



(10) **DE 10 2012 024 901 A1** 2014.07.10

(12)

## Offenlegungsschrift

(21) Aktenzeichen: **10 2012 024 901.2**

(22) Anmeldetag: **20.12.2012**

(43) Offenlegungstag: **10.07.2014**

(51) Int Cl.: **C09C 3/06** (2006.01)

**C09C 1/28** (2006.01)

**C09C 1/40** (2006.01)

**C09C 1/36** (2006.01)

**A61K 8/02** (2006.01)

**A61K 8/11** (2006.01)

**A61K 8/29** (2006.01)

**C09D 5/36** (2006.01)

**C08K 3/22** (2006.01)

**C08K 9/02** (2006.01)

**D21H 19/38** (2006.01)

**G03G 9/08** (2006.01)

**A61K 47/02** (2006.01)

(71) Anmelder:  
**Merck Patent GmbH, 64293, Darmstadt, DE**

(72) Erfinder:  
**Schmidt, Christoph, Dr., 65830, Kriftel, DE**

**Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen**

(54) Bezeichnung: **Pigmente**

(57) Zusammenfassung: Die vorliegende Erfindung betrifft Interferenzpigmente auf der Basis von mehrfach beschichteten plättchenförmigen Substraten, die auf der Oberfläche des Substrats eine Schichtenfolge aus

(A0) optional einer hochbrechenden Beschichtung bestehend aus einer Schicht aus  $\text{TiO}_2$ ,

(A) einer hochbrechenden Beschichtung bestehend aus einem Gemisch aus  $\text{TiO}_2$  und  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ , die gegebenenfalls mit ein oder mehreren weiteren Oxiden dotiert sein kann,

(B) einer hochbrechenden Schicht bestehend aus  $\text{SnO}_2$ ,

(C) einer hochbrechenden im sichtbaren Wellenlängenbereich absorbierende Beschichtung,

und optional

(D) einer äußeren Schutzschicht aufweisen,

sowie deren Verwendung, insbesondere in Farben, Lacken, Industrielacken, Autolacken, Coil Coating, Pulverlacken, Druckfarben, Kunststoffen, Pigmentanteigungen, Pigmentpräparationen und in Trockenpräparaten, wie z. B. Granulaten.

**Beschreibung**

**[0001]** Die vorliegende Erfindung betrifft Interferenzpigmente auf der Basis von mehrfach beschichteten plättchenförmigen Substraten.

**[0002]** Glanz- oder Effektpigmente werden in vielen Bereichen der Technik eingesetzt, insbesondere im Bereich der Autolacke, der dekorativen Beschichtung, im Kunststoff, in Farben, Druckfarben sowie in kosmetischen Formulierungen.

**[0003]** Interferenzpigmente basieren auf plättchenförmigen Partikeln mit einer inneren Schichtstruktur. Die Dicken der Schichten liegen in der Größenordnung des sichtbaren Lichtes, so dass an den Schichten Interferenzerscheinungen auftreten, die den intensiven Glanz bzw. die Farben hervorrufen. Die Pigmentpartikel bestehen in der Regel aus einem plättchenförmigen zentralen Träger, der mit einer oder mehreren Oxidschichten belegt ist. Die Belegung mit mehreren Oxidschichten führt zu sogenannten Mehrschichtpigmenten, die sich durch besondere Effekte, wie z. B. besonders hohe Winkelabhängigkeit des Farbtones und/oder intensive Farben auszeichnen.

**[0004]** Typische Mehrschichtpigmente dieser Art bestehen aus einer alternierenden Abfolge von Oxiden mit unterschiedlichen Brechzahlen, die auf das Substrat aufgebracht sind.

**[0005]** Als Beispiele seien hier die in der WO 98/53011 und WO 99/20695 beschriebenen Produkte genannt. Eine spezielle Ausführungsform mit einer  $\text{SnO}_2$ -Zwischenschicht wird in der CN101289580 A beschrieben. Darin wird die Herstellung eines goldfarbenen Interferenzpigmentes durch Belegung von Glimmer mit vier aufeinander folgenden Schichten von  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SnO}_2$  und  $\text{TiO}_2$  beschrieben.

**[0006]** Die aus der CN101289580 A bekannten Goldpigmente auf der Basis von Glimmerplättchen haben aber den Nachteil, dass sie eine verhältnismäßig niedrige Farbintensität  $C^*$  für ein Mehrschichtpigment aufweisen.

**[0007]** Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es daher farbstarke Interferenzpigmente mit hoher Farbintensität und einem hohen Glanz bereit zu stellen, die sich durch ihre vorteilhaften Anwendungseigenschaften auszeichnen und gleichzeitig auf einfache Art und Weise hergestellt werden können.

**[0008]** Es wurden nun überraschend Interferenzpigmente auf der Basis plättchenförmiger Substrate mit mindestens zwei im sichtbaren Wellenlängenbereich absorbierenden Schichten gefunden, deren Farbintensität (Buntheit) deutlich über den aus dem Stand der Technik bekannten Pigmente vom Interferenztyp hinausgeht.

**[0009]** Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind Interferenzpigmente auf der Basis von mehrfach beschichteten plättchenförmigen Substraten, die auf der Oberfläche des Substrats eine Schichtenfolge aus

- (A0) optional einer hochbrechenden Beschichtung bestehend aus einer Schicht aus  $\text{TiO}_2$ ,
- (A) einer hochbrechenden Beschichtung bestehend aus einem Gemisch aus  $\text{TiO}_2$  und  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ , die gegebenenfalls mit ein oder mehreren weiteren Oxiden dotiert sein kann,
- (B) einer hochbrechenden Schicht bestehend aus  $\text{SnO}_2$ ,
- (C) einer hochbrechenden im sichtbaren Wellenlängenbereich absorbierende Beschichtung, und optional
- (D) einer äußeren Schutzschicht aufweisen.

**[0010]** Die erfindungsgemäßen Mehrschichtpigmente zeichnen sich gegenüber den Interferenzpigmenten aus dem Stand der Technik durch eine höhere Farbstärke aus und zeigen intensive und brillante Farben im Gold- und Rotbereich.

**[0011]** Die Farbstärke der erfindungsgemäßen Pigmente ist dabei abhängig von der Korngrößenverteilung. Je kleiner die Korngröße, desto deckender ist das erfindungsgemäße Pigment in der jeweiligen Applikation, beispielsweise in einem Autolack, und desto höher ist die Farbstärke.

**[0012]** Die erfindungsgemäßen Pigmente sind den Mehrschichtpigmenten aus dem Stand der Technik nicht nur hinsichtlich ihrer optischen Eigenschaften, wie Glanz und Farbstärke, sondern auch in ihren anwendungstechnischen Eigenschaften, wie z. B. der mechanischen Stabilität und der Photostabilität, deutlich überlegen.

**[0013]** Gegenstand der Erfindung ist weiterhin die Verwendung der erfindungsgemäßen Pigmente in Farben, Lacken, insbesondere Automobillacken, Pulverlacken, Druckfarben, Sicherheitsdruckfarben, Kunststoffen, keramischen Materialien, Gläsern, Papier, in Tonern für elektrophotographische Druckverfahren, im Saatgut, in Gewächshausfolien und Zeltplanen, als Absorber bei der Lasermarkierung von Papier und Kunststoffen, in kosmetischen Formulierungen. Weiterhin sind die erfindungsgemäßen Pigmente auch zur Herstellung von Pigmentanteilungen mit Wasser, organischen und/oder wässrigen Lösemitteln, Pigmentpräparationen sowie zur Herstellung von Trockenpräparaten, wie z. B. Granulaten, Chips, Pellets, Briketts, etc., geeignet. Die Trockenpräparate sind insbesondere für Druckfarben und in der Kosmetik geeignet.

**[0014]** Geeignete Basissubstrate für die erfindungsgemäßen Pigmente sind farblose oder selektiv oder nicht selektiv absorbierende plättchenförmige Substrate. Geeignete Substrate sind insbesondere Schichtsilikate wie natürlicher oder synthetischer Glimmer, Talkum, Kaolin, plättchenförmige Eisen- oder Aluminiumoxide, Glas-,  $\text{SiO}_2$ -,  $\text{TiO}_2$ -, Graphitplättchen, synthetische trägerfreie Plättchen, Titanitrid, Titansilicid, Liquid crystal polymers (LCPs), holographische Pigmente,  $\text{BiOCl}$  und plättchenförmige Mischoxide oder deren Gemische. Besonders bevorzugte Substrate sind Glasplättchen, natürliche oder synthetische Glimmerplättchen und  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Plättchen.

**[0015]** Die Größe der Basissubstrate ist an sich nicht kritisch und kann auf den jeweiligen Anwendungszweck abgestimmt werden. In der Regel haben die plättchenförmigen Substrate eine Dicke zwischen 0,005 und 10  $\mu\text{m}$ , insbesondere zwischen 0,05 und 1  $\mu\text{m}$ . Die Ausdehnung in den beiden anderen Bereichen beträgt üblicherweise 1–500  $\mu\text{m}$ , vorzugsweise 2–300  $\mu\text{m}$  und insbesondere 20–200  $\mu\text{m}$ . Bevorzugte kleinere Partikelgrößen sind weiterhin solche im Bereich von 1–100  $\mu\text{m}$ , insbesondere 5–60  $\mu\text{m}$  und 1–15  $\mu\text{m}$ .

**[0016]** Geeignete Basissubstrate sind aufgrund ihrer glatten Oberflächen insbesondere synthetisch hergestellte Substrate. Besonders bevorzugte synthetische Substrate sind Glasplättchen, Glimmerplättchen und  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Plättchen. Insbesondere bevorzugt sind  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Plättchen.

**[0017]** Geeignete Gläser für die synthetisch hergestellten Glasplättchen sind alle dem Fachmann bekannten Gläser, beispielsweise Silikatgläser, wie Kalknatronglas, Borosilikatglas, Aluminosilikatglas, Bleikristallglas, E-, A-, C-, ECR-Glas, Duranglas, Fensterglas, Laborglas, etc. Derartige Gläser werden aus Sand, Kalk, Tonerde, Borverbindungen, Pottasche, Soda, usw. erschmolzen und in einem geformten Zustand erstarren gelassen. Geeignete Glasplättchen bestehen vorzugsweise aus C-, E-, ECR- oder Borosilikatglas. Es können selbstverständlich auch Gemische von verschiedenen Glasplättchen eingesetzt werden, die sich nur in der Glaszusammensetzung unterscheiden. Insbesondere bevorzugt sind Substratplättchen aus Calcium-Aluminiumborosilikat oder ECR-Glas.

**[0018]** Durch den Zusatz von anorganischen Farbmitteln können die Glasplättchen bei der Herstellung gezielt eingefärbt werden. Geeignete Farbmittel sind solche, die bei der Schmelztemperatur des Glases sich nicht zersetzen. Das Farbmittel wird in der Regel in Mengen von 0,1–50 Gew.-%, insbesondere von 0,2–25 Gew.-% und ganz besonders bevorzugt von 0,5–10 Gew.-%, der Glasschmelze zugesetzt.

**[0019]** Geeignete Färbemittel sind insbesondere die Kationen oder komplexe Anionen der Elemente Cu, Cr, Mn, Fe und Co und/oder deren Kombinationen. Durch den Zusatz der Ionen können intensive Blau-, Grün-, Gelb-, Orange- oder Rotfärbungen erhalten werden. Geeignete Färbemittel sind weiterhin  $\text{TiO}_2$  oder elementare Edelmetalle.

**[0020]** Der Brechungsindex geeigneter Glasplättchen liegt vorzugsweise bei 1,45–1,80, insbesondere bei 1,50–1,70.

**[0021]** Häufig empfiehlt es sich die Oberfläche der Glasplättchen vor der Belegung mit den Schichten (A0)–(C) bzw. (A)–(C) mit einer  $\text{SiO}_2$ -Schicht zu versehen. Die chemische Zusammensetzung der Glasplättchen ist aufgrund der Belegung mit der  $\text{SiO}_2$ -Schicht (Schicht (S)) allerdings von untergeordneter Bedeutung für die weiteren Beschichtungen und die resultierenden anwendungstechnischen Eigenschaften der Pigmente. Durch die  $\text{SiO}_2$ -Belegung wird die Glasoberfläche vor chemischer Veränderung wie Quellung, Auslaugen von Glasbestandteilen oder Auflösung in den aggressiven sauren Belegungsauflösungen geschützt.

**[0022]** Besonders bevorzugt sind Glasplättchen mit einer durchschnittlichen Dicke von  $< 2 \mu\text{m}$ . Dickere Plättchen können in den gängigen Druckverfahren und bei anspruchsvollen Lackierungen in der Regel nicht eingesetzt werden. Vorzugsweise besitzen die Glasplättchen mittlere Dicken von  $< 1 \mu\text{m}$ , insbesondere von  $< 0,9 \mu\text{m}$ . Insbesondere bevorzugt sind Glasplättchen mit Dicken von 200–1000 nm. Der Durchmesser der Glas-

plättchen liegt vorzugsweise bei 5–300 µm, insbesondere bevorzugt bei 10–300 µm. Glasplättchen mit diesen Dimensionen sind kommerziell im Handel erhältlich.

**[0023]** Besonders bevorzugt sind Interferenzpigmente auf der Basis von  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Plättchen. Vorzugsweise besitzen die  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Plättchen folgende Korngrößenverteilungen:

$D_{10}$ : 6–12

$D_{50}$ : 15–23

$D_{90}$ : 28–45.

**[0024]** Die Dicke der  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Plättchen beträgt vorzugsweise 50–500 nm. Der Formfaktor (Verhältnis Durchmesser/Dicke) der  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Plättchen ist vorzugsweise 50–300.

**[0025]** Die Charakterisierung der Teilchengrößenverteilung findet in dieser Patentanmeldung mittels Laserbeugung statt. In der vorliegenden Anmeldung wird die Teilchengrößenverteilung mit dem Gerät Malvern Mastersizer 2000 bestimmt.

**[0026]** Die Dicke der einzelnen Schichten mit hohem Brechungsindex, z. B.  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{SnO}_2$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ , Pseudobrookit,  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  auf dem Basissubstrat ist wesentlich für die optischen Eigenschaften des Pigments. Für ein Pigment mit intensiven Interferenzfarben muss die Dicke der einzelnen Schichten genau aufeinander eingestellt werden. Es hat sich gezeigt, dass die Summe aller Schichten auf dem Substrat eine Dicke von  $\leq 300$  nm, vorzugsweise  $\leq 250$  nm nicht übersteigen sollte.

**[0027]** Die erfindungsgemäßen Interferenzpigmente enthalten mindestens drei hochbrechende Schichten (A)–(C). Sofern die genannten Substrate mit der Schicht (A0) belegt sind, besitzen die erfindungsgemäßen Interferenzpigmente vier hochbrechende Schichten.

**[0028]** Die hochbrechende Schicht (A0) hat einen Brechungsindex  $n \geq 2,0$ , vorzugsweise  $n \geq 2,1$  und ist eine  $\text{TiO}_2$ -Schicht. Die Dicke der Beschichtung (A) beträgt vorzugsweise 10–550 nm, insbesondere 15–400 nm und ganz besonders bevorzugt 20–350 nm.

**[0029]** Die Schicht (A) besteht aus einem Gemisch aus  $\text{TiO}_2$  und  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ . Das Mischungsverhältnis  $\text{TiO}_2$  zu  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  beträgt vorzugsweise 10:1 bis 1:3, insbesondere 3:1 bis 1:2,5. Die Dicke der Beschichtung (A) beträgt vorzugsweise 10–550 nm, insbesondere 15–400 nm und ganz besonders bevorzugt 20–350 nm.

**[0030]** Häufig empfiehlt es sich zur Erhöhung der Farbstärke der Schicht (A) und/oder der Schicht (C) dem  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$ -Gemisch noch ein oder mehrere Oxide, wie z. B.  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Ce}_2\text{O}_3$ ,  $\text{B}_2\text{O}_3$ ,  $\text{ZrO}_2$ ,  $\text{SnO}_2$ , zuzumischen. Der Gew.-%-Anteil der weiteren Oxide neben dem  $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$ -Gemisch sollte in der Schicht (A) bzw. Schicht (C) nicht mehr als 20 Gew.-%, vorzugsweise nicht mehr als 10 Gew.-%, betragen. Vorzugsweise wird ein Metalloxid zugemischt, wie z. B.  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{ZrO}_2$  oder  $\text{SnO}_2$ .

**[0031]** Die Schicht (B) besteht aus  $\text{SnO}_2$  und besitzt vorzugsweise Schichtdicken von 0,5–50 nm, insbesondere 1–30 nm und ganz besonders bevorzugt von 1–25 nm.

**[0032]** Die hochbrechende Beschichtung (C) hat einen Brechungsindex  $n \geq 2,0$ , vorzugsweise  $n \geq 2,1$  und kann aus einer oder mehreren Schichten bestehen. Vorzugsweise handelt es sich bei der Beschichtung (C) um

- eine  $\text{TiO}_2$ -Schicht gefolgt von einer  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ -Schicht
- eine  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ -Schicht
- einer Schicht bestehend aus einem Gemisch aus  $\text{TiO}_2$  und  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ .

**[0033]** Sofern es sich um ein Gemisch aus  $\text{TiO}_2$  und  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  handelt, beträgt das Mischungsverhältnis  $\text{TiO}_2$  zu  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  vorzugsweise 10:1 bis 1:3, insbesondere 3:1 bis 1:2,5 beträgt. Die Dicke der Beschichtung (D) beträgt vorzugsweise 10–550 nm, insbesondere 15–400 nm und ganz besonders bevorzugt 20–350 nm.

**[0034]** Das Titandioxid kann in der hochbrechenden Schicht (A0) oder sofern vorhanden in der Beschichtung (C) kann in der Rutil- oder in der Anatasmodifikation vorliegen. Die Verfahren zur Herstellung von Rutil sind im Stand der Technik beispielsweise beschrieben in der U.S. 5,433,779, U.S. 4,038,099, U.S. 6,626,989, DE 25 22 572 C2, EP 0 271 767 B1. Vorzugsweise wird vor der  $\text{TiO}_2$ -Auffällung auf beschichtete oder unbeschichtete Substratplättchen eine dünne Zinndioxidschicht ( $< 10$  nm) aufgebracht, die als Additiv dient um das  $\text{TiO}_2$  als Rutilphase zu erhalten.

**[0035]** Die Dicke der Schichten (A0) bis (C) bzw. (A) bis (C) richtet sich nach der gewünschten Interferenzfarbe.

**[0036]** Besonders bevorzugte Interferenzpigmente besitzen folgende Schichtenfolgen auf dem plättchenförmigen Substrat:

Substrat +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 Substrat +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 Substrat +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 Substrat +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 Substrat +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{Fe}_3\text{O}_4$   
 Substrat +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  + Karminrot  
 Substrat +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  + Berliner Blau  
 Substrat +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 Substrat +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 Substrat +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 Substrat +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 Substrat +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{Fe}_3\text{O}_4$   
 Substrat +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  + Karminrot  
 Substrat +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  + Berliner Blau.

**[0037]** Ganz besonders bevorzugt sind Interferenzpigmente mit der folgenden Schichtenfolge:

Substrat +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$ .

**[0038]** Der Ausdruck " $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$ " bedeutet, dass hier  $\text{TiO}_2$  und  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  gemischt aufgebracht werden. Das Mischungsverhältnis  $\text{TiO}_2$  zu  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  beträgt vorzugsweise 10:1 bis 1:3, insbesondere 3:1 bis 1:2,5.

**[0039]** Sofern sowohl die Schicht (A) als auch die Beschichtung (C) jeweils aus einem Gemisch von  $\text{TiO}_2$  und  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  bestehen, kann die Zusammensetzung des  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$ -Gemisches gleich oder verschieden sein.

**[0040]** Unter den bevorzugten Mehrschichtpigmenten sind die Pigmente basierend auf  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Plättchen, ferner auf Glasplättchen, besonders bevorzugt. Ganz besonders bevorzugte Mehrschichtpigmente der vorliegenden Erfindung werden nachfolgend genannt:

synthetische Glimmerplättchen +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 synthetische Glimmerplättchen +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 synthetische Glimmerplättchen +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 synthetische Glimmerplättchen +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ .  
 synthetische Glimmerplättchen +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 synthetische Glimmerplättchen +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 synthetische Glimmerplättchen +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 synthetische Glimmerplättchen +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ .  
 Glasplättchen +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 Glasplättchen +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 Glasplättchen +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 Glasplättchen +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ .  
 Glasplättchen +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 Glasplättchen +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 Glasplättchen +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 Glasplättchen +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ .  
 $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Plättchen +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Plättchen +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Plättchen +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Plättchen +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ .  
 $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Plättchen +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Plättchen +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Plättchen +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Plättchen +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ .

**[0041]** Unter hochbrechenden Beschichtungen sind in dieser Anmeldung Schichten mit einem Brechungsindex von  $\geq 1,8$ , unter niedrigbrechenden Schichten solche mit  $n < 1,8$  zu verstehen.

**[0042]** Die erfindungsgemäßen Mehrschichtpigmente lassen sich in der Regel relativ leicht herstellen.

**[0043]** Bei der Nassbeschichtung werden die Substratplättchen in Wasser suspendiert, ggf. mit einer Wasserglaslösung, und dann mit ein oder mehreren hydrolysierbaren Metallsalzen bei einem für die Hydrolyse geeigneten pH-Wert versetzt, der so gewählt wird, dass das  $\text{SiO}_2$ , sofern vorhanden, vorzugsweise bei der Belegung von Glasplättchen, und die bzw. das Metalloxid(e) bzw. Metalloxidhydrat(e) gleichzeitig oder nacheinander, direkt auf das Plättchen ausgefällt werden, ohne dass es zu Nebenfällungen kommt. Der pH-Wert wird üblicherweise durch gleichzeitiges Zudosieren einer Base und/oder Säure konstant gehalten. Anschließend werden die Pigmente abgetrennt, gewaschen und bei 50–150°C für 6–18 h getrocknet und gegebenenfalls 0, 5–3 h geglüht, wobei die Glühtemperatur im Hinblick auf die jeweils vorliegende Beschichtung optimiert werden kann. In der Regel liegen die Glühtemperaturen im Bereich von 600–1100°C, vorzugsweise 700–1000°C. Bei der Verwendung von Glasplättchen als Substrat liegt die Glühtemperatur vorzugsweise im Bereich von 500–800°C. Zuletzt wird das Pigment gesiebt. Falls gewünscht, können die Pigmente nach Aufbringen einzelner Beschichtungen abgetrennt, getrocknet und ggf. geglüht werden, um dann zur Auffällung der weiteren Schichten wieder resuspendiert zu werden.

**[0044]** Weiterhin kann die Beschichtung auch in einem Wirbelbettreaktor durch Gasphasenbeschichtung erfolgen, wobei z. B. die in EP 0 045 851 und EP 0 106 235 zur Herstellung von Perlglanzpigmenten vorgeschlagenen Verfahren entsprechend angewendet werden können.

**[0045]** Der Gold- oder Rot-Farbtönen der Mehrschichtpigmente kann in sehr weiten Grenzen durch die unterschiedliche Wahl der Belegungsmengen bzw. der daraus resultierenden Schichtdicken variiert werden. Die Feinabstimmung für einen bestimmten Farbtönen kann über die reine Mengenwahl hinaus durch visuell oder messtechnisch kontrolliertes Anfahren der gewünschten Farbe erreicht werden.

**[0046]** Zur Erhöhung der Licht-, Wasser- und Wetterstabilität empfiehlt es sich häufig, in Abhängigkeit vom Einsatzgebiet, das fertige Pigment einer Nachbeschichtung oder Nachbehandlung zu unterziehen. Als Nachbeschichtungen bzw. Nachbehandlungen kommen beispielsweise die in den DE-PS 22 15 191, DE-OS 31 51 354, DE-OS 32 35 017 oder DE-OS 33 34 598 beschriebenen Verfahren in Frage. Durch diese Nachbeschichtung (Schicht D) wird die chemische und photochemische Stabilität weiter erhöht oder die Handhabung des Pigments, insbesondere die Einarbeitung in unterschiedliche Medien, erleichtert. Zur Verbesserung der Benetzbarkeit, Dispergierbarkeit und/oder Verträglichkeit mit den Anwendermedien können beispielsweise funktionelle Beschichtungen aus  $\text{Al}_2\text{O}_3$  oder  $\text{ZrO}_2$  oder deren Gemische auf die Pigmentoberfläche aufgebracht werden. Weiterhin sind organische Nachbeschichtungen möglich, z. B. mit Silanen, wie beispielsweise beschrieben in der EP 0090259, EP 0 634 459, WO 99/57204, WO 96/32446, WO 99/57204, U.S. 5,759,255, U.S. 5,571,851, WO 01/92425 oder in J. J. Ponjeé, Philips Technical Review, Vol. 44, No. 3, 81 ff. und P. H. Harding J. C. Berg, J. Adhesion Sci. Technol. Vol. 11 No. 4, S. 471–493. Die Schicht (D) weist vorzugsweise Dicken von 0,1–100 nm, insbesondere von 0,1–50 nm und ganz besonders bevorzugt von 0,1–30 nm auf.

**[0047]** In einer bevorzugten Ausführungsform besteht die Schicht (D) aus einer  $\text{SiO}_2$ -Schicht. Diese Schicht kann sowohl kalziniert als auch nicht kalziniert sein. Vorzugsweise handelt es sich um eine kalzinierte  $\text{SiO}_2$ -Schicht.

**[0048]** Da die erfindungsgemäßen Mehrschichtpigmente einen starken Glanz mit intensiven Interferenzfarben und einer ansprechenden Pulverfarbe verbinden, lassen sich mit ihnen besonders wirksame Effekte in den verschiedenen Anwendungsmedien erzielen, z. B. in kosmetischen Formulierungen, wie z. B. Nagellacken, Lippenstiften, Pressspudern, Gelen, Lotionen, Seifen, Zahnpasten, in Lacken wie z. B. Autolacken, Industrielacken und Pulverlacken sowie in Druckfarben, Saattuteinfärbungen, Kunststoffen und in der Keramik.

**[0049]** Die Konzentration des erfindungsgemäßen Pigments im zu pigmentierenden Anwendungssystem liegt in der Regel zwischen 0,1 und 100 Gew.-%, vorzugsweise zwischen 0,1 und 70 Gew.-% und insbesondere zwischen 0,5 und 10 Gew.-%, bezogen auf den Gesamtfestkörpergehalt des Systems. Sie ist in der Regel abhängig vom konkreten Anwendungsfall.

**[0050]** Es versteht sich von selbst, dass für die verschiedenen Anwendungszwecke die erfindungsgemäßen Mehrschichtpigmente auch vorteilhaft in Abmischung mit einem oder mehreren Farbmitteln, z. B. Effektpigmenten ausgewählt aus der Gruppe der Perlglanzpigmente, Interferenzpigmente, goniochromatischen Pigmente,  $\text{BiOCl}$ -Plättchen, Mehrschichtpigmente, Metallpigmente, Glanzpigmenten, und/oder organischen Farbstoffen, und/oder organischen Farbpigmenten und anderen Pigmenten, wie z. B. transparenten und deckenden Weiß-, Bunt- und Schwarzpigmenten sowie mit plättchenförmigen Eisenoxiden, holographischen Pigmenten, LCPs (Liquid Crystal Polymers) und herkömmlichen transparenten, bunten und schwarzen Glanzpigmenten auf der Basis von metalloxidbeschichteten Glimmer- und  $\text{SiO}_2$ -Plättchen, etc., verwendet werden können. Die erfin-

dungsgemäßen Mehrschichtpigmente können in jedem Verhältnis mit einem Farbmittel gemischt werden. Das Gewichtsverhältnis Mehrschichtpigment zu Farbmittel kann je nach Farbausprägung 1:99 zu 99:1 sein.

**[0051]** Als Farbmittel kommen vor allem Perlglanzpigmente insbesondere auf Basis von natürlichem oder synthetischem Glimmer,  $\text{SiO}_2$ -Plättchen,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ -Plättchen, Glasplättchen oder  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Plättchen, die mit einer oder mehreren Metalloxidschichten umhüllt sind, Metalleffektpigmente (Al-Plättchen, Bronzen), optisch variable Pigmente (OVP's), Flüssigkristallpolymerpigmente (LCP's) oder holographische Pigmente in Frage.

**[0052]** Neben den Effektpigmenten als Zumischung kommen insbesondere auch vorwiegend nicht glänzende, konventionelle Farbmittel in Frage, wie z. B.  $\text{TiO}_2$ , eingefärbtes  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{CaSO}_4$ , Eisenoxide, Chromoxide, Ruß, organische Farbpigmente, wie z. B. Anthrachinon-Pigmente, Chinacridon-Pigmente, Diketopyrrolo-pyrrol-Pigmente, Phthalocyanin-Pigmente, Azopigmente, Isoindolin-Pigmente. Weiterhin geeignet sind beispielsweise  $\text{BiOCl}$ -Pigmente, eingefärbte Glasfasern,  $\alpha\text{-FeOOH}$ , organische Farbpigmente, wie z. B. Azopigmente,  $\beta$ -Phthalocyanin CI Blue 15.3, Chromophtalgelb 8GN (Ciba-Geigy), Irgalith Blau PD56 (BASF), Azomethinkupferkomplex CI Yellow 129, Irgazingelb 5GT (BASF) oder ein Gemisch der genannten Farbmittel. Die Farbmittel können dabei sowohl natürlichen als auch synthetischen Ursprungs sein.

**[0053]** Die erfindungsgemäßen Mehrschichtpigmente können selbstverständlich auch mit Füllstoffen in jedem Gewichtsverhältnis miteinander abgemischt werden bzw. eingesetzt werden. Als Füllstoffe sind z. B. zu nennen synthetische organische Polymere, Polymethylmethacrylat, Methylmethacrylat Cross-Polymer, natürlicher und synthetischer Glimmer, Nylon-Pulver, reine oder gefüllte Melaminharze, Talkum,  $\text{SiO}_2$ , Glaspulver, Glaskugeln, Kaolin, Oxide oder Hydroxide von Aluminium, Magnesium, Calcium, Zink,  $\text{BiOCl}$ , Bariumsulfat, Calciumsulfat, Calciumcarbonat, Magnesiumcarbonat, basische Erdalkalicarbonate, wie z. B. Calcium- oder Magnesiumcarbonat, Kohlenstoff, sowie physikalische oder chemische Kombinationen dieser Stoffe. Bezüglich der Partikelform der Füllstoffe gibt es keine Einschränkungen. Sie kann den Anforderungen gemäß z. B. unregelmäßig, plättchenförmig, sphärisch oder nadelförmig sein.

**[0054]** Ebenso können feinteilige, insbesondere nanoskalige, Dielektrika, insbesondere in kosmetischen Formulierungen zur Verbesserung des Hautgefühls, den Mehrschichtpigmenten beigemischt werden. Beispiele für derartige Beimischungen sind  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{ZnO}$  oder  $\text{TiO}_2$ , die üblicherweise in Mengen von 0,01–15 Gew.-% der Formulierung zugegeben werden.

**[0055]** Die erfindungsgemäßen Mehrschichtpigmente sind mit einer Vielzahl von Farbsystemen kompatibel, vorzugsweise aus dem Bereich der Lacke, Farben und Druckfarben. Für die Herstellung der Druckfarben für z. B. den Tiefdruck, Flexodruck, Offsetdruck, Offsetüberdrucklackierung, ist eine Vielzahl von Bindern, insbesondere wasserlösliche Typen, geeignet, wie sie z. B. von den Firmen BASF, Marabu, Pröll, Sericol, Hartmann, Gebr. Schmidt, Sicpa, Aarberg, Sieberg, GSB-Wahl, Follmann, Ruco oder Coates Screen INKS GmbH vertrieben werden. Die Druckfarben können auf Wasserbasis oder Lösemittelbasis aufgebaut sein. Weiterhin sind die erfindungsgemäßen Mehrschichtpigmente auch für die Lasermarkierung von Papier und Kunststoffen, sowie für Anwendungen im Agrarbereich, z. B. für Gewächshausfolien, sowie z. B. für die Farbgebung von Zeltplanen, geeignet.

**[0056]** Bei der Pigmentierung von Bindemittelsystemen z. B. für Farben und Druckfarben für den Tiefdruck, Offsetdruck oder Siebdruck, oder als Vorprodukt für Druckfarben, hat sich der Einsatz der erfindungsgemäßen Mehrschichtpigmente in Form von hochpigmentierten Pasten, Granulaten, Pellets, etc., als besonders geeignet erwiesen. Das erfindungsgemäße Pigment wird in der Regel in die Druckfarbe in Mengen von 2–35 Gew.-%, vorzugsweise 5–25 Gew.-%, und insbesondere 8–20 Gew.-% eingearbeitet. Offsetdruckfarben können die Pigmente mit einem Anteil von bis zu 40 Gew.-% und mehr enthalten. Die Vorprodukte für die Druckfarben, z. B. in Granulatform, als Pellets, Briketts, etc., enthalten neben dem Bindemittel und den Additiven bis zu 98 Gew.-% des erfindungsgemäßen Pigments. Druckfarben, die das erfindungsgemäße Mehrschichtpigment enthalten, zeigen in der Regel reinere Farbtöne als Druckfarben mit herkömmlichen Effektpigmenten.

**[0057]** Die erfindungsgemäßen Mehrschichtpigmente sind weiterhin geeignet zur Herstellung von fließfähigen Pigmentpräparationen und Trockenpräparaten, insbesondere für Druckfarben, enthaltend ein oder mehrere erfindungsgemäße Pigmente, Bindemittel und optional ein oder mehrere Additive.

**[0058]** In Kunststoffen enthaltend das erfindungsgemäße Mehrschichtpigment, vorzugsweise in Mengen von 0,01 bis 50 Gew.-%, insbesondere 0,1 bis 7 Gew.-%, lassen sich besonders ausgeprägte Farbeffekte erzielen.

**[0059]** Im Lackbereich, insbesondere im Automobillack, wird das Mehrschichtpigment, auch für 2- und 3-Schichtaufbauten in Mengen von 0,1–20 Gew.-%, vorzugsweise 1 bis 10 Gew.-%, eingesetzt. Typischerweise erfolgt die dekorative Lackierung von Autos in 2 Schichten: zunächst wird auf den Primer eine dekorative, d. h. die die farbbestimmenden Pigmente enthaltende Schicht aufgesprüht. Darauf erfolgt die Lackierung mit einer Klarlackschicht, wodurch die Farbigkeit verstärkt und der Glanz erhöht wird. Die Klarlackschicht trägt außerdem maßgeblich zur Wetterstabilität und Haltbarkeit der Lackierung bei.

**[0060]** Weiterhin kann das erfindungsgemäße Pigment zur Veredlung von Lebensmitteln, z. B. Masse-Einfärbung und/oder Überzüge von Bonbons, Weingummi, wie z. B. Gummibärchen, Pralinen, Lakritze, Konfekt, Zuckerstangen, Puddings, Brausegetränke, Limonaden, etc., oder als Überzug, z. B. bei Dragees und Tabletten im Pharmabereich, eingesetzt werden.

**[0061]** Das erfindungsgemäße Mehrschichtpigment kann auch vorteilhaft in der dekorativen und pflegenden Kosmetik eingesetzt werden. Die Einsatzkonzentration reicht von 0,01 Gew.-% im Shampoo bis zu 100 Gew.-% bei losen Pudern. Bei einer Mischung der erfindungsgemäßen Pigmente mit Füllstoffen, vorzugsweise mit sphärischen Füllstoffen, wie z. B.  $\text{SiO}_2$ , kann die Konzentration bei 0,01–70 Gew.-% in der kosmetischen Formulierung liegen. Die kosmetischen Produkte, wie z. B. Nagellacke, Presspuder, Shampoos, lose Puder und Gele, zeichnen sich durch besonders interessante Farbeffekte und einen hohen Glanz aus.

**[0062]** Den Konzentrationen der erfindungsgemäßen Mehrschichtpigmente in der Formulierung sind keine Grenzen gesetzt. Sie können – je nach Anwendungsfall – zwischen 0,001 (rinse-off-Produkte, z. B. Duschgele) und 100% (z. B. Glanzeffekt-Artikel für besondere Anwendungen) liegen.

**[0063]** Aufgrund des guten Skin Feelings und der sehr guten Hautadhäsion sind die erfindungsgemäßen Pigmente sowohl für Personal Care Applications, wie z. B. Body Lotions, Emulsionen, Shampoos, Seifen, etc., als auch insbesondere für die dekorative Kosmetik geeignet.

**[0064]** Selbstverständlich können die erfindungsgemäßen Mehrschichtpigmente in den Formulierungen auch mit jeder Art von Roh- und Hilfsstoffen sowie Wirkstoffen kombiniert werden. Dazu gehören u. a. Wasser, Alkohole, Polyole, polare und unpolare Öle, Fette, Wachse, Filmbildner, Polymere, Co-Polymere, Tenside, Radikalfänger, Antioxidantien, wie z. B. Vitamin C oder Vitamin E, Stabilisatoren, Geruchsverstärker, Silikonöle, Emulgatoren, Duftstoffe, Lösemittel wie z. B. Ethanol, Ethylacetat oder Butylacetat, Konservierungsmittel und allgemein anwendungstechnische Eigenschaften bestimmende Hilfsstoffe, wie z. B. Verdicker und rheologische Zusatzstoffe wie etwa Bentonite, Hektorite, Siliciumdioxide, Ca-Silicate, Gelatine, hochmolekulare Kohlenhydrate und/oder oberflächenaktive Hilfsmittel, etc.

**[0065]** Geeignete Wirkstoffe sind z. B. Insect Repellents, anorganische UV-Filter, wie z. B.  $\text{TiO}_2$ , UV A/BC-Schutzfilter (z. B. OMC, B3, MBC), auch in verkapselter Form, Anti-Ageing-Wirkstoffe, Vitamine und deren Derivate (z. B. Vitamin A, C, E, etc.), Selbstbräuner (z. B. DHA, Erythrolyse, u. a.) sowie weitere kosmetische Wirkstoffe, wie z. B. Bisabolol, LPO, VTA, Ectoin, Emblica, Allantoin, Bioflavonoide und deren Derivate.

**[0066]** Organische UV-Filter werden in der Regel in einer Menge von 0,5 bis 10 Gew.-%, vorzugsweise 1 bis 8 Gew.-%, anorganische Filter von 0,1 bis 30 Gew.-% in kosmetische Formulierungen eingearbeitet.

**[0067]** Die erfindungsgemäßen Mehrschichtpigmente können beispielsweise in Lippenstiften, Lipgloss, Rouge, Eyeliner, Lidschatten, (Volumen)Mascara, Nagellacke, Tagescremes, Nachtcremes, Körperlotionen, Reinigungsmilch, Körperpuder, Haargele, Haarmasken, Haarspülungen, Haarshampoos, Duschgelen, Duschölen, Badeölen, Sonnenschutz, Prä-Sun- und After-Sun-Präparate, Bräunungslotionen, Bräunungssprays, Make-ups, Lotions, Seifen, Badesalze, Zahnpasta, Gesichtsmasken, Presspuder, lose Puder und Gele, etc., verwendet werden. Die Herstellung derartiger Produkte erfolgt auf eine Weise, wie sie dem Fachmann auf diesem Gebiet bekannt ist.

**[0068]** Gegenstand der Erfindung sind insbesondere Formulierungen, die neben dem erfindungsgemäßen Mehrschichtpigment mindestens einen Bestandteil ausgewählt aus der Gruppe der Absorptionsmittel, Adstringenzen, antimikrobiellen Stoffen, Antioxidantien, Antiperspirantien, Antischäummitteln, Antischuppenwirkstoffen, Antistatika, Bindemitteln, biologischen Zusatzstoffen, Bleichmitteln, Chelatbildnern, Desodorierungsmitteln, Emollienten, Emulgatoren, Emulsionsstabilisatoren, Farbstoffen, Feuchthaltemitteln, Filmbildnern, Füllstoffen, Geruchsstoffen, Geschmacksstoffen, Insect Repellents, Konservierungsmitteln, Korrosionsschutzmitteln, kosmetischen Ölen, Lösungsmitteln, Oxidationsmitteln, pflanzlichen Bestandteilen, Puffersubstanzen, Re-

duktionsmitteln, Tensiden, Treibgasen, Trübungsmitteln, UV-Filtern und UV-Absorbern, Vergällungsmitteln, Viskositätsreglern, Parfüm und Vitaminen enthalten.

**[0069]** Gegenstand der Erfindung ist weiterhin auch die Verwendung der Pigmente in Formulierungen wie Farben, Lacken, Industrielacken, Coil Coating, Automobillacken, Autoreparaturlacken, Automobillacken, Pulverlacken, Druckfarben, Sicherheitsdruckfarben, Kunststoffen, keramischen Materialien, Gläsern, Papier, in Tonern für elektrophotographische Druckverfahren, im Saatgut, in Gewächshausfolien und Zeltplanen, als Absorber bei der Lasermarkierung von Papier und Kunststoffen, in kosmetischen Formulierungen, zur Herstellung von Pigmentanteigungen mit Wasser, organischen und/oder wässrigen Lösemitteln, zur Herstellung von Pigmentpräparationen und Trockenpräparaten, wie z. B. Granulate, Pellets, Chips, Briketts, zur Masseinfärbung von Lebensmitteln, zur Einfärbung von Überzügen von Lebensmittelprodukten und Pharmaerzeugnissen, z. B. als Überzug bei Dragees und Tabletten.

**[0070]** Besonders bevorzugt ist der Einsatz der erfindungsgemäßen Mehrschichtpigmente in Oberflächenbeschichtungen, wie z. B. Autolacken und Industrielacken, Pulverbeschichtungen, Coil Coating sowie in Druckfarben.

**[0071]** Typischerweise erfolgt die dekorative Lackierung von Autos in 2 Schichten: zunächst wird auf den Primer eine dekorative, d. h. die die farbbestimmenden Pigmente enthaltende Schicht aufgesprüht. Darauf erfolgt die Lackierung mit einer Klarlackschicht, wodurch die Farbigkeit verstärkt und der Glanz erhöht wird. Die Klarlackschicht trägt außerdem maßgeblich zur Wetterstabilität und Haltbarkeit der Lackierung bei.

**[0072]** Die nachfolgenden Beispiele sollen die Erfindung näher erläutern ohne sie jedoch zu beschränken.

#### Beispiele:

##### Beispiel 1: $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Plättchen + $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$ + $\text{SnO}_2$ + $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$ )

**[0073]** 100 g  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Plättchen der Teilchengröße 5–40  $\mu\text{m}$  werden in 1,5 l entmineralisiertem Wasser auf 75°C aufgeheizt. Nach Erreichen dieser Temperatur werden unter starkem Rühren 460 g einer Mischlösung von 167 g  $\text{TiCl}_4$ -Lösung (30 Gew.-%  $\text{TiCl}_4$ ), 222 g  $\text{FeCl}_3$ -Lösung (14% Fe), 6,6 g  $\text{AlCl}_3 \times 6\text{H}_2\text{O}$  und 111 g entmineralisiertem Wasser langsam zudosiert. Der pH-Wert wird mit 32%iger Natronlauge konstant bei pH 2,6 gehalten. Nach Zugabe dieser Lösung wird der pH-Wert mit Salzsäure (18% HCl) auf pH = 1,8 abgesenkt und bei diesem pH-Wert innerhalb von 300 Minuten 805 g einer mit konzentrierter Salzsäure stabilisierten  $\text{SnCl}_4$ -Lösung (2 Gew.-%  $\text{SnCl}_4$ ) zudosiert. Danach wird der pH-Wert mit 32%iger Natronlauge auf 2,6 angehoben und 835 g einer Mischlösung von 306 g  $\text{TiCl}_4$ -Lösung (30 Gew.-%  $\text{TiCl}_4$ ), 399 g  $\text{FeCl}_3$ -Lösung (14% Fe), 11,8 g  $\text{AlCl}_3 \times 6\text{H}_2\text{O}$  und 224 g entmineralisiertem Wasser langsam zudosiert. Dabei wird der pH-Wert mit 32%iger Natronlauge konstant gehalten. Anschließend wird der pH-Wert mit 32%iger Natronlauge auf pH = 5,0 angehoben und 15 Minuten nachgerührt.

**[0074]** Das Pigment wird abfiltriert, mit entmineralisiertem Wasser gewaschen und 16 h bei 110°C getrocknet. 15 g des Produktes werden bei 820°C 30 Min. lang gegläht.

**[0075]** Man erhält ein leicht grünstichiges Goldpigment mit intensiver Farbe, hohem Deckvermögen und starkem Glanz.

##### Beispiel 2: $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Plättchen + $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$ + $\text{SnO}_2$ + $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$ )

**[0076]** 100 g  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Plättchen der Teilchengröße 5–40  $\mu\text{m}$  werden in 1,5 l entmineralisiertem Wasser auf 75°C aufgeheizt. Nach Erreichen dieser Temperatur werden unter starkem Rühren 460 g einer Mischlösung von 167 g  $\text{TiCl}_4$ -Lösung (30 Gew.-%  $\text{TiCl}_4$ ), 222 g  $\text{FeCl}_3$ -Lösung (14% Fe), 6,6 g  $\text{AlCl}_3 \times 6\text{H}_2\text{O}$  und 101 g entmineralisiertem Wasser langsam zudosiert. Der pH-Wert wird mit 32%iger Natronlauge konstant bei pH 2,6 gehalten. Nach Zugabe dieser Lösung wird der pH-Wert mit Salzsäure (18% HCl) auf pH = 1,8 abgesenkt und bei diesem pH-Wert innerhalb von 300 Minuten 805 g einer mit konzentrierter Salzsäure stabilisierten  $\text{SnCl}_4$ -Lösung (2 Gew.-%  $\text{SnCl}_4$ ) zudosiert. Danach wird der pH-Wert mit 32%iger Natronlauge auf 2,6 angehoben und 760 g einer Mischlösung von 306 g  $\text{TiCl}_4$ -Lösung (30 Gew.-%  $\text{TiCl}_4$ ), 399 g  $\text{FeCl}_3$ -Lösung (14% Fe), 11,8 g  $\text{AlCl}_3 \times 6\text{H}_2\text{O}$  und 224 g entmineralisiertem Wasser langsam zudosiert. Dabei wird der pH-Wert mit 32%iger Natronlauge konstant gehalten. Anschließend wird der pH-Wert mit 32%iger Natronlauge auf pH = 5,0 angehoben und 15 Minuten nachgerührt.

**[0077]** Das Pigment wird abfiltriert, mit entmineralisiertem Wasser gewaschen und 16 h bei 110°C getrocknet. 15 g des Produktes werden bei 850°C 30 Min. lang gegläht.

**[0078]** Man erhält ein stark grünstichiges Goldpigment mit intensiver Farbe, hohem Deckvermögen und starkem Glanz.

Beispiel 3: Glasplättchen + SiO<sub>2</sub> + TiO<sub>2</sub>/Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> + SnO<sub>2</sub> + TiO<sub>2</sub>/Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)

**[0079]** 150 g Calciumaluminiumborosilikat-Plättchen der Teilchengröße 20–200 µm werden in 1,5 l entmineralisiertem Wasser auf 75°C aufgeheizt. Nach Erreichen dieser Temperatur wird der pH-Wert auf pH 9,0 eingestellt und unter starkem Rühren 110,8 g Na<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub>-Lösung (13,75% SiO<sub>2</sub>) im Laufe von 50 Minuten zudosiert. Der pH wird dabei mit Salzsäure (18% HCl) konstant gehalten. Danach wird der pH auf 2,6 abgesenkt und 250 g einer Mischung von 197 g FeCl<sub>3</sub>-Lösung (14,2% Fe), 148 g TiCl<sub>4</sub>-Lösung (32% TiCl<sub>4</sub>) und 6,1 g AlCl<sub>3</sub>-Lösung (29% AlCl<sub>3</sub>) im Laufe von 60 Minuten zudosiert. Anschließend wird der pH 1,8 abgesenkt und eine Mischung von 25,9 g SnCl<sub>4</sub>-Lösung, 66 g Salzsäure (37% HCl) und 500 g VE-Wasser im Laufe von 200 Min. zudosiert. Anschließend wird der pH wieder auf 2,6 angehoben und 285 ml einer Mischung von 197 g FeCl<sub>3</sub>-Lösung (14,2% Fe), 148 g TiCl<sub>4</sub>-Lsg. (32% TiCl<sub>4</sub>) und 6,1 g AlCl<sub>3</sub>-Lösung (29% AlCl<sub>3</sub>) im Laufe von 350 Minuten zudosiert. Der pH-Wert wird jeweils mit Natronlauge (32%) konstant gehalten. Anschließend wird der pH-Wert mit 32%iger Natronlauge auf pH = 5,0 angehoben und 15 Minuten nachgerührt.

**[0080]** Das Pigment wird abfiltriert, mit entmineralisiertem Wasser gewaschen und 16 h bei 110°C getrocknet. 15 g des Produktes werden bei 650°C 30 Min. lang gegläht. Man erhält ein Goldpigment mit intensiver Farbe und starker Glitzereffekt.

Beispiel 4: SiO<sub>2</sub>-Plättchen + TiO<sub>2</sub>/Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> + SnO<sub>2</sub> + TiO<sub>2</sub>/Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

**[0081]** 100 g SiO<sub>2</sub>-Plättchen der Teilchengröße 10–60 µm werden in 2 l entmineralisiertem Wasser auf 75°C aufgeheizt. Nach Erreichen dieser Temperatur werden unter starkem Rühren 415 g einer Mischlösung von 178 g TiCl<sub>4</sub>-Lösung (30 Gew.-% TiCl<sub>4</sub>), 237 g FeCl<sub>3</sub>-Lösung (14% Fe), 7,0 g AlCl<sub>3</sub> × 6H<sub>2</sub>O und 117 g entmineralisiertem Wasser langsam zudosiert. Der pH-Wert wird mit 32%iger Natronlauge konstant bei pH 2,6 gehalten. Nach Zugabe dieser Lösung wird der pH-Wert mit Salzsäure (18% HCl) auf pH = 1,8 abgesenkt und bei diesem pH-Wert innerhalb von 300 Minuten 750 g einer mit konzentrierter Salzsäure stabilisierten SnCl<sub>4</sub>-Lösung (2 w.-% SnCl<sub>4</sub>) zudosiert. Danach wird der pH-Wert mit 32%-iger Natronlauge auf 2,6 angehoben und 660 g einer Mischlösung von 218 g TiCl<sub>4</sub>-Lösung (30 Gew.-% TiCl<sub>4</sub>), 289 g FeCl<sub>3</sub>-Lösung (14% Fe), 8,6 g AlCl<sub>3</sub> × 6H<sub>2</sub>O und 145 g entmineralisiertem Wasser langsam zudosiert. Dabei wird der pH-Wert mit 32%iger Natronlauge konstant gehalten. Anschließend wird der pH-Wert mit 32%iger Natronlauge auf pH = 5,0 angehoben und 15 Minuten nachgerührt. Das Pigment wird abfiltriert, mit entmineralisiertem Wasser gewaschen und 16 h bei 110°C getrocknet. 15 g des Produktes werden bei 850°C 30 Min. lang gegläht. Man erhält ein Goldpigment mit intensiver Farbe und starkem Glanz.

Beispiel 5: (Glimmerplättchen + TiO<sub>2</sub> + TiO<sub>2</sub>/Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> + SnO<sub>2</sub> + TiO<sub>2</sub>/Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)

**[0082]** 100 g Glimmerplättchen (Dicke: 100–500 nm, D<sub>50</sub> = 15–30 µm) werden in 1,5 l entmineralisiertem Wasser auf 75°C aufgeheizt. Nach Erreichen dieser Temperatur wird der pH-Wert mit Salzsäure (18% HCl) auf pH 2,2 eingestellt und unter starkem Rühren 22 g TiCl<sub>4</sub>-Lösung (32% TiCl<sub>4</sub>) innerhalb von 20 Minuten zudosiert. Der pH wird dabei mit Salzsäure (18% HCl) konstant gehalten. Danach wird der pH mit Natronlauge (32% NaOH) auf 2,6 erhöht und 552 g einer Mischung von 236 g FeCl<sub>3</sub>-Lösung (14,2% Fe), 178 g TiCl<sub>4</sub>-Lösung (32% TiCl<sub>4</sub>) und 7,3 g AlCl<sub>3</sub>-Lösung (29% AlCl<sub>3</sub>) im Laufe von 250 Min. zudosiert. Anschließend wird der pH 1,8 abgesenkt und eine Mischung von 34,6 g SnCl<sub>4</sub>-Lösung (50% SnCl<sub>4</sub>), 90 g Salzsäure (37% HCl) und 680 g VE-Wasser im Laufe von 200 Minuten zudosiert. Anschließend wird der pH mit Salzsäure (18% HCl) wieder auf 2,6 angehoben und 342 ml einer Mischung von 236 g FeCl<sub>3</sub>-Lösung (14,2% Fe), 178 g TiCl<sub>4</sub>-Lösung (32% TiCl<sub>4</sub>) und 7,3 g AlCl<sub>3</sub>-Lösung (29% AlCl<sub>3</sub>) im Laufe von 160 Min. zudosiert. Der pH-Wert wird jeweils mit Natronlauge (32%) konstant gehalten. Anschließend wird der pH-Wert mit 32%iger Natronlauge auf pH = 5,0 angehoben und 15 Minuten nachgerührt.

**[0083]** Das Pigment wird abfiltriert, mit entmineralisiertem Wasser gewaschen und 16 h bei 110°C getrocknet. 15 g des Produktes werden bei 820°C 30 Min. lang gegläht. Man erhält ein Goldpigment mit intensiver Farbe und starkem Glitzereffekt.

## Vergleichsbeispiel:

**[0084]** Analog Beispiel 1 der CN 101289580A) werden 100 g synthetischer Glimmer +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  beschichtet.

**[0085]** 100 g Fluorphlogopit-Plättchen der Teilchengröße 10–40  $\mu\text{m}$  werden in 1,6 l entmineralisiertem Wasser auf 85°C aufgeheizt. Nach Erreichen dieser Temperatur wird der pH-Wert mit Salzsäure (18 w.-% HCl) auf 2,3 abgesenkt und unter starkem Rühren 541,4 g einer 32%-igen  $\text{TiCl}_4$ -Lösung im Verlauf von 290 Min. zudosiert. Dabei wird der pH-Wert mit Natronlauge (20w.-%) konstant gehalten.

**[0086]** Anschließend wird der pH-Wert mit Natronlauge auf 4,0 angehoben und eine Mischung von 172 g  $\text{FeCl}_3$ -Lösung (14,2% Fe) 34,9 g  $\text{TiCl}_4$ -Lösung (32%  $\text{TiCl}_4$ ) und 118 g VE-Wasser im Verlauf von 75 Min. zudosiert. Der pH-Wert wird mit 20%iger Natronlauge konstant bei pH 4,0 gehalten. Anschließend wird der pH-Wert mit Salzsäure (18% HCl) auf pH = 1,2 abgesenkt und dann mit Natronlauge (20%) auf pH 1,5 angehoben. Bei diesem pH-Wert wird eine Lösung von 32,1 g  $\text{SnCl}_4$  (50 w.-%  $\text{SnCl}_4$ ) und 82,4 g Salzsäure (32% HCl) in 622,4 g VE-Wasser im Laufe von 240 Minuten zudosiert. Danach wird der pH-Wert mit 32%-iger Natronlauge auf 2,3 angehoben und im Laufe von 300 Minuten 482 g  $\text{TiCl}_4$ -Lösung (32%  $\text{TiCl}_4$ ) zudosiert. Dabei wird der pH-Wert mit 32%iger Natronlauge konstant gehalten. Anschließend wird der pH-Wert mit 32%iger Natronlauge auf pH = 5 angehoben und 15 Minuten nachgerührt.

**[0087]** Das Produkt wird abfiltriert, mit VE-Wasser gewaschen und bei 110°C 10 h lang getrocknet. 15 g des Produktes werden bei 820°C 30 Min. lang geglüht. Man erhält ein bronzefarbenes Pulver.

## Farbmessungen:

**[0088]** In der nachfolgenden Tabelle werden die durch Farbmessung ermittelten Lab-Werte sowie die C\*-Werte aufgeführt (CIE-L\*a\*b\*-Normfarbwertsystem). Der C\*-Wert ist ein direktes Maß für die Farbintensität. Die Messungen werden mit dem ETA-Photometer (Hersteller: STEAG ETA-OPTIK GmbH) durchgeführt.

Tabelle 1:

Pigment	75°/95° schwarzer Untergrund			Farbintensität
	L*	a*	b*	C*
Beispiel 1	142,9	-2,0	117,0	117,0
Beispiel 2	144,5	-16,8	104,6	105,9
Vergleichsbeispiel (CN 101289580 A)	131,1	15,9	49,8	52,3

**[0089]** Die erfindungsgemäßen Pigmente gemäß der Beispiele 1 und 2 zeigen deutlich höhere C\*-Wert im Vergleich zu dem Vergleichsbeispiel.

## Anwendungsbeispiele

## Beispiel A1: Autolack

**[0090]** Die Pigmentpulver lassen sich leicht in Autolacke einarbeiten. Dazu wird die Lackbasis unter Rühren mit dem Pigment versetzt. Der Rührvorgang wird fortgesetzt bis sich das Pigment gleichmäßig im Lack verteilt hat. Der eingefärbte Lack wird auf schwarz und weiß beschichtete Aluminiumprüfbleche aufgesprüht.

## Herstellung der Lackbleche:

Lack: Herberts Basislack 419982

Pigmentierung: 5% des Pigments aus Beispiel 1

Trockenschichtdicke: 15  $\mu\text{m}$

Spritzpistole: Sprimag S 233, Düsendurchmesser 1,5 mm

Spritzdruck: 4 bar

Abstand Düse-Substrat: 27 cm

Beispiel A2: Flexodruck

Herstellung der Druckfarbe:

**[0091]** Das Mehrschichtpigment aus Beispiel 4 wird mit prewetting Byk 348 (0,6%) vorbenetzt und in einer Konzentration von 22,9% in das Bindemittel eingearbeitet.

Bindemittel: Koustom Kote 9000/USA, wasserbasiert

**[0092]** Die Paste wird mit Wasser verdünnt bis eine Viskosität von 40 sec mit dem 4 mm-Erichsen-Becher bei 25°C erreicht.

**[0093]** Die Pigmente werden von einem Anilox-Keramik-Zylinder (24 ccm/m<sup>2</sup>) über ein Lackplattenklischee auf matt-schwarzes Kunstdruckpapier gedruckt. Die erfindungsgemäßen Pigmente zeigen einen sehr starken Farb- und Glitzereffekt.

Beispiel A3: Siebdruck

**[0094]** Die Pigmentkonzentration kann hier je nach gewünschtem Effekt stark variiert werden.

**[0095]** Als Bindemittel eignen sich sowohl wässrige als auch lösemittelhaltige Systeme. Für dem Tageslicht ausgesetzte Flächen empfiehlt sich der Zusatz eines UV-Schutzes, wie z. B. Benzotriazole oder HALS, um die Haltbarkeit der Beschichtung zu erhöhen.

**[0096]** Das Siebdruckgewebe wird nach Korngröße des eingesetzten Pigments ausgewählt. So hat sich z. B. für die Pigmentkorbfraction von 5–40 µm eine Siebmaschenweite von 61–64 bewährt (Fäden/cm – Faden-durchmesser). Als Substrate kommt eine große Auswahl von Flächen in Frage – die wichtigsten Materialien sind Stoffe, Folien, Karton und Papiere bzw. Tapeten.

Anwendungsbeispiel:

15% Pigment aus Beispiel 1  
"Binder": Pröll Aqua Jet FGL M 093: 85%  
Siebgewebe 61–64  
Ggf. Verdünnung mit Wasser  
Laborversuch: 50–150 g Farbe  
Substrat: Luxo Satin 250 g/m<sup>2</sup> (Herst. "Papyrus").

## ZITATE ENTHALTEN IN DER BESCHREIBUNG

*Diese Liste der vom Anmelder aufgeführten Dokumente wurde automatisiert erzeugt und ist ausschließlich zur besseren Information des Lesers aufgenommen. Die Liste ist nicht Bestandteil der deutschen Patent- bzw. Gebrauchsmusteranmeldung. Das DPMA übernimmt keinerlei Haftung für etwaige Fehler oder Auslassungen.*

### Zitierte Patentliteratur

- WO 98/53011 [0005]
- WO 99/20695 [0005]
- CN 101289580 A [0005, 0006, 0084, 0088]
- US 5433779 [0034]
- US 4038099 [0034]
- US 6626989 [0034]
- DE 2522572 C2 [0034]
- EP 0271767 B1 [0034]
- EP 0045851 [0044]
- EP 0106235 [0044]
- DE 2215191 [0046]
- DE 3151354 A [0046]
- DE 3235017 A [0046]
- DE 3334598 A [0046]
- EP 0090259 [0046]
- EP 0634459 [0046]
- WO 99/57204 [0046, 0046]
- WO 96/32446 [0046]
- US 5759255 [0046]
- US 5571851 [0046]
- WO 01/92425 [0046]

### Zitierte Nicht-Patentliteratur

- J. J. Ponjeé, Philips Technical Review, Vol. 44, No. 3, 81 ff. und P. H. Harding J. C. Berg, J. Adhesion Sci. Technol. Vol. 11 No. 4, S. 471–493 [0046]

## Patentansprüche

1. Interferenzpigmente auf der Basis von mehrfach beschichteten plättchenförmigen Substraten, die auf der Oberfläche des Substrats eine Schichtenfolge aus  
 (A0) optional einer hochbrechenden Beschichtung bestehend aus einer Schicht aus  $\text{TiO}_2$ ,  
 (A) einer hochbrechenden Beschichtung bestehend aus einem Gemisch aus  $\text{TiO}_2$  und  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ , die gegebenenfalls mit ein oder mehreren weiteren Oxiden dotiert sein kann,  
 (B) einer hochbrechenden Schicht bestehend aus  $\text{SnO}_2$ ,  
 (C) einer hochbrechenden im sichtbaren Wellenlängenbereich absorbierende Beschichtung,  
 und optional  
 (D) einer äußeren Schutzschicht aufweisen.

2. Interferenzpigment nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet**, dass es sich bei den plättchenförmigen Substraten um natürlichen oder synthetischen Glimmer, Glas-,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -,  $\text{SiO}_2$ - oder  $\text{TiO}_2$ -Plättchen sowie mit Metalloxiden beschichtete, plättchenförmige Materialien handelt.

3. Interferenzpigmente nach Anspruch 1 oder 2, **dadurch gekennzeichnet**, dass es sich bei den plättchenförmigen Substraten um Glimmer-, Glas- oder  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Plättchen handelt.

4. Interferenzpigmente nach oder mehreren der Ansprüche 1 bis 3, **dadurch gekennzeichnet**, dass es sich bei den beschichteten plättchenförmigen Substraten um mit  $\text{SiO}_2$  beschichtete Glasplättchen handelt.

5. Interferenzpigmente nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 4, **dadurch gekennzeichnet**, dass die Beschichtung (A) mit einem oder mehreren Oxiden aus der Gruppe  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Ce}_2\text{O}_3$ ,  $\text{B}_2\text{O}_3$ ,  $\text{ZrO}_2$ ,  $\text{SnO}_2$  dotiert ist.

6. Interferenzpigmente nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 5, **dadurch gekennzeichnet**, dass es sich bei der Beschichtung (C) um  
 – eine  $\text{TiO}_2$ -Schicht gefolgt von einer  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ -Schicht,  
 – eine  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ -Schicht, oder  
 – eine Schicht bestehend aus einem Gemisch aus  $\text{TiO}_2$  und  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ , die gegebenenfalls mit ein oder mehreren weiteren Oxiden dotiert sein kann,  
 handelt.

7. Interferenzpigmente nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 6, **dadurch gekennzeichnet**, dass die Pigmente folgende Schichtenfolgen auf dem Substrat aufweisen:

Substrat +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 Substrat +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 Substrat +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 Substrat +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 Substrat +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{Fe}_3\text{O}_4$   
 Substrat +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  + Karminrot  
 Substrat +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  + Berliner Blau  
 Substrat +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 Substrat +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 Substrat +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 Substrat +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 Substrat +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{Fe}_3\text{O}_4$   
 Substrat +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  + Karminrot  
 Substrat +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  + Berliner Blau

8. Interferenzpigmente nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 7, **dadurch gekennzeichnet**, dass die Pigmente folgenden Aufbau besitzen:

synthetische Glimmerplättchen +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 synthetische Glimmerplättchen +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 synthetische Glimmerplättchen +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 synthetische Glimmerplättchen +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ .  
 synthetische Glimmerplättchen +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 synthetische Glimmerplättchen +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$

synthetische Glimmerplättchen +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 synthetische Glimmerplättchen +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ .  
 Glasplättchen +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 Glasplättchen +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 Glasplättchen +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 Glasplättchen +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ .  
 Glasplättchen +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 Glasplättchen +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 Glasplättchen +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 Glasplättchen +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ .  
 $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Plättchen +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Plättchen +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Plättchen +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Plättchen +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ .  
 $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Plättchen +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Plättchen +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Plättchen +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{TiO}_2$  +  $\text{Fe}_2\text{O}_3$   
 $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Plättchen +  $\text{TiO}_2/\text{Fe}_2\text{O}_3$  +  $\text{SnO}_2$  +  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ .

9. Interferenzpigmente nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 8, **dadurch gekennzeichnet**, dass die Dicke aller Schichten (A0)–(C) auf dem Substrat  $\leq 300$  nm ist.

10. Verfahren zur Herstellung der Interferenzpigmente nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 9, **dadurch gekennzeichnet**, dass die Metalloxide nasschemisch durch hydrolytische Zersetzung von Metallsalzen im wässrigen Medium auf das plättchenförmige Substrat aufgebracht werden.

11. Verwendung der Interferenzpigmente nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 9 in Farben, Lacken, Industrielacken, Coil Coating, Automobillacken, Autoreparaturlacken, Pulverlacken, Druckfarben, Sicherheitsdruckfarben, Kunststoffen, keramischen Materialien, kosmetischen Formulierungen, Gläsern, Papier, in Tonern für elektrophotographische Druckverfahren, im Saatgut, in Gewächshausfolien und Zeltplanen, als Absorber bei der Lasermarkierung von Papier und Kunststoffen, in kosmetischen Formulierungen, zur Herstellung von Pigmentanteigungen mit Wasser, organischen und/oder wässrigen Lösemitteln, zur Herstellung von Pigmentpräparationen und Trockenpräparaten, zur Masseinfärbung von Lebensmitteln, zur Einfärbung von Überzügen von Lebensmittelprodukten und Pharmaerzeugnissen.

12. Formulierungen enthaltend ein oder mehrere Interferenzpigmente nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 9.

13. Pigmentpräparationen enthaltend ein oder mehrere Bindemittel und ein oder mehrere Interferenzpigmente nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 9.

14. Trockenpräparationen enthaltend Interferenzpigmente nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 9.

Es folgen keine Zeichnungen