

(19)日本国特許庁(JP)

(12)公開特許公報(A)

(11)公開番号

特開2022-176168

(P2022-176168A)

(43)公開日 令和4年11月25日(2022.11.25)

(51)国際特許分類	F I	テーマコード(参考)
A 6 1 K 8/19 (2006.01)	A 6 1 K 8/19	4 C 0 7 6
A 6 1 Q 17/04 (2006.01)	A 6 1 Q 17/04	4 C 0 8 3
A 6 1 K 47/02 (2006.01)	A 6 1 K 47/02	
A 6 1 K 47/14 (2006.01)	A 6 1 K 47/14	
A 6 1 K 47/24 (2006.01)	A 6 1 K 47/24	
審査請求 未請求 請求項の数 17 O L (全28頁) 最終頁に続く		

(21)出願番号 特願2022-79081(P2022-79081)	(71)出願人 000000918 花王株式会社 東京都中央区日本橋茅場町1丁目14番 10号
(22)出願日 令和4年5月12日(2022.5.12)	
(31)優先権主張番号 特願2021-82670(P2021-82670)	(74)代理人 110002620弁理士法人大谷特許事務所
(32)優先日 令和3年5月14日(2021.5.14)	(72)発明者 高橋 大輝 東京都墨田区文花2-1-3 花王株式 会社研究所内
(33)優先権主張国・地域又は機関 日本国(JP)	Fターム(参考) 4C076 AA16 BB31 CC18 DD21 DD28 DD34 DD37 DD41 DD44 DD51 EE27 EE30 EE55 4C083 AB051 AB212 AB241 A B242 AB432 AB441 AC011 A 最終頁に続く

(54)【発明の名称】 皮膚外用剤

(57)【要約】

【課題】紫外線、赤外線等の防御効果に優れ、且つ、皮膚に塗布した際の白浮きが少ない皮膚外用剤を提供する。

【解決手段】成分(A)：平均粒径350nm以上2,500nm以下の球状金属酸化物(A1)及び板状金属酸化物(A2)からなる群から選ばれる1種以上の金属酸化物、並びに成分(B)：不揮発性油、を含有する皮膚外用剤であって、該皮膚外用剤中の成分(A)の含有量が2質量%以上50質量%以下であり、25における粘度が2,500mPa・s以上である、皮膚外用剤。

【選択図】なし

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

成分(A)：平均粒径350nm以上2,500nm以下の球状金属酸化物(A1)及び板状金属酸化物(A2)からなる群から選ばれる1種以上の金属酸化物、並びに

成分(B)：不揮発性油、

を含有する皮膚外用剤であって、

該皮膚外用剤中の成分(A)の含有量が2質量%以上50質量%以下であり、

25における粘度が2,500mPa・s以上である、皮膚外用剤。

## 【請求項 2】

前記皮膚外用剤中の前記成分(A)の含有量(質量%)に対する前記皮膚外用剤の粘度(mPa・s)が100以上である、請求項1に記載の皮膚外用剤。 10

## 【請求項 3】

前記皮膚外用剤の不揮発性成分中の前記成分(A)の含有量が50質量%以下である、請求項1又は2に記載の皮膚外用剤。

## 【請求項 4】

前記成分(A)が成分(A2)として板状酸化チタンを含む、請求項1～3のいずれか1項に記載の皮膚外用剤。

## 【請求項 5】

前記皮膚外用剤中の前記板状酸化チタンの含有量が5質量%以上30質量%以下である、請求項4に記載の皮膚外用剤。 20

## 【請求項 6】

前記成分(A2)の厚さが30nm以上360nm以下である、請求項1～5のいずれか1項に記載の皮膚外用剤。

## 【請求項 7】

前記成分(A2)のアスペクト比が3以上300以下である、請求項1～6のいずれか1項に記載の皮膚外用剤。

## 【請求項 8】

前記成分(A)が成分(A1)として平均粒径700nm以上2,500nm以下の球状金属酸化物を含み、25における粘度が2,500mPa・s以上20,000mPa・s以下である、請求項1～7のいずれか1項に記載の皮膚外用剤。 30

## 【請求項 9】

前記成分(B)がエステル油、シリコーン油、炭化水素油、高級脂肪酸、及び高級アルコールからなる群から選ばれる1種以上である、請求項1～8のいずれか1項に記載の皮膚外用剤。

## 【請求項 10】

前記皮膚外用剤がさらに増粘剤を含有する、請求項1～9のいずれか1項に記載の皮膚外用剤。

## 【請求項 11】

前記増粘剤が油増粘剤である、請求項10に記載の皮膚外用剤。

## 【請求項 12】

前記油増粘剤が固形のワックス、有機変性粘土鉱物、デキストリン脂肪酸エステル、及びアミノ酸系ゲル化剤からなる群から選ばれる1種以上である、請求項11に記載の皮膚外用剤。 40

## 【請求項 13】

前記皮膚外用剤中の前記増粘剤の含有量が0.5質量%以上50質量%以下である、請求項10～12のいずれか1項に記載の皮膚外用剤。

## 【請求項 14】

前記皮膚外用剤がさらに水を含有する、請求項1～13のいずれか1項に記載の皮膚外用剤。

## 【請求項 15】

前記皮膚外用剤が固形状である、請求項 1 ~ 14 のいずれか 1 項に記載の皮膚外用剤。

【請求項 16】

紫外線又は赤外線防御用、皮膚温度上昇抑制用、又は疲労抑制用の皮膚外用剤である、請求項 1 ~ 15 のいずれか 1 項に記載の皮膚外用剤。

【請求項 17】

請求項 1 ~ 16 のいずれか 1 項に記載の皮膚外用剤を皮膚に適用する工程を有する、皮膚の赤外線防御方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、皮膚外用剤に関する。

【背景技術】

【0002】

太陽光に対する皮膚防御の観点から、日焼け止め化粧料などの紫外線防御化粧料が知られている。一方で、近年は健康意識の高まりにより、赤外線に対する防御機能を有する皮膚外用剤が求められている。

赤外線防御機能を有する皮膚外用剤に関して、例えば特許文献 1 には、赤外線が皮膚の組織よりも深部の組織に到達することを阻害し、赤外線によるそれらの組織の損傷を防止する防止剤に関する技術として、酸化チタン粉末と酸化亜鉛粉末とからなる赤外線透過遮蔽剤を含有する生体組織の近赤外線損傷の防止剤が開示されている。特許文献 2 には、優れた近赤外防御効果と高い透明性を両立した、酸化チタン粉末と酸化亜鉛粉末とからなる近赤外線防御化粧料組成物が開示されている。

また特許文献 3 ~ 6 には、より赤外線防御効果に優れる皮膚外用剤として、所定の形状の板状金属酸化物を含有する皮膚外用剤が開示されている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0003】

【特許文献 1】国際公開第 2009 / 017104 号

【特許文献 2】特開 2017 - 95361 号公報

【特許文献 3】国際公開第 2020 / 138431 号

【特許文献 4】特開 2020 - 105175 号公報

【特許文献 5】特開 2020 - 105176 号公報

【特許文献 6】特開 2020 - 105177 号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0004】

太陽光に対する皮膚防御のため、特に紫外線、赤外線等の防御効果をさらに向上させた皮膚外用剤が望まれている。さらに皮膚外用剤としては、皮膚に塗布した際に白くなりにくいこと（以下「白浮き」ともいう）も求められる。

本発明の課題は、紫外線、赤外線等の防御効果に優れ、且つ、皮膚に塗布した際の白浮きが少ない皮膚外用剤を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0005】

本発明者は、所定の形状及び所定量の金属酸化物、並びに不揮発性油を含有し、且つ所定値以上の粘度の皮膚外用剤が、上記課題を解決できることを見出した。

すなわち本発明は、下記に関する。

[1] 成分(A)：平均粒径 350 nm 以上 2,500 nm 以下の球状金属酸化物(A1)及び板状金属酸化物(A2)からなる群から選ばれる 1 種以上の金属酸化物、並びに

成分(B)：不揮発性油、

を含有する皮膚外用剤であって、該皮膚外用剤中の成分(A)の含有量が 2 質量% 以上 5

10

20

30

40

50

0質量%以下であり、25における粘度が2,500 mPa・s以上である、皮膚外用剤。

[2]前記[1]に記載の皮膚外用剤を皮膚に適用する工程を有する、皮膚の赤外線防御方法。

【発明の効果】

【0006】

本発明によれば、紫外線、赤外線等の防御効果に優れ、且つ、皮膚に塗布した際の白浮きが少ない皮膚外用剤を提供できる。

【図面の簡単な説明】

【0007】

【図1】実施例9の皮膚外用剤の塗膜均一性評価における、IR顕微鏡による観察写真(スコア5)である。

【図2】比較例2の皮膚外用剤の塗膜均一性評価における、IR顕微鏡による観察写真(スコア1)である。

【発明を実施するための形態】

【0008】

[皮膚外用剤]

本発明の皮膚外用剤は、

成分(A):平均粒径350nm以上2,500nm以下の球状金属酸化物(A1)及び板状金属酸化物(A2)からなる群から選ばれる1種以上の金属酸化物、並びに

成分(B):不揮発性油、

を含有する皮膚外用剤であって、該皮膚外用剤中の成分(A)の含有量が2質量%以上50質量%以下であり、25における粘度が2,500 mPa・s以上である。

本発明の皮膚外用剤は上記構成であることにより、紫外線、赤外線等の防御効果に優れ、且つ、皮膚に塗布した際の白浮きが少ない皮膚外用剤となる。

【0009】

本発明の皮膚外用剤により上記効果が得られる理由については定かではないが、次のように考えられる。

酸化チタン等の金属酸化物を含有する皮膚外用剤においては、粒子径が大きいものを用いた方が紫外線、赤外線等の防御効果も高くなることが知られている。しかしながら、単に粒子径が大きい金属酸化物を用いるだけでは、特に赤外線の防御効果の向上に限界があった。また、例えば粒子径の大きい球状金属酸化物を皮膚外用剤に配合した場合、皮膚に塗布した際に粒子表面で可視光の光散乱が生じるため、白浮きしやすいという欠点があった。したがって使用する金属酸化物の粒子径を調整するだけでは、紫外線、赤外線等の防御効果向上と、皮膚に塗布した際の白浮き抑制とを同時に達成することが困難であった。

また、皮膚外用剤中の金属酸化物の含有量を多くすることでも紫外線、赤外線等の防御効果を向上させることができるが、該含有量を多くすると皮膚に塗布した際に白浮きしやすいという傾向もあった。

【0010】

本発明の皮膚外用剤は、成分(A)として所定の大きさ及び形状の金属酸化物を所定量用いることで、紫外線、赤外線等の防御効果が得られ、皮膚に塗布した際の白浮き抑制も可能となる。さらに本発明者は、金属酸化物を含有する皮膚外用剤において紫外線、赤外線等の防御効果をより向上させるためには、皮膚外用剤の均一塗布性、特に、紫外線、赤外線等を防御するための有効成分である成分(A)を皮膚表面に均一に配置させることが効果的であること、そのためには皮膚外用剤のレオロジー制御が重要であることを見出した。

具体的には、低粘度の皮膚外用剤を皮膚に塗布した場合には、比重の高い成分(A)を塗布膜中に保持しにくいいため、成分(A)が皮溝に沈降しやすくなると考えられる。特に粒径が大きい成分(A)は皮溝に沈降しやすく、皮膚表面に均一に配置させることができなくなり、紫外線、赤外線等の防御効果も低下すると考えられる。

10

20

30

40

50

本発明の皮膚外用剤は成分(A)に加え、成分(B)として不揮発性油を含有し、且つ粘度が所定値以上であることにより、皮膚に塗布した際の成分(A)の皮溝への沈降を抑制し、均一塗布性を向上させることができるため、紫外線、赤外線等の防御効果をより高めることができたと考えられる。

#### 【0011】

##### <定義>

本発明において紫外線とは、波長200~360nmの電磁波を意味し、赤外線とは、波長780nm~1mmの電磁波を意味する。このうち本発明の皮膚外用剤は、特に、波長780nm~2500nmの近赤外線防御効果に優れる。この近赤外線防御効果により、太陽光照射による皮膚温度上昇抑制効果、及び疲労抑制効果を得ることができる。

10

なお本明細書においては、赤外線防御効果として波長825nmの赤外線防御率を指標とする。

#### 【0012】

##### <粘度>

本発明の皮膚外用剤は、均一塗布性を向上させて皮膚に塗布した際の成分(A)の皮溝への沈降を抑制し、紫外線、赤外線等の防御効果を向上させる観点から、25における粘度が2,500mPa・s以上であり、好ましくは3,000mPa・s以上、より好ましくは5,000mPa・s以上、更に好ましくは8,000mPa・s以上、より更に好ましくは10,000mPa・s以上である。また、皮膚への塗り延ばしやすさの観点から、好ましくは200,000mPa・s以下、より好ましくは150,000mPa・s以下、更に好ましくは100,000mPa・s以下、より更に好ましくは50,000mPa・s以下、より更に好ましくは30,000mPa・s以下、より更に好ましくは20,000mPa・s以下である。

20

そして、本発明の皮膚外用剤の25における粘度は、2,500mPa・s以上であり、好ましくは2,500mPa・s以上200,000mPa・s以下、より好ましくは3,000mPa・s以上200,000mPa・s以下、更に好ましくは5,000mPa・s以上150,000mPa・s以下、より更に好ましくは8,000mPa・s以上100,000mPa・s以下、より更に好ましくは8,000mPa・s以上50,000mPa・s以下、より更に好ましくは10,000mPa・s以上30,000mPa・s以下である。他の態様において、本発明の皮膚外用剤の25における粘度は、好ましくは2,500mPa・s以上150,000mPa・s以下、より好ましくは2,500mPa・s以上100,000mPa・s以下、更に好ましくは2,500mPa・s以上50,000mPa・s以下、より更に好ましくは2,500mPa・s以上30,000mPa・s以下、より更に好ましくは2,500mPa・s以上20,000mPa・s以下である。

30

皮膚外用剤の25における粘度は、B型粘度計を用いて25において測定される値であり、具体的には実施例に記載の方法により測定することができる。

#### 【0013】

本発明の皮膚外用剤の粘度を上記範囲に調整する手段としては、皮膚外用剤に用いる成分(A)の種類及び含有量の選択、成分(B)の種類及び含有量の選択、後述する増粘剤、乳化剤、分散剤、水性媒体等の使用及びその含有量の選択、成分(A)の分散方法の選択等が挙げられる。

40

#### 【0014】

##### <剤型等>

本発明の皮膚外用剤の剤型は、粘度が前記範囲である限り特に制限されず、皮膚への塗布しやすさの点から、液状、ゲル状、又はクリーム状であることが好ましい。本発明の皮膚外用剤の剤型は、粘度が前記範囲である限り、赤外線防御の観点から、スティック製剤等の固形状であることも好ましい。皮膚外用剤は非水系の組成物であっても、乳化組成物の形態であってもよく、乳化組成物としては水中油型乳化組成物、油中水型乳化組成物のいずれでもよい。水中油型乳化組成物であると粘度調整が容易であり、油中水型乳化組成

50

物であると製剤化が容易であり、均一塗布性も向上する。

本発明の皮膚外用剤は、使用感に優れる観点から、乳化組成物であることが好ましく、紫外線、赤外線等の防御効果並びに使用感に優れる観点から、油中水型乳化組成物であることが好ましい。

また本発明の皮膚外用剤は、紫外線又は赤外線防御用の皮膚外用剤の他、化粧水、クリーム、乳液、美容液、サンタン、化粧下地化粧料等の皮膚化粧料であってもよい。

#### 【0015】

<成分(A)：金属酸化物>

本発明の皮膚外用剤は、成分(A)として、平均粒径350nm以上2,500nm以下の球状金属酸化物(A1)及び板状金属酸化物(A2)からなる群から選ばれる1種以上の金属酸化物を含有する。本発明の皮膚外用剤は成分(A)を含有することにより、紫外線、赤外線等の防御効果に優れ、皮膚温度上昇抑制効果及び疲労抑制効果も得られるとともに、皮膚に塗布した際の白浮きを抑制できるという効果を奏する。

10

#### 【0016】

(成分(A1)：平均粒径350nm以上2,500nm以下の球状金属酸化物)

本発明に用いられる成分(A1)は、平均粒径350nm以上2,500nm以下の球状金属酸化物である。ここでいう「球状」には、真球状及び略真球状も含まれる。また成分(A1)は、金属酸化物の一次粒子又は二次粒子のいずれかの形状が球状であればよい。成分(A1)が二次粒子として存在している場合は、成分(A1)の平均粒径とは、二次粒子の粒径の平均値を意味する。

20

成分(A1)の平均粒径は、紫外線、赤外線等の防御効果の観点から、350nm以上であり、好ましくは400nm以上、より好ましくは700nm以上、更に好ましくは800nm以上である。また、紫外線、赤外線等の防御効果の観点、及び、皮膚に塗布した際の白浮きを抑制する観点から、2,500nm以下であり、好ましくは2,000nm以下、より好ましくは1,800nm以下、更に好ましくは1,500nm以下、より更に好ましくは1,200nm以下である。そして、成分(A1)の平均粒径は、350nm以上2,500nm以下であり、好ましくは400nm以上2,000nm以下、より好ましくは700nm以上2,000nm以下、更に好ましくは700nm以上1,800nm以下、より更に好ましくは700nm以上1,500nm以下、より更に好ましくは800nm以上1,200nm以下である。

30

成分(A1)の平均粒径は、メジアン径( $d_{50}$ )であり、例えばレーザー回折/光散乱式粒径分布測定により求めることができる。測定において成分(A1)が分散しやすい溶媒を適宜用いることができ、例えば、表面処理がされていない金属酸化物については精製水を用い、シリコン等で表面処理がされている金属酸化物についてはシリコン油(例えば、メチルポリシロキサン、シクロペンタシロキサン等)を用いることができる。

#### 【0017】

(成分(A2)：板状金属酸化物)

本発明に用いられる成分(A2)は、板状金属酸化物である。成分(A2)は板状であり、好ましくは後述する範囲の厚さ及びアスペクト比を有する。ここで、成分(A2)を含む皮膚外用剤を用いて皮膚表面に塗膜を形成すると、皮膚上面側で観測される光の反射率が、光の干渉効果により赤外線領域の波長の光に対しては高くなり、且つ、可視領域の波長の光に対しては低くなる。そのため、より高い赤外線防御効果が得られるとともに、皮膚に塗布した際の白浮きも抑制しやすくなる。

40

#### 【0018】

成分(A2)の厚さは、赤外線防御効果向上の観点から、好ましくは30nm以上、より好ましくは50nm以上、更に好ましくは60nm以上、より更に好ましくは75nm以上、より更に好ましくは90nm以上、より更に好ましくは100nm以上である。また、赤外線防御効果向上の観点、及び、皮膚に塗布した際の白浮き抑制の観点から、成分(A2)の厚さは、好ましくは360nm以下、より好ましくは330nm以下、更に好ましくは310nm以下、更に好ましくは280nm以下、より更に好ましくは270nm

50

m以下、より更に好ましくは230nm以下、より更に好ましくは200nm以下、より更に好ましくは180nm以下である。そして、成分(A2)の厚さは、好ましくは30nm以上360nm以下、より好ましくは50nm以上330nm以下、更に好ましくは60nm以上310nm以下、より更に好ましくは75nm以上280nm以下、より更に好ましくは90nm以上270nm以下、より更に好ましくは100nm以上230nm以下、より更に好ましくは100nm以上200nm以下、より更に好ましくは100nm以上180nm以下である。

なお、本発明において成分(A2)の厚さとは、板状金属酸化物粒子において最も短い軸の長さを意味する。

成分(A2)の厚さは、走査電子顕微鏡(SEM)による観察画像から求めることができる。具体的には、成分(A2)をSEMにより観察倍率10,000倍の条件にて観察し、観察画像中の50個の粒子の厚さを測定して、個数あたりの厚さの平均値を算出することにより求められる。

#### 【0019】

また、成分(A2)のアスペクト比は、赤外線防御効果向上の観点、及び、皮膚に塗布した際の白浮き抑制の観点から、好ましくは3以上、より好ましくは5以上、更に好ましくは10以上、より更に好ましくは30以上、より更に好ましくは50以上、より更に好ましくは55以上であり、また、好ましくは300以下、より好ましくは230以下、更に好ましくは200以下、より更に好ましくは140以下、より更に好ましくは125以下、より更に好ましくは120以下である。そして、成分(A2)のアスペクト比は、好ましくは3以上300以下、より好ましくは3以上230以下、更に好ましくは10以上230以下、より更に好ましくは30以上230以下、より更に好ましくは50以上200以下、より更に好ましくは55以上140以下、より更に好ましくは55以上125以下、より更に好ましくは55以上120以下である。

成分(A2)のアスペクト比は、前記と同様の条件でSEM観察を行い、観察画像中の50個の粒子において、最も短い軸の長さ(厚さ)及び最も長い軸の長さ(長径)を測定して各々の粒子のアスペクト比(長径/厚さ)を算出し、その平均値より求められる。成分(A2)のアスペクト比は、具体的には実施例に記載の方法で測定できる。

#### 【0020】

成分(A2)は、赤外線防御効果向上の観点、及び、皮膚に塗布した際の白浮き抑制の観点から、好ましくは、厚さ30nm以上360nm以下、かつアスペクト比が3以上300以下であり、より好ましくは、厚さ50nm以上330nm以下、かつアスペクト比が3以上230以下であり、更に好ましくは、厚さ60nm以上310nm以下、かつアスペクト比が10以上230以下であり、より更に好ましくは、厚さ75nm以上280nm以下、かつアスペクト比が30以上230以下であり、より更に好ましくは、厚さ90nm以上270nm以下、かつアスペクト比が50以上200以下であり、より更に好ましくは、厚さ100nm以上230nm以下、かつアスペクト比が55以上140以下であり、より更に好ましくは、厚さ100nm以上200nm以下、かつアスペクト比が55以上125以下であり、より更に好ましくは、厚さ100nm以上180nm以下、かつアスペクト比が55以上120以下である。

#### 【0021】

皮膚外用剤は、成分(A)として成分(A1)及び成分(A2)のうちいずれか一方を含有していてもよく、成分(A1)及び成分(A2)の両方を含有していてもよい。成分(A)が成分(A1)及び成分(A2)の両方を含有する場合、その質量比は特に制限されず、赤外線防御効果向上の観点、及び、皮膚に塗布した際の白浮き抑制の観点から、質量比(A1)/(A2)として、好ましくは10/90~90/10、より好ましくは20/80~80/20、更に好ましくは30/70~70/30の範囲である。

また皮膚外用剤は、成分(A)として2種以上の成分(A1)を含有してもよく、2種以上の成分(A2)を含有することもできる。

#### 【0022】

10

20

30

40

50

成分(A1)及び成分(A2)における金属酸化物としては、例えば、酸化チタン、酸化亜鉛、酸化ジルコニウム、酸化鉄、酸化アルミニウム、酸化セリウム等が挙げられる。これらの中でも、紫外線、赤外線等の防御効果の観点、特に赤外線防御効果向上の観点から、好ましくは酸化チタン及び酸化亜鉛からなる群から選ばれる1種以上であり、より好ましくは酸化チタンである。

酸化チタンの結晶構造は、ルチル型、アナターゼ型、アモルファスのいずれでもよいが、紫外線、赤外線等の防御効果の観点からはルチル型が好ましい。

#### 【0023】

成分(A1)及び成分(A2)は、表面処理されていない金属酸化物でもよく、皮膚外用剤への分散性を高めるために、必要に応じて公知の方法で疎水性処理等の表面処理を行った金属酸化物でもよい。なお、成分(A1)及び成分(A2)は、金属酸化物以外の粒子の表面を金属酸化物で表面処理したものとは区別される。

10

#### 【0024】

金属酸化物の表面処理に用いられる表面処理剤としては、シリコーン；アルキルアルコキシシラン；パーフルオロアルキルリン酸エステル、パーフルオロアルコール等のフッ素含有化合物；N-アシルグルタミン酸等によるアミノ酸；その他、レシチン；金属石鹸；ステアリン酸等の脂肪酸；アルキルリン酸エステル等が挙げられる。これらの中でも、シリコーン及びアルキルアルコキシシランからなる群から選ばれる1種以上が好ましい。

表面処理剤としてのシリコーンは特に制限されず、例えば、メチルポリシロキサン、ジメチルポリシロキサン、メチルフェニルポリシロキサン、メチルヒドロジェンポリシロキサン〔ヒドロゲンジメチコン〕、メチルシクロポリシロキサン、オクタメチルシクロテトラシロキサン、デカメチルシクロペンタシロキサン、ドデカメチルシクロヘキサシロキサン、オクタメチルトリシロキサン、テトラデカメチルヘキサシロキサン、ジメチルシロキサン・メチル(ポリオキシエチレン)シロキサン・メチル(ポリオキシプロピレン)シロキサン共重合体、ジメチルシロキサン・メチル(ポリオキシエチレン)シロキサン共重合体、ジメチルシロキサン・メチル(ポリオキシプロピレン)シロキサン共重合体、ジメチルシロキサン・メチルセチルオキシシロキサン共重合体、ジメチルシロキサン・メチルステアロキシシロキサン共重合体、(アクリル酸アルキル/ジメチコン)共重合体(ASC)等の各種シリコーン油を挙げることができる。

20

表面処理剤としてのアルキルアルコキシシランとしては、炭素数6~20の分岐又は直鎖のアルキル基を有するものが好ましく、特に、オクチルトリエトキシシラン、オクチルトリメトキシシランを挙げることができる。

30

#### 【0025】

皮膚外用剤への成分(A)の分散性を高め、紫外線、赤外線等の防御効果をより向上させる観点からは、金属酸化物の表面処理に用いられる表面処理剤としてはメチルポリシロキサン、ジメチルポリシロキサン、メチルヒドロジェンポリシロキサン、(アクリル酸アルキル/ジメチコン)共重合体、及びオクチルトリエトキシシランからなる群から選ばれる1種以上が好ましい。

成分(A1)又は成分(A2)が表面処理された金属酸化物である場合、表面処理剤による被覆量は、皮膚外用剤中への分散性を高める観点から、成分(A1)又は成分(A2)の総量に対して、好ましくは1質量%以上9質量%以下、より好ましくは2質量%以上8質量%以下である。

40

#### 【0026】

赤外線防御効果向上の観点、及び、皮膚に塗布した際の白浮き抑制の観点からは、成分(A)は成分(A2)を含むことが好ましい。

ここで、成分(A2)を構成する金属酸化物は、高屈折率材料である方が高い光干渉効果が得られる。そのため成分(A)は、成分(A2)として板状酸化チタン及び板状酸化亜鉛からなる群から選ばれる1種以上を含むことがより好ましく、板状酸化チタンを含むことが更に好ましい。

成分(A)が成分(A2)を含む場合、成分(A)中の成分(A2)の含有量は、赤外

50

線防御効果向上の観点、及び、皮膚に塗布した際の白浮き抑制の観点から、好ましくは50質量%以上、より好ましくは60質量%以上、更に好ましくは70質量%以上、より更に好ましくは80質量%以上、より更に好ましくは90質量%以上であり、100質量%以下である。

【0027】

皮膚外用剤中の成分(A)の含有量は、紫外線、赤外線等の防御効果向上の観点から、2質量%以上であり、好ましくは3質量%以上、より好ましくは5質量%以上である。また、皮膚に塗布した際の白浮き抑制の観点から、50質量%以下である。

また、赤外線防御効果向上の観点、及び、皮膚に塗布した際の白浮き抑制の観点から、皮膚外用剤中の成分(A)の含有量は、更に好ましくは下記の範囲である。

10

成分(A)が平均粒径350nm以上800nm未満の球状酸化チタンである場合、皮膚外用剤中の該球状酸化チタンの含有量は、更に好ましくは5質量%以上30質量%以下、より更に好ましくは5質量%以上25質量%以下である。

成分(A)が平均粒径800nm以上2,500nm以下の球状酸化チタンである場合、皮膚外用剤中の該球状酸化チタンの含有量は、更に好ましくは5質量%以上40質量%以下、より更に好ましくは5質量%以上30質量%以下である。

成分(A)が板状酸化チタンである場合、皮膚外用剤中の該板状酸化チタンの含有量は、更に好ましくは5質量%以上30質量%以下である。

成分(A)が平均粒径350nm以上2,500nm以下の球状酸化亜鉛、又は板状酸化亜鉛である場合、皮膚外用剤中の該球状酸化亜鉛又は板状酸化亜鉛の含有量は、更に好ましくは7質量%以上50質量%以下、より更に好ましくは10質量%以上50質量%以下である。

20

【0028】

また、皮膚外用剤の不揮発性成分中の成分(A)の含有量は、紫外線、赤外線等の防御効果向上の観点から、好ましくは3質量%以上、より好ましくは5質量%以上、更に好ましくは10質量%以上である。また、皮膚に塗布した際の白浮き抑制の観点から、好ましくは50質量%以下、より好ましくは40質量%以下、更に好ましくは30質量%以下、より更に好ましくは20質量%以下である。そして、皮膚外用剤の不揮発性成分中の成分(A)の含有量は、好ましくは3質量%以上50質量%以下、より好ましくは5質量%以上40質量%以下、更に好ましくは10質量%以上30質量%以下、より更に好ましくは10質量%以上20質量%以下である。

30

ここでいう「皮膚外用剤中の不揮発性成分」とは、皮膚外用剤の全量から水、後述する水性媒体、及び揮発性油(成分(B)以外の油剤)を除いた成分を意味する。

【0029】

皮膚外用剤中の成分(A)の含有量(質量%)に対する前記皮膚外用剤の粘度(mPa・s)は、成分(A)の含有量に応じた粘度とすることにより均一塗布性を高め、成分(A)を皮膚表面に均一に配置させる観点から、[皮膚外用剤の粘度(mPa・s)/皮膚外用剤中の成分(A)の含有量(質量%)]として、好ましくは100以上、より好ましくは250以上、更に好ましくは300以上、より更に好ましくは350以上であり、また、好ましくは25,000以下、より好ましくは20,000以下、更に好ましくは15,000以下、より更に好ましくは10,000以下、より更に好ましくは5,000以下、より更に好ましくは3,000以下である。そして、[皮膚外用剤の粘度(mPa・s)/皮膚外用剤中の成分(A)の含有量(質量%)]は、好ましくは100以上25,000以下、より好ましくは250以上20,000以下、更に好ましくは300以上15,000以下、より更に好ましくは350以上10,000以下、より更に好ましくは350以上5,000以下、より更に好ましくは350以上3,000以下である。

40

【0030】

成分(A)として、市販の金属酸化物を用いることもできる。

例えば、成分(A1)として用いられる市販の球状酸化チタンとしては、チタン工業(株)製「ST-750EC」、堺化学工業(株)製「R-38L」等が挙げられ、市販の

50

球状酸化亜鉛としては、堺化学工業（株）製「LP-ZINC-2KS」等が挙げられる。

成分（A2）として用いられる市販の板状酸化チタンとしては、CQV社製「Feathelave PT-9001K」、「Feathelave PT-7001K」、「Feathelave PT-7401K」、「Feathelave PT-7801K」、「Feathelave PT-7901K」、及びこれらの表面被覆処理品等が挙げられ、市販の板状酸化亜鉛としては、堺化学工業（株）製「XZ-1000F-LP」等が挙げられる。

#### 【0031】

<成分（B）：不揮発性油>

本発明の皮膚外用剤は、所望の粘度に調整しやすく、均一塗布性を高めることにより紫外線、赤外線等の防御効果を高める観点から、成分（B）として不揮発性油を含有する。不揮発性油とは、以下の方法（1）により測定される、25、6時間での蒸発量が20%未満のものをいう。

方法（1）：直径120mmのガラス製シャーレの中に、直径90mmの濾紙を入れ、濾紙にサンプルを1gのせて、65%RHの室内（25）に保存する。そして6時間後のサンプルの残留物を測定し、蒸発量を算出する。

#### 【0032】

また、成分（B）は1気圧下、25において液状であることが好ましい。より具体的には、成分（B）は、25における粘度が好ましくは500mPa・s以下であり、より好ましくは300mPa・s以下であり、更に好ましくは100mPa・s以下であり、より更に好ましくは50mPa・s以下であり、好ましくは5mPa・s以上である。

当該粘度は、B型粘度計「TVB-10」（東機産業（株）製）を用いて、ローターNo.1、25、60rpm、1分間の条件で測定できる。

#### 【0033】

成分（B）の具体例としては、25で液状である不揮発性油であり、例えばエステル油、シリコン油、炭化水素油、高級脂肪酸、及び高級アルコールからなる群から選ばれる1種以上が挙げられる。

#### 【0034】

不揮発性の液状のエステル油としては、例えば、炭素数8以上18以下の脂肪酸と炭素数2以上22以下の分岐アルコールとのモノエステル、炭素数6以上18以下の分岐脂肪酸とグリセリンとのトリエステル、炭素数2以上18以下のジカルボン酸と炭素数2以上18以下の分岐アルコールとのジエステル、炭素数6以上18以下の脂肪酸と炭素数2以上10以下のジアルコールとのジエステル、及び安息香酸アルキルからなる群から選ばれる1種以上が挙げられる。

炭素数8以上18以下の脂肪酸と炭素数2以上22以下の分岐アルコールとのモノエステルとしては、イソノナン酸イソニル、イソノナン酸イソトリデシル、ミリスチン酸イソプロピル、ミリスチン酸イソセチル、ミリスチン酸オクチルドデシル、パルミチン酸イソプロピル、パルミチン酸エチルヘキシル、パルミチン酸2-ヘキシルデシル等が挙げられる。

炭素数6以上18以下の脂肪酸とグリセリンとのトリエステルとしては、トリ2-エチルヘキサン酸グリセリル、トリ（カプリル酸/カプリン酸）グリセリル等が挙げられる。

炭素数2以上18以下のジカルボン酸と炭素数2以上18以下の分岐アルコールとのジエステルとしては、セバシン酸ジ2-エチルヘキシル、セバシン酸ジイソプロピル、リンゴ酸ジイソステアリル等が挙げられる。

炭素数6以上18以下の脂肪酸と炭素数2以上10以下のジアルコールとのジエステルとしては、ジカプリン酸ジエチレングリコール、ジカプリン酸ネオペンチルグリコール、ジ2-エチルヘキサン酸ネオペンチルグリコール等が挙げられる。

また安息香酸アルキルとしては、安息香酸アルキル（C12～C15）（例えば、フィンソルブTN；Innospec Active Chemicals LLC製）等が

10

20

30

40

50

挙げられる。

【0035】

成分(B)として用いられるエステル油の中でも、粘度調整の容易性の観点、後述する増粘剤等の溶解性向上の観点、及び、皮膚に塗布した際のべたつき抑制の観点から、炭素数12以上18以下の脂肪酸と炭素数2以上22以下の分岐アルコールとのモノエステル、炭素数6以上18以下の分岐脂肪酸とグリセリンとのトリエステル、炭素数2以上18以下のジカルボン酸と炭素数2以上18以下の分岐アルコールとのジエステル、炭素数6以上18以下の脂肪酸と炭素数2以上10以下の分岐ジアルコールとのジエステル、及び安息香酸アルキル(C12~C15)からなる群から選ばれる1種以上が好ましく、ミリスチン酸イソプロピル、ミリスチン酸イソセチル、ミリスチン酸オクチルドデシル、パルミチン酸イソプロピル、パルミチン酸エチルヘキシル、パルミチン酸2-ヘキシルデシル、トリ2-エチルヘキサン酸グリセリル、セバシン酸ジイソプロピル、セバシン酸ジ2-エチルヘキシル、リンゴ酸ジイソステアリル、ジ2-エチルヘキサン酸ネオペンチルグリコール、ジカプリン酸ネオペンチルグリコール、及び安息香酸アルキル(C12~C15)からなる群から選ばれる1種以上がより好ましく、パルミチン酸イソプロピルが更に好ましい。

10

【0036】

不揮発性の液状のシリコン油としては、メチルポリシロキサンが好ましく、25における粘度が20mPa・s以下のメチルポリシロキサンがより好ましい。

【0037】

不揮発性の液状の炭化水素油としては、流動パラフィン、水添ポリイソブテン等の軽質流動イソパラフィン、重質流動イソパラフィン、流動オゾケライト、スクワラン、プリスタン、スクワレン、イソヘキサデカン等が挙げられる。

20

【0038】

不揮発性の液状の高級脂肪酸としては、炭素数12以上22以下の脂肪酸が挙げられ、具体的には、オレイン酸、イソステアリン酸、リノール酸、リノレン酸等が挙げられる。

不揮発性の液状の高級アルコールとしては、例えば、炭素数12以上28以下のアルコールが挙げられ、具体的には、オレイルアルコール、2-デシルテトラデシノール、ドデカノール、イソステアリルアルコール、オクチルドデカノール等が挙げられる。

【0039】

成分(B)は、25で液状である不揮発性油のうち、粘度調整の容易性の観点、後述する増粘剤等の溶解性向上の観点、及び、皮膚に塗布した際のべたつき抑制の観点から、好ましくはエステル油、シリコン油及び炭化水素油からなる群から選ばれる1種以上であり、より好ましくはエステル油及びシリコン油からなる群から選ばれる1種以上であり、更に好ましくはエステル油及びシリコン油である。

30

【0040】

本発明の皮膚外用剤中の成分(B)の含有量は、所望の粘度に調整しやすく、均一塗布性を高めることにより紫外線、赤外線等の防御効果を高める観点から、好ましくは1質量%以上、より好ましくは5質量%以上である。また、皮膚に塗布した際のべたつき抑制の観点から、好ましくは90質量%以下、より好ましくは80質量%以下、更に好ましくは70質量%以下、より更に好ましくは65質量%以下である。

40

なお、本発明の皮膚外用剤が油中水型乳化組成物である場合、皮膚外用剤中の成分(B)の含有量は、油中水型とする観点から、更に好ましくは15質量%以上、より更に好ましくは20質量%以上、より更に好ましくは25質量%以上、より更に好ましくは30質量%以上、より更に好ましくは35質量%以上である。

本発明の皮膚外用剤が水中油型乳化組成物である場合は、皮膚外用剤中の成分(B)の含有量は、水中油型とする観点から、より更に好ましくは30質量%以下、より更に好ましくは20質量%以下、より更に好ましくは10質量%以下である。

【0041】

本発明の皮膚外用剤において、成分(A)の含有量に対する成分(B)の含有量の質量

50

比  $[(B)/(A)]$  は、均一塗布性を高めることにより紫外線、赤外線等の防御効果を高める観点、及び使用感向上の観点から、好ましくは 0.05 以上、より好ましくは 0.1 以上、更に好ましくは 0.2 以上、より更に好ましくは 0.5 以上、より更に好ましくは 1 以上、より更に好ましくは 2 以上、より更に好ましくは 3 以上、より更に好ましくは 3.6 以上であり、皮膚に塗布した際のべたつき抑制の観点から、好ましくは 60 以下、より好ましくは 50 以下、更に好ましくは 30 以下、より更に好ましくは 20 以下、より更に好ましくは 10 以下、より更に好ましくは 8 以下である。そして、質量比  $[(B)/(A)]$  は、好ましくは 0.05 以上 60 以下、より好ましくは 0.1 以上 50 以下、更に好ましくは 0.2 以上 30 以下、より更に好ましくは 0.5 以上 20 以下、より更に好ましくは 1 以上 10 以下、より更に好ましくは 2 以上 10 以下、より更に好ましくは 3 以上 10 以下、より更に好ましくは 3.6 以上 8 以下である。

10

#### 【0042】

また紫外線、赤外線等の防御効果の観点、及び、皮膚に塗布した際の白浮きを抑制する観点から、皮膚外用剤中の成分 (A) 及び成分 (B) の合計含有量は、好ましくは 2 質量% 以上、より好ましくは 10 質量% 以上、更に好ましくは 20 質量% 以上、より更に好ましくは 30 質量% 以上、より更に好ましくは 40 質量% 以上、より更に好ましくは 45 質量% 以上、より更に好ましくは 47 質量% 以上、より更に好ましくは 50 質量% 以上であり、また、100 質量% 以下である。

#### 【0043】

<増粘剤>

20

本発明の皮膚外用剤は、粘度調整を容易にする観点、及び、均一塗布性を高め、紫外線、赤外線等の防御効果を高める観点から、さらに増粘剤を含有することが好ましい。本発明において「増粘剤」とは、皮膚外用剤を増粘させる作用を有する添加剤を意味する。

増粘剤としては、油増粘剤、水溶性増粘剤等が挙げられ、皮膚外用剤の剤型等に応じて適宜選択することができる。例えば、皮膚外用剤が油中水型乳化組成物である場合には、処方の変更なしに容易に増粘できる観点で、油増粘剤（油ゲル化剤）が好ましい。

油増粘剤としては、通常の皮膚外用剤に用いられるものが挙げられ、例えば、固形ワックス、有機変性粘土鉱物、ヒュームドシリカ、コロイダルシリカ、デキストリン脂肪酸エステル、金属石鹸、シヨ糖脂肪酸エステル、アミノ酸系ゲル化剤等が挙げられる。これらのうち、粘度調整を容易にする観点、及び、均一塗布性を高め、紫外線、赤外線等の防御効果を高める観点から、好ましくは固形のワックス、有機変性粘土鉱物、デキストリン脂肪酸エステル、及びアミノ酸系ゲル化剤からなる群から選ばれる 1 種以上であり、より好ましくは固形のワックス、有機変性粘土鉱物、及びデキストリン脂肪酸エステルらなる群から選ばれる 1 種以上である。

30

#### 【0044】

固形のワックスとしては、融点 61 以上のワックスが挙げられる。融点 61 以上のワックスは、25 において固体の性状を示す。

本発明において、融点は、医薬部外品原料規格、一般試験法の第 1 法、第 2 法、又は第 3 法のいずれかにより、測定されるものである。いずれの方法を採用するかは、各成分について、医薬部外品原料規格において測定法の記載がある場合には、それに従う。記載がない場合には、融点を考慮して測定法を選択する。具体的には、融点が 80 を大きく超えるような高い場合には第 1 法、これより融点が高い固体脂には第 2 法、カタログ等でペースト油と呼ばれるものには第 3 法を用いるのが一般的であるが、測定できる方法であればいずれの方法であってもよい。

40

#### 【0045】

融点 61 以上のワックスとしては、通常の皮膚外用剤に用いられるものであれば特に制限されず、例えば、オゾケライト、セレシン等の鉱物系ワックス；パラフィン、マイクロクリスタリンワックス等の石油系ワックス；フィッシャー・トロプシュワックス、ポリエチレンワックス、合成炭化水素ワックス等の合成炭化水素；カルナウバロウ、キャンデーリラロウ、ライスワックス、サンフラワーワックス等の植物系ワックス；ミツロウ、鯨口

50

ウ等の動物性ワックス；シリコンワックス、合成ミツロウ等の合成ワックス；等が挙げられる。

これらのうち、粘度調整を容易にする観点、及び、均一塗布性を高め、紫外線、赤外線等の防御効果を高める観点から、石油系ワックス及びシリコンワックスからなる群から選ばれる1種以上が好ましい。

また、これらのワックスは、粘度調整を容易にする観点、及び、均一塗布性を高め、紫外線、赤外線等の防御効果を高める観点から、融点65以上、140以下が好ましく、70以上、110以下がより好ましい。

#### 【0046】

有機変性粘土鉱物としては、通常の皮膚外用剤に用いられるものであれば特に制限されず、例えば、ベントナイト、ラポナイト、ヘクトライト、モンモリロナイト、ケイ酸アルミニウムマグネシウム等の層状粘土鉱物を、第四級アンモニウム塩型カチオン界面活性剤で処理して得られるカチオン変性粘土鉱物が挙げられる。

具体的には、ベンジルジメチルステアリルアンモニウムクロリド、及びジメチルジステアリルアンモニウムクロリドからなる群から選ばれる1種以上が好ましく、ジメチルジステアリルアンモニウムクロリドがより好ましい。

有機変性粘土鉱物の市販品としては、エレメンティスジャパン社製「ベントン38」、「ベントン38VCG」、「ベントン27」等が挙げられる。

#### 【0047】

有機変性粘土鉱物は、作業性向上及び増粘効果向上の観点から、溶媒によって希釈されたプレミックスゲルとして用いることもできる。

具体的には、有機変性粘土鉱物を予め溶媒に分散させたプレミックスゲルが好ましい。該溶媒としては、有機変性粘土鉱物によってゲル化可能であれば制限されず、増粘効果向上の観点から、オクチルドデカノール、ミネラルオイル等が好ましい。また、有機変性粘土鉱物を効率よく分散させる点から、炭酸プロピレン、エタノール、水、各種界面活性剤等の極性添加剤をさらに含有させることが好ましい。

プレミックスゲル中の有機変性粘土鉱物の含有量は、作業性向上及び増粘効果向上の観点、並びにプレミックスゲル自体の油分離を抑制する点から、好ましくは5質量%以上、より好ましくは8質量%以上、更に好ましくは10質量%以上であり、好ましくは25質量%以下、より好ましくは20質量%以下、更に好ましくは18質量%以下である。

プレミックスゲルの市販品としては、エレメンティスジャパン社製「ベントンゲルEUGV」、「ベントンゲルMIOV」、「ベントンゲルVS-5PCV」、「ベントンゲルPTMV」、「ベントンゲルGTCCV」等が挙げられる。

#### 【0048】

デキストリン脂肪酸エステルとしては、通常の皮膚外用剤に用いられるものであれば特に制限されず、粘度調整を容易にする観点、及び、均一塗布性を高め、紫外線、赤外線等の防御効果を高める観点から、炭素数8以上24以下の脂肪酸とデキストリンのエステルが好ましく、炭素数14以上20以下の脂肪酸とデキストリンのエステルがより好ましい。また、デキストリンの平均重合度が3以上150以下であるものが好ましい。

具体的には、パルミチン酸デキストリン、ステアリン酸デキストリン、パルミチン酸・ステアリン酸デキストリン、オレイン酸デキストリン、イソパルミチン酸デキストリン、イソステアリン酸デキストリン、ミリスチン酸デキストリン、パルミチン酸・2-エチルヘキサン酸デキストリン等が挙げられる。

これらのうち、粘度調整を容易にする観点、及び、均一塗布性を高め、紫外線、赤外線等の防御効果を高める観点から、パルミチン酸デキストリン、ミリスチン酸デキストリン、パルミチン酸・2-エチルヘキサン酸デキストリンが好ましく、少なくともパルミチン酸デキストリンを含むものがより好ましい。

デキストリン脂肪酸エステルの市販品としては、千葉製粉(株)製のパルミチン酸デキストリン(「レオパールKL2」、「レオパールKS2」、「レオパールTL2」)、パルミチン酸・2-エチルヘキサン酸デキストリン「レオパールTT2」、ミリス

10

20

30

40

50

チン酸デキストリン「レオパール MKL2」等が挙げられる。

【0049】

アミノ酸系ゲル化剤としては、通常の皮膚外用剤に用いられるものであれば特に制限されずに用いることができる。具体的には、ジブチルラウロイルグルタミド、ジブチルエチルヘキサノイルグルタミドが好ましい。

アミノ酸系ゲル化剤の市販品としては、味の素(株)製のジブチルラウロイルグルタミド「GP-1」、ジブチルエチルヘキサノイルグルタミド「EB-21」等が挙げられる。

【0050】

アミノ酸系ゲル化剤は、作業性向上及び増粘効果向上の観点から、溶媒によって希釈溶解されたプレミックスゲルとして用いることもできる。 10

具体的には、アミノ酸系ゲル化剤を予め溶媒に溶解させたプレミックスゲルが好ましい。該溶媒としては、アミノ酸系ゲル化剤によってゲル化可能であれば制限されないが、増粘効果向上の観点から、オクチルドデカノール、イソステアリン酸等が好ましい。

プレミックスゲル中のアミノ酸系ゲル化剤の含有量は、作業性向上及び増粘効果向上の観点、並びにプレミックスゲル自体の油分離を抑制する点から、好ましくは10質量%以上、より好ましくは15質量%以上、更に好ましくは20質量%以上であり、好ましくは45質量%以下、より好ましくは40質量%以下、更に好ましくは36質量%以下である。

プレミックスゲルの市販品としては、高級アルコール工業(株)「AJK-OD2046」(アミノ酸系ゲル化剤を20質量%含有)、「AJK-IS3613」(アミノ酸系ゲル化剤を36質量%含有)等が挙げられる。 20

【0051】

増粘剤は、1種又は2種以上を用いることができる。皮膚外用剤が増粘剤を含有する場合、皮膚外用剤中の増粘剤の含有量は、粘度調整の観点、及び、均一塗布性を高め、紫外線、赤外線等の防御効果を高める観点から、好ましくは0.5質量%以上、より好ましくは1質量%以上、更に好ましくは2質量%以上、より更に好ましくは3質量%以上であり、また、好ましくは50質量%以下、より好ましくは30質量%以下、更に好ましくは25質量%以下、より更に好ましくは20質量%以下、より更に好ましくは15質量%以下である。そして、皮膚外用剤中の増粘剤の含有量は、好ましくは0.5質量%以上50質量%以下、より好ましくは0.5質量%以上30質量%以下、更に好ましくは1質量%以上25質量%以下、より更に好ましくは2質量%以上20質量%以下、より更に好ましくは3質量%以上15質量%以下である。 30

【0052】

< 乳化剤 >

本発明の皮膚外用剤は、成分(A)の分散性を高める観点、及び乳化組成物を調製する観点から、さらに乳化剤を含有することができる。本発明において「乳化剤」とは、乳化性能を有する、前記増粘剤以外の添加剤を意味する。

本発明に用いる乳化剤としては、低分子乳化剤、高分子乳化剤のいずれでもよいが、成分(A)の分散性を高める観点、及び粘度調整の容易性の観点からは高分子乳化剤が好ましい。 40

高分子乳化剤としては、親水性部位及び疎水性部位を有する高分子乳化剤が好ましく、例えば、アルキル変性ポリアクリル酸系ポリマー、アルキル変性多糖類系ポリマー、オキサゾリン変性シリコンが挙げられる。

【0053】

アルキル変性ポリアクリル酸系ポリマーとしては、例えば、(メタ)アクリル酸/(メタ)アクリル酸アルキル共重合体、アクリル酸アルキル・メタクリル酸アルキル・メタクリル酸ポリオキシエチレンステアリルエーテル共重合体等が挙げられる。

【0054】

アルキル変性多糖類系ポリマーとしては、例えば、ヒドロキシエチルセルロース、ヒド 50

ロキシプロピルセルロース、ヒドロキシプロピルメチルセルロース、メチルセルロース、カルボキシメチルセルロースナトリウム、ステアロキシヒドロキシプロピルメチルセルロース、ラウレス - 13PGヒドロキシエチルセルロース、ステアロキシPGヒドロキシエチルセルローススルホン酸塩等が挙げられる。

【0055】

オキサゾリン変性シリコーンとしては、N - アシルアルキレンイミンを繰り返し単位とする親水性セグメントと、オルガノポリシロキサンセグメントとを構成単位とするポリマーが挙げられ、例えばN - プロピオニルポリエチレンイミン・メチルポリシロキサン共重合体 (POLYSILICONE - 9) を例示することができる。

【0056】

乳化剤は、1種又は2種以上を用いることができる。上記の中でも、成分(A)の分散性を高める観点、及び粘度調整の容易性の観点からはオキサゾリン変性シリコーンが好ましい。

【0057】

本発明の皮膚外用剤が乳化剤を含有する場合、皮膚外用剤中の乳化剤の含有量は、乳化性能の観点から、好ましくは0.1質量%以上、より好ましくは0.2質量%以上であり、また、好ましくは15質量%以下、より好ましくは10質量%以下、更に好ましくは5質量%以下、より更に好ましくは3質量%以下、より更に好ましくは1質量%以下である。そして、皮膚外用剤中の乳化剤の含有量は、好ましくは0.1質量%以上15質量%以下、より好ましくは0.1質量%以上10質量%以下、更に好ましくは0.1質量%以上5質量%以下、より更に好ましくは0.1質量%以上3質量%以下、より更に好ましくは0.2質量%以上1質量%以下である。

【0058】

<分散剤>

本発明の皮膚外用剤は、成分(A)の分散性を高める観点から、さらに分散剤を含有することができる。本発明において「分散剤」とは、主として成分(A)の分散性向上に寄与する添加剤を意味する。

【0059】

本発明に用いる分散剤としては、成分(A)の分散性を高める観点から、ノニオン性界面活性剤が好ましい。該ノニオン性界面活性剤としては通常の皮膚外用剤に用いられるものであれば特に制限はなく、シリコーン系界面活性剤、フッ素含有系界面活性剤等も用いることができる。

分散剤として用いられるノニオン性界面活性剤としては、例えば、アルカノールアミド、アミノオキサイド、ポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレン硬化ヒマシ油、ポリオキシエチレン脂肪酸アミド、ポリオキシエチレンアルキルアミン、アルキルサッカライド、 $\alpha$ -モノアルキルグリセリルエーテル、ポリエーテル変性シリコーン等が挙げられ、これらのうち1種又は2種以上を用いることができる。

【0060】

成分(A)の分散性をより高める観点から、分散剤はノニオン性のシリコーン系界面活性剤を含むことが好ましく、ポリエーテル変性シリコーンを含むことがより好ましい。

分散剤として用いられるポリエーテル変性シリコーンの市販品としては、例えば、信越化学工業(株)製の「KF-6012」(ポリ(オキシエチレン・オキシプロピレン)メチルポリシロキサン共重合体)、信越化学工業(株)製の「KF-6015」、「KF-6017」、「KF-6028」、「KF-6038」、ダウ・東レ(株)製の「SH3775M」(以上、ポリオキシエチレン・メチルポリシロキサン共重合体)、ダウ・東レ(株)製の「SH3772C」等が挙げられる。

【0061】

分散剤として用いられる上記以外のノニオン性界面活性剤としては、ポリオキシエチレンアルキルエーテル型のノニオン性界面活性剤がより好ましい。ポリオキシエチレンアルキルエーテル型のノニオン性界面活性剤の市販品としては、例えば、花王(株)製「エマ

10

20

30

40

50

ルゲン 1 2 1 - G」(ポリオキシエチレン(2 1)ラウリルエーテル)、花王(株)製「エマルゲン 1 6 2 0 G」(ポリオキシエチレン(2 0)2-ヘキシルデシルエーテル)、花王(株)製「エマルゲン 2 0 2 0 G」(ポリオキシエチレン(2 0)オクチルドデシルエーテル)等が挙げられる。

【0 0 6 2】

分散剤は、1種又は2種以上を用いることができる。本発明の皮膚外用剤が分散剤を含有する場合、皮膚外用剤中の分散剤の含有量は、成分(A)の分散性を高める観点から、好ましくは0.1質量%以上、より好ましくは0.3質量%以上、更に好ましくは0.5質量%以上であり、また、好ましくは1.5質量%以下、より好ましくは1.0質量%以下、更に好ましくは0.5質量%以下である。そして、皮膚外用剤中の分散剤の含有量は、好ましくは0.1質量%以上1.5質量%以下、より好ましくは0.3質量%以上1.0質量%以下、更に好ましくは0.5質量%以上0.5質量%以下である。

10

【0 0 6 3】

<水>

本発明の皮膚外用剤は、さっぱりとした使用感を与える観点から、さらに水を含有することが好ましい。

皮膚外用剤が水を含有する場合、皮膚外用剤中の水の含有量は剤型により適宜選択することができるが、好ましくは1質量%以上、より好ましくは5質量%以上、更に好ましくは8質量%以上、より更に好ましくは1.0質量%以上であり、好ましくは5.0質量%以下、より好ましくは3.0質量%以下、更に好ましくは2.5質量%以下である。

20

【0 0 6 4】

<水性媒体>

本発明の皮膚外用剤は、成分(A)を分散させ、及び他の配合成分を分散又は溶解させて均一塗布性をより向上させる観点から、さらに水以外の水性媒体を含有することができる。当該水性媒体としては、例えば、エタノール、イソプロピルアルコール、ブチルアルコール等の炭素数4以下の1価アルコール；1,3-ブチレングリコール、グリセリン、エチレングリコール、プロピレングリコール、ジエチレングリコール、ジプロピレングリコール等の炭素数6以下の低分子ジオール及びトリオールが挙げられる。これらの中でも、炭素数4以下の1価アルコールからなる群から選ばれる1種以上が好ましく、エタノールがより好ましい。

30

【0 0 6 5】

皮膚外用剤が水性媒体を含有する場合、皮膚外用剤中の水性媒体の含有量は剤型により適宜選択することができるが、成分(A)を分散させ、及び他の配合成分を分散又は溶解させて均一塗布性をより向上させる観点から、好ましくは0.1質量%以上、より好ましくは0.5質量%以上であり、好ましくは5.0質量%以下、より好ましくは3.0質量%以下、更に好ましくは2.0質量%以下、より更に好ましくは1.0質量%以下である。そして、皮膚外用剤中の水性媒体の含有量は、好ましくは0.1質量%以上5.0質量%以下、より好ましくは0.1質量%以上3.0質量%以下、更に好ましくは0.1質量%以上2.0質量%以下、より更に好ましくは0.5質量%以上1.0質量%以下である。

【0 0 6 6】

また、皮膚外用剤中の水及び水性媒体の合計含有量は、さっぱりとした使用感をより向上させる観点から、好ましくは2質量%以上、より好ましくは5質量%以上、更に好ましくは1.0質量%以上であり、好ましくは7.0質量%以下、より好ましくは6.0質量%以下、更に好ましくは4.0質量%以下、より更に好ましくは3.5質量%以下である。

40

【0 0 6 7】

<その他の成分>

本発明の皮膚外用剤は、上記成分以外に、必要に応じて他の成分、例えば、紫外線吸収剤、紫外線散乱剤、揮発性油、制汗剤、香料、保湿剤、殺菌剤、pH調整剤、酸化防止剤、防腐剤等を含有させることもできる。

【0 0 6 8】

50

(紫外線吸収剤)

本発明の皮膚外用剤は、紫外線防御効果を向上させる観点から、さらに紫外線吸収剤を含有してもよい。

紫外線吸収剤としては、成分(B)以外の有機紫外線吸収剤であることが好ましく、油溶性の有機紫外線吸収剤、又は水溶性の有機紫外線吸収剤を用いることができる。紫外線防御効果向上の観点、皮膚に塗布した際の白浮き抑制の観点、及びべたつき抑制の観点から、紫外線吸収剤は油溶性の有機紫外線吸収剤であることが好ましい。なお本発明において「油溶性」とは非水溶性であることを意味し、具体的には、25において水への溶解度が1w/w%以下であることをいう。

なお、本発明の効果をj得る観点から、紫外線吸収剤は、例えば無機充填材の表面を紫外線吸収性材料で被覆した紫外線吸収剤等の、無機系の紫外線吸収剤は含まないことが好ましい。

【0069】

油溶性の有機紫外線吸収剤としては、サリチル酸系紫外線吸収剤、ケイ皮酸系紫外線吸収剤、ベンゾイルメタン系紫外線吸収剤、及びその他の有機紫外線吸収剤のうち油溶性のものを用いることができる。

例えば、サリチル酸ホモメンチル、サリチル酸オクチル等のサリチル酸系紫外線吸収剤

；  
パラメトキシケイ皮酸2-エチルヘキシル(例えば、BASF製「ユビナールMC80」)、ジパラメトキシケイ皮酸モノ-2-エチルヘキサ酸グリセリル、2,5-ジイソプロピルケイ皮酸メチル、トリメトキシケイ皮酸メチルビス(トリメチルシロキシ)シリルイソペンチル、パラメトキシケイ皮酸イソプロピル・ジイソプロピルケイ皮酸エステル混合物等のケイ皮酸系紫外線吸収剤；

4-イソプロピルジベンゾイルメタン、4-tert-ブチル-4'-メトキシジベンゾイルメタン(例えば、DSMニュートリションジャパン社製「パラソール1789」)等のベンゾイルメタン系紫外線吸収剤；

オクトクリレン(例えば、DSMニュートリションジャパン社製「パラソール340」)、ジメトキシベンジリデンジオキソイミダゾリジンプロピオン酸2-エチルヘキシル(例えば、味の素(株)製「ソフトシェードDH」)、1-(3,4-ジメトキシフェニル)-4,4-ジメチル-1,3-ペンタンジオン、シノキサート、メチル-O-アミノベンゾエート、3-(4-メチルベンジリデン)カンフル、オクチルトリアゾン、ジエチルアミノヒドロキシベンゾイル安息香酸ヘキシル(2-(4-ジエチルアミノ-2-ヒドロキシベンゾイル)安息香酸ヘキシルエステル、例えば、BASF製「ユビナールAplus」)、ビスエチルヘキシルオキシフェノールメトキシフェニルトリアジン(2,4-ビス{[4-(2-エチルヘキシルオキシ)-2-ヒドロキシ]フェニル}-6-(4-メトキシフェニル)-1,3,5-トリアジン、例えば、BASF製「チノゾーブS」)、メチレンビスベンゾトリアゾリルテトラメチルブチルフェノール(例えば、BASF製「チノゾーブM」)、2,4,6-トリス[4-(2-エチルヘキシルオキシカルボニル)アニリノ]-1,3,5-トリアジン(以下、「エチルヘキシルトリアゾン」ともいう。例えば、BASF製「ユビナールT150」)；等が挙げられる。

【0070】

水溶性の有機紫外線吸収剤としては、サリチル酸系紫外線吸収剤、ケイ皮酸系紫外線吸収剤、ベンゾイルメタン系紫外線吸収剤、及びその他の有機紫外線吸収剤のうち水への溶解度が1w/w%を超えるものを用いることができ、例えば、サリチル酸トリエタノールアミン塩、p-メトキシヒドロケイ皮酸ジエタノールアミン塩等が挙げられる。

【0071】

上記の中でも、紫外線防御効果向上の観点から、紫外線吸収剤としてはパラメトキシケイ皮酸2-エチルヘキシル、4-tert-ブチル-4'-メトキシジベンゾイルメタン、オクトクリレン、ジメトキシベンジリデンジオキソイミダゾリジンプロピオン酸2-エチルヘキシル、ジエチルアミノヒドロキシベンゾイル安息香酸ヘキシル、ビスエチルヘキ

10

20

30

40

50

シロキシフェノールメトキシフェニルトリアジン、メチレンビスベンゾトリアゾリルテトラメチルブチルフェノール、及び 2, 4, 6 - トリス [ 4 - ( 2 - エチルヘキシルオキシカルボニル ) アニリノ ] - 1, 3, 5 - トリアジンからなる群から選ばれる 1 種以上が好ましく、パラメトキシケイ皮酸 2 - エチルヘキシル、ジエチルアミノヒドロキシベンゾイル安息香酸ヘキシル、ビスエチルヘキシルオキシフェノールメトキシフェニルトリアジン、及び 2, 4, 6 - トリス [ 4 - ( 2 - エチルヘキシルオキシカルボニル ) アニリノ ] - 1, 3, 5 - トリアジンからなる群から選ばれる 1 種以上がより好ましく、UVA 及び UVB を共に防御する観点からは、これらを 2 種以上組み合わせることが更に好ましい。より更に好ましくは、パラメトキシケイ皮酸 2 - エチルヘキシル、ジエチルアミノヒドロキシベンゾイル安息香酸ヘキシル、及びビスエチルヘキシルオキシフェノールメトキシフェニルトリアジンからなる群から選ばれる 1 種以上であり、これらを 2 種以上組み合わせることがより更に好ましい。

10

## 【 0 0 7 2 】

本発明の皮膚外用剤が紫外線吸収剤を含有する場合、その含有量は、紫外線防御効果向上の観点から、皮膚外用剤中、好ましくは 0.2 質量% 以上、より好ましくは 1.5 質量% 以上、更に好ましくは 5 質量% 以上、より更に好ましくは 7 質量% 以上である。また、皮膚外用剤の使用感向上の観点から、好ましくは 30 質量% 以下、より好ましくは 25 質量% 以下、更に好ましくは 20 質量% 以下であり、より更に好ましくは 15 質量% 以下である。皮膚外用剤中の紫外線吸収剤の含有量の具体的範囲は、好ましくは 0.2 質量% 以上 30 質量% 以下であり、より好ましくは 1.5 質量% 以上 25 質量% 以下であり、更に好ましくは 5 質量% 以上 20 質量% 以下であり、より更に好ましくは 7 質量% 以上 15 質量% 以下である。

20

## 【 0 0 7 3 】

( 紫外線散乱剤 )

本発明の皮膚外用剤は、紫外線防御効果を向上させる観点から、さらに紫外線散乱剤を含有してもよい。

紫外線散乱剤としては、紫外線を散乱する効果が高い点から、無機粒子が好ましく、成分 ( A ) 以外の金属酸化物粒子、すなわち、平均粒径 350 nm 以上 2,500 nm 以下の球状金属酸化物 ( A 1 ) 及び板状金属酸化物 ( A 2 ) 以外の金属酸化物粒子がより好ましい。該金属酸化物としては成分 ( A ) 以外の、酸化チタン、酸化亜鉛、酸化鉄、酸化ジルコニウム、酸化アルミニウム等が挙げられ、成分 ( A ) 以外の酸化チタン及び酸化亜鉛からなる群から選ばれる 1 種以上が更に好ましい。

30

## 【 0 0 7 4 】

紫外線散乱剤に用いられる上記無機粒子は、皮膚外用剤への分散性を高める観点から、表面処理により疎水化されたものであることが好ましい。疎水化のための表面処理方法としては、例えば、メチルヒドロジェンポリシロキサン ( ヒドロゲンジメチコン )、メチルポリシロキサン ( ジメチコン )、メチルヒドロジェンポリシロキサン・ジメチルポリシロキサン共重合体等によるシリコーン処理；パーフルオロアルキルリン酸エステル、パーフルオロアルコール等によるフッ素処理；N - アシルグルタミン酸等によるアミノ酸処理；ヘキシルトリメトキシシラン、オクチルトリメトキシシラン、デシルトリメトキシシラン、オクタデシルトリメトキシシラン、オクチルトリエトキシシラン、トリフルオロプロピルトリメトキシシラン、ヘプタデカフルオロデシルトリメトキシシラン等によるシラン化合物処理；ヘキサメチルジシラザン、オクチルジシラザン等によるシラザン処理；レシチン処理；金属石鹸処理；カプリル酸、ペラルゴン酸、カプリン酸、ラウリン酸、ミリスチン酸、パルミチン酸、ステアリン酸、オレイン酸、リノール酸、リノレン酸、アラギン酸、アラキドン酸、ベヘン酸等による脂肪酸処理；アルキルリン酸エステル処理；シリカ、アルミナ、水酸化アルミニウム等による無機化合物処理；等が挙げられる。これら表面処理方法は、1 種又は 2 種以上を用いることができる。

40

## 【 0 0 7 5 】

紫外線散乱剤の粒子形状としては、平均粒径 350 nm 未満の球状、あるいは、棒状、

50

紡錘状、針状、不定形状等が挙げられるが、紫外線散乱効果を有するものであれば特に制限されない。

紫外線散乱剤の平均粒径は、通常1 nm以上であり、紫外線防御効果を向上させる観点から、好ましくは5 nm以上であり、より好ましくは8 nm以上であり、更に好ましくは10 nm以上である。また、皮膚に塗布した際の白浮き抑制の観点から、好ましくは350 nm未満であり、より好ましくは300 nm以下であり、更に好ましくは100 nm以下であり、より更に好ましくは60 nm以下である。

上記平均粒径は、成分(A1)の平均粒径と同様の方法で測定することができる。

#### 【0076】

紫外線散乱剤は市販品を用いることもできる。紫外線散乱剤として用いられる酸化チタン粒子の市販品としては、例えばテイカ(株)製の「MT-100TV」(水酸化アルミニウム、ステアリン酸処理)、「MTY-110M3S」(水酸化アルミニウム、シリカ、ヒドロゲンジメチコン処理)等が挙げられる。

10

#### 【0077】

紫外線散乱剤として用いられる酸化亜鉛粒子の市販品としては、例えば堺化学工業(株)製の「FINEX-50-LPTM」(ジメチコン処理)、「FINEX-25」(表面処理なし)、「FINEX-25LP」(ジメチコン処理)、テイカ(株)製の「MZ-300」(表面処理なし)、「MZ-504R3M」(ヒドロゲンジメチコン処理)、「MZY-303S」(ヒドロジメチコン処理)、「MZ-306X」(トリエトキシシリルエチルポリジメチルシロキシエチルヘキシルジメチコン処理)、「MZ-200」(表面処理なし)、「MZY-203S」(ヒドロゲンジメチコン処理)、「MZ-150」(表面処理なし)、「MZY-153S」(ヒドロゲンジメチコン処理)、「MZ-505S」、「MZY-505S」等が挙げられる。

20

#### 【0078】

紫外線散乱剤は1種を単独で、又は2種以上を組み合わせることもできる。

本発明の皮膚外用剤が紫外線散乱剤を含有する場合、その含有量は、紫外線防御効果向上の観点から、好ましくは1質量%以上、より好ましくは3質量%以上、更に好ましくは5質量%以上である。また、皮膚に塗布した際の白浮き抑制の観点から、当該含有量は、好ましくは20質量%以下、より好ましくは18質量%以下、更に好ましくは15質量%以下である。

30

#### 【0079】

<用途>

本発明の皮膚外用剤は、紫外線又は赤外線防御用、皮膚温度上昇抑制用、又は疲労抑制用の皮膚外用剤として用いることができる。

本発明の皮膚外用剤を皮膚に適用することで、紫外線、赤外線、又は太陽光等の紫外～赤外線領域の波長を含む光が皮膚に照射されても皮膚を効果的に防御することができる。これにより、紫外線、赤外線、又は太陽光等の照射に起因する皮膚の光老化や皮膚温度上昇を抑制でき、皮膚の遮熱効果も得ることができる。

また、太陽光照射環境下で人等の動物が持久運動を行った場合、太陽光照射量が多いと疲労が起こりやすいが、本発明の皮膚外用剤を用いることにより、このような太陽光照射に起因する疲労を抑制することができる。

40

#### 【0080】

皮膚外用剤を用いることによる疲労抑制効果については、例えば次の方法で評価することができる。

皮膚外用剤を、被験者の露光部位(顔、胸部、背部、腕、手の甲、足)に2 mg/cm<sup>2</sup>になるように塗布し、15分乾燥させる。次いで、被験者の前後左右に人工太陽光源を設置し、被験者の上半身に向けて疑似太陽光を照射しながら、エルゴメーター(例えば、モナーク社製「スタンダード・エルゴメーター 828E」)を用い、一定の心拍数を維持しながら運動を30分間継続する。被験者による、運動中の暑熱感覚と疲労感覚の自己評価を行い、皮膚外用剤を用いることによる運動パフォーマンスの影響を評価する。

50

## 【 0 0 8 1 】

## &lt; 皮膚外用剤の製造方法 &gt;

本発明の皮膚外用剤の製造方法は特に限定されず、皮膚外用剤の剤型に応じて公知の方法を適宜用いることができる。例えば、成分(A)、(B)及びその他の全成分を配合し、ディスペー等により均一に混合する方法が挙げられる。又は、水及び水性媒体以外の全成分を配合し、ディスペー等により均一に混合した後に、水及び水性媒体を配合して更にホモジナイザー等により攪拌混合する方法も用いることができる。

皮膚外用剤が油中水型乳化組成物、又は水中油型乳化組成物である場合は、水相と油相とをそれぞれ調製した後、両者を混合する方法も用いることができる。

## 【 0 0 8 2 】

## [ 皮膚の赤外線防御方法 ]

本発明はまた、本発明の皮膚外用剤を皮膚に適用する工程を有する、皮膚の赤外線防御方法を提供する。

本発明の赤外線防御方法は、前記本発明の皮膚外用剤を皮膚に適用する工程を有していれば特に制限されない。皮膚外用剤の皮膚への適用方法は、塗布、噴霧等が挙げられる。

## 【 0 0 8 3 】

本発明の赤外線防御方法においては、波長 825 nm の赤外線防御率が、好ましくは 35% 以上であり、より好ましくは 45% 以上であり、更に好ましくは 55% 以上である。また、波長 825 nm の赤外線防御率が 65% 以上であると皮膚の遮熱実感が特に良好になる。赤外線防御率(%)は、具体的には実施例に記載の方法により測定できる。

## 【 実施例 】

## 【 0 0 8 4 】

以下、本発明を実施例により説明するが、本発明は実施例の範囲に限定されない。なお本実施例において、各種測定及び評価は以下の方法により行った。

## 【 0 0 8 5 】

## &lt; 粘度 &gt;

各例の皮膚外用剤の 25 における粘度は、B型粘度計(東機産業(株)製「TOKI SANGYO VISCOMETER TVB-10M」)を用いて、ローター回転数 6.0 rpm、回転時間 60 秒の条件にて、皮膚外用剤の調製翌日に測定した。ローターは粘度に応じて No. 2 - No. 4 を使用した。[No. 2: 粘度 500 - 5000 mPa・s、No. 3: 粘度 5000 mPa・s 超 20000 mPa・s 以下、No. 4: 粘度 20000 mPa・s 超]

## 【 0 0 8 6 】

## &lt; 近赤外線防御率 &gt;

各例の皮膚外用剤 50.0 mg を 5 cm x 5 cm のポリメタクリル酸メチル樹脂(PMMA)基板(不二化成(株)製「SPF Matsner PA-1」)に塗布し、15 分間乾燥させて測定用の試料とした。また、同様に未塗布の PMMA 基板を対照用の試料とした。測定用試料、対照用試料それぞれについて、波長 825 nm における透過率を、近赤外線顕微鏡を用いて測定した。測定用試料の透過率を対照用試料の透過率で除した値を透過率 X (%) とし、100 - X (%) を近赤外線防御率とした。この値が大きいほど、皮膚外用剤自体の近赤外線防御効果が高いことを意味する。

## 【 0 0 8 7 】

また近赤外線防御効果について、下記基準で 5 段階評価を行った。

## ( 評価基準 )

- 5 : 近赤外線防御率が 65.0% 以上
- 4 : 近赤外線防御率が 55.0% 以上 65.0% 未満
- 3 : 近赤外線防御率が 45.0% 以上 55.0% 未満
- 2 : 近赤外線防御率が 35.0% 以上 45.0% 未満
- 1 : 近赤外線防御率が 35.0% 未満

## 【 0 0 8 8 】

10

20

30

40

50

## &lt; 塗膜均一性 &gt;

5 cm x 5 cmのポリメチルメタクリレート (PMMA) 基板上に、各例の皮膚外用剤を 2 mg / cm<sup>2</sup> になるように均一に塗布し、25℃で15分乾燥させた。

皮膚外用剤を塗布した基板について、近赤外線顕微鏡 (IR顕微鏡) を用いて、波長 825 nmにおける透過率の分布を撮影した。この分布画像から、皮丘部分 (PMMA板における凸の部分) と皮溝部分 (PMMA板における凹の部分) の透過率分布を確認し、その均一性について、「皮溝部分しか防御されておらず、皮丘部分がほとんど防御されていない」場合を1点、「皮丘と皮溝どちらも均一に防御されている」場合を5点として5段階で評価した。

(評価基準)

- 1 : 皮溝部分しか防御されておらず、皮丘部分がほとんど防御されていない
- 2 : 皮溝部分が防御されており、皮丘部分は少し防御されている
- 3 : 皮溝部分が防御されており、皮丘部分はある程度防御されている
- 4 : 皮溝部分が防御されており、皮丘部分はしっかり防御されている
- 5 : 皮溝と皮丘どちらも均一に防御されている

【0089】

## &lt; 皮膚に塗布した際の白浮き &gt;

各例の皮膚外用剤約 0.09 gを、専門パネラーの前腕内側の約 3 cm x 3 cmの面積に塗布した直後の白さについて、とても白く、非常に不自然さを感じる場合を1点、自然な白さで違和感がない場合を5点として5段階で評価した。専門パネラー3名で評価を行い、その平均点を評価結果とした。

(評価基準)

- 1 : とても白く、非常に不自然さを感じる
- 2 : やや白く、不自然さを感じる
- 3 : どちらでもない
- 4 : 自然な白さだが、やや違和感がある
- 5 : 自然な白さで違和感がない

【0090】

## &lt; 皮膚温度上昇抑制効果 &gt;

実施例6及び比較例5の皮膚外用剤約 3.2 gを、専門パネラーの前腕内側の約 4 cm x 4 cmの面積に均一に塗布し、25℃、40% RH環境下で15分乾燥させた。その後、ソーラーシュミレーター (朝日分光 (株) 製「HAL-320W」) を用いて、24 cmの距離から、疑似太陽光を5分間塗布部位に照射した。

サーモカメラ (FLIR社製「T-420」) を用いて、照射中の皮膚温度変化を測定した。同様の方法で、皮膚外用剤未塗布の際の温度上昇も測定し、(皮膚外用剤未塗布の際の上昇温度 ( )) - (皮膚外用剤を塗布した際の上昇温度 ( )) を表に示した。この値が大きいほど、皮膚温度上昇抑制効果が高いことを意味する。

【0091】

実施例1~23、比較例1~6 (皮膚外用剤の製造及び評価)

表1~4に示す成分のうち、水を除く全成分を配合してディスパーで均一に混合した。次いで得られた混合液に水を添加し、ホモジナイザーを用いて均一に混合し、表1~4に示す組成の、油中水型の皮膚外用剤を製造した。得られた皮膚外用剤について、前記方法で評価を実施した。結果を表1~4に示す。なお、各表に記載した配合量は、「BENTONE GEL PTM V」を除き、各成分の有効成分量 (質量%) である。「BENTONE GEL PTM V」の配合量は有姿での質量%である。また表中、成分(A)に該当しない金属酸化物を「成分(A1')」と表記した。

【0092】

10

20

30

40

50

【表 1】

表 1

(質量%)		実施例								
		1	2	3	4	5	6	7	8	9
(A1)	酸化チタン R-38L 400nm *1	10	5	25						
	SI-水酸化アルミニウム被覆酸化チタン *2				10	10	10	10	10	10
	ST-750EC 1000nm									
	酸化亜鉛 LP-ZINC-2KS 2000nm *3									
(A1')	酸化チタン JR800s 270nm *4									
(A2)	板状酸化チタン ASC-CQV 厚さ 134nm *5									
	板状酸化チタン ASC-CQV 厚さ 112nm *6									
	板状酸化チタン ASC-CQV 厚さ 191nm *7									
	酸化亜鉛 XZ-1000F-LP 厚さ 290nm *8									
(B)	バルミチン酸イソプロピル *9	42	30	22	45	42	27	17	25	47
	ジメチコン *10	10	10	10	10	10	10	10	10	10
増粘剤	BENTONE GEL PTM V *11	15	32	20	12	15	30	40	32	10
	バルミチン酸デキストリン *12									
	アルキル(C30-45)メチコン *13									
分散剤	PEG-9 ポリジメチルシロキシエチルジメチコン *14	2	2	2	2	2	2	2	2	2
乳化剤	N-ブロピオニルポリエチレンイミン・メチルポリシロキサン共重合体 *15	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
水性媒体	エタノール	0.7	0.7	0.7	0.7	0.7	0.7	0.7	0.7	0.7
	精製水	20	20	20	20	20	20	20	20	20
計		100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0
粘度(mPa・s) 25℃		3470	14390	13250	2620	3550	11260	96300	13580	15580
不揮発性成分の含有量 (質量%)		78.8	78.3	78.7	78.9	78.8	78.3	78.0	78.3	79.0
成分(A)含有量 (質量%)		10	5	25	10	10	10	10	10	10
成分(B)含有量 (質量%)		52	40	32	55	52	37	27	35	57
質量比 (B)/(A)		5.2	8.0	1.3	5.5	5.2	3.7	2.7	3.5	5.7
成分(A),(B)の合計含有量 (質量%)		62.0	45.0	57.0	65.0	62.0	47.0	37.0	45.0	67.0
不揮発性成分中の成分(A)含有量 (質量%)		12.7	6.4	31.8	12.7	12.7	12.8	12.8	12.8	12.7
粘度/成分(A)含有量		347	2878	530	262	355	1126	9630	1358	1558
評価結果	近赤外線防御率 (%)	49.9	40.5	83.4	36.7	49.6	51.7	49.4	36.1	68.9
	近赤外線防御効果 (スコア)	3	2	5	2	3	3	3	2	5
	塗膜均一性 (スコア)	4	3	5	2	4	4	3	3	5
	白浮き (平均スコア)	4.0	4.3	2.7	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	3.0
	皮膚温度上昇抑制効果 (℃)						0.78			

10

20

30

40

【 0 0 9 3 】

50

【表 2】

表 2

(質量%)		実施例					
		10	11	12	13	14	15
(A1)	酸化チタン R-38L 400nm *1						
	SI-水酸化アルミニウム被覆酸化チタン *2 ST-750EC 1000nm						
	酸化亜鉛 LP-ZINC-2KS 2000nm *3						
(A1')	酸化チタン JR800s 270nm *4						
(A2)	板状酸化チタン ASC-CQV 厚さ 134nm *5	10	10	10	10		
	板状酸化チタン ASC-CQV 厚さ 112nm *6					10	
	板状酸化チタン ASC-CQV 厚さ 191nm *7						10
	酸化亜鉛 XZ-1000F-LP 厚さ 290nm *8						
(B)	バルミチン酸イソプロピル *9	45	42	27	17	27	27
	ジメチコン *10	10	10	10	10	10	10
増粘剤	BENTONE GEL PTM V *11	12	15	30	40	30	30
	バルミチン酸デキストリン *12						
	アルキル(C30-45)メチコン *13						
分散剤	PEG-9 ポリジメチルシロキシエチルジメチコン *14	2	2	2	2	2	2
乳化剤	N-ブロピオニルポリエチレンイミン・メチルポリシロキサン共重合体 *15	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
水性媒体	エタノール	0.7	0.7	0.7	0.7	0.7	0.7
	精製水	20	20	20	20	20	20
計		100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0
粘度(mPa・s) 25℃		2550	3310	12830	128000	18960	10680
不揮発性成分の含有量 (質量%)		78.9	78.8	78.3	78.0	78.3	78.3
成分(A)含有量 (質量%)		10	10	10	10	10	10
成分(B)含有量 (質量%)		55	52	37	27	37	37
質量比 (B)/(A)		5.5	5.2	3.7	2.7	3.7	3.7
成分(A),(B)の合計含有量 (質量%)		65.0	62.0	47.0	37.0	47.0	47.0
不揮発性成分中の成分(A)含有量 (質量%)		12.7	12.7	12.8	12.8	12.8	12.8
粘度/成分(A)含有量		255	331	1283	12800	1896	1068
評価結果	近赤外線防御率 (%)	45.9	57.8	58.5	64.9	62.9	61.0
	近赤外線防御効果 (スコア)	3	4	4	4	4	4
	塗膜均一性 (スコア)	3	4	4	5	4	4
	白浮き (平均スコア)	4.0	3.7	3.3	4.0	4.7	3.3
	皮膚温度上昇抑制効果 (℃)						

10

20

30

40

【 0 0 9 4 】

50

【表 3】

表 3

(質量%)		実施例							
		16	17	18	19	20	21	22	23
(A1)	酸化チタン R-38L 400nm *1								
	SI-水酸化アルミニウム被覆酸化チタン *2 ST-750EC 1000nm						5		
	酸化亜鉛 LP-ZINC-2KS 2000nm *3							20	
(A1')	酸化チタン JR800s 270nm *4								
(A2)	板状酸化チタン ASC-CQV 厚さ 134nm *5	5	30	10	10	30	5		
	板状酸化チタン ASC-CQV 厚さ 112nm *6								
	板状酸化チタン ASC-CQV 厚さ 191nm *7								
	酸化亜鉛 XZ-1000F-LP 厚さ 290nm *8								20
(B)	パルミチン酸イソプロピル *9	32	22	52	49	34	27	27	27
	ジメチコン *10	10	10	10	10	10	10	10	10
増粘剤	BENTONE GEL PTM V *11	30	15			3	30	20	20
	パルミチン酸デキストリン *12			5					
	アルキル(C30-45)メチコン *13				8				
分散剤	PEG-9 ポリジメチルシロキシルジメチ コン *14	2	2	2	2	2	2	2	2
乳化剤	N-プロピオニルポリエチレンイミン・メチル ポリシロキサン共重合体 *15	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
水性媒体	エタノール	0.7	0.7	0.7	0.7	0.7	0.7	0.7	0.7
	精製水	20	20	20	20	20	20	20	20
計		100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0
粘度(mPa・s) 25℃		9760	11260	15300	15580	3200	10800	9800	9490
不揮発性成分の含有量 (質量%)		78.3	78.8	79.3	79.3	79.2	78.3	78.7	78.7
成分(A)含有量 (質量%)		5	30	10	10	30	10	20	20
成分(B)含有量 (質量%)		42	32	62	59	44	37	37	37
質量比 (B)/(A)		8.4	1.1	6.2	5.9	1.5	3.7	1.9	1.9
成分(A),(B)の合計含有量 (質量%)		47.0	62.0	72.0	69.0	74.0	47.0	57.0	57.0
不揮発性成分中の成分(A)含有量 (質量%)		6.4	38.1	12.6	12.6	37.9	12.8	25.4	25.4
粘度/成分(A)含有量		1952	375	1530	1558	107	1080	490	475
評価 結果	近赤外線防御率 (%)	36.0	78.9	63.7	50.7	79.1	64.7	53.1	51.1
	近赤外線防御効果 (スコア)	2	5	4	3	5	4	3	3
	塗膜均一性 (スコア)	4	5	4	4	5	5	5	4
	白浮き (平均スコア)	5.0	3.7	3.7	4.0	3.3	4.3	4.0	5.0
	皮膚温度上昇抑制効果 (℃)								

10

20

30

40

【 0 0 9 5 】

50

【表 4】

表 4

(質量%)		比較例					
		1	2	3	4	5	6
(A1)	酸化チタン R-38L 400nm *1			1			
	SI-水酸化アルミニウム被覆酸化チタン *2 ST-750EC 1000nm		10		1		
	酸化亜鉛 LP-ZINC-2KS 2000nm *3						
(A1')	酸化チタン JR800s 270nm *4	10					
(A2)	板状酸化チタン ASC-CQV 厚さ 134nm *5					10	1
	板状酸化チタン ASC-CQV 厚さ 112nm *6						
	板状酸化チタン ASC-CQV 厚さ 191nm *7						
	酸化亜鉛 XZ-1000F-LP 厚さ 290nm *8						
(B)	パルミチン酸イソプロピル *9	42	52	31	31	52	36
	ジメチコン *10	10	10	10	10	10	10
増粘剤	BENTONE GEL PTM V *11	15	5	35	35	5	30
	パルミチン酸デキストリン *12						
	アルキル(C30-45)メチコン *13						
分散剤	PEG-9 ポリジメチルシロキシエチルジメチコン *14	2	2	2	2	2	2
乳化剤	N-プロピオニルポリエチレンイミン・メチルポリシロキサン共重合体 *15	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
水性媒体	エタノール	0.7	0.7	0.7	0.7	0.7	0.7
	精製水	20	20	20	20	20	20
計		100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0
粘度(mPa・s) 25℃		3910	1350	12120	12830	980	14320
不揮発性成分の含有量 (質量%)		78.8	79.1	78.2	78.2	79.1	78.3
成分(A)含有量 (質量%)		0	10	1	1	10	1
成分(B)含有量 (質量%)		52	62	41	41	62	46
質量比 (B)/(A)		-	6.2	41	41	6.2	46
成分(A),(B)の合計含有量 (質量%)		52.0	72.0	42.0	42.0	72.0	47.0
不揮発性成分中の成分(A)含有量 (質量%)		0.0	12.6	1.3	1.3	12.6	1.3
粘度/成分(A)含有量		-	135	12120	12830	98	14320
評価結果	近赤外線防率 (%)	78.8	27.9	22.7	22.5	33.9	20.8
	近赤外線防効果 (スコア)	5	1	1	1	1	1
	塗膜均一性 (スコア)	5	1	3	1	1	3
	白浮き (平均スコア)	1.0	5.0	5.0	5.0	4.3	5.0
	皮膚温度上昇抑制効果 (℃)					0.22	

10

20

30

40

## 【0096】

## 実施例 24 ~ 27 (皮膚外用剤の製造)

実施例 24 及び 25 については、表 5 に示す成分のうち、水を除く全成分を配合してディスパーで均一に混合した。次いで得られた混合液に水を添加し、ホモジナイザーを用いて均一に混合し、表 5 に示す組成の、油中水型の固形状の皮膚外用剤を製造した。実施例 26 及び 27 については、表 5 に示す全成分を配合してディスパーで均一に混合し、固形状の皮膚外用剤を製造した。なお、表に記載した配合量は、各成分の有効成分量 (質量%) である。

## 【0097】

50

【表 5】

表 5

(質量%)		実施例			
		24	25	26	27
(A1)	酸化チタン R-38L 400nm *1				
	SI-水酸化アルミニウム被覆酸化チタン *2 ST-750EC 1000nm				
	酸化亜鉛 LP-ZINC-2KS 2000nm *3				
(A1')	酸化チタン JR800s 270nm *4				
(A2)	板状酸化チタン ASC-CQV 厚さ 134nm *5	10	10	10	10
	板状酸化チタン ASC-CQV 厚さ 112nm *6				
	板状酸化チタン ASC-CQV 厚さ 191nm *7				
	酸化亜鉛 XZ-1000F-LP 厚さ 290nm *8				
(B)	バルミチン酸イソプロピル *9	52	37	53	53
	ジメチコン *10	10	10	10	10
増粘剤	ジブチルエチルヘキサノイルグルタミド *16	5			
	パラフィンワックス *17		20	25	
	セレシン *18				25
分散剤	PEG-9 ポリジメチルシロキシエチルジメチコン *14	2	2	2	2
乳化剤	N-プロピオンルポリエチレンイミン・メチルポリシロキサン共重合体 *15	1	1		
水性媒体	エタノール				
	精製水	20	20		
計		100.0	100.0	100.0	100.0
粘度(mPa・s) 25℃		400000<	400000<	400000<	400000<
不揮発性成分の含有量 (質量%)		80.0	80.0	100.0	100.0
成分(A)含有量 (質量%)		10	10	10	10
成分(B)含有量 (質量%)		62	47	63	63
質量比 (B)/(A)		6.2	4.7	6.3	6.3
成分(A),(B)の合計含有量 (質量%)		72.0	57.0	73.0	73.0
不揮発性成分中の成分(A)含有量 (質量%)		12.5	12.5	10.0	10.0

10

20

30

40

50

## 【 0 0 9 8 】

表中の配合成分は下記のとおりである。

- \* 1 : 堺化学工業 (株) 製「R - 3 8 L」、ZrO<sub>2</sub> - Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 被覆処理球状酸化チタン、平均粒径 4 0 0 n m
- \* 2 : チタン工業 (株) 製「S T - 7 5 0 E C」、水酸化アルミニウム - ハイドロゲンジメチコン被覆処理球状酸化チタン、平均粒径 1 , 0 0 0 n m
- \* 3 : 堺化学工業 (株) 製「L P - Z I N C - 2 K S」、ハイドロゲンジメチコン被覆処理球状酸化亜鉛、平均粒径 2 , 0 0 0 n m
- \* 4 : テイカ (株) 製「J R 8 0 0 s」、ハイドロゲンジメチコン被覆処理球状酸化チタン、平均粒径 2 7 0 n m
- \* 5 : 大東化成工業 (株) 製、板状酸化チタン (C Q V 社製「F e a t h e l e v e P T - 7 8 0 1 K」) の表面 A S C 処理品、厚さ 1 3 4 n m、アスペクト比 9 5
- \* 6 : 大東化成工業 (株) 製、板状酸化チタン (C Q V 社製「F e a t h e l e v e P T - 7 4 0 1 K」) の表面 A S C 処理品、厚さ 1 1 2 n m、アスペクト比 1 2 6

- \* 7 : 大東化成工業(株)製、板状酸化チタン(CQV社製「Feathereleve PT-7901K」)の表面ASC処理品、厚さ191nm、アスペクト比58
- \* 8 : 堺化学工業(株)製「XZ-1000F-LP」、ハイドロゲンジメチコン被覆処理板状酸化亜鉛、厚さ290nm、アスペクト比3.4
- \* 9 : 花王(株)製「エキセパールIPP」、パルミチン酸イソプロピル
- \* 10 : 信越化学工業(株)製「KF-96L-10cs」、ジメチコン、粘度10mPa・s
- \* 11 : エレメンティス社製「BENTONE GEL PTM V」、カプリル酸ノカプリン酸トリグリセリド、ステアラルコニウムヘクトライト及びプロピレンカーボネート、不揮発性成分96.8質量%(実測値)
- \* 12 : 千葉製粉(株)製「レオパールKL2」、パルミチン酸デキストリン
- \* 13 : ダウ・東レ(株)製「DOWSIL AMS-C30 COSMETIC WAX」、アルキル(C30-45)メチコン
- \* 14 : 信越化学工業(株)製「シリコーンKF-6028」、PEG-9ポリジメチルシロキシエチルジメチコン
- \* 15 : 花王(株)製「OS-88E-TV-E」、N-プロピオニルポリエチレンイミン・メチルポリシロキサン共重合体(30質量%-エタノール溶液)
- \* 16 : 味の素(株)製「EB-21」、ジブチルエチルヘキサノイルグルタミド
- \* 17 : 日本精蠟(株)製「HNP-9」、パラフィンワックス、融点:80
- \* 18 : 日興リカ(株)製「セレシン#810K」、セレシン、融点:74

10

20

30

40

50

#### 【0099】

表1~4より、本実施例の皮膚外用剤は赤外線防御効果、塗膜均一性が高く、皮膚に塗布した際の白浮きが少ないことがわかる。また皮膚温度上昇抑制効果にも優れる。

#### 【0100】

なお、図1には実施例9の皮膚外用剤の塗膜均一性評価における、IR顕微鏡による観察写真(スコア5)、図2には比較例2の皮膚外用剤の塗膜均一性評価における、IR顕微鏡による観察写真(スコア1)を示した。図1及び図2において、白い部分は成分(A)が存在する箇所、黒い部分は存在しない箇所を示す。実施例9の皮膚外用剤を塗布した場合、皮溝だけでなく、皮丘にも成分(A)が多く存在しているのに対し(図1)、比較例2の皮膚外用剤を塗布した場合には、ほとんどの成分(A)が皮溝に落ちており、塗膜均一性が低いことがわかる(図2)。

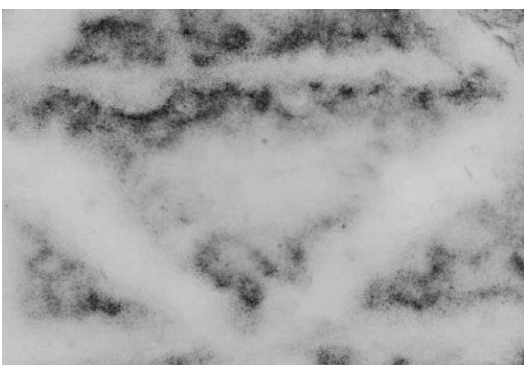
#### 【産業上の利用可能性】

#### 【0101】

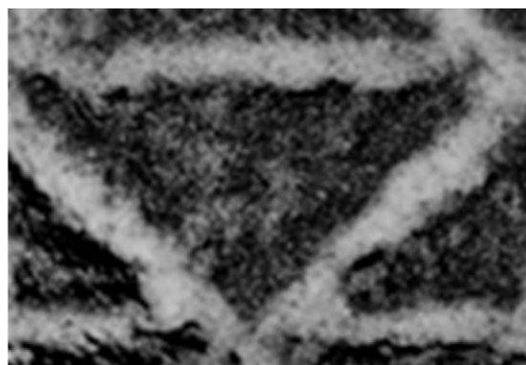
本発明によれば、紫外線、赤外線等の防御効果に優れ、且つ、皮膚に塗布した際の白浮きが少ない皮膚外用剤を提供できる。該皮膚外用剤を皮膚に適用すると、紫外線、赤外線等から皮膚を防御することができ、更に、太陽光照射による皮膚温度上昇抑制効果及び疲労抑制効果も得ることができる。

#### 【図面】

#### 【図1】



#### 【図2】



## フロントページの続き

(51)国際特許分類	F I	テーマコード (参考)
A 6 1 K 47/06 (2006.01)	A 6 1 K 47/06	
A 6 1 K 47/12 (2006.01)	A 6 1 K 47/12	
A 6 1 K 47/10 (2006.01)	A 6 1 K 47/10	
A 6 1 K 47/36 (2006.01)	A 6 1 K 47/36	
A 6 1 K 47/18 (2006.01)	A 6 1 K 47/18	

## F ターム (参考)

C012 AC022 AC071 AC102 AC241 AC331 AC352 AC422 AC661 AC662  
AC842 AD151 AD162 AD241 AD242 BB11 BB26 CC03 CC19 DD21 DD32  
EE06 EE07 EE12