

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2015-510443

(P2015-510443A)

(43) 公表日 平成27年4月9日(2015.4.9)

| (51) Int.Cl. | F I | テーマコード (参考) |
|-----------------------------|------------|-------------|
| B01J 13/14 (2006.01) | B01J 13/14 | 4C083 |
| C11B 9/00 (2006.01) | C11B 9/00 | Z 4G005 |
| C08G 18/54 (2006.01) | C08G 18/54 | 4H059 |
| A61K 8/11 (2006.01) | A61K 8/11 | 4J034 |
| A61Q 13/00 (2006.01) | A61Q 13/00 | |

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 25 頁)

(21) 出願番号 特願2014-547859 (P2014-547859)
(86) (22) 出願日 平成24年12月13日 (2012.12.13)
(85) 翻訳文提出日 平成26年8月25日 (2014.8.25)
(86) 国際出願番号 PCT/EP2012/075393
(87) 国際公開番号 W02013/092375
(87) 国際公開日 平成25年6月27日 (2013.6.27)
(31) 優先権主張番号 11195110.9
(32) 優先日 平成23年12月22日 (2011.12.22)
(33) 優先権主張国 欧州特許庁 (EP)

(71) 出願人 390009287
フィルメニツヒ ソシエテ アノニム
FIRMENICH SA
スイス国 ジュネーヴ 8 ルート デ
ジュネ 1
1, route des Jeunes,
CH-1211 Geneve 8,
Switzerland
(74) 代理人 100114890
弁理士 アインゼル・フェリックス＝ライ
ンハルト
(74) 代理人 100099483
弁理士 久野 琢也

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ポリウレアマイクロカプセルの製造方法

(57) 【要約】

本発明は、ポリイソシアネートによって安定化されたワン - シェルアミノプラストコア - シェルマイクロカプセルに関する。本発明はまた、液体水性界面活性剤が豊富な消費者製品中のアミノプラストマイクロカプセルの安定化方法も提供する。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

以下の工程：

- 1) 油相を形成するために、香油と、少なくとも 2 つのイソシアネート官能基を有する少なくとも 1 種のポリイソシアネートとを混合する工程、
- 2) 水相を形成するために、アミノプラスト樹脂及び任意に安定剤を水中に分散又は溶解する工程；
- 3) 平均液滴サイズが 1 ~ 100 μm の間に含まれる水中油型分散液を、油相と水相とを混合することによって調製する工程；
- 4) 前記マイクロカプセルの壁を形成するために硬化工程を実施する工程；及び
- 5) 乾燥したコア - シェルマイクロカプセルを得るために最終的な分散液を任意に乾燥する工程

を含む方法によって得られるワン - シェルアミノプラストコア - シェルマイクロカプセル。

10

【請求項 2】

前記香油が、それ自体の質量の 10 % 未満の第 1 級アルコール、それ自体の質量の 15 % 未満の第 2 級アルコール及びそれ自体の質量の 20 % 未満の第 3 級アルコールを含有することを特徴とする、請求項 1 に記載のマイクロカプセル。

【請求項 3】

前記香油が、工程 3) 後に得られた分散液の全質量に対して、約 10 質量% ~ 60 質量% の間を示すことを特徴とする、請求項 1 に記載のマイクロカプセル。

20

【請求項 4】

前記少なくとも 1 種のポリイソシアネートが、少なくとも 1 種の脂肪族ポリイソシアネート及び少なくとも 1 種の芳香族ポリイソシアネートの混合物であり、脂肪族ポリイソシアネート及び芳香族ポリイソシアネートがそれぞれ 80 : 20 ~ 10 : 90 の範囲のモル比であることを特徴とする、請求項 1 に記載のマイクロカプセル。

【請求項 5】

前記少なくとも 1 種のポリイソシアネートが芳香族ポリイソシアネートであることを特徴とする、請求項 1 に記載のマイクロカプセル。

【請求項 6】

前記少なくとも 1 種のポリイソシアネートを、香油の全質量に対して、0.01 質量% ~ 20 質量% の間、好ましくは 0.1 質量% ~ 10 質量% の間、最も好ましくは 0.5 質量% ~ 5 質量% の間に含まれる量で添加することを特徴とする、請求項 1 に記載のマイクロカプセル。

30

【請求項 7】

前記アミノプラスト樹脂がメラミン - ホルムアルデヒド又は尿素 - ホルムアルデヒド縮合物であることを特徴とする、請求項 1 に記載のマイクロカプセル。

【請求項 8】

前記アミノプラスト樹脂を、工程 3) 後に得られた分散液の全質量に対して、0.5 質量% ~ 15 質量% の間に含まれる量で添加することを特徴とする、請求項 1 に記載のマイクロカプセル。

40

【請求項 9】

液体付香消費者製品であって、

- a) 消費者製品の全質量に対して 2 ~ 65 質量% の少なくとも 1 種の界面活性剤；
- b) 水；及び
- c) 請求項 1 に記載のマイクロカプセル

を含む、前記液体付香消費者製品。

【請求項 10】

前記製品がホームケア又はパーソナルケア製品であることを特徴とする、請求項 9 に記載の液体付香消費者製品。

50

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

技術分野

本発明は、ポリイソシアネートによって安定化されたアミノプラストマイクロカプセル及び前記カプセルを含む液体水性界面活性剤に富む消費者製品に関する。本発明は、液体水性界面活性剤に富む消費者製品中のアミノプラストマイクロカプセルの安定化方法も提供する。

【0002】

本発明の背景及び解決されるべき課題

香料産業が直面する問題の1つは、それらの揮発性、特に「トップノート」の揮発性のために発香性化合物によって与えられる嗅覚上の利益の比較的急速な損失にある。この問題は一般に、送達系、例えば、制御された方法でフレグランスを放出するための香料を含有するカプセルを用いて取り組まれている。メラミン-ホルムアルデヒド樹脂で形成されたアミノプラストマイクロカプセルは、疎水性活性物質をカプセル化するために使用されることが多く、従って、前記活性物質を保護し且つそれらの制御放出を提供する。

10

【0003】

しかしながら、アミノプラストのものなどのカプセルは、特に高温での長期保存後の香料消費者製品などの界面活性剤を含む消費者製品に使用される時に安定性の問題が生じる。かかる製品では、カプセル化された活性物質は無傷のままであっても、製品ベース中のカプセル化された活性物質を可溶化することが可能な界面活性剤の存在のために壁を通じた拡散によってカプセルから漏出しやすい。漏れ現象は、活性物質を保護し且つその制御放出を提供するカプセルの効率を低下させる。これは、特に、活性物質が香料などの揮発性成分である場合に不利である。

20

【0004】

多様な技術が香料消費者製品中にアミノプラストカプセルの安定性を改善するために開発されてきた。一つのアプローチでは、カプセル化材料の組成は、特に漏洩を回避するように設計されている（例えば、US 2005/0112152号、EP 1894603号及びUS 2005/0153135号を参照）。この解決策の欠点は、カプセル化されるべき活性物質に関して制限を課し、従って、その官能特性に基づいて香料を作り出す調香師の自由を奪うことである。

30

【0005】

あるいは、幾つかの先行技術文献は、追加の層又はシェル（2つのシェル系）を有するカプセルのコーティングを開示している（WO 2004/016234号を参照のこと）。かかるアプローチの欠点は、アミノプラストカプセルの製造の古典的な方法と比較した場合、製造時に追加の工程が必要であり、追加の化学工程及びコストが生じることである。

【0006】

従って、界面活性剤を含む消費者製品に組み込まれる時に、香料のカプセル外への漏れを低減するための従来技術の方法は、多くの場合、カプセルの嗅覚性能を低下させる欠点を有する。

40

【0007】

従って、例えば、賦香製品などの液体水性界面活性剤を含有する消費者製品などの用途で、アミノプラストカプセルの安定性を改善するための方法を提供することが特に興味深い。界面活性剤含有製品の良好な安定性と同時に良好な嗅覚的性能を有するカプセルを提供することが更に一層有利である。従って、カプセルは、貯蔵の間の香料の保持と製品の使用時の香料の適切な放出との間で適正なバランスでなければならない。本発明はこれらの課題に対処している。更に、カプセル化プロセスの間の高温と非常に酸性条件を含まず、またカプセル化が行われた後の追加の加工工程も必要としない、これらの課題への解決策を提供することが更に好ましい。

50

【 0 0 0 8 】

先行技術文献は、カプセル化が行われる前にカプセル化されるべき活性物質と組み合わされた添加剤を使用することによるアミノプラストカプセルの安定化を記載していない。特に、かかる添加剤のようなポリイソシアネートの使用は、従来技術において全く記載も示唆もされていない。

【 0 0 0 9 】

米国特許第 4, 3 5 3, 8 0 9 号は、マイクロカプセルを形成するためのアミノプラスト樹脂とポリイソシアネート化合物との組み合わせを開示している。しかしながら、この文献は、紙にカプセルを適用する全く異なる技術分野に関するものである。従って、カプセルは、液体水性界面活性剤ベースの消費者製品ではない乾燥条件下で又は有機溶媒中で使用される。カプセルの安定性が、乾燥条件で、有機溶媒中で又は水性界面活性剤含有媒体中で使用される時に全く異なることが、カプセル化の当業者によく知られている。更に、カプセルの嗅覚的性能は、この先行技術文献に全く記載されていない。従って、この文献は、本発明によって対処された課題を解決する役には立たない。

10

【 0 0 1 0 】

本発明の詳細な説明

上記の課題を解決するために、本発明は、以下の工程：

- 1) 油相を形成するために、香料油と、少なくとも 2 つのイソシアネート官能基を有する少なくともポリイソシアネートとを混合する工程
- 2) 水相を形成するためにアミノプラスト樹脂及び任意に安定剤を水中に分散又は溶解する工程；
- 3) 油相と水相を混合することによって、平均液滴サイズが 1 ~ 1 0 0 μm の間に含まれる、水中油型分散体を調製する工程；
- 4) 前記マイクロカプセルの壁を形成するために硬化工程を実施する工程；及び
- 5) 乾燥したコア - シェルマイクロカプセルを得るために最終分散液を任意に乾燥させる工程

20

を含む方法によって得られるワン (1) - シェル又は 1 壁の、アミノプラストコア - シェルマイクロカプセルに関する。

【 0 0 1 1 】

明確にするために、「ワン - シェル、又は 1 壁」との用語は、本願明細書では、前記マイクロカプセルが異なる材料又は膜形成ポリマーによって内部も外部も被覆されていない壁を有することを意味する。いずれの場合も、本発明のカプセルは、ポリシロキサン及び / 又は P V P (ポリビニルピロリドン) 及びそのコポリマーを欠いている。前記マイクロカプセルは、その表面上に堆積された材料、例えば、コロイド安定剤又はカチオン性ポリマーを有し得るが、いずれの場合も、別のポリマー又は樹脂で作られた連続相、膜、壁、コーティングを形成するには不十分な量である。

30

【 0 0 1 2 】

明確にするために、本発明中の「コア - シェルマイクロカプセル」との表現、又は類似表現は、カプセルが、ミクロン範囲のサイズ (例えば、約 1 ~ 1 0 0 μm の間に含まれる平均直径) を有し且つ外部の固体オリゴマーベースのシェル又は壁及び外部のシェルによって囲まれた内部の連続油相を含むことを意味する。換言すれば、コアセルベート又は押出物 (即ち、液体の液滴を含有する多孔質固相) は、本発明の一部ではない。本発明の実施態様によれば、前記マイクロカプセルのサイズ、結果的に工程 1) の液滴サイズは、約 5 μm ~ 5 0 μm の間に含まれるか、又は更に約 5 ~ 2 5 μm の間に含まれる。

40

【 0 0 1 3 】

明確にするために、本発明における「分散剤」との表現は、粒子が異なる組成物の連続相中に分散され且つ特に懸濁液又はエマルジョンを含む系を意味する。

【 0 0 1 4 】

「香油」 (又は「香料」) とは、本願明細書では、約 2 0 で液体であり且つコア - シェルカプセルのコア中にある香料を意味する。上記実施態様のいずれか 1 つによれば、ポ

50

リイソシアネートが工程 1) で溶解する前記香油は、単独の付香成分又は付香組成物の形の成分の混合物であってよい。「付香成分」とは、本願明細書では、快楽効果を付与するための芳香調製物又は組成物に使用される化合物を意味する。換言すれば、付香成分であると見なされるかかる成分は、単に匂いを有するものではなく、組成物の匂いを積極的に又は快い方法で付与又は改質することが可能なものとして当業者に認識されなければならない。本発明の目的のために、悪臭を打ち消す成分も「付香成分」の定義に包含される。

【0015】

ベース中に存在する付香成分の性質及び種類は、本願明細書において更に詳細な説明を保証するものではなく、いずれの場合も網羅できないが、当業者であれば、一般的な知識に基づいて及び意図する使用又は用途及び所望の感覚刺激効果に従ってそれらを選択することが可能である。一般的には、これらの付香成分は、アルコール、アルデヒド、ケトン、エステル、エーテル、アセテート、ニトリル、テルペノイド、窒素含有又は硫黄含有複素環式化合物及び精油といった様々な化学的分類に属し、前記付香成分は天然又は合成由来であってよい。これらの成分の多くはいずれの場合も S. Arctander による書籍などの参考テキスト、Perfume and Flavor Chemicals, 1969年, ニュージャージー州モンクレア、米国、又はその最新版、又は類似の他の論文、並びに香料分野の豊富な特許文献に挙げられている。また、前記成分は様々な種類の付香化合物を制御された方法で放出することが知られた化合物であってもよいことも理解されている。

10

【0016】

付香成分は、香料産業で現在使用されている溶媒に溶解され得る。溶媒は好ましくはアルコールではない。かかる溶媒の例は、フタル酸ジエチル、ミリスチン酸イソプロピル、Abalyn (登録商標) (ロジン樹脂、イーストマン社から入手可能)、安息香酸ベンジル、クエン酸エチル、リモネン又は他のテルペン、又はイソパラフィンである。好ましくは、溶媒は非常に疎水性で且つ高い立体障害性の、例えば、Abalyn (登録商標) である。好ましくは、香料は 30% 未満の溶媒を含む。更に好ましくは、香料は 20% 未満、更に一層好ましくは 10% 未満の溶媒を含み、これらの全てのパーセンテージは香料の全質量に対して質量で定義されている。最も好ましくは、香料は実質的に溶媒を含まない。

20

【0017】

本発明の特定の実施態様によれば、香料は、その重量の 10% 未満の第 1 級アルコール、15% 未満の第 2 級アルコール及び 20% 未満の第 3 級アルコールを含有する。好ましくは、香料は第 1 級アルコールを含有せず、15% 未満の第 2 級及び第 3 級アルコールを含有する。かかる限定された量のアルコールは、香料と反応するイソシアネート官能基の量を低減する利点を有する。

30

【0018】

本発明の実施態様のいずれか 1 つによれば、香油は、工程 3) 後に得られた分散液の全質量に対して、約 10% ~ 60% w/w の間、又は更に 20% ~ 45% w/w の間の質量を示す。

【0019】

工程 1) の油相は、それぞれ少なくとも 2 つのイソシアネート官能基を有する少なくとも 1 種のポリイソシアネートも含む。

40

【0020】

本発明の目的のために、それぞれのポリイソシアネートは少なくとも 2 つのイソシアネート官能基を含む。前記ポリイソシアネートは、6 つまで、又は更にたった 4 つのイソシアネート官能基を含み得る。上記実施態様のいずれか 1 つによれば、前記ポリイソシアネートは少なくとも 3 つのイソシアネート官能基を含む。これらの数の官能基に続いて、ポリイソシアネートとアミノプラスト樹脂との最適な反応が達成され、ポリイソシアネート化合物当たりより多数のイソシアネート基が架橋の増大をもたらす。

【0021】

低揮発性ポリイソシアネートは、それらの低毒性のために好ましい。

【0022】

50

ポリイソシアネートは、脂肪族、芳香族又は芳香族及び脂肪族ポリイソシアネートの両方の混合物であってよい。ポリイソシアネートの混合物の場合、混合物のそれぞれの要素は、少なくとも2つのイソシアネート官能基を有する。

【0023】

本発明の実施態様のいずれか1つによれば、前記ポリイソシアネートは芳香族ポリイソシアネートである。

【0024】

「芳香族ポリイソシアネート」との用語は、本願明細書では、芳香族部分を含む任意のポリイソシアネートを包含するものを指す。好ましくは、これはフェニル、トルイル、キシリル、ナフチル又はジフェニル部分、更に好ましくは、トルイル又はキシリル部分を含む。好ましい芳香族ポリイソシアネートは、ピウレット及びポリイソシアヌレート、更に好ましくは、上記で引用された特定の芳香族部分のうちの1つを含むものである。更に好ましくは、芳香族ポリイソシアネートは、トルエンジイソシアネートのポリイソシアヌレート（Desmodur（登録商標）RCの商品名でBayer社から市販されている）、トルエンジイソシアネートのトリメチロールプロパン付加物（Desmodur（登録商標）L75の商品名でBayer社から市販されている）、キシリレンジイソシアネートのトリメチロールプロパン付加物（Takenate（登録商標）D-110Nの商品名で三井化学株式会社から市販されている）である。最も好ましい実施態様では、芳香族ポリイソシアネートは、キシリレンジイソシアネートのトリメチロールプロパン付加物である。

10

20

【0025】

本発明の実施態様のいずれか1つによれば、前記ポリイソシアネートは脂肪族ポリイソシアネートである。

【0026】

用語「脂肪族ポリイソシアネート」は、任意の芳香族部分を含まないポリイソシアネートとして定義される。好ましい脂肪族ポリイソシアネートは、ヘキサメチレンジイソシアネートの三量体、イソホロンジイソシアネートの三量体、ヘキサメチレンジイソシアネートのトリメチロールプロパン付加物（三井化学社から入手可能）又はヘキサメチレンジイソシアネートのピウレット（Desmodur（登録商標）N100の商品名でBayer社から市販されている）であり、その中でもヘキサメチレンジイソシアネートのピウレットが更に一層好ましい。

30

【0027】

本発明の実施態様のいずれか1つによれば、前記少なくとも1種のポリイソシアネートは、少なくとも1種の脂肪族ポリイソシアネートと少なくとも1種の芳香族ポリイソシアネートとの混合物（その両方が少なくとも2つ又は3つのイソシアネート官能基を含む）、例えば、ヘキサメチレンジイソシアネートのピウレットとキシリレンジイソシアネートのトリメチロールプロパン付加物との混合物、ヘキサメチレンジイソシアネートのピウレットとトルエンジイソシアネートのポリイソシアヌレートとの混合物並びにヘキサメチレンジイソシアネートのピウレットとトルエンジイソシアネートのトリメチロールプロパン付加物との混合物の形である。最も好ましくは、これはヘキサメチレンジイソシアネートのピウレットとキシリレンジイソシアネートのトリメチロールプロパン付加物との混合物である。

40

【0028】

好ましい実施態様では、少なくとも1種の脂肪族ポリイソシアネートと少なくとも1種の芳香族ポリイソシアネートは、80：20～10：90の間、好ましくは75：25～20：80の間、更に好ましくは60：40～20：80の間、更に一層好ましくは60：40～30：70の間、最も好ましくは45：55～30：70の間に含まれるそれぞれのモル比で使用される。

【0029】

好ましくは、ポリイソシアネートは、香油の全質量に対して、0.01質量%～20質

50

量%の間、更に好ましくは0.1質量%~10質量%の間、最も好ましくは0.5質量%~5質量%の間に含まれる量で添加される。

【0030】

工程2)では、水相の形成のためにアミノプラスト樹脂が必要とされる。かかるアミノプラスト樹脂は、1種以上のアミンと1種以上のアルデヒド、好ましくはホルムアルデヒドとの重縮合反応生成物である。好適なアミンの例としては尿素、メラミン及びその誘導体が挙げられる。好ましくは、アミノプラスト樹脂は、メラミン-ホルムアルデヒド及び尿素-ホルムアルデヒド縮合物及び最も好ましくはメラミン-ホルムアルデヒド縮合物から選択される。かかるメラミン-ホルムアルデヒド及び尿素-ホルムアルデヒド縮合物は、カプセル化の当業者によく知られており、かかる縮合物を開示する豊富な入手可能な文献に詳細に記載されている。多様な材料及びプロセス工程は、かかるカプセルの形成に適している。従って、かかるカプセル化ポリマーは、いずれにしても網羅されず、本願明細書では詳細な説明を保証するものではない。

10

【0031】

好ましい実施態様では、アミノプラスト樹脂は、工程3)の後に得られる分散液の全質量に対して、約0.5質量%~15質量%、又は更に1.0質量%~10質量%の間の範囲の量で添加される。

【0032】

アミノプラスト樹脂及びマイクロカプセルを形成するのに適した方法は、例えば、Dietrich K., Bonatz E., Nastke H., Herma H., Walter M.及びTeige W.; Acta Polymerica 41 (1990年)、第91~95頁に、Bonatz E., Dietrich K., Herma H., Walter M.及びTeige W.; Acta polymerica 40 (1989年)、第683~690頁に、Dietrich K., Bonatz E., Geistlinger H., Herma H., Nastke R., Purz H.-J., Schlawne M.及びTeige W.; Acta Polymerica 40 (1989年)、第325~331頁に、Dietrich K., Herma H., Nastke R., Bonatz E.及びTeige W.; Acta Polymerica 40 (1989年)、第243~251頁に、Lee H. Y., Lee S. J., Cheong I. W.及びKim J. H.; J. Microencapsulation 19 (2002年)、第559~569頁に詳細に記載されている。米国特許第4,353,809号も基本的な工程及びアミノプラストカプセル形成の詳細を開示している。この方法は本発明に適用できる(即ち、工程4を実施するために要求される行動)。

20

【0033】

水相も任意に安定剤を含んでよい。本発明の上記の実施態様のいずれか1つによれば、分散液は、約0質量%~5質量%の間の少なくとも1種の安定剤を含み、パーセンテージは、工程3)後に得られた分散液の全質量に対して質量基準で表される。本発明の更に別の態様では、分散液は約0質量%~2質量%の間の少なくとも1種の安定剤を含む。本発明の更に別の態様では、分散液は約0質量%~1質量%の間の少なくとも1種の安定剤を含む。

30

【0034】

明確にするために、本発明の文脈では、「安定剤」又は類似の表現は、当業者によって理解される通常の意味、即ち、系を安定化する、例えば、マイクロカプセルの適用時又は製造時にそれらの凝集又は凝塊形成を防ぐことが可能である、又はそのために添加される化合物を意味する。前記安定剤の使用は、当業者の標準的な知識である。

40

【0035】

本発明の目的のために、前記安定剤は、イオン性若しくは非イオン性界面活性剤又はコロイド安定剤であってよい。かかる安定剤の正確な性質は当業者によく知られている。非限定例として、以下の安定剤が挙げられる：非イオン性ポリマー、例えばセルロース誘導体、例えばヒドロキシエチルセルロース、ポリエチレンオキシド、ポリエチレンオキシド及びポリエチレン又はポリプロピレンオキシドのコポリマー、コポリマー-アルキルアクリレート及びN-ビニルピロリドン；イオン性ポリマー、例えば、アクリルアミド及びアクリル酸のコポリマー(例えば、Ciba社製のAlcapsol(登録商標)144)、例えば、アクリル酸とアクリルアミドとのモノマー混合物から製造された酸/アクリルア

50

ミドコポリマー（ここでアクリル酸の含有率は30～70%の範囲である）、酸アニオン界面活性剤（例えば、ドデシル硫酸ナトリウム）、スルホネート基を有するアクリルコポリマー（例えば、ポリ（スチレンスルホネート）ナトリウム、及びビニルエーテルとマレイン酸無水物とのコポリマー。

【0036】

本発明の上記の実施態様のいずれか1つによれば、前記安定剤はイオン界面活性剤、例えば、アクリルアミドとアクリル酸とのコポリマーである。

【0037】

工程3)は、公知であり且つ当業者がそれをどのように実行するかを知っている混合工程である。しかしながら、本発明の実施態様のいずれか1つによれば、前記工程で、前記水相のpHを、典型的に、及び非限定的に、約4～7の間、好ましくは4.5～6の間に調整できることを記載するのは価値がある。

10

【0038】

工程4)では、本発明のマイクロカプセルが形成される。かかる工程を実施するための手段もよく知られており、当業者はどのようにこれを実行するかを知っている。例えば、非限定的に、分散液を約60～95で、壁の形成が完了するまで温めることによって硬化を行うことができる。工程4)は得られた分散液を室温まで冷却することによって完了する。工程4後に得られた生成物をスラリーと呼ぶ。

【0039】

本発明の特定の実施態様によれば、工程4)の最後に、本発明のスラリーに幾つかのカチオン性ポリマーを添加してもよい。前記カチオン性ポリマーは当業者によく知られており、例えば、WO08/098387号、第5頁、第10～30行に記載されている。

20

【0040】

好ましいカチオン性ポリマーは、少なくとも0.5meq/g、更に好ましくは少なくとも約1.5meq/g、また好ましくは約7meq/g未満、更に好ましくは約6.2meq/g未満のカチオン電荷密度を有する。カチオンポリマーのカチオン電荷密度は、窒素測定に関する化学試験の下で米国薬局方に記載された通りのケルダール法によって測定され得る。

【0041】

好ましいカチオン性ポリマーは、ポリマー主鎖の一部を形成するか又はそれに直接結合された側鎖置換基によって保持される、第1級、第2級、第3級及び/又は第4級アミン基を含む単位を含むものから選択される。カチオン性ポリマーの質量平均(Mw)モル質量は、好ましくは10,000～2Mダルトンの間、更に好ましくは50,000～1.5Mダルトンの間である。特定の例としては、Salcare（登録商標）SC60（アクリルアミドプロピルトリモニウムクロリドとアクリルアミドとのカチオン性コポリマー、製造元：BASF）又はLuviquat（登録商標）、例えば、PQ11N、FC550又はSupreme（ポリクオタニウム-11～68又はビニルピロリドンの4級化コポリマー、製造元：BASF）又は更にJaguar（登録商標）（C13S又はC17、製造元：Rhodia）が挙げられる。

30

【0042】

本発明の上記実施態様のいずれか1つによれば、約0質量%～10質量%の間、又は更に約1質量%～5質量%の間に含まれるカチオン性ポリマーの量が添加されており、パーセンテージは工程4)後に得られたスラリーの全質量に対して質量基準で表される。前記添加されたカチオン性ポリマーの一部のみがマイクロカプセルのシェル中に組み込まれる/その上に堆積されることが当業者によって明確に理解されている。

40

【0043】

本発明の特定の実施形態によれば、工程4)の最後に、任意に、ホルムアルデヒドなどの残留フリーアルデヒドの捕捉剤として知られた化合物を、室温まで冷却する直前又はその直後にスラリーに添加してもよい。かかる化合物は当該技術分野でよく知られており、例えば、尿素又はエチレン尿素であってよい。

50

【 0 0 4 4 】

工程 4) の最後に得られた前記水性スラリーは、特に水性ベースである、例えば、柔軟剤又は液体石鹼の用途に、付香成分として直接使用できる。従って、別の本発明の対象は、本発明のマイクロカプセルを含む水性スラリー、例えば、マイクロカプセルの製造プロセスから直接得られるスラリーである。前記スラリーは、更に幾つかの配合助剤、例えば、安定剤又は粘度調節剤、又は更に殺生剤又は殺菌剤を含み得る。

【 0 0 4 5 】

あるいは、任意の工程 5) では、上記の方法から得られたスラリーを、乾燥、例えば、噴霧乾燥にかけて、マイクロカプセル自体、即ち、粉末状形態のものを提供することができる。かかる乾燥を実行するために当業者に知られた標準法も適用できることが理解されている。

10

【 0 0 4 6 】

本発明は、液体付香消費者製品であって、

- a) 消費者製品の全質量に対して、2 ~ 65 質量%の少なくとも1種の界面活性剤；
 - b) 水；及び
 - c) 上記のアミノプラストマイクロカプセル
- を含む、前記製品にも関する。

【 0 0 4 7 】

上記アミノプラストマイクロカプセルは、以下の工程：

- i . 少なくとも2つのイソシアネート官能基を有する少なくとも1種のポリイソシアネートと香料とを混合することによって油相を調製する工程；及び
 - ii . 工程 a) で得られた油相をアミノプラスト樹脂中にカプセル化する工程
- を含む、前記方法によって得られることも記載されている。

20

【 0 0 4 8 】

工程 4) の後に得られたマイクロカプセル、又は工程 5) の後に得られたスラリーは、例えば、0 . 0 1 ~ 1 0 質量%、更に好ましくは0 . 0 5 ~ 2 質量%、最も好ましくは0 . 1 ~ 1 質量%の量で消費者製品中に組み込むことができ、これらのパーセンテージは消費者製品の全質量に対して質量によって規定されている。当然ながら上記の濃度は、それぞれの製品において所望の嗅覚的效果に従って適合され得る。

【 0 0 4 9 】

消費者製品は、ホームケア又はパーソナルケア製品の形又は水性のファインフレグランス製品の形であってもよい。パーソナルケア製品の例としては、シャンプー、リーブオン又はリンスオフヘアコンディショナー、ボディウォッシュ、例えば、シャワー又はバス、ゲルオイル又はムース、衛生製品、ボディ又はヘアスプレー、化粧品、ボディローション、デオドラント又は制汗剤、例えば、ロールオンデオドラント又は制汗剤が挙げられる。水性のファインフレグランス製品の例としては香料、アフターシェーブローション又はコロロンが挙げられる。ホームケア製品の例としては、液体洗剤、万能クリーナー、柔軟仕上げ剤又はリフレッシャー、アイロン水、洗剤、柔軟剤又は乾燥機シートが挙げられる。洗剤として、本願明細書では、例えば、テキスタイル又は硬質表面（床、タイル、石床等）の処理を意図した、種々の表面を洗浄又は浄化するための洗剤組成物又は洗浄剤などの製品が挙げられる。好ましくは、表面はテキスタイルである。

30

40

【 0 0 5 0 】

消費者製品ベースの配合は、かかる製品に関する豊富な文献に見出され得る。これらの配合は、本願明細書では詳細な記載を保證せず、いずれの場合も網羅されない。かかる消費者製品を配合する当業者は、彼らの一般的な知識と利用可能な文献に基づいて適した成分を完全に選択することが可能である。特に、かかる配合物の例は、かかる製品に関する特許及び特許出願、例えば、WO 2 0 0 8 / 0 1 6 6 8 4 号、(第 1 0 ~ 1 4 頁)、US 2 0 0 7 / 0 2 0 2 0 6 3 号(第 [0 0 4 4] ~ [0 0 9 9] 段落)、WO 2 0 0 7 / 0 6 2 8 3 3 号(第 2 6 ~ 4 4 頁)、WO 2 0 0 7 / 0 6 2 7 3 3 号(第 2 2 ~ 4 0 頁)、WO 2 0 0 5 / 0 5 4 4 2 2 号(第 4 ~ 9 頁)、EP 1 7 4 1 7 7 5 号、GB 2 4 3 2 8

50

43号、GB2432850号、GB2432851号又はGB2432852号に見出すことができる。

【0051】

所望の安定性は、消費者製品の全質量に対して、65質量%まで、更に好ましくは2～50質量%の間の範囲の量で、種々の種類の界面活性剤、例えば、カチオン性、アニオン性、非イオン性、両性イオン性及び半極性非イオン性界面活性剤を含む消費者製品で得られる。本発明の目的のために、界面活性剤は、好ましくは通常、消費者製品で使用されることが意図されている。これらは当業者によく知られており、更に詳細な説明を保証しない。かかる界面活性剤の非網羅的例は、アニオン性界面活性剤の場合、アルキルベンゼンスルホン酸ナトリウム、アルキル硫酸ナトリウム、アルキルエーテル硫酸ナトリウム及び脂肪酸塩；非イオン性界面活性剤の場合、エトキシ化アルコール、アルキルN-メチルグルカミド及びアルキルポリグルコシド；カチオン性界面活性剤の場合、第4級アンモニウム塩、例えば、アルキルトリメチルアンモニウムのクロリド又は硫酸メチル、ジ-(タロー-オキシ-エチル)ジメチルアンモニウム、ジタロージメチルアンモニウム；両性及び双性イオン性界面活性剤の場合、アルキルベタイン、アルキルアミドベタイン、アミノオキシドを含む。本発明の目的のために、界面活性剤は、好ましくは、通常、カプセル化プロセスでエマルジョンを安定化するために使用される、アクリルコポリマー及びアラビアゴムなどのポリマー安定化乳化剤を除くことが意図されている。

10

【0052】

本発明の好ましい実施態様では、カプセルは、液体水性付香消費者製品中で安定であるため、それらがかかる製品中で保存される場合、初期香料負荷の60%未満がカプセルから漏れ出す。好ましくはかかる安定性が達成される貯蔵時間及び温度は、消費者製品の種類に依存する。好ましくは、かかる安定性の結果は、液体洗剤及び柔軟仕上げ剤などの製品の場合、43で2週間又は更に4週間の貯蔵後に達成される。

20

【0053】

別の実施態様では、本発明は、水及び消費者製品に対して2～65質量%の界面活性剤を含む液体消費者製品中でアミノプラストマイクロカプセルを安定化する方法であって、カプセル化プロセスの前に、ポリイソシアネートをカプセル化されるべき香料に混合して油相を形成することを含む、前記方法を提供する。

【0054】

実施例

以下の実施例は、本発明の実施態様を更に例示し、先行技術の教示に対する本発明のカプセルの利点を更に説明するものである。

30

【0055】

実施例1

本発明で使用されるアミノプラストマイクロカプセルの製造

以下の成分を有する本発明で使用されるアミノプラストマイクロカプセル(カプセルB)を製造した：

【表 1】

表1：カプセルBの組成

| 成分 | 量 [%] |
|-----------------------------------|--------------|
| 油相 | 30.9 |
| 香油 | |
| Takecate [®] D-110N | |
| 水相 | |
| アクリルアミド及びアクリル酸コポリマー ¹⁾ | 4.7 |
| メラミン-ホルムアルデヒド樹脂 ²⁾ | 4.7 |
| 水 | 48.3 |
| 水酸化ナトリウム | 0.5 |
| 酢酸 | 0.2 |
| Salcare SC60 ³⁾ | 10.7 |
| 合計 | 100.0 |

10

20

- 1) Ciba社製のAlcapsol, 20%水溶液
- 2) Cytec社製Cymel 385, 70%水溶液
- 3) Ciba社製のSalcare SC60, 3%水溶液

【 0 0 5 6 】

油相を、ポリイソシアネート（キシリレンジイソシアネートのトリメチロールプロパン付加物、Takecate（登録商標）D-110N、製造元：三井化学）と表2に挙げられた成分を含む香油とを混合することによって調製した。油相は0.1%のTakecate（登録商標）D-110Nと99.9%の香油からなる。

30

【表 2】

表2：付香組成物の組成

| 成分 | 量 [%] |
|---|--------------|
| エチル 2-メチル-ペンタノエート ¹⁾ | 1.7 |
| ユーカリプトール | 25.9 |
| 2,4-ジメチル-3-シクロヘキセン-1-カルバルデヒド ¹⁾ | 0.8 |
| デカナール | 2.2 |
| シトロネリルニトリル | 7.9 |
| イソボルニルアセテート | 9.3 |
| Verdox ^{®2)} | 18.7 |
| シトロネリルアセテート | 0.3 |
| 2-メチルウンデカナール | 1.3 |
| ジフェニルオキシド | 0.7 |
| ドデカナール | 0.1 |
| トリシクロ[5.2.1.0(2,6)]デカ-3-エン-8-イルアセテート及び トリシクロ[5.2.1.0(2,6)]デカ-4-エン-8-イルアセテート ¹⁾ の混合物 | 5.1 |
| ペータ-イオン | 3.8 |
| ガンマ-ウンデカラクトン | 8.1 |
| ヘキシルサリチレート | 7.1 |
| ベンジルサリチレート | 7.0 |
| 合計 | 100.0 |

1) 製造元: Firmenich SA, ジュネーブ, スイス

2) 2-Tert-ブチル-1-シクロヘキシルアセテート,

製造元: International Flavors & Fragrances, USA

【 0 0 5 7 】

カプセルを作るために、スラリー、アクリルアミド及びアクリル酸コポリマー及びメラミンホルムアルデヒド樹脂を水に溶解して水相を形成する。次に、香料プレミックスオイルをこの溶液中に添加し、酢酸を用いて pH を 5 に調節した。温度を 2 時間にわたり 90 に上げてカプセルを硬化させた。この時点で、架橋し且つ安定なカプセルが形成される。次に 3% の Salcare の水溶液を 90 で混合物に加え、90 で 1 時間反応させた。次にエチレン尿素の溶液（スラリーの質量に対して約 3 質量%のエチレン尿素を含有する）を、残留遊離ホルムアルデヒドの捕捉剤としてのアミノプラストカプセルと共に通常するように添加し、混合物を室温まで冷却させた。最終的な pH を、水酸化ナトリウムを用いて 7 に調節した。

【 0 0 5 8 】

更なるカプセル（カプセル C ~ E）を、上記のプロトコルに従って調製したが、但し、Takenate（登録商標）D-110N と香料の量は以下の表に示すように変化させることを除く。

【表 3】

表3：カプセルC～Eの製造に使用される油相中のポリイソシアネートと香料の量

| | Takecate [®] D-110N ¹⁾ [%] | 香油 ²⁾ の質量% [%] |
|--------|---|------------------------------|
| カプセル C | 0.5 | 99.5 |
| カプセル D | 1 | 99 |
| カプセル E | 4 | 96 |

1) キシリレンジイソシアネートのトリメチロールプロパン付加物 (製造元: 三井化学)

2) 表2の成分を有する付香組成物

【0059】

実施例 2

本発明に使用されるアミノプラストマイクロカプセルの製造

カプセル F ~ H を、実施例 1 に記載される方法を用いて調製するが、但し、油相中で、Takecate (登録商標) D - 1 1 0 N を脂肪族ポリイソシアネートデスモジュール (登録商標) N 1 0 0 (ヘキサメチレンジイソシアネートのピウレット (製造元: Bayer)) で置換したことを除く。カプセル F ~ H で使用される油相中のポリイソシアネートと香油のそれぞれの量を以下の表にまとめる。

【表 4】

表4：カプセルF～Hの油相中のポリイソシアネートと香油の量

| | Desmodur [®] N 100 ¹⁾ [%] | 香油 ²⁾ [%] |
|--------|--|-------------------------|
| カプセル F | 0.5 | 99.5 |
| カプセル G | 1 | 99 |
| カプセル H | 4 | 96 |

1) ヘキサメチレンジイソシアネートのピウレット (製造元 Bayer)

2) 表2の成分を有する付香組成物

【0060】

実施例 3

本発明に使用されるアミノプラストマイクロカプセルの製造

カプセル I ~ K を実施例 1 に記載された方法を用いて製造したが、但し、油相中で、Takecate (登録商標) D - 1 1 0 N を、芳香族ポリイソシアネート Takecate (登録商標) D - 1 1 0 N と脂肪族ポリイソシアネート Desmodur (登録商標) N 1 0 0 との 5 0 / 5 0 (質量%) 混合物に置き換えることを除く。カプセル I ~ K で使用される油相中のポリイソシアネートと香油のそれぞれの量を以下の表にまとめる。

【表 5】

表5：カプセルI~Kに使用される香料プレミックスオイル中のポリイソシアネートと香油の量

| | Desmodur [®] N 100 ¹⁾ [%] | Takecate [®] D-110N ²⁾ [%] | 香油 ³⁾ [%] |
|--------|--|---|-------------------------|
| カプセル I | 0.25 | 0.25 | 99.5 |
| カプセル J | 0.5 | 0.5 | 99 |
| カプセル K | 2 | 2 | 96 |

- 1) ヘキサメチレンジイソシアネートのピウレット (製造元 Bayer)
- 2) キシリレンジイソシアネートのトリメチロールプロパン付加物 (製造元: 三井化学)
- 3) 表2の成分を有する付香組成物

10

【0061】

実施例 4 (比較)

ポリイソシアネートのないアミノプラストマイクロカプセルの製造

対照のカプセル A を、ポリイソシアネートを添加しないことを除いて、実施例 1 に記載された方法を用いて製造した。従って、付香組成物自体を油相の代わりに使用した。

【0062】

実施例 5

本発明のカプセルの平均直径

対照カプセル A 及びカプセル B ~ K のサイズ分布を、光学顕微鏡法及び光散乱 (マスターサイザー S、マルバーン) によって制御し、それぞれの種類のカプセルについて平均直径 (算術平均) を計算した。結果を以下の表にまとめる。

20

【表 6】

表6：カプセルA~Kの平均直径

| カプセル | 平均直径 d(v,0.5) [μm] |
|----------|-----------------------|
| 対照カプセル A | 15 |
| カプセル B | 15 |
| カプセル C | 15 |
| カプセル D | 18 |
| カプセル E | 12 |
| カプセル F | 15 |
| カプセル G | 15 |
| カプセル H | 14 |
| カプセル I | 15 |
| カプセル J | 16 |
| カプセル K | 17 |

30

40

【0063】

実施例 6

本発明の柔軟仕上げ剤の製造

濃縮された付香されていない布地用柔軟剤ベースを、表 7 に列記された成分を、示された量で混合することによって調製した。パーセンテージは、付香されていない布地用柔軟

50

剤ベースの全質量に対して質量で規定される。

【表 7】

表7：濃縮された付香されていない布地用柔軟剤ベースの配合 (pH 約 2.85)

| 成分 | % |
|---|-------|
| Stepantex VL90 A Diester Quat ¹⁾ | 16.50 |
| Proxel GXL ²⁾ | 0.04 |
| CaCl ₂ (10% 水溶液) | 0.20 |
| 水 | 83.26 |

10

1) 製造元: Stepan

2) 製造元: Avecia

【0064】

柔軟剤 B ~ K を、柔軟剤の全質量に対して 0.45 質量% でカプセル B ~ K を、穏やかに攪拌しながら、表 7 の付香されていない柔軟剤ベースに添加することによって調製した。

【0065】

対照カプセル A を含む柔軟仕上げ剤の調製：

対照の柔軟剤 A を、柔軟剤の全質量に対して 0.45 質量% で対照のカプセル A を、穏やかに攪拌しながら表 7 の付香されていない柔軟剤ベースに添加することによって調製した。

20

【0066】

本発明の柔軟仕上げ剤中のアミノプラストマイクロカプセルの安定性

対照の柔軟剤 A と柔軟剤 B ~ K 中のカプセルの貯蔵安定性を評価した。柔軟剤を、43 で 1 ヶ月又は 50 で 2 週間貯蔵した。次にカプセルから漏れ出した香料の量を溶媒抽出と GC - MS 分析によって測定した。結果を以下の表にまとめる。

【表 8】

表8：柔軟剤 B ~ K 及び対照柔軟剤 A 中のカプセルの貯蔵安定性

30

| 布地柔軟剤 | カプセルから漏出した香料の量 [%] | | |
|---------|--------------------|--------------|--------------|
| | 43°C で 2 週間後 | 43°C で 4 週間後 | 50°C で 2 週間後 |
| 対照柔軟剤 A | 30 | 68 | 87 |
| 柔軟剤 B | 15 | 46 | 63 |
| 柔軟剤 C | 7 | 25 | 44 |
| 柔軟剤 D | 5 | 20 | 40 |
| 柔軟剤 E | 4 | 12 | 25 |
| 柔軟剤 F | N/A | 56 | N/A |
| 柔軟剤 G | N/A | 50 | N/A |
| 柔軟剤 H | N/A | 34 | N/A |
| 柔軟剤 I | N/A | 40 | N/A |
| 柔軟剤 J | N/A | 20 | N/A |
| 柔軟剤 K | N/A | 18 | N/A |

40

【0067】

貯蔵期間後にカプセルから漏れ出した香料が少ないため、本発明のカプセル B ~ K のそ

50

れぞれが対応する対照カプセル A よりも柔軟剤ベース中でより安定であったことはこれらの結果から明らかである。このことは、カプセル化が起こる前に香料にポリイソシアネートを添加することは、布地用柔軟剤ベース中のアミノプラストマイクロカプセルの貯蔵安定性を改善することを示す。安定性の改善は、これらの添加剤を少量（香料プレミックスオイルを基準として 0.1 質量%）しか添加しなかった後でも明らかである。更に良好な結果は、イソシアネートを少なくとも 0.5% 又は更に少なくとも 1% の量で使用する時に達成される。

【0068】

本発明の布地用柔軟剤中でのアミノプラストマイクロカプセルの嗅覚的性能

対照カプセル A 及びカプセル B ~ K の嗅覚的性能を、対照の柔軟剤 A 及び柔軟剤 B ~ K で、43 で 4 週間までの貯蔵後の両方のフレッシュさについて評価した。

10

【0069】

コットンテータオル（20 枚、それぞれ 18 cm x 18 cm、約 30 グラム）を、洗濯機（ミーレノボトニック（Miele Novotronic）W300 - 33CH）において 40 で短いサイクルプログラムを用いて 30 g の付香されていない洗剤で洗浄した。洗浄の後、12.7 g の柔軟剤 B ~ K 又は対照の柔軟剤 A を用いて 900 rpm でリンスした。次いでテータオルを評価する前に 24 時間ライン乾燥した。

【0070】

柔軟剤 B ~ K と対照の柔軟剤 A で処理した乾いたタオル上の香料の知覚の強さを 20 人の熟練したパネリストのパネルで評価した。それにより、手でタオルを擦り、次いで 1 ~ 7 の範囲のスケールで香料の知覚の強さを評価することが求められた。その際、1 は匂いなしを意味し、7 は非常に強い匂いを意味する。結果を以下の表にまとめる。

20

【表 9】

表9：43°Cで1ヶ月貯蔵した後のカプセルB~K対対照柔軟剤Aの両方のフレッシュさに関する嗅覚的性能

| 布地用柔軟剤 | 嗅覚的性能 | | |
|---------|--------|-----------|-----------|
| | フレッシュさ | 43°Cで2週間後 | 43°Cで4週間後 |
| 対照柔軟剤 A | 7 | 2.4 | 1.5 |
| 柔軟剤 B | 7 | 3.4 | 1.8 |
| 柔軟剤 C | 7 | 5.9 | 3.7 |
| 柔軟剤 D | 7 | 6.8 | 6.5 |
| 柔軟剤 E | 7 | 7 | 6.6 |
| 柔軟剤 F | 7 | 5.1 | 2.6 |
| 柔軟剤 G | 6.8 | 6.0 | 4.8 |
| 柔軟剤 H | 6.6 | 6.1 | 5.6 |
| 柔軟剤 I | 7 | 6 | 2.2 |
| 柔軟剤 J | 6.4 | 6.2 | 6 |
| 柔軟剤 K | 6.3 | 6 | 5.5 |

30

40

【0071】

これらの結果は、布地用柔軟剤の貯蔵後に、香料の匂いの強さが、本発明の柔軟剤で処理した布地で、対照の柔軟剤で処理したものよりも強く知覚されたことを明らかにする。これは、布地用柔軟剤を貯蔵した時のカプセルの経時的な嗅覚的性能の持続性が、アミノプラストカプセルの形成前にポリイソシアネートを香料に添加した時の方が、カプセルをイソシアネートなしで作った時よりも良好であることを実証する。

50

【 0 0 7 2 】

実施例 7

本発明の濃縮された液体洗剤の調製

洗剤 D 及び E を、カプセル D 及び E を、洗剤の全質量に対して 0.4 質量%で、市販の濃縮された液体洗剤ベース Persil (登録商標) 3X Small and Mighty (Unilever の商品名、UK) 中に添加することによって調製した。このベース (pH 約 8) は、5%未満の脂肪の石鹼と共に、5%~15%の非イオン性界面活性剤 (例えば、アルコールエトキシレート) 及びアニオン性界面活性剤 (例えば、アルキルベンゼンスルホン酸ナトリウム及びアルキルエーテル硫酸ナトリウム) を含有する。

【 0 0 7 3 】

対照のカプセル A を含む濃縮された液体洗剤の調製

対照の洗剤 A を、市販の濃縮された液体洗剤 Persil (登録商標) Small and Mighty (Unilever の商標、UK) 中に、洗剤の全質量に対して、0.40 質量%で対照のカプセル A を添加することによって調製した。

【 0 0 7 4 】

本発明の濃縮した液体洗剤中のアミノプラストマイクロカプセルの安定性

洗剤 D 及び E 並びに対照の洗剤 A 中のカプセルの貯蔵安定性を評価した。カプセルを含む洗剤を、43 で 4 週間まで又は 50 で 2 週間貯蔵し、カプセルから漏れ出した香料の量を溶媒抽出及び GC - MS 分析によって測定した。結果を以下の表にまとめる。

【 表 1 0 】

表 10 : 洗剤 D 及び E 並びに対照洗剤 A 中のカプセルの貯蔵安定性

| 洗剤 | カプセルから漏出した香料の量 [%] | | |
|--------|--------------------|-----------|-----------|
| | 43°Cで2週間後 | 43°Cで4週間後 | 50°Cで2週間後 |
| 対照洗剤 A | 54 | 76 | 91 |
| 洗剤 D | 14 | 32 | 55 |
| 洗剤 E | 12 | 30 | 50 |

【 0 0 7 5 】

カプセル D 及び E の両方が、ポリイソシアネートが使用されなかった対応する対照のカプセル A よりも濃縮された液体洗剤ベース中でより安定であったことはこれらの結果から明らかであり、従って、カプセル化が起こる前に香料にポリイソシアネートを添加することは、濃縮された液体洗剤ベース中のアミノプラストマイクロカプセルの貯蔵安定性を改善することを示す。

【 0 0 7 6 】

本発明の濃縮された液体洗剤中のアミノプラストマイクロカプセルの嗅覚的性能

次にカプセル D 及び E 並びに対照のカプセル A の嗅覚的性能を、洗剤 D 及び E 並びに対照の洗剤 A において 43 で 4 週間貯蔵した後に両方のフレッシュさについて評価した。

【 0 0 7 7 】

布地 (2.5 kg のコットンテータオル) を、標準的な欧州の水平軸機において 40 で洗浄した。80 g の新たに調製された洗剤を、洗浄の開始時に洗剤引き出し (detergent drawer) を通して分散させた。洗浄後、布地をライン乾燥させ、コットンタオルの匂いの強さを、1日の乾燥後に、20人の熟練したパネリストのパネルによって評価した。パネリストは、布地を手で穏やかに擦った後のタオルの匂いの強さを、1~7のスケールで評価することが求められ、その際、1は匂いなしに相当し、7は非常に強い匂いに相当する。結果を表 11 に示す。

【表 1 1】

表11：濃縮された液体洗剤中のカプセルD及びE並びに対照カプセルAの嗅覚的性能

| 洗剤 | 嗅覚的性能 | |
|--------|--------|-----------|
| | フレッシュさ | 43°Cで4週間後 |
| 対照洗剤 A | 6 | 2.9 |
| 洗剤 D | 6 | 4.6 |
| 洗剤 E | 6 | 4.8 |

10

【0078】

洗剤の貯蔵後に、香料の強さは、対照の洗剤 A で洗浄した布地よりも、洗剤 D 及び E で洗浄した布地でより強かったことがこれらの結果から明らかである。これは、洗剤を貯蔵した時のカプセルの経時的な嗅覚的性能の持続性が、カプセル化が起こる前に香料をポリイソシアネートと混合した時の方が、カプセルをイソシアネートなしで作った時よりも良好であることを実証する。

【0079】

実施例 8

本発明の布地用柔軟剤中のアミノプラストマイクロカプセルの安定性

対照のカプセル A、及び本発明のカプセル D 及び E、並びに WO 2 0 0 4 / 0 1 6 2 3 4 号によるカプセルの貯蔵安定性を、対照の柔軟剤 A 及び柔軟剤 D ~ E 及び柔軟剤 WO 2 0 0 4 からそれぞれ評価した。柔軟剤を 4 0 及び 4 5 で 2 週間貯蔵した。次にカプセルから漏れ出した香料の量を、溶媒抽出及び GC - MS 分析によって測定した。結果を以下の表にまとめる。

20

【0080】

WO 2 0 0 4 / 0 1 6 2 3 4 号によるカプセルは、Takenate (登録商標) D - 1 1 0 N の代わりに PVP (ポリビニルピロリドン) を用いて、WO 2 0 0 4 / 0 1 6 2 3 4 号による量で、前記文献の実施例 1 及び 3 を繰り返すことによって得られた。

【0081】

換言すれば、WO 2 0 0 4 / 0 1 6 2 3 4 号によるカプセルでは、実施例 1 の同じ実験手順で以下の量を用いた：

30

【表 1 2】

表12：WO2004/016234号の実施例1及び3によるカプセルの組成

| | 実施例 1 WO2004 | 実施例 3 WO2004 |
|---|--------------|--------------|
| 成分 | 量 [%] | |
| 油相 | 30.9 | 30.9 |
| 香油 | 27.2 | 27.2 |
| 10% w/w PVP のイソプロパノール溶液 | 3.7 | 0 |
| 0.3% w/w トルエンジイソシアネートを含む 10% w/w PVP のイソプロパノール溶液 | 0 | 3.7 |
| 水相 | | |
| アクリルアミド及びアクリル酸コポリマー ¹⁾ | 4.7 | 4.7 |
| メラミン-ホルムアルデヒド樹脂 ²⁾ | 4.7 | 4.7 |
| 水 | 48.3 | 48.3 |
| 水酸化ナトリウム | 0.5 | 0.5 |
| 酢酸 | 0.2 | 0.2 |
| Salcare SC60 ³⁾ | 10.7 | 10.7 |
| 合計 | 100.0 | 100.0 |

10

20

【0082】

カプセル（D及びE）を、Takenate（登録商標）D-110Nと香料の量が表3に示すように変化することを除いて、実施例1からのプロトコルに従って調製した。

【表 1 3】

表13：柔軟剤D～E及びWO2004/016234号及び対照柔軟剤Aのカプセルの貯蔵安定性

| 布地用柔軟剤から 漏出した香料% | 40°Cで貯蔵 | | 45°Cで貯蔵 | |
|---------------------------|----------|-----------|----------|-----------|
| | 40°Cで3日後 | 40°Cで2週間後 | 45°Cで3日後 | 45°Cで2週間後 |
| 対照柔軟剤 A | 2 | 10 | 10 | 37 |
| WO 2004/016234 号の実施例 1 | 15 | 24 | 24 | 55 |
| WO 2004/016234 号の実施例 3 | 30 | 35 | 35 | 57 |
| 柔軟剤 D | 0.1 | 2 | 2 | 12 |
| 柔軟剤 E | 0 | 1 | 1 | 10 |

30

40

【0083】

2つのカプセルWO2004/016234号の実施例1及び3は、対応する対照のカプセルAよりも柔軟剤ベース中での安定性が低く、それ自体、貯蔵期間後により多くの香料がカプセルから漏れ出したので、本発明のカプセルD及びEよりも安定性が低いことがこれらの結果から明らかである。これは、PVPの第2の層又はシェル（2つのシェル系）の形成（WO2004/016234号の実施例1又は3）が、トルエンジイソシアネートなどの架橋剤を添加する場合でも安定性にとって有害であることを示す（WO2004/016234号の実施例3）。実際に、第2の層は、布地柔軟剤中のカプセルの貯蔵安定性の問題を解決する役に立たず、反対に、香料の漏れ出しを悪化させる。これは、明

50

らかに香料の漏れ出しを低減するのに役立つ本発明とは明確な対照である。

【0084】

本発明の布地柔軟剤中のアミノプラストマイクロカプセルの嗅覚的性能

対照のカプセルA及びカプセルD～Eの並びにWO2004/016234号のカプセルからの嗅覚的性能を、対照の柔軟剤A及び柔軟剤D～Eにおいて、40℃で2週間までの貯蔵後の両方のフレッシュさについて評価した。

【0085】

コットンテータオル(20枚、それぞれ18cm×18cm、約30g)を、短いサイクルプログラムを用いて40℃で洗濯機(ミーレノボトニックW300-33CH)において30gの付香されていない洗剤で洗った。洗浄後、12.7gの柔軟剤D～E又は対照の柔軟剤Aを用いて900rpmでリンスした。次にテータオルを、評価する前に24時間ライン乾燥させた。

【0086】

柔軟剤D～E、WO2004/016234号からの柔軟剤及び対照の柔軟剤Aで処理した乾いたタオル上の香料の知覚の強さを、20人の熟練したパネリストのパネルによって評価した。それにより、手でタオルを擦り、次いで1～7の範囲のスケールで香料の知覚の強さを評価することが求められた。その際、1は匂いなしを意味し、7は非常に強い匂いを意味する。結果を以下の表にまとめる。

【表14】

表14: 対照柔軟剤Aに対するカプセルD～E及びWO2004/016234号のフレッシュさ及び40℃で2週間貯蔵した後の嗅覚的性能

| 布地用柔軟剤 | 嗅覚的性能 | |
|---------------------|--------|----------|
| | フレッシュさ | 40℃で2週間後 |
| 対照柔軟剤A | 7 | 5.2 |
| WO2004/016234号の実施例1 | 4.7 | 4 |
| WO2004/016234号の実施例3 | 3.7 | 2.4 |
| 柔軟剤D | 7 | 6.3 |
| 柔軟剤E | 7 | 6.7 |

【0087】

新たな試料では、PVP(WO2004/016234号の実施例1)又はトルエンジイソシアネートを用いるPVP(WO2004/016234号の実施例3)の第2の追加の層又はシェル(2つのシェル系)の形成は、柔軟剤D及びE(これは対照の柔軟剤Aとして機能する)を用いて得られたものとは反対に、対照の柔軟剤Aに対するカプセルの嗅覚的性能の損失をもたらす。

【0088】

40℃で2週間の貯蔵後に、香料の匂いの強さは、対照の柔軟剤A又はWO2004/016234号からの2つの実施例よりも本発明の柔軟剤(D及びE)で処理した布地でより強く知覚された。

【手続補正書】

【提出日】平成26年8月27日(2014.8.27)

【手続補正1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

10

20

30

40

【請求項 1】

以下の工程：

- 1) 油相を形成するために、香油と、少なくとも2つのイソシアネート官能基を有する少なくとも1種のポリイソシアネートとを混合する工程；
 - 2) 水相を形成するために、アミノプラスト樹脂及び任意に安定剤を水中に分散又は溶解する工程；
 - 3) 平均液滴サイズが1～100 μmの間に含まれる水中油型分散液を、油相と水相とを混合することによって調製する工程；
 - 4) 前記マイクロカプセルの壁を形成するために硬化工程を実施する工程；及び
 - 5) 乾燥したコア-シェルマイクロカプセルを得るために最終的な分散液を任意に乾燥する工程
- を含む方法によって得られるワン-シェルアミノプラストコア-シェルマイクロカプセル。

【請求項 2】

前記香油が、それ自体の質量の10%未満の第1級アルコール、それ自体の質量の15%未満の第2級アルコール及びそれ自体の質量の20%未満の第3級アルコールを含有することを特徴とする、請求項1に記載のマイクロカプセル。

【請求項 3】

前記香油が、工程3)後に得られた分散液の全質量に対して、約10質量%～60質量%の間を示すことを特徴とする、請求項1又は2に記載のマイクロカプセル。

【請求項 4】

前記少なくとも1種のポリイソシアネートが、少なくとも1種の脂肪族ポリイソシアネート及び少なくとも1種の芳香族ポリイソシアネートの混合物であり、脂肪族ポリイソシアネート及び芳香族ポリイソシアネートがそれぞれ80：20～10：90の範囲のモル比であることを特徴とする、請求項1から3までのいずれか1項に記載のマイクロカプセル。

【請求項 5】

前記少なくとも1種のポリイソシアネートが芳香族ポリイソシアネートであることを特徴とする、請求項1から3までのいずれか1項に記載のマイクロカプセル。

【請求項 6】

前記少なくとも1種のポリイソシアネートを、香油の全質量に対して、0.01質量%～20質量%の間、好ましくは0.1質量%～10質量%の間、最も好ましくは0.5質量%～5質量%の間に含まれる量で添加することを特徴とする、請求項1から5までのいずれか1項に記載のマイクロカプセル。

【請求項 7】

前記アミノプラスト樹脂がメラミン-ホルムアルデヒド又は尿素-ホルムアルデヒド縮合物であることを特徴とする、請求項1から6までのいずれか1項に記載のマイクロカプセル。

【請求項 8】

前記アミノプラスト樹脂を、工程3)後に得られた分散液の全質量に対して、0.5質量%～15質量%の間に含まれる量で添加することを特徴とする、請求項1から7までのいずれか1項に記載のマイクロカプセル。

【請求項 9】

液体付香消費者製品であって、

- a) 消費者製品の全質量に対して2～65質量%の少なくとも1種の界面活性剤；
 - b) 水；及び
 - c) 請求項1から8までのいずれか1項に記載のマイクロカプセル
- を含む、前記液体付香消費者製品。

【請求項 10】

前記製品がホームケア又はパーソナルケア製品であることを特徴とする、請求項9に記

載の液体付香消費者製品。

【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

| |
|---|
| International application No PCT/EP2012/075393 |
|---|

| A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER INV. C11D3/50 B01J13/16 ADD. | | |
|---|---|--|
| According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC | | |
| B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C11D B01J | | |
| Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched | | |
| Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) EPO-Internal, WPI Data | | |
| C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT | | |
| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
| A | WO 2004/016234 A1 (QUEST INT [NL]; NESS JEREMY NICHOLAS [GB]; MCNAMEE JOHN [AU]) 26 February 2004 (2004-02-26) Shampoo Code B3 of Comparative Example 1 claims Background of the invention; page 1 page 10, line 7 - line 9 Reference Example 4 page 10, line 24 - page 11, line 23 page 19, line 7 | 1-10 |
| X | US 4 353 809 A (HOSHI YOSHIYUKI ET AL) 12 October 1982 (1982-10-12) cited in the application column 5, line 14 - line 19; claims; examples column 7, line 20 - line 24 | 1-8 |
| <input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex. | | |
| * Special categories of cited documents : "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family | | |
| Date of the actual completion of the international search | | Date of mailing of the international search report |
| 19 March 2013 | | 27/03/2013 |
| Name and mailing address of the ISA/ European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016 | | Authorized officer |
| | | Culmann, J |

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/EP2012/075393

| Patent document cited in search report | Publication date | Patent family member(s) | Publication date |
|--|------------------|-------------------------|------------------|
| WO 2004016234 A1 | 26-02-2004 | AU 2003251377 A1 | 03-03-2004 |
| | | AU 2009243427 A1 | 24-12-2009 |
| | | BR 0305777 A | 05-10-2004 |
| | | JP 4865225 B2 | 01-02-2012 |
| | | JP 2006501219 A | 12-01-2006 |
| | | MX 276989 B | 30-06-2010 |
| | | US 2006039934 A1 | 23-02-2006 |
| | | WO 2004016234 A1 | 26-02-2004 |
| | | US 4353809 A | 12-10-1982 |
| ES 8102841 A1 | 16-05-1981 | | |
| GB 2048206 A | 10-12-1980 | | |
| US 4353809 A | 12-10-1982 | | |
| | | | |

フロントページの続き

(81)指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), EP(AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC

(72)発明者 ニコラ ピション

スイス国 ジュネーヴ 8 ルート デ ジュネ 1 ファイルメニツヒ ソシエテ アノニム

(72)発明者 ソニア ゴドフルワ

スイス国 ジュネーヴ 8 ルート デ ジュネ 1 ファイルメニツヒ ソシエテ アノニム

(72)発明者 アルノー ストリュイウ

スイス国 ジュネーヴ 8 ルート デ ジュネ 1 ファイルメニツヒ ソシエテ アノニム

Fターム(参考) 4C083 AB032 AC212 AC272 AC342 AC352 AC472 AC842 AD071 AD072 AD092

AD532 KK03

4G005 AA01 AB14 BA01 BB03 DC15X DC46Y DD34Z DD35Z DD38Z DE08X

EA05

4H059 BC10 BC23 CA54 DA09 EA35

4J034 BA03 DA02 DB05 DB07 DC17 DC23 DC35 DC37 DC42 DJ02

DJ09 DP18 HA02 HA09 HA11 HB07 HC12 HC52 HC65 HC69

HC71 JA03 JA13 JA28 JA30 JA42 QC04 QC05 RA02