com o uso do Refletômetro ZEHNTNER (Zehntner Testing Instruments, Suíça). Os estudos de armazenamento acelerado foram feitos armazenando-se a tinta a 60 °C por catorze dias e avaliando-se a aparência de tinta visualmente para a formação de bolo, assentamento duro e fluxo de tinta.

Tabela 1 Formulação de Tinta com o uso de compósito de Nano-ZnO-sílica

Nº	Materiais	Formulação Padrão (em gramas)	Formulação de n-ZnO-Sílica (em gramas)
1.	Espessante: Bermocoll E411 (Akzo Nobel, Holanda)	0,50	0,50
2.	Agente Antimicrobiano: Omadina de Zinco (Arch Chemicals, EUA)	1,00	1,00
3.	Agente dispersante: Orotan 1850E-Dow	1,00	1,00

Nº	Materiais	Formulação Padrão (em gramas)	Formulação de n-ZnO-Sílica (em gramas)
	Chemicals, EUA)		
4.	Antiespumante: Dapro 7010 (Elementis Korea)	0,25	0,25
5.	Água	18,94	20,34
6.	Compósito de n-ZnO-Sílica	-NA-	2,00
7.	Dióxido de Titânio R900 (Dupont, EUA)	23,00	16,67
8.	Carbonato de Cálcio	3,64	5,62
9.	Talco	1,87	2,82
10.	Sílica fumê	0,30	0,30
11.	Emulsão de Resina Acrílica (UCAR <sup>TM</sup> 362, obtida junto à The Dow Chemical Company, Califórnia, EUA)	35,00	35,00
12.	Emulsão ROPAQUE <sup>TM</sup> (obtida junto à The Dow Chemical Company,	12,00	12,00

Nº	Materiais	Formulação Padrão (em gramas)	Formulação de n-ZnO-Sílica (em gramas)
	Califórnia, EUA)		
13.	Texanol (obtido junto à Eastman Chemical Company, Tennessee, EUA)	0,70	0,70
14.	2-Amino-2-metil-1-propanol + 5% de água (AMP <sup>TM</sup> -95 obtido junto à The Dow Chemical Company, Califórnia, EUA)	0,30	0,30
15	Mono Etileno Glicol (Dow Chemicals, EUA)	1,00	1,00
16	Tergitol NP 9 (Dow Chemicals, EUA)	0,50	0,50
	<i>Razão de Contraste (Opacidade) (%)</i>	95,15	95,84
	<i>Teste de armazenamento</i>	Aprovado-	Aprovado--

Nº	Materiais	Formulação Padrão (em gramas)	Formulação de n-ZnO-Sílica (em gramas)
	acelerado	Tinta com fluxo ligeiramente reduzido	Tinta homogênea com viscosidade ligeiramente maior e fluxo reduzido

[66] Conforme mostrado na Tabela 1 acima, a estabilidade e opacidade da formulação de tinta com o compósito são comparáveis àquelas da formulação de tinta sem o compósito. Além disso, o compósito pode reduzir a quantidade de dióxido de titânio necessário em cerca de 27%, levando à economia de despesas.

#### Exemplo 4

Preparação In-situ Direta de Compósito de nano-ZnO-Alumina

[67] 68 gramas de cloreto de zinco anidro foram dissolvidas em 90 ml de água e 2,5 gramas de agente dispersante Coatex P90 (obtido junto à Arkema, EUA) foram adicionadas a essa solução e agitadas a 1.500 RPM por 5 minutos. Por um período de 2,5 horas, 100 gramas de hidróxido de sódio a 40% foram adicionadas a essa solução agitada. A

mistura de reação foi, então, agitada por mais 2 horas. O pH da mistura de reação foi, então, ajustado para 8,5 com o uso de ácido acético glacial. Cerca de 12,2 gramas de cloreto de alumínio hexahidratado foram adicionadas e o pH da reação ajustado para 7. Cerca de 14 gramas de hidróxido de sódio a 40% foram adicionadas por quinze minutos com agitação muito boa. O pH da reação foi mantido em 8,0 a 8,5 por um período de 1,5 hora. O sólido precipitado foi então filtrado, lavado com água e submetido à secagem em um forno a 80 graus C por 24 horas.

[68] A área superficial do pó do sólido seco foi 78,9 m<sup>2</sup>/g. O padrão de DRX e MET de compósito de nano-ZnO-alumina são mostrados na Figura 3 e na Figura 4, respectivamente.

[69] A partir do padrão de DRX da alumina revestida sobre compósito de nano-ZnO, conforme mostrado na Figura 1, os picos principais estão em cerca de 31,76, 34,39, 36,24, 47,52, 56,59, 62,81, 66,37 e 67,92 (°2θ), o que confirmou a presença de ZnO com estrutura hexagonal (grupo de espaço - P63mc). Com o uso da equação de Scherrer, o tamanho cristalino de 25,1 nm foi calculado. Em conjunto com o nano-ZnO, as outras fases de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> e AlZn<sub>7</sub>O<sub>10</sub> foram formadas. A partir do padrão, é óbvio que a fase cristalina de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> foi revestida sobre nano-ZnO e que confirmou a presença de revestimento de compósito.

[70] As imagens de MET (Figura 4(a), Figura 4(b))

mostraram que o pó sintetizado era uma fase multifacetada. O espaçamento interplanar (consulte a Figura 4(c)) foi 2,5 Å e estava próximo ao espaçamento interplanar do (002) plano de ZnO (2,6 Å).

#### Exemplo 5

##### Pigmento Compósito à Base de Sílica Oca

[71] 30 gramas de Nano Carbonato de Cálcio (obtido junto à Nano Materials Technology Pte Ltd, Singapura) foram suspensas em 300 ml de água em rápida agitação. Cerca de 34,8 gramas de Tetra etil orto silicato (obtido junto à Sinopharm Chemical Reagent Company Limited, China) foram adicionadas e o pH foi ajustado para 8,5 com amônia. A mistura de reação foi, então, agitada por 1 hora e o pH foi ajustado para 6 adicionando-se lentamente ácido acético glacial. Após toda a evolução de dióxido de carbono cessar, a amostra de sílica oca foi isolada por filtração e secagem.

[72] A reação acima pode ser convertida diretamente em pigmento compósito de sílica-óxido de zinco-sílica oco. Cerca de 408 gramas de cloreto de zinco anidro foram dissolvidas na mistura de reação seguido por Indoemul co-02 (0,25 grama). 450 gramas da solução de hidróxido de sódio a 54% foram adicionadas por 2,5 horas. A mistura de reação foi agitada por mais 2 horas e o pH foi ajustado para 8 a 8,5. Cerca de 33 gramas de sílica coloidal foram adicionadas a essa mistura de reação e agitadas por 1 hora. No fim da

reação, o pigmento compósito oco foi filtrado e lavado com água e submetido à secagem em um forno a 80 graus Celsius.

Tabela 2 Formulação de tinta com o uso de compósito de sílica-ZnO-sílica oca

Nº	Materiais	Formulação Padrão (em gramas)	Formulação de n-ZnO-Sílica (em gramas)
1.	Espessante: Bermocoll E411 (Akzo Nobel, Holanda)	0,40	0,40
2.	Agente Antimicrobiano: Omadina de Zinco (Arch Chemicals, EUA)	1,00	1,00
3.	Agente dispersante: Orotan 1850E-Dow Chemicals, EUA)	1,00	1,00
4.	Antiespumante: Dapro 7010 (Elementis Korea)	0,25	0,25
5.	Água	22,54	22,14
6.	Compósito de Sílica-ZnO-Sílica Oca	-NA-	2,00
7.	Dióxido de Titânio R900	23,00	16,98

Nº	Materiais	Formulação Padrão (em gramas)	Formulação de n-ZnO-Sílica (em gramas)
	(Dupont, EUA)		
8.	Carbonato de Cálcio	4,94	7,42
9.	Talco	1,86	2,57
10.	Sílica fumê	0,30	0,30
11.	Emulsão de Resina Acrílica (UCAR™ 362, obtida junto à The Dow Chemical Company, Califórnia, EUA)	34,00	34,00
12.	Emulsão ROPAQUE™ (obtida junto à The Dow Chemical Company, Califórnia, EUA)	9,00	9,00
13.	Texanol (obtido junto à Eastman Chemical Company, Tennessee, EUA)	1,00	1,00
14.	2-Amino-2-metil-1-propanol + 5% de água	0,30	0,30

Nº	Materiais	Formulação Padrão (em gramas)	Formulação de n-ZnO-Sílica (em gramas)
	(AMP <sup>TM</sup> -95 obtido junto à The Dow Chemical Company, Califórnia, EUA)		
15	Mono Etileno Glicol (Dow Chemicals, EUA)	1,00	1,00
16	Tergitol NP 9 (Dow Chemicals, EUA)	0,50	0,50
	Razão de Contraste (Opacidade) (%)	95,84	95,89
	Teste de armazenamento acelerado	Aprovado-- Aprovado- Tinta com fluxo ligeiramente reduzido	Tinta homogênea com viscosidade ligeiramente maior e fluxo reduzido

Exemplo Comparativo 1Síntese de nano óxido de zinco em metanol/água

[73] 32 gramas de nitrato de zinco hexahidratado (obtido junto à Accesschem Pte Ltd, Singapura) foram dissolvidas em 67,5 gramas de metanol (obtido junto à Accesschem Pte Ltd, Singapura) e 40 gramas de água.

[74] 8,7 gramas de hidróxido de sódio (obtido junto à Sigma Aldrich, Missouri, EUA) foram dissolvidas em 40 gramas de água separadamente e adicionadas à mistura nitrato de zinco hexahidratado lentamente ao longo de um período de 1 hora e 15 minutos.

[75] Após a adição, a reação foi agitada por 1,5 hora. Posteriormente, cerca de 120 ml de água foram adicionados e a mistura foi agitada por mais 1,5 hora.

[76] A mistura de reação foi, então, filtrada e lavada com água até que o filtrado mostrasse um pH de 7. O material de resíduo sólido obtido foi submetido à secagem em um forno a 80 °C e moído para obter pó branco fino.

#### Distinção do nano óxido de zinco

[77] O pó branco fino foi analisado por difração de raios X (DRX) e o padrão de DRX é mostrado na Figura 5. A partir da Figura 5, o padrão de DRX confirma que óxido de zinco puro (ZnO) foi obtido. Especificamente, os três principais valores de pico de 2 Theta na Figura 5 estão em 31,72; 34,45; e 36,21, que correspondem aos picos de ZnO padrão conforme mencionado no Joint Committee on Powder Diffraction Standards (JCPDS) Nº de Cartão 36-1451 e grupo

de espaço P6<sub>3</sub> mc.

[78] O pó branco fino também foi analisado pelo método de Brunauer-Emmett-Teller (BET). A medição de área superficial de BET mostrou que o ZnO obtido tem uma área superficial de 27,8 m<sup>2</sup>/grama.

#### Formulação de tinta com o uso de Nano-ZnO

[79] O nano óxido de zinco (n-ZnO) em conjunto com o dióxido de titânio (TiO<sub>2</sub>) como o pigmento principal foi usado para formular uma tinta acrílica à base de água. A formulação foi nomeada "Formulação de n-ZnO". O peso do TiO<sub>2</sub> presente nessa formulação foi 70% daquele presente na Formulação Padrão descrita abaixo. Uma formulação de tinta acrílica à base de água comparativa com base somente em pigmentos de TiO<sub>2</sub> foi produzida. Essa formulação foi nomeada "Formulação Padrão".

[80] Quando 30% do TiO<sub>2</sub> necessário foi substituído na "Formulação de n-ZnO" por nano óxido de zinco, houve uma redução no volume de pigmento total. Essa redução no volume de pigmento foi compensada aumentando-se a quantidade de sílica e/ou talco para manter a concentração de volume de pigmento idêntica nas formulações mostradas na Tabela 3 abaixo.

[81] A razão de contraste foi medida com o uso do Refletômetro ZEHNTNER (Zehntner Testing Instruments, Suíça). Os estudos de armazenamento acelerado foram feitos

armazenando-se a tinta a 60 °C por catorze dias e avaliando-se a aparência de tinta visualmente para a formação de bolo, assentamento duro e fluxo de tinta.

Tabela 3: Formulação de tinta com o uso de Nano-ZnO

Nº	Materiais	Formulação Padrão (em gramas)	Formulação de n-ZnO (em gramas)
1.	Espressante-1  (Aquaflow™ NHS 300, obtido junto à Hercules Inc., Delaware, EUA)	0,20	0,20
2.	Espressante-2  (Aquaflow™ NHS 300, obtido junto à Hercules Inc., Delaware, EUA)	0,10	0,10
3.	Agente dispersante  (Coatex P 90, obtido junto à Coatex Inc, Arkema, Carolina do Sul, EUA)	0,50	0,50
4.	Antiespumante (Tego® Foamex 825, obtido junto à Evonik	0,45	0,45

Nº	Materiais	Formulação Padrão (em gramas)	Formulação de n-ZnO (em gramas)
	Industries, Alemanha)		
5.	Água	30,58	28,00
6.	n-ZnO	-NA-	1,50
7.	Dióxido de titânio	27,00	18,90
8.	Carbonato de Cálcio	20,50	20,50
9.	Sílica	0,98	5,00
10.	Sílica fumê	0,98	0,98
11.	Emulsão de Resina Acrílica (UCAR <sup>TM</sup> 362, obtida junto à The Dow Chemical Company, Califórnia, EUA)	43,5	43,5
12.	Emulsão ROPAQUE <sup>TM</sup> (obtida junto à The Dow Chemical Company, Califórnia, EUA)	19,5	19,5
13.	Texanol (obtido junto à Eastman Chemical Company, Tennessee,	2,76	2,76

Nº	Materiais	Formulação Padrão (em gramas)	Formulação de n-ZnO (em gramas)
	EUA)		
14.	2-Amino-2-metil-1-propanol + 5% de água (AMP <sup>TM</sup> -95 obtido junto à The Dow Chemical Company, Califórnia, EUA)	0,15	0,15
	Razão de Contraste (Opacidade) (%)	91,83	93,81
	Teste de armazenamento acelerado	Aprovado-- Tinta homogênea com fluxo ligeiramente reduzido	Reprovado-- tinta solidificada em massa espessa

[82] Como pode ser visto a partir da Tabela 3, a incorporação de nano óxido de zinco, embora aumente a opacidade da formulação de tinta, fez com que a formulação

de tinta gelificasse e se tornasse instável.

### Aplicações

[83] A composição divulgada acentua de forma vantajosa a estabilidade de uma formulação de tinta sem privar as formulações de tinta de serem economicamente viáveis para produzir ou afetar a opacidade da formulação de tinta.

[84] Vantajosamente, a composição divulgada permite uma quantidade inferior de matéria-prima dispendiosa necessária nas formulações de tinta sem privar as formulações de tinta das propriedades necessárias. Nas modalidades, o compósito da presente divulgação pode ser usado como uma substituição parcial para o pigmento de dióxido de titânio relativamente mais dispendioso em formulações de tinta. Além disso, a composição divulgada possui durabilidade aprimorada em relação aos elementos naturais.

[85] Vantajosamente, o compósito revelado confere propriedades antibacterianas à composição.

[86] Vantajosamente, o compósito revelado aprimora a resistência à ultravioleta da composição, conferindo assim durabilidade à composição.

[87] Vantajosamente, o compósito revelado não lixivia da composição.

[88] Vantajosamente, nas modalidades, o compósito revelado da presente divulgação pode ser usado como uma substituição parcial para ZnO convencional na vulcanização

de borracha.

[89] Nas modalidades, o compósito revelado da presente divulgação pode ser usado como um semicondutor de largura de banda ampla em determinadas aplicações eletrônicas.

[90] Nas modalidades, o compósito revelado da presente divulgação também pode ser usado para aprimorar a abrasão e resistência ao desgaste em compósitos poliméricos seja sozinho ou em combinação com outros nanomateriais como argila.

[91] Nas modalidades, o compósito revelado da presente divulgação pode ser disperso em polímeros e solventes orgânicos para aprimorar a durabilidade dos compósitos poliméricos orgânicos aos elementos naturais.

[92] Será aparente que várias outras modificações e adaptações da invenção serão aparentes para a pessoa versada na técnica após ler a divulgação anterior sem se afastar do espírito e escopo da invenção e pretende-se que todas essas modificações e adaptações sejam englobadas no escopo das reivindicações anexas.

## REIVINDICAÇÕES

1. Formulação de tinta **caracterizada** pelo fato de que compreende um pigmento compósito que compreende um óxido metálico como um primeiro componente e um segundo componente selecionado do grupo que consiste em sílica, silicato e óxido metálico, em que:

o referido óxido metálico no primeiro componente é selecionado do grupo que consiste em óxido de zinco, óxido de alumínio, óxido de antimônio, óxido de bário, óxido de magnésio e óxido de zircônio;

o referido óxido metálico no segundo componente, quando presente, é selecionado do grupo que consiste em óxido de zinco, óxido de alumínio, óxido de antimônio, óxido de bário, óxido de magnésio e óxido de zircônio;

o referido óxido metálico como o primeiro componente é pelo menos parcialmente coberto pelo referido segundo componente;

o tamanho de partícula do referido óxido metálico do primeiro componente está na faixa de 5 nm a 100 nm e a quantidade em peso % do referido pigmento compósito está na faixa de 1% em peso a 5% em peso, com base no peso total da referida formulação de tinta;

o tamanho de partícula do pigmento compósito é de um tamanho para fornecer opacidade ao pigmento e a área superficial específica do pigmento compósito está na faixa

de 20 m<sup>2</sup>/g a 100 m<sup>2</sup>/g; e

a formulação de tinta tem uma opacidade ou razão de contraste superior a 85%.

2. Formulação de tinta, de acordo com a reivindicação 1, **caracterizada** pelo fato de o pigmento compósito comprehende uma mistura de nanobastões e morfologia multifacetada.

3. Formulação de tinta, de acordo com a reivindicação 1, **caracterizada** pelo fato de que o pigmento compósito comprehende uma estrutura de núcleo-casca oca.

4. Método para a preparação de uma formulação de tinta conforme definida na reivindicação 1 **caracterizado** pelo fato de que comprehende a etapa de incorporar na formulação de tinta 1% em peso a 5% em peso, com base no peso total da referida formulação, de um pigmento compósito, em que o pigmento compósito comprehende um óxido metálico como um primeiro componente e um segundo componente selecionado do grupo que consiste em sílica, silicato e óxido metálico, em que:

o referido óxido metálico no primeiro componente é selecionado do grupo que consiste em óxido de zinco, óxido de alumínio, óxido de antimônio, óxido de bário, óxido de magnésio e óxido de zircônio;

o referido óxido metálico no segundo componente, quando presente, é selecionado do grupo que consiste em

óxido de zinco, óxido de alumínio, óxido de antimônio, óxido de bário, óxido de magnésio e óxido de zircônio;

o referido óxido metálico como o primeiro componente é pelo menos parcialmente coberto pelo referido segundo componente;

o tamanho de partícula do referido óxido metálico do primeiro componente está na faixa de 5 nm a 100 nm;

o tamanho de partícula do pigmento compósito é de um tamanho para fornecer opacidade ao pigmento e a área superficial específica do pigmento compósito está na faixa de 20 m<sup>2</sup>/g a 100 m<sup>2</sup>/g;

a fim de aumentar a opacidade da referida formulação, em que a formulação de tinta tem uma opacidade ou razão de contraste superior a 85%.

5. Método, de acordo com a reivindicação 4, **caracterizado** pelo fato de que o pigmento compósito comprehende uma mistura de nanobastões e morfologia multifacetada.

6. Método, de acordo com a reivindicação 4, **caracterizado** pelo fato de que o pigmento compósito comprehende uma estrutura de núcleo-casca oca.

7. Pigmento compósito para aumentar a opacidade de uma formulação de tinta, o pigmento compósito **caracterizado** pelo fato de que comprehende um óxido metálico como um primeiro componente e um segundo componente selecionado a

partir do grupo que consiste em sílica, silicato, óxido metálico, em que:

o referido óxido metálico no primeiro componente é selecionado do grupo que consiste em óxido de zinco, óxido de alumínio, óxido de antimônio, óxido de bário, óxido de magnésio e óxido de zircônio;

o referido óxido metálico no segundo componente, quando presente, é selecionado do grupo que consiste em óxido de zinco, óxido de alumínio, óxido de antimônio, óxido de bário, óxido de magnésio e óxido de zircônio;

o referido óxido metálico como o primeiro componente é pelo menos parcialmente coberto pelo referido segundo componente;

o tamanho de partícula do referido óxido metálico do primeiro componente está na faixa de 5 nm a 100 nm;

o tamanho de partícula do pigmento compósito é de um tamanho para fornecer opacidade ao pigmento e a área superficial específica do pigmento compósito está na faixa de 20 m<sup>2</sup>/g a 100 m<sup>2</sup>/g;

o pigmento compósito é de uma estrutura de núcleo-casca oca, e ainda em que o pigmento compósito é de uma morfologia homogênea ou não homogênea.

8. Pigmento compósito, de acordo com a reivindicação 7, **caracterizado** pelo fato de que a referida estrutura de núcleo-casca oca consiste de cascas de camadas alternadas

de primeiro e segundo componentes.

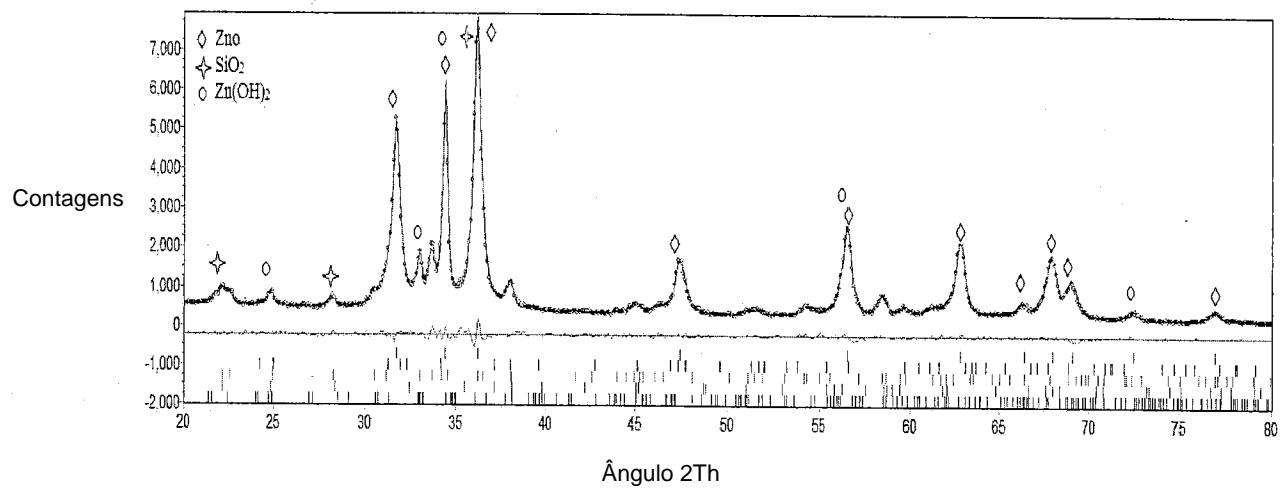


Fig. 1

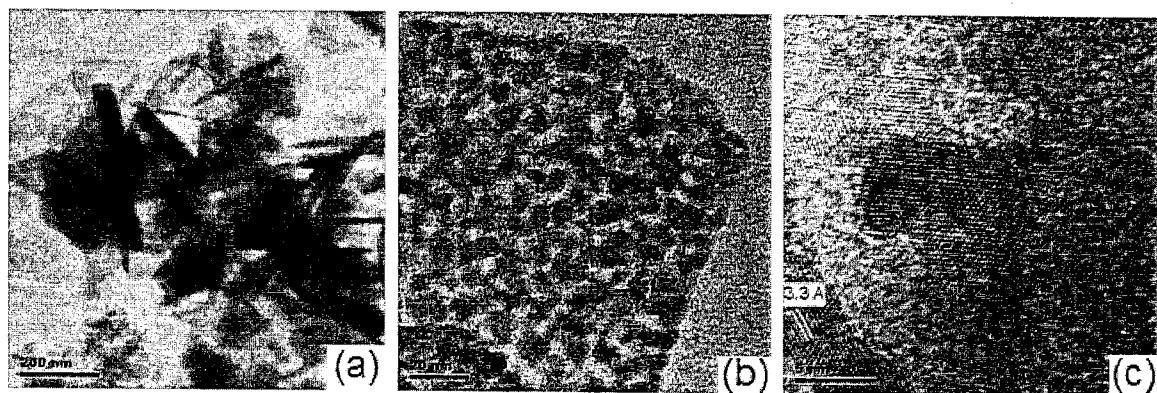


Fig. 2

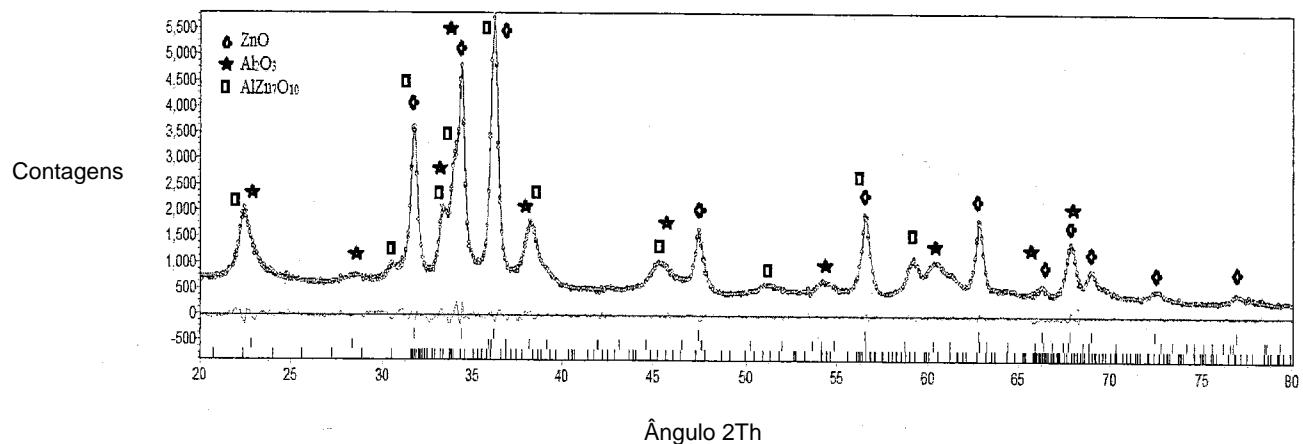


Fig. 3



Fig. 4

Contagens

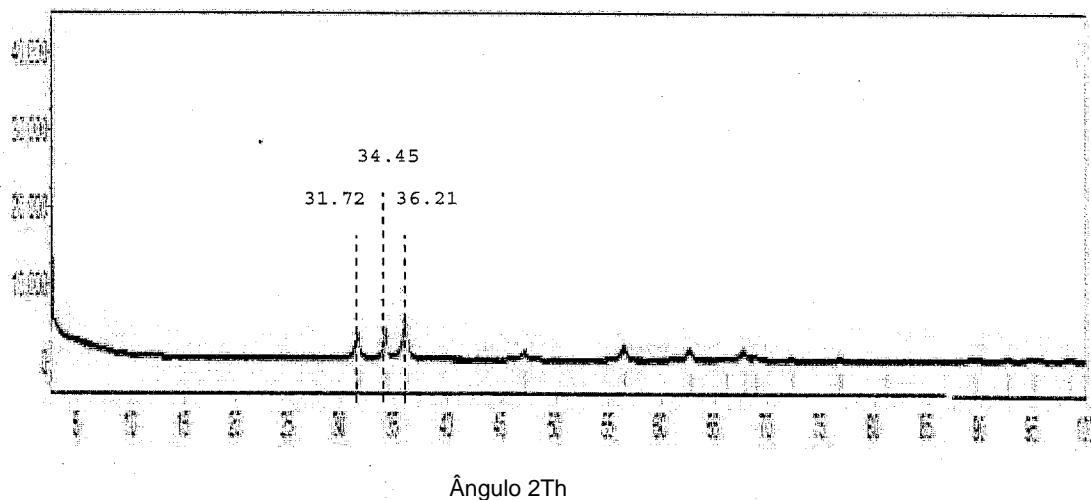


Fig. 5

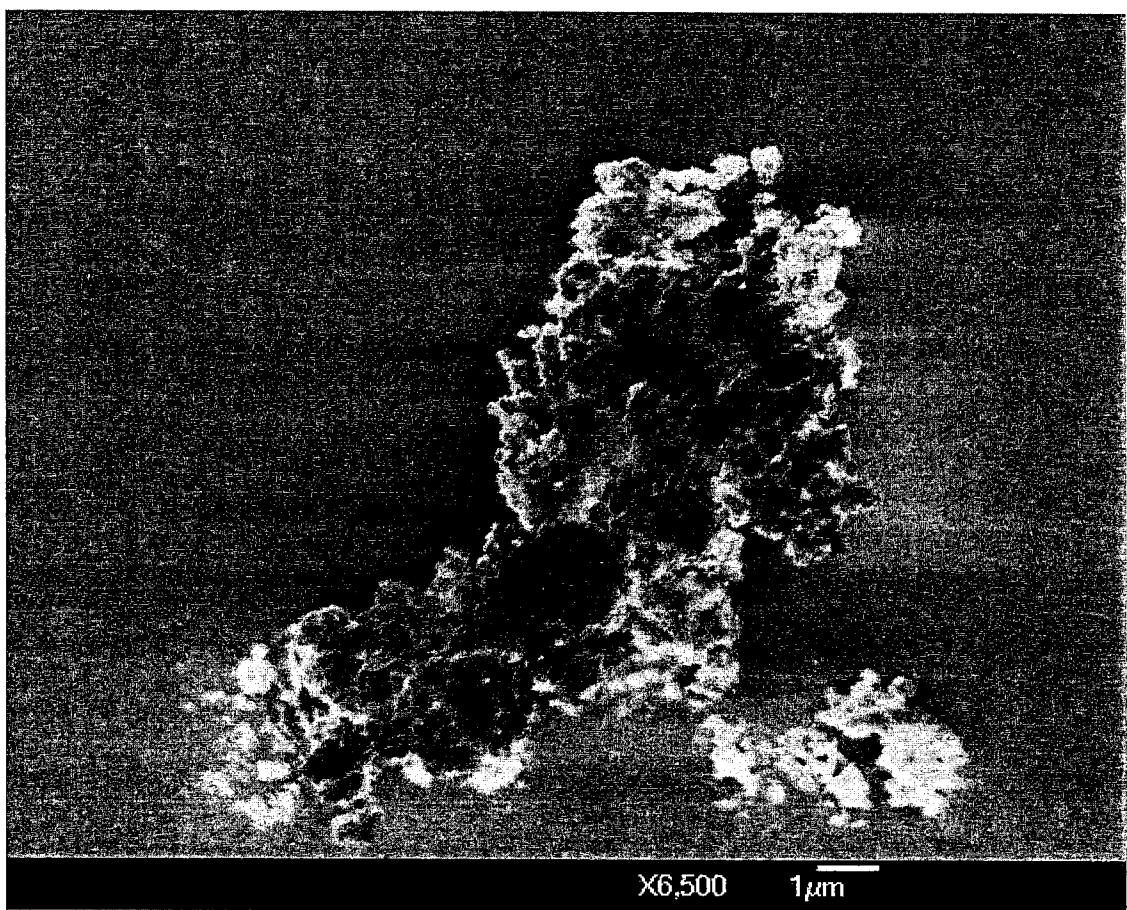


Fig. 6

4 / 4

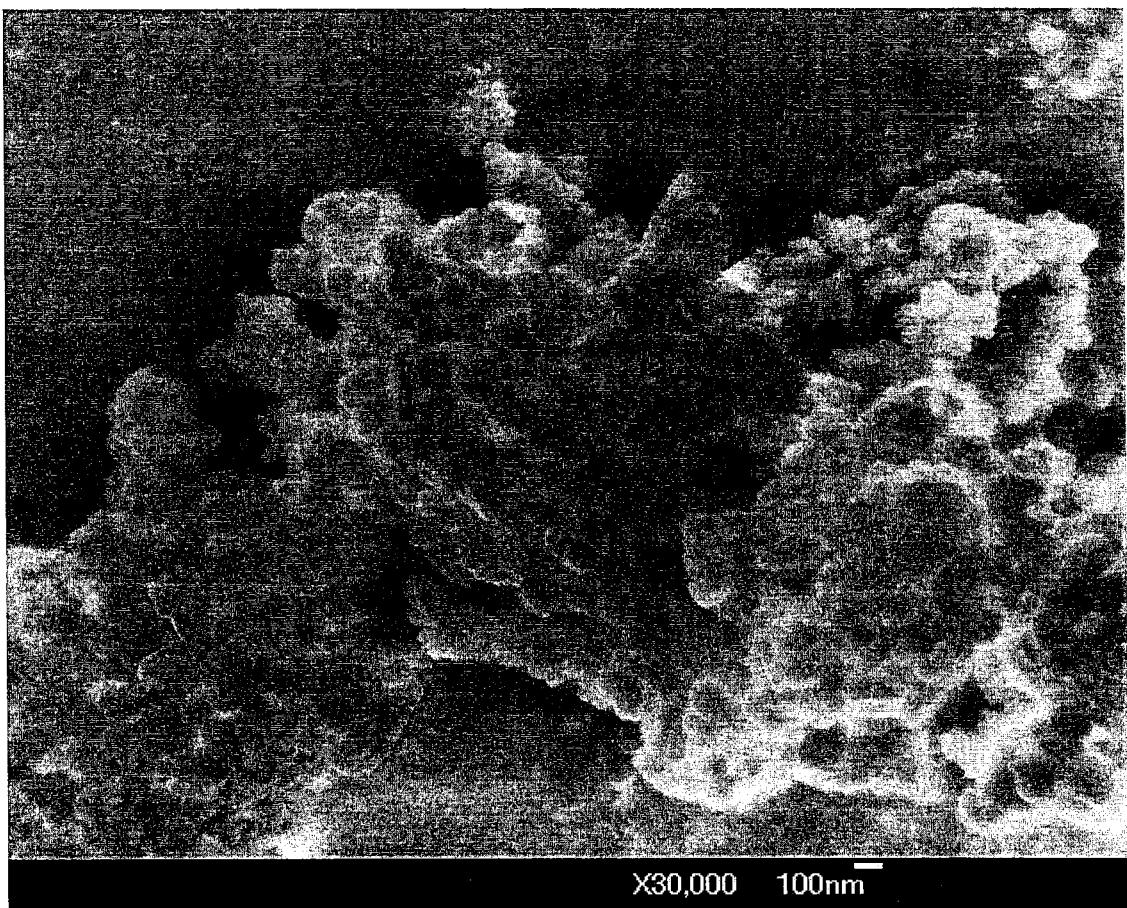


Fig 7