

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2002 年 3 月 7 日 (07.03.2002)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 02/18498 A1

(51) 国際特許分類: **C09C 3/06, A61K 7/02**

(21) 国際出願番号: PCT/JP01/07047

(22) 国際出願日: 2001 年 8 月 15 日 (15.08.2001)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願2000-263749 2000 年 8 月 31 日 (31.08.2000) JP
特願2001-077992 2001 年 3 月 19 日 (19.03.2001) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 三好化成株式会社 (MIYOSHI KASEI, INC.) [JP/JP]; 〒337-0975 埼玉県さいたま市大字代山字原ノ下 705 番地の 1 Saitama (JP), 株式会社 資生堂 (SHISEIDO COMPANY, LTD.) [JP/JP]; 〒104-8010 東京都中央区銀座 7 丁目 5 番 5 号 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 堀野政章

(HORINO, Masaakira) [JP/JP]; 〒229-0011 神奈川県相模原市大野台 1-23-12 Kanagawa (JP). 大原美和 (OHARA, Miwa) [JP/JP]; 〒338-0812 埼玉県さいたま市神田 51-1 E.P. こうやま 2-105 Saitama (JP). 小川克基 (OGAWA, Katsuki) [JP/JP]. 高田定樹 (TAKATA, Sadaki) [JP/JP]; 〒224-8558 神奈川県横浜市都筑区早渕 2-2-1 株式会社 資生堂 リサーチセンター (新横浜) 内 Kanagawa (JP).

(74) 代理人: 加藤朝道, 外 (KATO, Asamichi et al.); 〒222-0033 神奈川県横浜市港北区新横浜 3 丁目 20 番 12 号 望星ビル 7 階 加藤内外特許事務所 Kanagawa (JP).

(81) 指定国 (国内): KR, US.

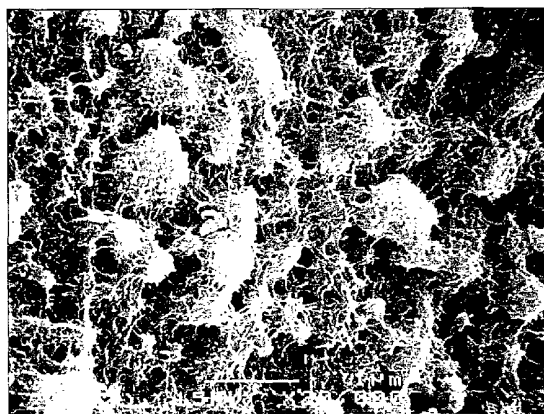
(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (FR).

添付公開書類:
— 国際調査報告書

2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: NOVEL COMPLEX POWDER AND COSMETICS CONTAINING THE SAME

(54) 発明の名称: 新規複合粉体及びこれを配合した化粧料



(×20,000)

(57) Abstract: A complex powder containing a powdery base and aluminum hydroxide bonded to at least a part of the surface of the base, wherein the aluminum hydroxide bonded to the base contain a spherical and net structure preferably in a large amount. In case of using in powdery cosmetics, this complex powder makes wrinkles, open pores and coarse skin texture scarcely visible and thus maintains the effect of ameliorating morphological skin troubles. Thus, it exerts excellent effects of imparting natural gloss and color tone to the makeup coating without darkness, making the skin supple and transparent, etc., compared with the conventional products.

[続葉有]



WO 02/18498 A1



(57) 要約:

粉体状の基体と、該基体の表面の少なくとも一部上に固着する水酸化アルミニウムとを含有する複合粉体であって、当該固着する水酸化アルミニウムが球状及び網目状の形状物を、好ましくは多く含む複合粉体を提供する。この複合粉体は、化粧料の粉体に使用したときに、シワ、毛穴の開き、肌目の粗さを見え難くする肌の形態トラブル修正効果を維持し、従来品に比較して、より自然なつやと色調を有し化粧膜の色くすみが無く肌の「はり」感に優れ、かつ透明感にも優れる等の優れた効果を奏する。

当該複合粉体表面に、更にシリコーン表面処理等の表面処理を施すことにより上記目的とする効果を一段と高めることができる。

明 細 書

新規複合粉体及びこれを配合した化粧料

技術分野

本発明は新規複合粉体、好ましくは、化粧料粉体に使用可能な基体の表面の少なくとも一部上に、特定形状を有する水酸化アルミニウムが固着した（パーシャルコート：部分被覆又は全被覆した）、水酸化アルミニウム－基体複合粒子を含む新規複合粉体、更に詳しくは化粧料に使用したときにシワ、毛穴の開き、肌目の粗さ等を見え難くする肌の形態トラブル修正効果と、化粧膜に不自然な質感を与えることなく肌色を自然に演出し、より自然な色調及びつやとを付与する「はり」感と、透明感に優れた複合粉体、及びこれを配合した化粧料に関する。

背景技術

従来のファンデーションで種々の肌色の調色を行う場合、酸化鉄（酸化第一鉄）が用いられている。特に、小麦色～濃い小麦色やブロンズ色等、濃色の肌色ファンデーションの場合、多量の酸化鉄が用いられる。赤色酸化鉄や他の酸化鉄等の無機顔料は本来、明度や彩度が低い。一方、くすんだ肌色は赤色や黄色の光の反射光が不足しているのが一つの原因である。このような肌に多量の酸化鉄を用いた場合、肌のくすみに対しては何等解決策がなされておらず、該ファンデーションを肌に適用した場合、つやが無く、肌色がくすんだ状態の仕上りになってしまう。

一方、毛穴や小ジワ等の肌の凹凸むらの防止については、素材及び化粧料メーカーから、粉体表面に微粒子を付着させたり、粉体表面をポリマーや酸化物等で被覆したり、球状の有機粉末や無機粉末、或いは例えばシリカー酸化チタン－シリカのように多層膜の球状粉末に調製したり、様々な粉体が提案されている。これらの凹凸を見え難くするために、多くは粉体表面での光の乱反射特性を増やすことで凹凸むらを見え難くする方法が採られて来ている。このような方法によれば、色むらや凹凸むらを見え難くし、質感としてマット感は得られるものの、白

浮きし、肌との一体感に欠け肌本来の持つ透明感が失われてしまい勝ちである。

つやを付与するために、一般的な処方として酸化チタンの幾何学的厚さの範囲が $20 \sim 40 \text{ nm}$ で、干渉色が銀色のパール顔料の配合がなされている。しかし、特に小麦肌色～濃い小麦肌色や、ブロンズ色等の濃い肌色にこのパール顔料を配合した場合、これらの外観色とは異なった質感が生じ不健康なイメージの仕上がり感となってしまう。また、パール顔料を化粧料中で肌につやを付与するために必要な量を配合して、肌の凹凸や毛穴の部分にパール顔料を塗布した場合、肌の凹凸部分や毛穴の陰影の部分とパール顔料の表面光沢との間に陰影が生じ、かえって毛穴やシワが目立ち、本来のメイクアップ効果を損うことになる。更に、パール顔料はパール独特の光沢感からキラキラ感が異常に強く生じてしまい仕上がり感が悪くなったりする。

特開平9-20609号公報には、粘土鉱物の表面を被覆した無機金属水酸化物の被覆構造が下記(A)、(B)、(C)又は(D)である被覆粉体を配合する化粧料が提案されている。

(A) 粘土鉱物の表面を被覆している無機金属水酸化物の被覆構造が超微粒子(平均粒子径 $50 \sim 250 \text{ \AA}$)で形成された膜上にハニカム様の構造を形成している複合体；

(B) 粘土鉱物の表面を被覆している無機金属水酸化物の被覆構造が超微粒子膜(平均粒子径 $50 \sim 250 \text{ \AA}$)で形成されている複合体；

(C) 粘土鉱物の表面を被覆している無機金属水酸化物の被覆構造が平均粒子径 $50 \sim 250 \text{ \AA}$ の超微粒子で形成された膜とその膜上にハニカム様構造が混在した構造を有する複合体；及び

(D) 粘土鉱物の表面を被覆している平均粒子径が $50 \sim 250 \text{ \AA}$ の超微粒子の無機金属水酸化物膜の被覆構造中に平均粒子径が $0.08 \sim 0.8 \text{ \mu m}$ の粒子が埋め込まれた構造を有する複合体。

上記被覆粉体の最外層がハニカム構造を有している場合、その構造に起因し、肌の凹凸面との絡み合いから付着率は良好であるが、このハニカム構造が逆に化粧料に15重量%以上配合して使用したときに、必要な要件である使用感を大幅に損なうと共に白浮きし、肌本来の持つ透明感が失われてしまう。

そこで、本発明の目的とする形態トラブル修正効果を有しながら自然なつやと色調を有し、くすみを感じさせず、化粧膜に「はり」を感じさせながら、かつ透明感の保持ができる粉体が求められている。

発明の課題／目的

以上のような状況下に、化粧料に使用したときにシワ、毛穴の開き、肌の肌目の粗さを見え難くする肌の形態トラブル修正効果を有し、特に自然なつやと色調の保持を加味した肌に「はり」を与える効果と透明感に優れている粉体が求められている。更には、人は個体差が大きく、例えば肌色に関しては色白～小麦肌～濃小麦色～ベージュ色等、肌性に関しては年齢、生活環境や食生活等により肌脂性肌、普通肌、脂性乾燥肌（混合肌）、乾燥肌による肌のつやのレベルの違い等、更には肌の凹凸の少ない人～多い人と多様であり、これらの個体に任意に対応でき、綺麗なメイク効果を演出すべき粉体が望まれている。

本発明の目的は先に本発明者等の一部により提案された前記特開平9-20609号公報の記載の発明を改良し、前記形態トラブル修正効果を更に維持向上させながら、特に化粧料に使用した場合、前記「つや」、「色調」及び「形態トラブル修正効果」に優れた「はり」感と、これに加えて透明感を特に付与することができる粉体を提供することにある。

発明の開示

本発明者等は、前記課題を解決し目的達成に向けて鋭意研究を行った結果、粉体状の基体（化粧料粉体として使用可。）の粒子表面上に水酸化アルミニウムを多量に固着させた粉体、特に粉体状の基体の粒子表面の少なくとも一部上に特定形状を構成するように水酸化アルミニウム（粒子、複数粒子）を固着することにより得られる基体－水酸化アルミニウムの複合粒子を含む粉体が、化粧料に使用したときに、優れた「はり」感と透明感とを有すること、更にその表面に、表面処理剤、特にシリコーン、アミノ酸、レシチン、フッ素化合物や金属石ケン等で表面処理を施すことにより目的とする上記効果が一段と高まることを見出した。基体は単一材料（単体）で構成されていてもよく、また複合材料で構成されてい

てもよい。基体が複合材料で構成される場合には、一の粉体（複合粒子の芯を構成する粉体）用材料（粒子）の外側に別の材料による被覆物を有する粒子（複合粒子）が好ましく、干渉色と光沢の度合いを適切にコントロールすることにより各個体に応じた肌色とほりを皮膚に付与することができる方法を見出し、これらの各種の知見に基づいて本発明が完成されるに至った。

本発明においては、化粧料用粉体に使用可能な基体（単一材料、複合材料何れも可。）と、該基体の表面の少なくとも一部上に固着する水酸化アルミニウムとを含有し、この水酸化アルミニウムが特定形状を構成して固着する水酸化アルミニウムを含む複合粒子粉体であって、好ましくは特定の粒子、例えば特定の大きさ、厚さ及び屈折率を有する基体粒子と、その表面に特定の形状を構成して固着し好ましい屈折率（ 1.56 ）や、密度（ 2.77 g/cm^3 ）を有する水酸化アルミニウムとを少なくとも有し、化粧料に使用したときに従来に無い優れた効果を呈する複合粒子を含む粉体を提供することができ、このような粉体が本発明の複合粉体である。

尚、「はり」とは理想的、或いは自然な素肌に対比して透明感があり肌の自然なつやと色調（くすみが無く肌色が明るく、均一なこと）を有することと、シワ、毛穴が目立たないことの程度と定義され、つや、色調がより自然な肌色に近く（赤子の肌～10代の肌）、毛穴が目立たず、シワが無いか目立たないことを「はり」があると言う。

即ち、本発明は下記の通りである。

[1]

本発明は、化粧料に使用可能な粉体用基体と、該基体の表面の少なくとも一部上に固着する水酸化アルミニウムとを含有する複合粉体であって、当該基体と水酸化アルミニウムの全量に対して当該固着水酸化アルミニウムを少なくとも10重量%（10重量%以上）含有することに特徴を有する複合粉体に存する。

[2]

更に好ましい形態として、本発明は、粉末状の基体とこの基体表面の少なくとも一部上に固着する水酸化アルミニウムを含有する複合粉体であって、当該水酸化アルミニウムがその表面に球状及び網目状の形状物（水酸化アルミニウムで構

成される。)を含むことに特徴を有する複合粉体に存する。また、本発明は、より具体的な形態として、粉末状の基体とこの基体表面の少なくとも一部上に固着する水酸化アルミニウムを含有する複合粉体であって、当該水酸化アルミニウムがその表面に球状及び網目状の形状(水酸化アルミニウムで構成される。)で被覆されることに特徴を有する複合粉体に存する。

即ち、当該固着する水酸化アルミニウム中にそのような特定形状物(水酸化アルミニウムで構成される。)を含むことに特徴を有し、水酸化アルミニウム層にそのような特定形状物を構成し、又はそのような形状で被覆することもできるし、固着する水酸化アルミニウムとして勿論そのような特定形状物(水酸化アルミニウムで構成される。)のみを含むこともできる。

本発明の目的、効果を阻害しない範囲では、更に他の成分(基体成分、固着粒子成分等)を含有したり、他の表面処理を行ったり、被覆層を更に設けることもでき、これらも全てこの発明の中に含まれる。

[3]

前記粉末状基体に、化粧料に使用可能な粉体を採用することにより、化粧料として優れた化粧料用複合粉体を提供することができる。

この複合粉体は化粧料に使用することができる他、粉末状基体の適当な選択により塗料その他、各種顔料等に使用することができる。

[4]

当該固着する水酸化アルミニウムの表面形状物として球状の形状物を含むが、この球状物(水酸化アルミニウムの球状微粒子等)には球状物(球体状物)、楕円球状物(ラクビーのボール状物)、円盤状物、紡錘状物等、球状物或いはほぼ球状とみなし得る形状物が含まれ、更にそのような球状物が複数高さ方向及び/又は水平方向に相互に接触固着していてもよい。更に、それら球状物の表面に網目状の水酸化アルミニウムで被覆されているのがより好ましい。これらは何れも基体表面に固着する水酸化アルミニウムに含まれる。該基体表面に球状及び網目の形状物を多く含む方が本発明の効果がより得られる点で好ましい。

[5]

当該固着する水酸化アルミニウム中には前記各種の球状物が含まれるが、これ

ら1種又は複数の、平面及び／又は高さ方向の結合体の形態を含むことができる。

平面方向とは基体の表面に平行な方向であり、基体表面に固着する球状物が複数個球状物間で相互に固着していることを意味する。直線状に固着する場合や一の球状物に対して複数個の球状物が平面上に固着することもできる。

高さ方向とは基体の表面を基準に垂直方向であり、基体の表面には直接固着していないが、基体に固着する別の球状物等（球状でない形状物でも可。）に固着する球状物、即ち間接的に或いは空間的に基体上に固着する球状物も含まれることを意味する。

[6]

当該固着する水酸化アルミニウム中に含まれる網目状の形状物については、二次元的（平面的）及び／又は三次元的（立体的）な形状物が含まれる。

二次元的とは平面的なことであり、平面的な通常の網による網目状を意味し、この場合平面形状の網目の全てが基体表面に固着する場合とその形状物の一端のみ基体や球状の形状物に固着して大部分は高さ方向に存在する網目形状物も存在する。

三次元的とは網を構成する面が複数立体的に結合し合っていることを意味する。基体表面や前記球状の形状物の表面に網目形状物が直接固着する場合は当然、これら表面に直接固着していない網目形状物も他の網目形状物等を介して間接的に或いは空間的に固着することもできる。

[7]

複合粉体を化粧料に使用する場合、化粧料に使用可能な基体を選択するが、その大きさに関し、単一材料の場合その粒子の平均粒子径として好ましくは0.1～600 μm 程度、より好ましくは0.3～500 μm 程度、更に好ましくは1～400 μm 程度、より更に好ましくは2～100 μm 程度の粒子を採用することができる。基体が複合材料の場合、上記範囲の平均粒子径の粒子を有する材料と、もう1種別の材料として、平均粒子径が2～500 nm、より好ましくは5～300 nm、更に好ましくは10～200 nmの範囲の粒子を含むことができる。

基体が複合材料の場合、一の粉体用材料（複合粒子の芯を構成する粒子）の外側に別の材料による被覆物を有する粒子（複合粒子）が好ましい。その場合、当該一の粉体用材料の表面に被覆又は表面に固着している粒子の粒子径については、好ましくは2～500 nm程度、より好ましくは5～300 nm程度、更に好ましくは10～200 nm程度の粒子を含むことができる。

[8]

基体の形状としては特に制限は無い。板状、鱗片状、棒状、半球状、X線状、星形状、花卉状、リボン状、ヒトデ状、バタフライ状を例示することができ、その中では板状及び鱗片状が好ましい。

基体の厚さについては特に制限は無いが、平均的厚さとして単一材料の場合好ましくは0.01～10 μm 程度、より好ましくは0.1～6 μm 程度の粒子を採用することができる。また複合材料の場合、被覆物の層の厚さに関しては被覆する粒子の平均粒子径に対応する。その平均的厚さとして好ましくは2～500 nm程度、より好ましくは5～300 nm、更に好ましくは10～200 nm程度であり、このような被覆物粒子層を、例えば前記単一材料の表面に被覆して含むことができる。

[9]

水酸化アルミニウムで構成される前記球状粒子において、平均直径で好ましくは0.1～10 μm 程度、より好ましくは0.2～5 μm 程度、更に好ましくは0.3～2 μm 程度の球状微粒子水酸化アルミニウムを含むことができる。

[10]

水酸化アルミニウムで構成される球状微粒子が楕円球状（ラクビーのボール状）の粒子の場合の大きさに関し、平均長径で好ましくは0.4～2 μm 程度、より好ましくは0.2～1.5 μm 程度、また平均短径で好ましくは0.2～1.5 μm 程度、より好ましくは0.1～1 μm の粒子を採用することができる。

[11]

固着水酸化アルミニウムの網目状の形状物を構成する網目の1ユニットの長さ（網目状物を構成する一の網目の一辺の長さ）に関し、好ましくは約300 nm以下であり、それらの網を構成する紐（ひも）に対応する粒子の太さ（直径）に

については、好ましくは5～30nm程度である。

このように本発明において固着するために使用する水酸化アルミニウム： $\text{Al}(\text{OH})_3$ は、球状、楕円球状等の球状の形状物を含み、この結果光散乱を効果的にもたらず形状をしている。粒子径もMie領域の散乱による青白味を生起させぬように粒子径を大きくし、透明感を出している。また、透明感を発現させながら球状（球状、楕円球状等）に網目状水酸化アルミニウムを固定化することにより $\text{Al}(\text{OH})_3$ の形状の効果に網目状の効果が付与し、透明感とのバランスで本発明の目的とする効果を発現させている。

[12]

複合粉体を構成する化粧料に使用可能な粉体（基体）の屈折率に関し、基体が単一材料の場合の屈折率として、好ましくは1.3～2程度、より好ましくは1.4～1.8程度、更に好ましくは1.42～1.76程度の粉体を採用することができる。一方、基体が複合材料で、前記被覆物を構成する場合、上記屈折率を有する材料に、被覆物として屈折率として好ましくは1.8～3程度、より好ましくは2～3程度、更に好ましくは2.1～2.8程度の化粧料に使用可能な粉体（無機物等）で、その表面を被覆した被覆粉体を採用することができる。

[13]

水酸化アルミニウムの固着量に関し、本発明の複合粉体において固着した水酸化アルミニウムが、水酸化アルミニウムが固着した基体の全量（複合粉体全体）、好ましくは固着した水酸化アルミニウムと基体の全量に対して好ましくは2～75重量%程度、より好ましくは5～70重量%程度、更に好ましくは10～60重量%程度、より更に好ましくは15～50重量%程度存在するように構成することができる。

[14]

当該基体が単一材料の場合、その成分として好ましくは粘土鉱物、硫酸バリウム、アルミナ、シリカ、フッ化マグネシウム及びヒドロキシアパタイトを挙げることができる。これらの成分の少なくとも1種を選択使用することができる。一方、当該基体が複合材料の場合、複合材料を構成する一つの方法としてこのような成分を少なくとも1種選択使用することができる。

[15]

当該基体が複合材料の場合、好ましくは前記当該基体が単一材料の場合に説明した成分を有する前記粉体に被覆物を有する構成を採用することができ、その被覆物の成分としては、酸化チタン、塩基性炭酸鉛、オキシ塩化ビスマス、酸化カドミウム、酸化ジルコニウム、酸化錫、銀及び金等を挙げることができ、それらの少なくとも1種を採用することができる。

[16]

更に、各種表面処理剤層による表面処理を行うことができる。表面処理剤としては化粧料粉体の表面処理に使用される表面処理剤が好ましいものとして使用され、シリコーン、アミノ酸、レシチン、フッ素化合物、金属石ケン等による表面処理層が特に優れた効果を有する。複数組み合わせることもできる。

[17]

基体の形状としては、前述の如く、板状、鱗片状、棒状、球状、半球状、X線状、バタフライ状、星形状、花卉状、リボン状、ヒトデ状等を採用することができ、中でも板状及び鱗片状が好ましい。

[18]

上記の如く得られ、特に化粧料用の基体を使用して、得られるような複合粉体を配合する化粧料も本発明に含まれる。特に好ましくは複合粉体を、1～100重量%配合することができる。

化粧料の種類、形態、目的等に応じて更に必要な成分を任意に配合することができる。従って、従来から使用される粉体や複合粉体等も当然配合可能である。

好ましくは、例えば粉体固型化粧料（粉体系）の場合1～80重量%程度、乳化化粧料の場合1～30重量%程度、非水系化粧料（ワックスとオイルの混合系及びそれらと樹脂の混合系）の場合0.5～50重量%程度、化粧料中に当該複合粉体を配合することができる。

図面の簡単な説明

[図 1]

実施例 1 で得られた、水酸化アルミニウムが固着する複合粉体の SEM 写真（×20,000）を図示したものである。

[図 2]

実施例 1 で得られた、水酸化アルミニウムが固着する複合粉体の SEM 写真（×50,000）を図示したものである。

[図 3]

比較例 1 で得られた水酸化アルミニウム被覆粉体の SEM 写真（×5,000）を図示したものである。

[図 4]

実施例 18 において、口紅についての評価結果を示す図である。

●：発明品（実施例 6）；▲市販品 A。

[図 5]

実施例 18 において、クリームファンデーションについての評価結果を示す図である。

●：発明品（実施例 7）；▲市販品 B。

[図 6]

実施例 18 において、パウダーファンデーションについての評価結果を示す図である。

●：発明品（実施例 8）；▲市販品 C；■：比較例 2。

[図 7]

実施例 18 において、複合粉体自体の効果についての評価結果を示す図である。

●：発明品（実施例 1）；▲比較例 1。

発明の実施の形態

以下に、本発明の実施の形態について説明するが、本発明の好ましい形態を中心に説明するものであり、本発明の範囲はそれらの好ましい形態の内容を含むがそれらに限定されるものではない。

本発明において複合粉体を構成する基体については、例えばそれらの平均粒子

径として、好ましくは $0.1 \sim 600 \mu\text{m}$ 程度（レーザー回析法平均粒子径、堀場製作所製）であり、それらの基体の平均的厚さとして好ましくは $0.01 \sim 10 \mu\text{m}$ 程度（樹脂で包埋し、その切片をTEM観察する方法）のものである。また、これらの本発明に適用される基体の屈折率として好ましくは $1.3 \sim 2$ 程度、より好ましくは $1.4 \sim 1.8$ 程度、更に好ましくは $1.42 \sim 1.76$ 程度、また平均粒子径としてより好ましくは $0.3 \sim 500 \mu\text{m}$ 程度、更に好ましくは $1 \sim 400 \mu\text{m}$ 程度のものである。

本発明において基体として単一材料を使用する場合、その材料の成分として粘土鉱物、硫酸バリウム、アルミナ、シリカ、フッ化マグネシウム及びハイドロキシアパタイトを挙げることができる。

粘土鉱物の好ましい例として例えば、セリサイト（絹雲母）、白雲母、黒雲母、リチア雲母、合成雲母等のイライト族、カオリオナイト、ナクライト、デッカイト、ハロイサイト等のカオリン族、珪線石、藍晶石等のシリマナイト族、タルク（滑石）、蛇紋石等のマグネシウムシリケート系等を挙げることができる。

本発明に使用する基体に複合材料を使用する場合、前記単一材料として使用する成分、特に前記屈折率 $1.3 \sim 2$ の範囲にある成分の粉体、例えば粘土鉱物、硫酸バリウム、アルミナ、シリカ、フッ化マグネシウム及びハイドロキシアパタイトの少なくとも1種で構成される材料と、別の材料として、酸化チタン、塩基性炭酸鉛、オキシ塩化ビスマス、酸化カドミウム、酸化ジルコニウム、酸化錫、銀及び金の何れかを含有する複合粉体を採用することができる。

特に、前記単一材料として使用する成分の粉体表面に、前記別の材料成分による被覆物を有する複合材料を使用することが好ましい。

基体として複合材料を使用する場合、パール顔料、例えば金色、赤色、橙色、緑色、青色、紫色の干渉色を有する虹彩箔パール顔料や着色パール顔料、硬質カプセル、例えば酸化チタン内包シリカ、酸化亜鉛内包シリカ、PMMA-酸化チタン、PMMA-シリカ等、多層膜粉体、例えばシリカ-酸化チタン-シリカ、シリカ-酸化セリウム-シリカ、スターチ-ポリエチレンパウダー、シリカ-ナイロンパウダー、酸化亜鉛-セリサイト等の複合材料を採用することができ、本発明の効果をより効果的に発揮するには虹彩箔パール顔料や着色パール顔料が特

に好ましい。

本発明に使用する基体（複合材料）の一つの更に好ましい例としては、前記各種の形状を有する粉体の表面に幾何学的厚さで酸化チタンを被覆した組成物（例えば、チタン-マイカ）、各種の形状を有する粉体の表面に幾何学的厚さで酸化チタンを被覆したり、更に必要によりその表面を低次酸化チタンで被覆した組成物、及び各種の形状を有する粉体の表面を幾何学的厚さで被覆した酸化チタンの表面を更に鉄黒等色味成分を付着させた組成物を挙げることができる。

また、各種の形状を有する基体を構成する粉体表面に微粒子金属水酸化物又は金属酸化物等を付着させ、その表面を、幾何学的厚さを有する酸化チタンで被覆したり、更に必要によりその表面を低次酸化チタンで被覆したり、或いはその表面に鉄黒を付着して本発明の複合材料を構成することもできる。このような被覆物の付着により干渉色の色調をより強め、自然なカバー力を高めると共に形態修正効果、色調修正効果と密着性、透明感や素肌感の向上を図ることもできる。

各種の形状を有する粉体の表面に酸化チタン層を形成させた真珠光沢と種々の干渉色を取得する方法としては真空蒸着処理法も使用可能であるが、実際にはデュポンの方法（特公昭43-25644号公報参照。）に見られるようなチタンの無機酸塩（例えば、硫酸チタニル）の水溶液を各種の形状を有する粉体の存在下で加水分解し、各種の形状を持つ粉体表面に含水酸化チタンを析出させた後加熱する方法が一般的である。

このように生成した複合材料（基体）は各種の形状を有する粉体表面の酸化チタン被覆層の厚さによって様々な干渉色を呈する。干渉色は酸化チタンの量が生成物中（当該粉体と酸化チタンの総和に対して）10～25重量%である場合、通常、銀色であるが25～40重量%では金色、40～50重量%の範囲では、酸化チタン層の増加の方向で赤色、青色、緑色へと連続的に変化し、更に50～60重量%では高いオーダーの金色等を得ることができる。

(干渉色)	TiO ₂ の幾何学的厚さの範囲 (nm)
銀	20 ~ 40
金	40 ~ 90
赤	90 ~ 110
藍	110 ~ 120
青	120 ~ 135
緑	135 ~ 155
第二オーダーの金	155 ~ 175
第二オーダーの藍	175 ~ 200

このように、酸化チタンで被覆する場合には20～200nm（ナノメートル）程度の幾何学的厚さの範囲で好む色調を選択することができる。このような被覆物の成分として、好ましくは前記チタン、ビスマス、鉛、カドミウム、ジルコニウム或いは錫の酸化物で被覆することができる。被覆の幾何学的厚さの範囲については、各種使用する成分により干渉色がそれぞれ少しずつ相違するので使用する成分に応じて適宜選択すればよいが、好ましい幾何学的厚さの範囲として通常は40～200nm（ナノメートル）程度の範囲で上記のような色調（干渉色）の変化を見出すことができる。

また、天然雲母の表面に酸化チタンを被覆し、更に酸化鉄（酸化第一鉄）を被覆することによりパール光沢とカラーが一体となり見えるパール顔料は酸化チタンの被覆率が15～48重量%、酸化鉄の被覆率が5～26重量%で、粒度幅としては5～100 μ m程度のものが上市されている。例えば、下記の商品があり、これらの商品を本発明に使用する基体に採用することができる。

酸化チタン被覆率(%)	粒度(μ)	酸化鉄被覆率(%)	パール光沢
4.8	5～25	1.0	穏やかな赤味のある金色
2.3	1.0～6.0	2.2	赤味のある濃い金色
1.6	1.0～6.0	2.4	赤味のある金色
3.6	1.0～6.0	8	やや青味のある金色

従来のファンデーション等に各種パール顔料（薄片状パール顔料）を配合することは既に知られているが、これ等のパール顔料はパール独特の光沢感から、キラキラ感が異常に強く生じてしまい、仕上がり感が悪くなったり、毛穴や小ジワが目立ったりする。

これに対してこのような複合体を基体を使用し、球状（球状、楕円状等）の形状の水酸化アルミニウムに網目状の水酸化アルミニウムを被覆することにより、肌に「はり」感を与えることができる。即ち、肌の形態トラブル修正効果の他に化粧肌にその人（個体）の肌色に合った自然なつやとくすみのない明るい均一な肌色（より自然な色調）に透明感を演出することができ、パール独特の光沢が無く不自然な質感を感じさせることなく透明感があり肌に「はり」感を与えることができる。

干渉色はチタンマイカパール顔料の酸化チタン層の幾何学的厚さによりコントロールされ各種色調が得られる。このパール顔料に本発明で使用する水酸化アルミニウムを固着する量の変化で干渉色の色調を変化させることができることも見出している。即ち、干渉色を発するパール顔料の種類にもよるが、水酸化アルミニウムの量が1.0～1.5重量%程度（水酸化アルミニウムを固着する前の基体全量に対し）の範囲の被覆ではパール光沢を緩和しつつ色相を変化させる効果が大きく、1.5重量%を超えると自然なつやや色相の変化効果よりも形態トラブル修正効果が優先し彩度が低くなる傾向を示した。この色相の変化は酸化チタンの幾何学的厚さと干渉色の変化方向と一致し、水酸化アルミニウムの厚さが干渉色の色味を更に変化させる効果を有していることも見出した。

本発明に使用する基体として、更に各種の形状を有する低屈折率の光透過性無機物質粉体を使用することができる。その場合の屈折率は低く、好ましくは1.

3～2程度、より好ましくは1.4～1.8程度、更に好ましくは1.42から1.76程度であり、この屈折率の範囲は基体が単一材料の場合の当該単一材料の屈折率と、基体が複合材料の場合でその表面を被覆される中側の材料の屈折率と、その両方に適用可能である。

一方、複合材料の場合の被覆物の屈折率については、その内側に使用される当該、例えば無機物質粉体成分の屈折率より大きくなるように構成すればよく、好ましくは1.8～3程度、より好ましくは1.8～2.8程度、更に好ましくは2.1～2.8程度の範囲に構成することができる。両者の屈折率の差については、0.3以上、より好ましくは0.5～1.4程度の差を選択することができる。

また、当該基体を使用する場合の光透過性無機物質粉体及び当該被覆物の密度については、当該光透過性無機物質粉体の密度としては1.9～5.5の範囲にある方が好ましい。基体が複合材料の場合の被覆物の密度は3.5～8.2の範囲にある方が好ましい。好ましくは、その内側に使用される無機物質粉体の密度よりも当該被覆物の密度が高くなるように構成するのが望ましい。

本発明に基体の成分として使用できる光透過性無機物質粉体及び被覆物についての具体的な例は下記の通りである。下記の表中に例示される粉体及び被覆物の成分は当然本発明に使用できる成分であり、ここに例示されていなくともこれ等と実質的に同等の性状を有する成分も本発明に使用することができ、本発明の範囲に含まれる。

(無機物質粉体)

無機物質粉体	屈折率 (n)	密度 (p)
フッ化マグネシウム	1. 3 7 8	3. 1 4 8
シリカ (S i O ₂)	1. 4 2	2. 2
ゼオライト	1. 4 7	2. 1 5
モンモリロナイト	1. 5 2	2. 5
カオリン	1. 5 6	2. 5 8
セリサイト	1. 5 7	2. 8
タルク	1. 5 8	2. 7
マイカ (雲母)	1. 5 9	2. 8
珪藻土	1. 4 6	2. 0
酸化マグネシウム	1. 7 4	3. 6 5
硫酸バリウム	1. 6 2	4. 4 7
ドロマイト	1. 6 8	2. 9
アルミナ	1. 7 6	3. 9 5
ロウ石	1. 6	2. 9
イットリア	1. 9 2	5. 0 3
酸化亜鉛	2. 0	5. 5

(被覆物)

被覆物	屈折率 (n)	密度 (p)
酸化チタン (R)	2.71	4.2
酸化チタン (A)	2.52	3.5
塩基性炭酸鉛	1.9	6.4
オキシ塩化ビスマス	2.15	7.7
酸化カドミウム	2.49	8.15
酸化ジルコニウム	2.20	5.49
酸化錫	1.99	6.95
金	3.0	
銀	3.0	

各種の形状を有する粉体表面を被覆する酸化チタン、例えば酸化チタン被覆雲母（複合材料）や、更にこれに低次酸化チタンとで構成する場合、それらの量は広い範囲で変化させることができる。通常、酸化チタンを被覆する前の基体の原料粉体100部に対して酸化チタンが20～150重量部程度、より好ましくは29～150重量部程度で、必要により適用する低次酸化チタンが0.01～60重量部程度、より好ましくは1～10重量部程度で被覆することができる。低次酸化チタンの量が特定の形状を有する粉体に対して0.01重量%未満の場合、得られる複合粉体の干渉色の発色性が劣る傾向が見られる。また、60重量%を超える場合は、干渉色の強さに変化が見られるばかりか、用いる粉体の種類によっては、脆弱化したり粒子の凝集が強くなり、好ましくない。

粉体表面を酸化チタン粒子層の幾何学的厚さを調整して本基体を調製し、これを用いて本発明の複合粉体を構成することにより、様々なよりソフトな柔らか味、自然なカバー力や、透明感のある明るい色調を作り出すことができる。例えば、干渉色が青～紫系の複合粉体は肌に自然なカバー力と透明感を与え、干渉色が緑色系の新規複合粉体はくすんだ化粧膜にならずに自然なカバー力と透明感のある赤味を抑え、干渉色が黄色～赤色系の複合粉体は化粧膜を通して明るい肌色に自然なカバー力と透明感があり健康的に見せ、肌のくすみを隠すことができると

共に、肌の色むらと肌の凹凸むらを隠し、均一な肌に見せることができる。

前記基体表面上に固着する特定形状物の構成に用いられる水酸化アルミニウム粒子は結晶質でも非結晶質でもよいが、格子内乱反射が多い点で結晶質が好ましい。その屈折率は1.56である。

本発明に使用する化粧料に使用可能な基体の種類やその平均粒子径の大きさ、基体の表面性質の違いにもよるが固着する水酸化アルミニウムの配合、使用量については、水酸化アルミニウムが固着する化粧料に使用可能な基体、即ち全複合粉体に対して、特に好ましくは基体と水酸化アルミニウムの合計量に対して、好ましくは2～75重量%、より好ましくは5～70重量%、更に好ましくは10～60重量%、より更に好ましくは15～50重量%となる様に水酸化アルミニウムを使用することができる。多過ぎると拡散反射光が極めて多くなり透明感がなく白っぽい仕上がりになる。特に虹彩箔パール顔料を用いた場合には、虹彩箔パール顔料の持つ色彩効果が薄れ、本発明で目的とする効果が得られず、故に好ましくない。少な過ぎると色彩移行の効果が出難いばかりかパール顔料の持つギラギラした光沢感が強く、肌の凹凸や毛穴、シワ等が目立つと共にメイクアップ効果を損う結果になるので、好ましくない。

前述の通り、基体が複合材料の場合、被覆物等を含めた複合材料全体が基体に該当するのでこの複合材料全体が基体を含めて算定されることは当然のことである。更に、基体中に水酸化アルミニウムを使用する場合の水酸化アルミニウムについても、同様に基体を含めて算定される。

本発明に使用する基体の表面への特定形状を構成するために使用する水酸化アルミニウムは、球状又は楕円球状（球体状又は楕円球体状）の表面に網目状の形状を有する水酸化アルミニウムで被覆したものが望ましい。粉体の表面上にこのような水酸化アルミニウムの粒子により、特定形状の水酸化アルミニウムが固着した複合粒子を構成することができる。このような粒子で構成され、単一材料を基体とする複合粉体（マイカー $\text{Al}(\text{OH})_3$ ）と複合材料を基体とする複合粉体（例えば、 TiO_2 -マイカ）- $\text{Al}(\text{OH})_3$ ）が本発明の代表的な複合粉体に含まれるが、その水酸化アルミニウム粒子による形状物の固着の形状・構造については製造時の反応温度、反応時間、pH値、冷却条件、水量等や使用する前

記基体の微妙な表面形態の相違や生成する水酸化アルミニウムの表面活性度等の違いに応じて本発明の特定形状、構造に調整することができる。

固着する粒子で構成される特定の形状や、この特定の形状物が前記基体に固着する形状・構造については、複合粉体を構成する基体の粒子表面に水酸化アルミニウム粒子が固着し特定の形状（水酸化アルミニウムによる）を構成すると共にこの特定形状の水酸化アルミニウムが固着する複合粒子を形成し、このような粒子を含む粉体が化粧料用粉体として好適である。このような複合粒子を少なくとも含む粉体が本発明の複合粉体を構成している。勿論、このような複合粒子全てにより本発明の複合粉体を構成することができる。固着水酸化アルミニウム粒子で構成される前記特定の形状として、球体状（楕円球体状、円盤状球体状も含む）の表面に網目状の形状を有する水酸化アルミニウムが被覆した形状で固着する構造を有し、このような形状構造の度合は化粧する人間の肌の違い、肌性の違い、肌状態（形態トラブル度合）により任意に変化させることができる。

本発明において「球状」とは、完全な球体状のみならず、楕円球状（ラクビーのボール状）、円盤の形状にある球体状等、球に近似した形状をも意味する。

（複合粉体の製造）

本発明の複合粉体を製造するには特に困難は無く、本件明細書の記載、特に後述の実施例等によれば容易に製造することができるが、若干、補足すると次の通りである。

基体の使用量に対し、精製水を3～15倍量（重量）程度使用する。水酸化アルミニウム調製のためのアルミニウム塩は、水酸化アルミニウムの量として基体を含んだ総重量に対し2～75重量%程度使用する。アルミニウム塩を精製水に溶解し基体を均一に分散させた分散液を50～100℃程度に加温し、これに種晶を加えて攪拌した後40～-10℃程度に冷却する。水溶液を濾過して水洗洗浄後乾燥することにより、水酸化アルミニウムが固着した基体の複合粉体を製造することができる。

水酸化アルミニウムが固着する基体に対して、シリコーン表面処理を行う場合には、慣用方法（例えば、特開平9-48716号公報参照。）により容易に行うことができる。

(表面処理)

本発明で得られる複合粉体は化粧持ちの向上や、保湿性や吸湿性を付与し肌を保護する作用、肌への密着性、親和性を図り、肌への付着性の向上、吸油量の調整や肌のかさつき、肌の乾燥感を抑制し、肌に負担をかけない。また、潤滑性、延展性、しっとり感等の感触改良、粉体及び顔料の易分散性の向上を図るために、表面処理をするのが好ましい。

表面処理法としては既に知られている公知の方法を利用することができ、例えばレシチン処理、アミノ酸処理、アシルグルタミン酸処理、金属石鹸処理、脂肪酸処理、フッ素処理、シリコーン処理、保湿剤処理、ポリエチレン処理、N-モノ長鎖（例えば、炭素数8～22）脂肪族アシル塩基性アミノ酸処理等の表面処理が挙げられる。これらの表面処理は、当然のことながら複数の処理を組み合わせで行うこともできる。この中ではシリコーン処理、アミノ酸処理、レシチン処理、フッ素処理、レシチン-シリコーン処理、脂肪酸-シリコーン処理が得られる効果が優れているという点で好ましい。

シリコーン油としては、通常の化粧料等に用いられるものであれば特に制限されず、例えば、ジメチルポリシロキサン、環状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、メチルハイドロジェンポリシロキサン、環状メチルハイドロジェンポリシロキサン、ポリエーテル変性シリコーン、アルキル変性シリコーン、メチルポリシロキサンエマルジョン、高級脂肪酸エステル変性シリコーン、高級アルコキシ変性シリコーン、フェノール変性シリコーン等が挙げられる。

金属石鹸処理をする場合脂肪酸金属塩が好ましく採用され、その場合の脂肪酸金属塩としては、特に炭素数12～18のものが好ましく、またそれらの塩としては例えばカルシウム、マグネシウム、亜鉛、アルミニウム等の塩が挙げられる。尚、表面処理剤の選択は化粧料の剤型や使用目的により異なるので、それぞれの目的に応じて実施するのが望ましい。

アミノ酸処理する場合のアミノ酸としては、植物又は動物由来のものが使用される。

レシチン処理に使用されるレシチンとしては、大豆や卵黄から抽出したものが

用いられる。

フッ素処理する場合には、パーフルオロアルキルシランやパーフルオロエーテル、パーフルオロアルキルリン酸エステル、パーフルオロアルキルリン酸エステルのジエタノールアミン塩等のフッ素化合物を採用することができる。

(化粧品)

本発明の複合粉体（上記被覆複合粉体やシリコーン等表面処理剤処理粉体等を含む。）を化粧品に配合して使用することができ、その場合化粧品における複合粉体の使用量（配合量）については特に制限は無い。例えば、パウダー状の化粧料の場合には好ましくは1～100重量%（重量%は全組成物に対する重量基準）程度配合することができる。ケーキ状の化粧料及び練物、化粧料の場合には、好ましくは配合する全粉体の重量の1～100重量%程度、より好ましくは1～80重量%程度となるように配合することができる。また、乳化状化粧料の場合には全乳化物の重量組成に対し、好ましくは1～60重量%程度、より好ましくは1～30重量%程度、非水系化粧料の場合には0.5～50重量%、より好ましくは1～30重量%程度、それぞれ配合することができる。中でも、特にメイクアップ化粧料、例えばファンデーション、粉白粉、固型白粉、アイシャドー、ブラッシャー、ネイルカラー、口紅等、スキンケア関係ではアンダーメイクアップベースやカーマインローション、クリーム、乳液、化粧水に配合するのに好適である。

本発明の複合粉体を含有した化粧品には、上記のような本発明の複合粉体成分の他に、本発明における化粧料の効果を損なわない範囲で必要に応じて、通常の化粧料に従来から配合される成分、例えば各種オイル、界面活性剤、水溶性高分子、他の粉体、保湿剤、防腐剤、薬剤、紫外線吸収剤、色素、無機塩又は有機酸塩、香料、キレート剤、pH調整剤、水等を適宜、配合することができる。同様に、塗料において本発明の複合粉体を使用する場合も上記同様に配合使用することができる。

従って、本発明における化粧料、塗料等においては前記複合粉体を前記の如く少なくともその有効成分に使用しておればよく、更に他に従来から知られている粉体、その他成分を配合使用することもできる（本発明の特徴を損なわない範囲

内で)。

前記オイルとしては、例えば流動パラフィン、ワセリン、パラフィンワックス、スクワラン、ミツロウ、カルナウバロウ、オリーブ油、ラノリン、高級アルコール、高級脂肪酸、エステル油、セレシン、マイクロクリスタリンワックス、キャンデリラロウ、ジグリセライド、トリグリセライド、シリコーン油、パーフルオロポリエーテル、パーフルオロデカリン、パーフルオロオクタン、ホホバ油、ミリスチン酸オクチルドデシル、ジオクタン酸ネオペンチルグリコール等の化粧料に汎用される油分が用いられる。

前記界面活性剤としては、例えば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脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンソルビタン脂肪酸エステル、グリセリン脂肪酸エステル、ポリグリセリン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレングリセリン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレン硬化ヒマシ油、ポリオキシエチレンソルビトール脂肪酸エステル等の非イオン性界面活性剤；ステアリン酸ナトリウム、パルミチン酸トリエタノールアミン等の脂肪酸石鹸で代表されるアニオン性界面活性剤；及びカチオン性界面活性剤、両性界面活性剤等の化粧料に汎用される界面活性剤が用いられる。

前記水溶性高分子としては、例えばカルボキシメチルセルロース、メチルセルロース、ヒドロキシメチルセルロース、ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、トラガントガム、カラギーナン、ローカストビーングラム、デキストリン、デキストリン脂肪酸エステル、カルボキシビニルポリマー、キサンタンガム、ゼラチン、アルギン酸ナトリウム、アラビアゴム等の化粧料に汎用される水溶性高分子が用いられる。

本発明に使用する、基体に単一材料を使用する複合粉体（単一材料（基体）－ $\text{Al}(\text{OH})_3$ ）や、基体に複合材料を使用する複合粉体（複合材料（基体）－ $\text{Al}(\text{OH})_3$ ）は前記の通り、特に化粧料に使用したときに形態修正効果を有し、化粧膜に不自然な質感を与えることがなく、つやを付与した「はり」感に加えて、透明感を取得するため使用できる粉体である。更に、前述の通りこの目的以外で従来から使用されている粉体を従来の目的、例えば被覆力が小さい白色粉体で着色顔料を薄めて適度の濃度で使用して着色力の調整をしたり、感触の調整

をする目的で、同様に使用することもできる。そのような従来からの目的のために使用する前記他の粉体としては、例えばタルク、マイカ、カオリン、セリサイト、白雲母、合成雲母、金雲母、紅雲母、黒雲母、リチア雲母、バーミキュライト、炭酸マグネシウム、炭酸カルシウム、珪藻土、珪酸マグネシウム、珪酸カルシウム、珪酸アルミニウム、珪酸バリウム、珪酸ストロンチウム、タングステン酸金属塩、ハイドロキシアパタイト、含水珪酸、無水珪酸、酸化マグネシウム、ベントナイト、ゼオライト、セラミクスパウダー、水酸化アルミニウム等の無機粉体；ナイロンパウダー、ポリエチレンパウダー、ポリメチルベンゾグアナミンパウダー、ポリメチルメタクリレートパウダー、四フッ化エチレンパウダー、微結晶性セルロース、コメデンプン、ラウロイルリジン等の有機粉体；ステアリン酸カルシウム、ステアリン酸亜鉛、ステアリン酸マグネシウム、ミリスチン酸マグネシウム、セチルリン酸カルシウム、セチルリン酸亜鉛ナトリウム等の脂肪酸金属塩粉体；酸化チタン、酸化亜鉛、酸化ジルコニウム、酸化鉄（ベンガラ）、チタン酸鉄、水酸化鉄、黄土、黒酸化鉄、カーボンブラック、マンゴバイオレット、コバルトバイオレット、酸化クロム、水酸化クロム、コバルトチタン、群青、紺青等の無機着色粉体；酸化チタンコーティング雲母、酸化チタンコーティングオキシ塩化ビスマス、オキシ塩化ビスマス、酸化チタンコーティングタルク、魚鱗箔、着色酸化チタンコーティング雲母等のパール顔料；アルミニウムパウダー、ステンレスパウダー、銅パウダー等の金属粉末等の化粧料に汎用される粉体、及びこれらをシリコーン又はフッ素化合物（フッ素処理）で処理した粉体が用いられる。

前記保湿剤としては、例えばソルビトール、キシリトール、グリセリン、マルチトール、プロピレングリコール、1，3-ブチレングリコール、1，4-ブチレングリコール、ピロリドンカルボン酸ナトリウム、乳酸、乳酸ナトリウム、ポリエチレングリコール等の化粧料に汎用される保湿剤が用いられる。

前記防腐剤としては、例えばパラオキシ安息香酸アルキルエステル、安息香酸ナトリウム、ソルビン酸カリウム等の化粧料に汎用される防腐剤が用いられる。

前記薬剤としては、例えばビタミン類、生薬、消炎剤、殺菌剤等の化粧料に汎用される薬剤が用いられる。

前記紫外線吸収剤としては、例えばパラアミノ安息香酸系紫外線吸収剤、アントラニル系紫外線吸収剤、サリチル酸系紫外線吸収剤、桂皮酸系紫外線吸収剤、ベンゾフェノン系紫外線吸収剤等の化粧料に汎用される紫外線吸収剤が用いられる。

前記色素としては、例えば赤色3号、赤色104号、赤色106号、赤色201号、赤色202号、赤色204号、赤色205号、赤色220号、赤色226号、赤色227号、赤色228号、赤色230号、赤色401号、赤色505号、黄色4号、黄色5号、黄色202号、黄色203号、黄色204号、黄色401号、青色1号、青色2号、青色201号、青色404号、緑色3号、緑色201号、緑色204号、緑色205号、橙色201号、橙色203号、橙色204号、橙色206号、橙色207号等のタール色素；カルミン酸、ラッカイン酸、ブラジリン、クロシン等の天然色素等の化粧料に汎用される色素が用いられる。

本発明における化粧料の形態、種類は特に制限されず、現在存在するあらゆる形態の化粧料及び将来開発、販売される全ての化粧料に使用可能である。例えば、ローション、乳液、クリーム、乳化型ファンデーション等を挙げることができるが、具体例としては、例えばパウダーファンデーション、コンパクトパウダー、ツウエイケーキ、フェースパウダー、制汗パウダー、消臭パウダー等の白粉類、アイシャドウ、パウダーブラッシャー、マスカラ、口紅、リップグロス、アイブ로우ペンシル、アイライナー、ネイルカラー等のポイントメイク料、リキッドファンデーション、クリームファンデーション、アンダーメイクアップベース、固形乳化型ファンデーション、油性ファンデーション等の乳化型、非乳化型製品類、パック、化粧水、美溶液、養毛料、ヘアートニック、整髪料等の一部基礎化粧料類、ベビーパウダー、ボディーパウダー、フレグランスパウダー等の全身用製品類を挙げることができる。

同様に、本発明の複合粉体は塗料にも使用することができ、あらゆる形態の塗料用としての使用が期待される。

次いで、作用機序について考察してみると、シワを見え難くする公知の方法の一つとして、基体の表面をポリマーの樹脂で固定化し、そのポリマーの凹凸により光の拡散反射効果をもたらせシワを見え難くする方法がある。もう一つとして

、粉体を蝶の形に近似させ、その複雑な形状を利用し、拡散散乱効果をもたらす方法がある。何れもその素材の表面での光散乱効果を利用したものである。本発明の大きな特徴は、基体の表面に特定の屈折率（1.56）を有する水酸化アルミニウム粒子を選択、使用して、この粒子を前記特定形状に構成して特定構造で基体に固着した複合粉体に存する。本発明は固着粒子の球状（楕円球状等含む）とその表面に存する網目状の水酸化アルミニウムによる光反射効果をもたらしている一方、水酸化アルミニウムの屈折率は人間の角層の屈折率（1.55）に近似した1.56の値を示し、低屈折率の物質である。形態トラブル修正効果は特定形状、特定構造とその物質（ $\text{Al}(\text{OH})_3$ ）の両者のバランスで決定される。本発明は各個体（人間）により肌のトラブル度合、種類等が異なるので、特定構造で固着する、特定形状をした水酸化アルミニウムの固着量を任意に変動させることにより、個々に対応できる様にしたものである。

従来のメイクアップ化粧料は小麦肌色～濃小麦肌色～ブロンズ色肌を出すのに多量の酸化鉄を用いていたため、つやが無く、くすんだ肌色になり勝ちであった。一方、つやを与えるために銀白色のパールを施すと、肌色とはかけ離れた色調になり不健康でかつ異質の質感になってしまってメイク効果を大きく損っていた。本発明は、例えば虹彩箔パール顔料表面に前記特定形状の水酸化アルミニウムを、特定構造に固着することにより、従来のキラキラした独特の光沢のもつ欠点（形態トラブルが目立つ）を大幅に軽減できるがそれとは別に、本発明は特定形状、特定構造を持つ固着水酸化アルミニウムを10～15%程度の範囲で使用するにより干渉色の色味を変化（色相移行）させることができる。その移行の方向は黄色が赤味へ、赤味は赤紫味へ、青紫は青味へ、緑は黄緑味への移行であり、これは酸化チタンの幾何学的厚みと干渉色の色の変化方向と同一方向にあることである。即ち、幾何学的厚みが厚くなると金→赤→藍→青→緑→金と移行するのと同じ方向である。このことから本発明に係る水酸化アルミニウムを10～15重量%固着することで、幾何学的厚さを微妙に変化させることにより色相の変化に寄与していると考えられる。また、これらの反射光は干渉色による色味であり、くすみを感じないソフトな色味である。

以下に、色変化の移行について考察する。

パール顔料の場合、酸化チタンの幾何学的厚さが厚くなれば干渉色としては前述したように銀→金→赤→藍→青→緑の順に変化する。厚みを更に増すと干渉色は弱まるが第二オーダーの金→赤→藍→青→緑と変化し、更に厚みが増すと白色となる。

例えば、干渉色に水酸化アルミニウムを15重量%までパール顔料の表面に固着することにより幾何学的な厚さが赤と藍の間の厚さになったことを意味する。この現象は容易に理解されることである。また、水酸化アルミニウムを増すと藍→青→緑と変化すべきところ、これに反して無彩色（白色）の方向に色調が動いている。その原因として考えられる第一は過去のこの分野での研究の経緯を参考にして推察するに、幾何学的厚さを増すことはできても、その表面を均一で平滑な面にすることが難しい。即ち、本発明において説明すると水酸化アルミニウムの表面部分が微視的に均一で平滑な面が保たれず凹凸になっている点である。この凹凸が光の散乱効果をもたらしていると考えられる。

第二には、水酸化アルミニウムは真に透明な層を形成しているか否かである。屈折率が1.56の水酸化アルミニウムは低屈折率のフッ化マグネシウムやシリカと比較した場合屈折率が若干高い値を示す。このことは水酸化アルミニウムの固着層が実は半透明の層と考えてよいことである。半透明であるとの仮定に立脚すればその部分での内部光散乱が少しはあると考えられる。

第三に考えられることは、被覆層（酸化チタンと水酸化アルミニウムの層）が厚くなればなる程、位相差散乱が多くなる。この位相差散乱もその要因になっているものと推測している。

即ち、固着量が10～20重量%程度までは微視的にみて、表面は平滑性を保持し、位相差散乱の影響が小さく、特定形状を有する水酸化アルミニウムの屈折率の影響も少ない範囲であり、特定形状を有する水酸化アルミニウムの固着量とのバランスがとれている。本発明においてパール顔料を使用した新規複合粉体はその結果として透明感、色調、つやと形態トラブル修正効果のバランスが特に優れていて、肌に特に「はり」を感じさせることができる。

特定形状で、特定構造を有する水酸化アルミニウムの固着量が25%以上になると、新規複合粉体表面の微視的な凹凸の発現や、被覆層（酸化チタンと水酸化

アルミニウム)の厚みが増加することによる、位相差散乱の増大に加え、水酸化アルミニウムの持つ屈折率の大きさの影響により、光散乱効果が大きくなり形態トラブル修正効果がより強められる。

本発明の複合粉体には、特開平9-20609号公報記載の発明と比較して、明らかに滑らかな使用感が得られている。特開平9-20609号公報記載の発明においては、被覆粉体の最外層(部)がハニカム構造を有していて、その表面の凹凸が著しい。そのために、別に塗布したとき肌の凹凸との相互作用により延展性が無く肌に負担がかかる結果となる。また、最外層が超微粒子の不均一な面であると共に超微粒子は比表面積が大きいことも手伝い、肌上の水分や油分の吸着能が高く、延展性が悪く、伸びの重い使用感になる。「はり」感は化粧品分野の複合用語であり、それらの因子として、前述の通り形態修正効果(シワ等が目立たない)と色調(くすみが無く、明るい均一な肌色)と自然なつやが主要因であり、それに透明感が加味したものである。特開平9-20609号公報の記載の発明は形態修正効果に人間の肌と同一の分光特性(つや)を示すが基体が粘土鉱物であり白色であるため「はり」を感じさせることができないし、ハニカム構造による散乱効果を主眼にしているため彩度がより無彩色になり「はり」の効果を生み出すことはできない。

本発明は基体及びこれに固着する水酸化アルミニウムを含む複合粉体で、特定形状の、特定構造で固着する複合粒子である。当該水酸化アルミニウム粒子は、球状(楕円球体形状等を含む。)をした水酸化アルミニウム粒子の表面や基体に網目状水酸化アルミニウムが固着する形態のものを好ましいものとして含み、このよう固着する水酸化アルミニウムを好ましくは基体表面上に比較的多くし、その高さも略一定に調整され(SEMで20,000倍では多少高さが異なるがマクロ的には略一定と見ることができる。)、多くの該水酸化アルミニウムが固着している。また、SEM観察からも理解されるよう、肌に接する面は球体(楕円球体等)の表面であり、その表面に微視的に網目の形状物を有する水酸化アルミニウムが固着しているため、肌との接点が少なく滑らかな使用感が得られると共に、この微視的網目形状の $\text{Al}(\text{OH})_3$ が肌への付着性を高めている。即ち、このメカニズムにより肌への付着性が良く、滑らかな使用感が得られるものと

考えられる。

本発明による化粧料の形態は特に限定されない。例えば、粉末状、ケーキ状、ペンシル状、スティック状、ペレット状、軟膏状、液状、乳液状、クリーム状等各種の形態で使用する事ができる。本発明において複合粉体は、特に基体として雲母を使用する複合粉体については、化粧料用として特に有用なものであるが、その他塗料、プラスチック、ゴム等の添加剤、ゴム等の離型剤、潤滑剤等各種の成分として使用することもでき、化粧料分野のみならず広く利用可能であり、工業的に極めて有用である。

実施例

以下に、実施例及び比較例を示して本発明を詳細に説明するが、これら実施例等により何ら本発明を限定するものではない。尚、実施例及び比較例において、特に説明が無い限り「部」は重量部を表している。

(実施例1)

チタンマイカ表面への水酸化アルミニウムの固着

精製水400mlにアルミン酸ナトリウム21.3gを溶解させた。この溶解液に虹彩箔パール顔料（商品名「Iriodin 211Rutile Fine Red」；メルクジャパン社製）100gを添加した。得られた混合物を攪拌分散しながら85℃まで加温した。85℃に到達した時点で、別に用意した0.08μmの水酸化アルミニウム0.176gを精製水に分散させて得られた分散液70.776gを加え5分間攪拌した。攪拌終了後、60℃まで水冷した後、更に氷冷により急冷し、20℃まで冷却した。その後、20℃以下の温度で6時間攪拌を継続した。濾過及び水洗浄を繰り返し、乾燥、粉碎後に水酸化アルミニウムが固着した赤紫色の虹彩箔パール顔料を製造した。

チタンマイカの表面に固着する直径0.8μmの球状（球体）や長径0.63μm、短径0.4μmの楕円球状（球体）を有する水酸化アルミニウムの表面に網目状水酸化アルミニウムで固着した複合粉体111.7gを得た。得られた15重量%A1(OH)₃が固着する複合粉体についてSEM写真を撮り図1（×20,000）、図2（×50,000）に示した。

これらの図から本発明品は多くの固着粒子で、球状、楕円球状の表面に網目状水酸化アルミニウムが固着していて略その高さがマクロ的には揃っていることが分かる。

(比較例 1)

特開平 9-20609 号公報記載の複合粉体

精製水 2000 ml に硫酸アルミニウム 400 g を加え溶解させた後、白雲母 200 g を加えて均一に分散させる。この分散液に尿素 457 g を加えて 95℃ にて 6 時間処理し、冷却し、水洗した後、エタノール洗浄し、70℃ で乾燥して水酸化アルミニウム被覆粉体を得た。

得られた被覆粉体についての SEM 写真を撮った結果を図 3 (×5,000) に示した。この図から粉体粒子表面がハニカム状となり、表面凹凸が著しいことが分かる。

摩擦感テスター (カトーテック社製) により動摩擦係数を測定した結果から、特開平 9-20609 号公報記載の製品は 3.35×10^{-1} MIU であるのに対し、本発明品は 2.94×10^{-1} MIU であり、この比較の結果、本発明品が滑らかさに優れていることが分かる。

(実施例 2)

球状アルミナ及び球状珪酸マグネシウムへの酸化チタン被覆及び水酸化アルミニウムの固着

球状アルミナ (平均粒子径: $8.3 \mu\text{m}$) 50 部と球状珪酸マグネシウム (平均粒子径: $9.2 \mu\text{m}$) 50 部を精製水 1,000 部に添加して均一に分散させた。得られた分散液に濃度 40 重量%の硫酸チタニル水溶液 625 部を加え、攪拌しながら 8 時間煮沸した。放冷後、濾過及び水洗後 900℃ で焼成して、酸化チタン被覆球状アルミナと酸化チタン被覆球状珪酸マグネシウムを製造した。

このようにして得られた複合材料 (粉体) 100 g を、実施例 1 において使用する虹彩箔パール顔料の代わりに使用し、それ以外何ら変更することなく実施例 1 を繰り返して、球状アルミナ及び球状珪酸マグネシウムへの酸化チタン被覆物の表面に水酸化アルミニウムが固着した緑色のパール顔料を製造した。

(実施例 3)

チタンマイカ混合系での表面への水酸化アルミニウムの固着

精製水 350 ml を 85℃まで昇温、加熱した後、アルミン酸ナトリウム 40 . 26 g を加えて 90℃まで昇温させた。90℃になった時点で、虹彩箔パール顔料（商品名「チミロンスーパーレッド」50 g 及び「チミロンスーパーオレンジ」50 g ; 何れもメルクジャパン社製）合計 100 g を添加して均一に分散させた。これに水酸化アルミニウムを分散させた分散液の上澄液（1.5%水酸化アルミニウム[精製水 98.5 ml と水酸化アルミニウム 1.5 g の分散液の上澄液]）30 g を加えて 10 分間攪拌した。その後、60℃まで冷水で冷却した後、更に氷水で冷却しながら 20℃以下で 8 時間攪拌を行った。その後、濾過及び水洗浄を繰り返し、乾燥及び粉碎して水酸化アルミニウムが固着した肌色虹彩箔パール顔料を製造した。

（実施例 4）

虹彩箔パール顔料表面への鉄黒と水酸化アルミニウムの固着

虹彩箔パール顔料（商品名「チミロンスーパーブルー」50 g 及び「チミロンスーパーグリーン」50 g ; 何れもメルクジャパン社製）合計 100 部を精製水 1,000 部に攪拌し均一に分散させた。この分散液に窒素ガスを吹き込み空気を追い出した後、攪拌しながら 80℃に過熱し 20%のアンモニア水を滴下して pH 値を 10 に調整した。続いて、窒素ガスの注入を中止して、硝酸カリウム 13.1 部、硫酸第一鉄 5.4 部、濃硫酸 0.6 部を精製水 1,000 部に溶解させた溶液を徐々に滴下した。この間、pH 値が 9～11 の範囲に維持されるように 20%アンモニア水の滴下量を調整した。また、反応中の温度は 80℃に保持し、攪拌速度を一定にした。反応終了後、濾過及び水洗し 100℃で乾燥することにより、青緑色の虹彩箔パール顔料を調製した。

このようにして調製した青緑色の虹彩箔パール顔料 100 g を、実施例 1 において使用する虹彩箔パール顔料 100 g に代えて使用し、それ以外何ら変更することなく実施例 1 を繰り返し、水酸化アルミニウムが固着した青緑色の虹彩箔パール顔料を製造した。

（実施例 5）

着色チタンマイカ表面への水酸化アルミニウムの固着

天然雲母の表面に二酸化チタン４８％を被覆し、更に酸化鉄１０％を被覆した虹彩箔パール顔料（商品名「Iriodin 302 Gold Satin」；メルクジャパン社製）１００ｇを、実施例１において使用する虹彩箔パール顔料１００ｇに代えて使用する以外何ら変更することなく実施例１を繰り返し、穏やかな赤味のある金色の水酸化アルミニウムが固着する酸化鉄被覆パール顔料を製造した。

（実施例６）口紅の製造

下記に示す口紅の成分組成に基づいて口紅を製造した。

口紅の組成

成 分		重量部
油 相	マイクロクリスタリンワックス	12.0
	ポリエチレンワックス	2.8
	米糠ロウ	4.1
	カルナバワックス	0.5
	スクワラン	5.1
	オクタン酸セチル	12.8
	トリ-2-エチルヘキサン酸グリセリン	16.5
	液体ラノリン	17.3
	ヒドロキシステアリン酸コレステリル	4.1
	シヨ糖酢酸イソ酪酸エステル	3.7
	ローズヒップ油	0.5
	2-エチルヘキシルパラジメチルアミノベンゾエート	2.9
	4-tert-ブチル-4'-メトキシジベンゾイルメタン	0.5
	d- δ -トコフェロール	0.2
	グリセリン	1.9
	精製水	1.7
	結晶性セルロース	1.3
顔 料	チタンマイカ-水酸化アルミニウム複合体（実施例1）	8.5
	ベンガラ	3.1
	赤色226号	0.3
	赤色202号	0.1
	鉄黒	0.1

(製法)

全油相成分を溶解釜に入れて90℃で完全に混合物を溶解し、分散させた後、

これに全顔料成分を添加して均一に混合した。これを冷却して取り出した後、ロールを3回かけた。ロール処理したものを再び溶解釜に戻し、85℃で溶解した後、脱泡処理しこれを口紅の金型に入れ、冷却後容器に入れて口紅の製品を製造した。

(実施例7) クリームファンデーションの製造

下記の成分組成に基づいてクリームファンデーションを製造した。

クリームファンデーションの組成

成 分		重量部
油 相	ステアリン酸	1.75
	モノステアリン酸グリセリン	3.0
	モノステアリン酸ポリエチレングリコール	0.5
	モノステアリン酸ポリオキシエチレンソルビタン	1.5
	トリ-2-エチルヘキサン酸グリセリン	3.0
	ブチルパラベン	0.1
	ジブチルヒドロキシトルエン	0.05
	2-エチルヘキシルパラジメチルアミノベンゾエート	0.2
	オクタン酸セチル	8.2
	スクワラン	2.0
	セスキオレイン酸ソルビタン	0.3
	二酸化チタン	5.0
	肌色虹彩箔パール顔料-水酸化アルミニウム複合体（実施例3）	5.5
水 相	グリセリン	5.0
	プロピレングリコール	5.0
	カルボキシメチルセルロースナトリウム	0.1
	キサントガム	0.05
	メチルパラベン	0.3
	トリエタノールアミン	0.7
	珪酸アルミニウムマグネシウム	1.0
	精製水	56.75

(製法)

油相成分の混合物を85℃に加温し、混合物を溶解、分散させた後、これに別途85℃に加温して用意した水相の全混合物を加えて85℃で乳化した。乳化が

終了した時点で、10分間攪拌し30℃まで冷却後これを容器に充填してクリームファンデーションを製造した。

(実施例8) パウダーファンデーションの製造

下記に示す成分組成に基づいてパウダーファンデーションを製造した。

パウダーファンデーションの組成

成 分		重量部
粉 体	シリコーン処理セリサイト	15.0
	アミノ酸処理セリサイト	5.0
	レシチン処理セリサイト	5.0
	板状硫酸バリウム	4.0
	二酸化チタン	3.0
	ポリスチレンビーズ	6.0
	シリカビーズ	5.0
	タルク	31.0
	実施例3の複合体	8.0
	実施例5の複合体	4.0
油 相	ジメチルポリシロキサン	7.0
	スクワラン	2.0
	セチルアルコール	3.0
	ホホバ油	2.0

(製法)

上記粉体の全成分をヘンシェルミキサーにて混合した後、粉碎機で粉碎した。粉碎した粉体をヘンシェルミキサーに移し、ヘンシェルミキサーを70℃に加温し、粉体の温度を約65℃に調整した。これに、別途加温溶解した油相成分の全混合物をスプレーノズルを用いて添加し、8分間攪拌した。その後、40℃まで冷却して取り出し粉碎機で粉碎後成型しパウダーファンデーション（製品）を製

造した。

(比較例 2)

実施例 8 においてそれぞれ製造した実施例 3 及び実施例 5 の複合粉体に代えて、それぞれ虹彩箔パール顔料 (商品名「チミロンスーパーレッド」4.0 g 及び「チミロンスーパーオレンジ」4.0 g ; 何れもメルクジャパン社製) 8.0 g 及び天然雲母の表面に二酸化チタン 48 % を被覆し、更に酸化鉄 (酸化第一鉄) 10 % を被覆した虹彩箔パール顔料 (商品名「Iriodin 302 Gold Satin」 ; メルクジャパン社製) 4.0 g を使用する以外何ら変更することなく実施例 8 に従ってパウダーファンデーションを製造した。

(実施例 9) ケーキアイシャドウの製造

下記に示す成分組成に基づいてケーキアイシャドウを製造した。

ケーキアイシャドウの組成

成 分		重量部
粉 体	アミノ酸処理セリサイト	6. 0
	レシチン処理タルク	20. 0
	実施例 5 の複合体	2. 0
	実施例 1 の複合体	6. 0
	実施例 4 の複合体	18. 0
	実施例 2 の複合体	8. 0
	鉄黒	4. 0
	ポリスチレンビーズ	6. 0
	N ϵ -ラウロイル-L-リジン	7. 0
	シリカビーズ	7. 0
	メチルパラベン	0. 2
油 相	ジメチルポリシロキサン	5. 0
	オクタン酸セチル	1. 0
	エルカ酸オクチルドデシル	5. 7
	2-トリ-エチルヘキサン酸トリグリセリン	4. 0
	d- δ -トコフェロール	0. 1

(製法)

粉体の全成分をヘンシェルミキサーにて混合し、粉碎機で粉碎した。このように粉碎した粉体をヘンシェルミキサーに移し攪拌しながら油相の成分を全て添加した。8分間攪拌後取り出し、粉碎機で粉碎し容器に充填してケーキアイシャドウ（製品）を製造した。

(実施例 10) パウダーファンデーションの製造 2

下記に示す成分組成に基づいてパウダーファンデーションを製造した。

パウダーファンデーションの組成

成 分	重量部
セリサイト	17
合成マイカ	8
板状タルク	to 100
シリカ被覆酸化亜鉛	5
実施例5の複合体	15
球状ナイロン粉末	5
球状シリコーン弾性粉末*	15
酸化チタン	12
ベンガラ	0.8
黄酸化鉄	2
黒酸化鉄	0.1
ジメチルポリシロキサン	3
流動パラフィン	5
ワセリン	5
ソルビタンセスキイソステアレート	1
パラベン	適量
d- δ -トコフェロール	適量
香料	適量

(製法)

上記の全成分をアルコール中でビーズ媒体ミルにて一定時間粉碎混合した後、生成したスラリーを中皿容器に充填した後、アルコールを吸引しながらプレスしパウダーファンデーション（製品）を製造した。

*球状シリコーン弾性粉末については、東レ・ダウコーニング・シリコーン社製「トレフィル」を使用した。以下の実施例についても同様である。

(実施例11) パウダーファンデーションの製造3

下記に示す成分組成に基づいてパウダーファンデーションを製造した。

パウダーファンデーションの組成

成 分	重量部
レシチン処理セリサイト	2 3
レシチン処理合成マイカ	5
レシチン処理硫酸バリウム	1 0
レシチン処理板状タルク	t o 1 0 0
レシチン処理した実施例 3 の複合体	1 2
球状ポリメチルシルセスキオキサン粉末	5
球状シリコーン弾性粉末	1 0
レシチン処理酸化チタン	1 2
レシチン処理ベンガラ	0 . 8
レシチン処理黄酸化鉄	2
レシチン処理黒酸化鉄	0 . 1
ジメチルポリシロキサン	3
流動パラフィン	5
ワセリン	5
ソルビタンセスキイソステアレート	1
パラベン	適量
d- δ -トコフェロール	適量
香料	適量

(製法)

上記の全成分をアルコール中でビーズ媒体ミルにて一定時間粉碎混合した後、生成したスラリーを中皿容器に充填した後、アルコールを吸引しながらプレスしパウダーファンデーション（製品）を製造した。

(実施例 1 2) パウダーファンデーションの製造 4 (水使用も可能な夏用粉末固型ファンデーションの製造)

下記に示す成分組成に基づいてパウダーファンデーションを製造した。

パウダーファンデーションの組成

成 分		重量部
粉 体	シリコーン処理セリサイト	1 3
	シリコーン処理合成マイカ	7
	シリコーン処理タルク	t o 1 0 0
	シリコーン処理板状硫酸バリウム	1 0
	シリコーン処理した実施例 3 の複合体	1 2
	球状ポリメチルメタクリレート樹脂粉末	5
	球状シリコーン弾性粉末	2
	球状ポリウレタン弾性粉末	3
	ステアリン酸アルミニウム処理微粒子酸化チタン	6
	シリカ被覆酸化亜鉛	4
	シリコーン処理酸化チタン	1 0
	シリコーン処理ベンガラ	1 . 2
	シリコーン処理黄酸化鉄	2 . 5
	シリコーン処理黒酸化鉄	0 . 9
	パラベン	適量
油 相	ジメチルポリシロキサン	4
	メチルフェニルポリシロキサン	3
	オクチルメトキシシナメート	3
	ポリエーテル変性シリコーン	2
	d - δ - トコフェロール	適量
	香料	適量

(製法)

上記粉体の全成分をヘンシェルミキサーにて混合した後、これに80℃に加温

した油相成分の全混合物をスプレーノズルを用いて添加し、10分間攪拌混合した。その後、40℃まで自然冷却して取り出した後粉碎機で2回粉碎しパウダーファンデーション（製品）を製造した。

（実施例13）パウダーファンデーションの製造5（水使用も可能な夏用粉末固型ファンデーションの製造）

下記に示す成分組成に基づいてパウダーファンデーションを製造した。

パウダーファンデーションの組成

成 分		重量部
粉 体	フッ素変性シリコーン処理合成マイカ	t o 1 0 0
	フッ素変性シリコーン処理タルク	1 3
	フッ素変性シリコーン処理板状硫酸バリウム	2 2
	フッ素変性シリコーン処理した実施例 3 の複合体	1 3
	球状ナイロン樹脂粉末	7
	球状シリコーン弾性粉末	2
	球状ポリウレタン弾性粉末	1
	フッ素変性シリコーン処理微粒子酸化チタン	1 0
	シリコーン処理酸化チタン	9
	シリコーン処理ベンガラ	1 . 4
	シリコーン処理黄酸化鉄	2 . 8
	シリコーン処理黒酸化鉄	1 . 0
	シリカ被覆酸化亜鉛	5
	パラベン	適量
油 相	ジメチルポリシロキサン	4
	メチルフェニルポリシロキサン	1
	オクチルメトキシシナメート	3
	ポリエーテル変性シリコーン	2
	ワセリン	1
	d- δ -トコフェロール	適量
	香料	適量

(製法)

上記粉体の全成分をヘンシェルミキサーにて混合した後、これに 80℃に加熱した油相成分の全混合物をスプレーノズルを用いて添加し、10分間攪拌混合し

た。その後、40℃まで自然冷却して取り出した後粉碎機で2回粉碎しパウダーファンデーション（製品）を製造した。

（実施例14）フェースパウダー（白粉）の製造

下記に示す成分組成に基づいてフェースパウダーを製造した。

フェースパウダーの組成

成 分		重量部
粉 体	カルシウムステアレート処理タルク	t o 1 0 0
	硫酸バリウム粉末	1 2
	多孔性シリカ粉末	1 0
	チッ化ホウ素粉末	3
	球状酸化チタン粒子	5
	実施例5の複合体	7
	シリカ被覆酸化亜鉛	3
	ベンガラ	0. 3
	黄酸化鉄	1. 2
	球状ポリメチルシルセスキオキサン粉末	8
油 相	ワセリン	1
	スクワラン	2
	グリセリントリオクタノエート	1
	ジメチルポリシロキサン	1
	パラベン	適量
	d- δ -トコフェロール	適量
	香料	適量

（製法）

上記粉体の全成分をヘンシェルミキサーにて混合した後、これに80℃に加温

した油相成分の全混合物をスプレーノズルを用いて添加し、5分間攪拌混合した。その後、40℃まで自然冷却して取り出した後、粉碎機で2回粉碎しフェースパウダー（製品）を製造した。

（実施例15）W/O乳化型ファンデーションの製造

下記に示す成分組成に基づいてW/O乳化型ファンデーションを製造した。

W/O乳化型ファンデーションの組成

成 分		重量部
粉 体	シリコーン処理硫酸バリウム	7
	シリコーン処理した実施例3の複合体	4
	シリコーン処理した実施例5の複合体	2
	シリコーン処理酸化チタン	1 2
	シリコーン処理ベンガラ	1. 2
	シリコーン処理黄酸化鉄	2. 6
	シリコーン処理黒酸化鉄	0. 6
	球状シリコーン弾性粉末	3
	球状ポリメチルメタクリレート粉末	4
	オクチルシラン処理微粒子酸化チタン	6
	シリカ被覆酸化亜鉛	3
	シクロメチコン	t o 1 0 0
油 相	ジメチルポリシロキサン	4
	スクワラン	3
	ポリエーテル変性シリコーン	2
	ソルビタンセスキイソステアレート	1
	塩化ジステアリルジメチルアンモニウム	適量
	d- δ -トコフェロール	適量
	香料	適量
水 相	ジプロピレングリコール	2
	イオン交換水	2 0
	パラベン	適量

(製法)

粉体と油相成分の混合物を85℃に加温し、混合物を溶解、分散させた後、こ

れに別途 85℃ に加温して用意した水相の全混合物を添加して 85℃ で乳化した。乳化が終了した時点で、室温まで冷却し容器に充填してリキッドファンデーション（製品）を製造した。

（実施例 16）ルースパウダー（粉末状白粉）の製造

下記に示す成分組成に基づいてルースパウダーを製造した。

ルースパウダーの組成

成 分		重量部
粉 体	タルク	t o 1 0 0
	合成マイカ	1 2
	板状硫酸バリウム	1 0
	実施例 3 の複合体	1 0
	球状多孔性シリカ粉末	4
	球状アルミナ粉末	4
	亜鉛華	3
	シリカ被覆酸化亜鉛	7
油 相	スクワラン	3
	パラベン	適量
	香料	適量

（製法）

上記粉体の全成分をヘンシェルミキサーにて混合した後、これに 80℃ に加温した油相成分の全混合物をスプレーノズルを用いて添加し、5 分間攪拌混合した。その後、室温まで自然冷却して取り出した後、粉碎機で 2 回粉碎しルースパウダー（製品）を製造した。

（実施例 17）W/O 乳化型ファンデーションの製造 2

下記に示す成分組成に基づいて W/O 乳化型ファンデーションを製造した。

W/O乳化型ファンデーションの組成

成 分		重量部
粉 体	フッ素変性シリコーン処理マイカ	5
	フッ素変性シリコーン処理セリサイト	7
	フッ素変性シリコーン処理酸化チタン	1 2
	フッ素変性シリコーン処理酸化鉄	4
	フッ素変性シリコーン処理した実施例 3 の複合体	6
	オクチルシラン処理微粒子酸化チタン	4
	球状ポリメチルメタクリレート粉末	5
	球状シリコーン弾性粉末	5
	シリカ被覆酸化亜鉛	4
	シクロメチコン	t o 1 0 0
油 相	ジメチルポリシロキサン	4
	スクワラン	3
	ポリエーテル変性シリコーン	1
	フッ素変性ポリエーテル変性シリコーン	3
	塩化ジステアリルジメチルアンモニウム	適量
	d- δ -トコフェロール	適量
	香料	適量
水 相	ジプロピレングリコール	2
	イオン交換水	2 0
	パラベン	適量

(製法)

粉体と油相成分の混合物を 85℃ に加温し、混合物を溶解、分散させた後、これに別途 85℃ に加温して用意した水相の全混合物を添加して 85℃ で乳化した。乳化が終了した時点で、室温まで冷却し容器に充填してリキッドファンデーション（製品）を製造した。

(実施例 18) 化粧料の評価

専門パネル 8 名により各剤型について、市販品及び比較例品を対照にして評価を行った。

各試料（実施例 1 及び実施例 6～8）について官能評価を次の通り行った。その結果、口紅については図 4（実施例 6 と市販品 A との比較）に、クリームファンデーションについては図 5（実施例 7 と市販品 B との比較）に、パウダーファンデーションについては図 6（実施例 8 と、市販品 C 及び比較例 2 との比較）、粉体の効果については図 7（実施例 1 と比較例 1 との比較）に、それぞれ示した。

評価基準として、「全く」、「僅かに」、「少し」、「割合」、「かなり」、「非常に」及び「極端に」の 7 段階評価で行った。

(クリームファンデーション、パウダーファンデーション用)

密着性	全く無い	0 点～極端に有る	6 点
透明感	全く無い	0 点～極端に有る	6 点
つや	全く無い	0 点～極端に有る	6 点
ジ、ワ、カの見え難さ	全く目立たない	0 点～極端に目立つ	6 点
シワ、毛穴の見え難さ	全く目立たない	0 点～極端に目立つ	6 点
仕上りの肌目の細かさ	全く粗い	0 点～極端に細かい	6 点
肌（化粧膜）のくすみ	全く無い	0 点～極端に有る	0 点
総合評価	全く悪い	0 点～極端に良い	6 点

(口紅用)

延展性	全く無い	0点～極端に有る	6点
滑らかさ	全く無い	0点～極端に有る	6点
密着性	全く無い	0点～極端に有る	6点
発色性	全く無い	0点～極端に有る	6点
色くすみ	全く無い	0点～極端に有る	6点
つや	全く無い	0点～極端に有る	6点
透明感	全く無い	0点～極端に有る	6点
総合評価	全く悪い	0点～極端に良い	6点

(複合粉体の評価用)

延展性	全く無い	0点～極端に有る	6点
滑らかさ	全く無い	0点～極端に有る	6点
付着性	全く無い	0点～極端に有る	6点
密着性	全く無い	0点～極端に有る	6点
透明感	全く無い	0点～極端に有る	6点
つや	全く無い	0点～極端に有る	6点
シワ、毛穴の見え難さ	全く目立たない	0点～極端に目立つ	6点
自然な色調	全く無い	0点～極端に有る	6点
肌のくすみ	全く無い	0点～極端に有る	6点

尚、実施例1についての評価はパフを使用して直接肌に塗布して、比較例1の製品と比較した。

図4には口紅について実施例6及び市販品Aとで比較した結果を示しているが本発明品は、色くすみが少なく、つやも高過ぎることなく市販品の何れの評価項目でも好ましい結果を示し、総合評価でも圧倒的に優れていた。図5にはクリームファンデーションについて実施例7と市販品Bとで比較した結果を示しているが、図4での評価結果と同様に本発明品が圧倒的に優れていることが分かる。図6にはパウダーファンデーションについて実施例8と、市販品Cや比較例2とで比較した結果を示しており、同様に本発明品が圧倒的に優れていることが分かる。

。尚、「つや」については有り過ぎ（比較例2）でも無くても（市販品C）好ましくない。本発明品のように適度のつやが好ましい。

以上の結果から、本発明品については市販品或いは比較例の製品に比べて何れの評価項目でも、また総合的にも著しく優れていることが分かる。

発明の効果

本発明の複合粉体により、化粧料に使用したときにシワ、毛穴の開き、肌の肌目の粗さを見え難くする肌の形態トラブル修正効果を有し、従来品に比較して化粧膜の経時変化によるくすみが無くはり感に極めて優れ、かつ透明感のある粉体を提供することができる。従って、本発明は特に化粧品分野において、工業上極めて有用である。

当該複合粉体表面に更に化粧料粉体用表面処理、好ましくはシリコーン、アミノ酸、レシチン及びフッ素化合物等で表面処理を施すことにより上記目的とする効果を一段と高めることが可能である。

請 求 の 範 囲

1. 化粧品に使用可能な粉体用基体と、該基体の表面の少なくとも一部上に固着する水酸化アルミニウムとを含有する複合粉体であって、当該基体と水酸化アルミニウムの全量に対して当該固着水酸化アルミニウムを少なくとも10重量%含有することを特徴とする複合粉体。
2. 粉体状の基体と、該基体の表面の少なくとも一部上に固着する水酸化アルミニウムとを含有する複合粉体であって、当該固着する水酸化アルミニウム中に球状及び網目状の形状物を含むことを特徴とする複合粉体。
3. 当該基体が化粧品用粉体である請求の範囲2記載の複合粉体。
4. 当該基体が複合材料である請求の範囲2記載の複合粉体。
5. 当該複合材料が、一の粉体粒子の表面上にこの粉体の材質とは異なる材質の被覆物を有する構成であり、当該一の粉体の屈折率が1.3～2であり、当該被覆物の屈折率が1.8～3である請求の範囲4記載の複合粉体。
6. 当該固着する水酸化アルミニウム中に含まれる球状の形状物が、球体、楕円球体、円盤状球体、紡錘状体及びこれら1種又は複数の、平面及び／又は高さ方向の結合体の何れかを含む請求の範囲2記載の複合粉体。
7. 当該固着する水酸化アルミニウム中に含まれる網目状の形状物が、二次元的及び／又は三次元的な形状物である請求の範囲2又は6記載の複合粉体。
8. 網目状の形状物が、当該球状の形状物の表面及び／又はその上に存在する請求の範囲2～7何れか記載の複合粉体。

9. 当該基体が単一材料である場合、その粒子の平均粒子径が $0.1 \sim 600 \mu\text{m}$ であり、当該基体が複合材料である場合、当該粒子の平均粒子径の範囲を有する材料を含む請求の範囲2～8何れか記載の複合粉体。

10. 当該被覆物の粒子の平均粒子径が $2 \sim 500 \text{nm}$ である請求の範囲5記載の複合粉体。

11. 当該網目状の形状物を構成する網目の一つの目の長さが長くて 300nm であり、網目状の形状物を構成する網ひも部分の当該ひもの太さが $5 \sim 30 \text{nm}$ である請求の範囲2記載の複合粉体。

12. 当該球体の直径が $0.1 \sim 10 \mu\text{m}$ であり、当該楕円球体の長径が $0.4 \sim 2 \mu\text{m}$ で短径が $0.2 \sim 1.5 \mu\text{m}$ である請求の範囲6記載の複合粉体。

13. 固着した水酸化アルミニウムと基体の全量に対して、水酸化アルミニウムが $2 \sim 75$ 重量%存在する請求の範囲2記載の複合粉体。

14. 当該基体が単一材料の場合、その屈折率が $1.3 \sim 2$ であり、当該基体が複合材料の場合、 $1.3 \sim 2$ の範囲の屈折率を有する材料と $1.8 \sim 3$ の範囲の屈折率を有する材料を含む請求の範囲2又は5記載の複合粉体。

15. 当該基体が単一材料の場合、当該材料の成分が粘土鉱物、硫酸バリウム、アルミナ、シリカ及びフッ化マグネシウムから選択される少なくとも1種であり、当該基体が複合材料である場合、これらの少なくとも1種を含む請求の範囲2記載の複合粉体。

16. 基体が色味成分を含有する請求の範囲2記載の複合粉体。

17. 当該色味成分が、酸化第二鉄、四三酸化鉄、水和酸化鉄、酸化コバルト

、磷酸コバルト、酸化クロム、水酸化クロム、群青、紺青及び赤色 2 2 6 号の何れかである請求の範囲16記載の複合粉体。

18. 当該基体が複合材料である場合、酸化チタン、塩基性炭酸鉛、オキシ塩化ビスマス、酸化カドミウム、酸化ジルコニウム、酸化錫、銀及び金の少なくとも 1 種を一つの材料として含む請求の範囲 2 記載の複合粉体。

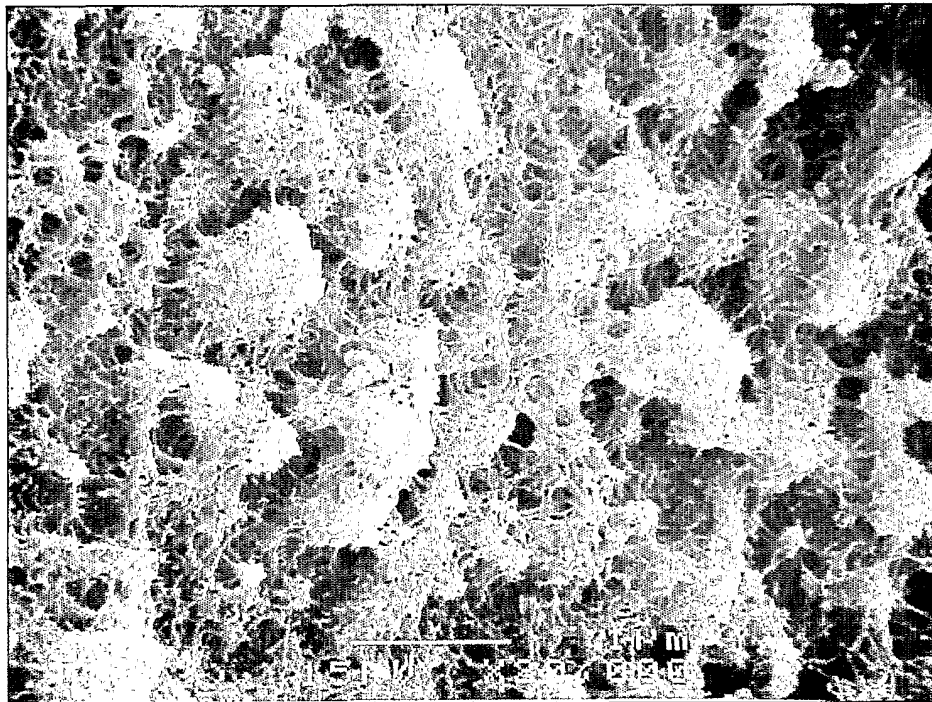
19. 当該被覆物を構成する材料の成分が、酸化チタン、塩基性炭酸鉛、オキシ塩化ビスマス、酸化カドミウム、酸化ジルコニウム、酸化錫、銀及び金の何れかを含む請求の範囲 5 記載の複合粉体。

20. 当該基体の形状が鱗片状及び板状の何れかを含む請求の範囲 2 記載の複合粉体。

21. 請求の範囲 2 ～20何れか記載の複合粉体を含有することを特徴とする化粧料。

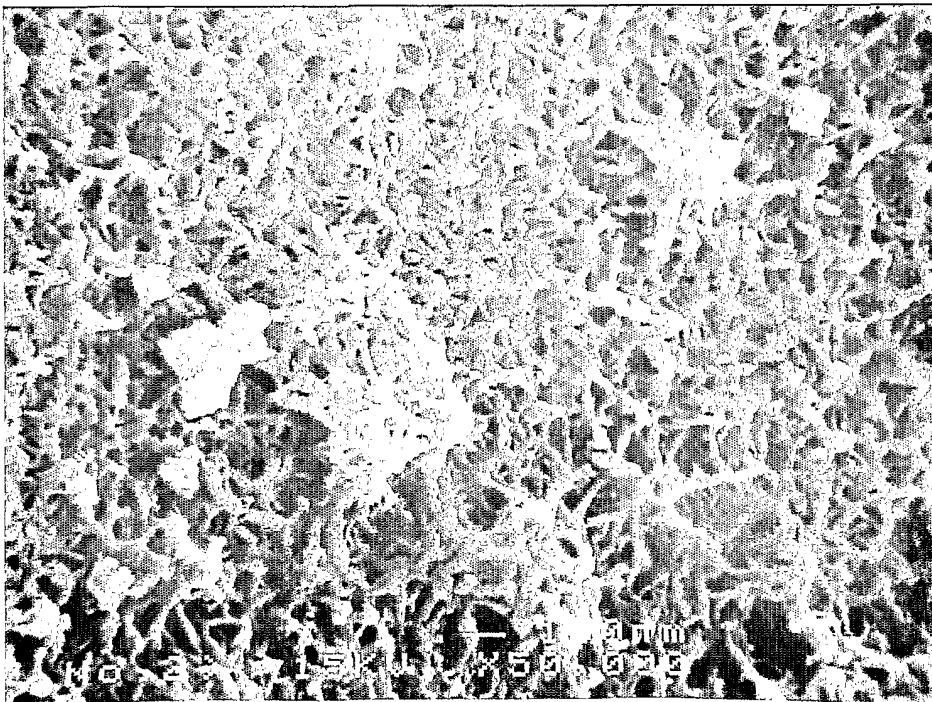
22. 当該複合粉体を 1 ～1 0 0 重量%含有する請求の範囲21記載の化粧料。

【図 1】



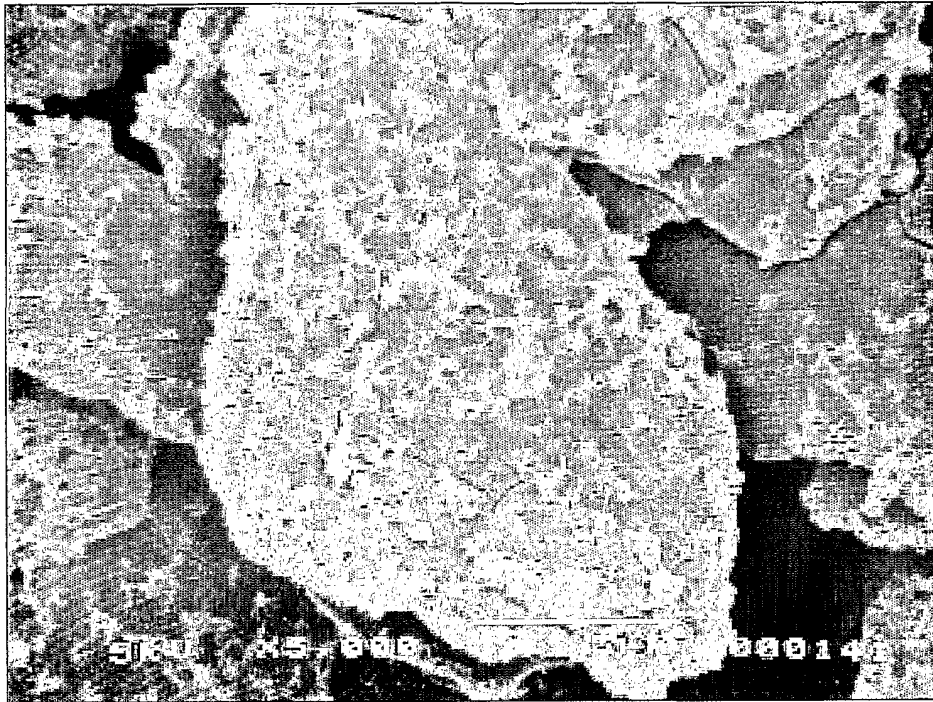
($\times 20,000$)

【図 2】



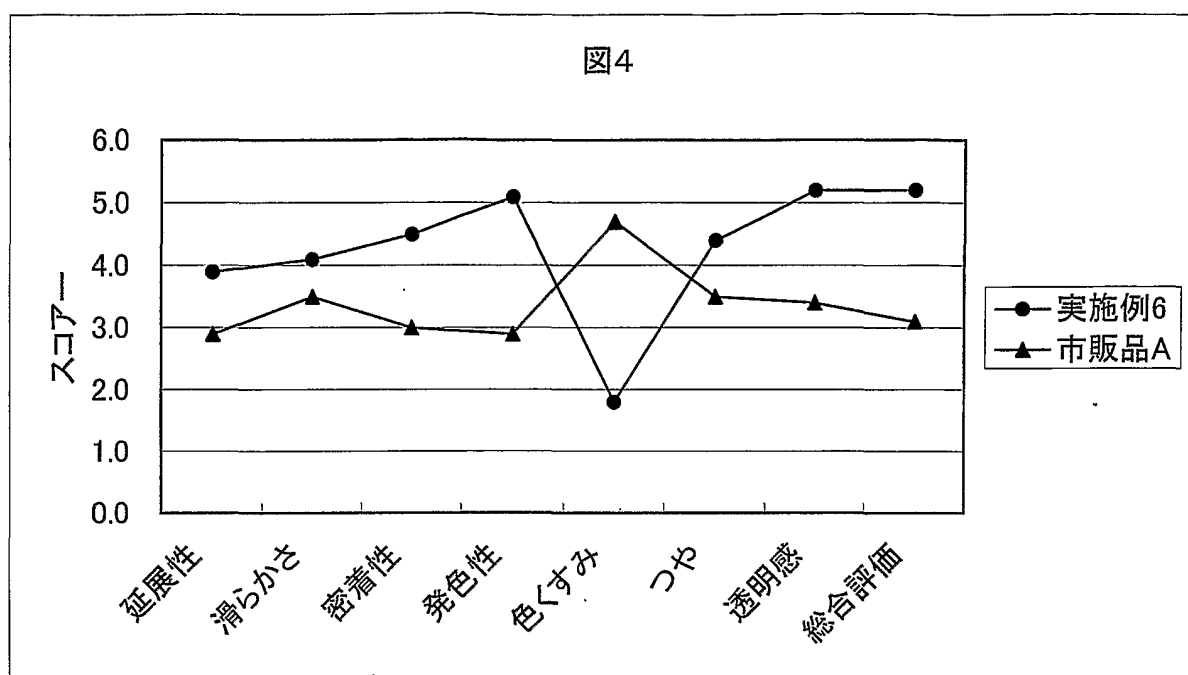
($\times 50,000$)

【図 3】

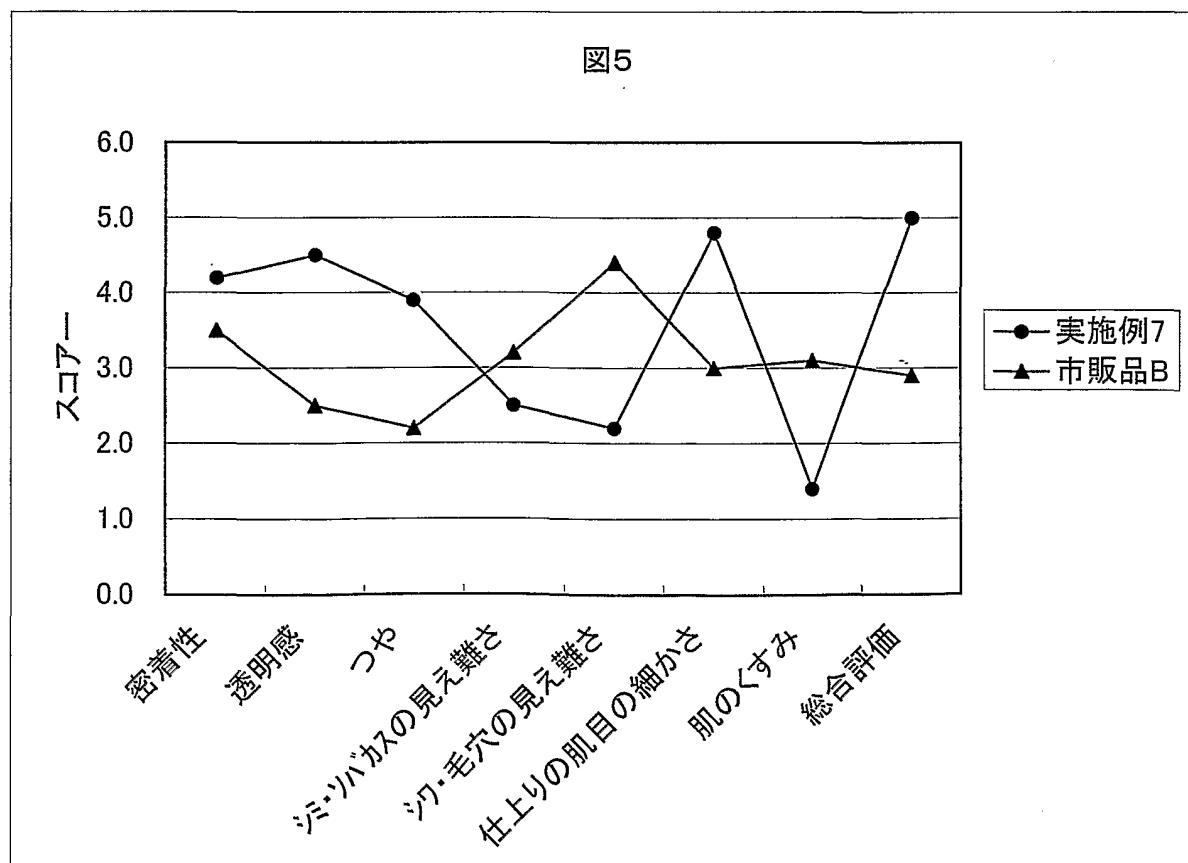


(×5,000)

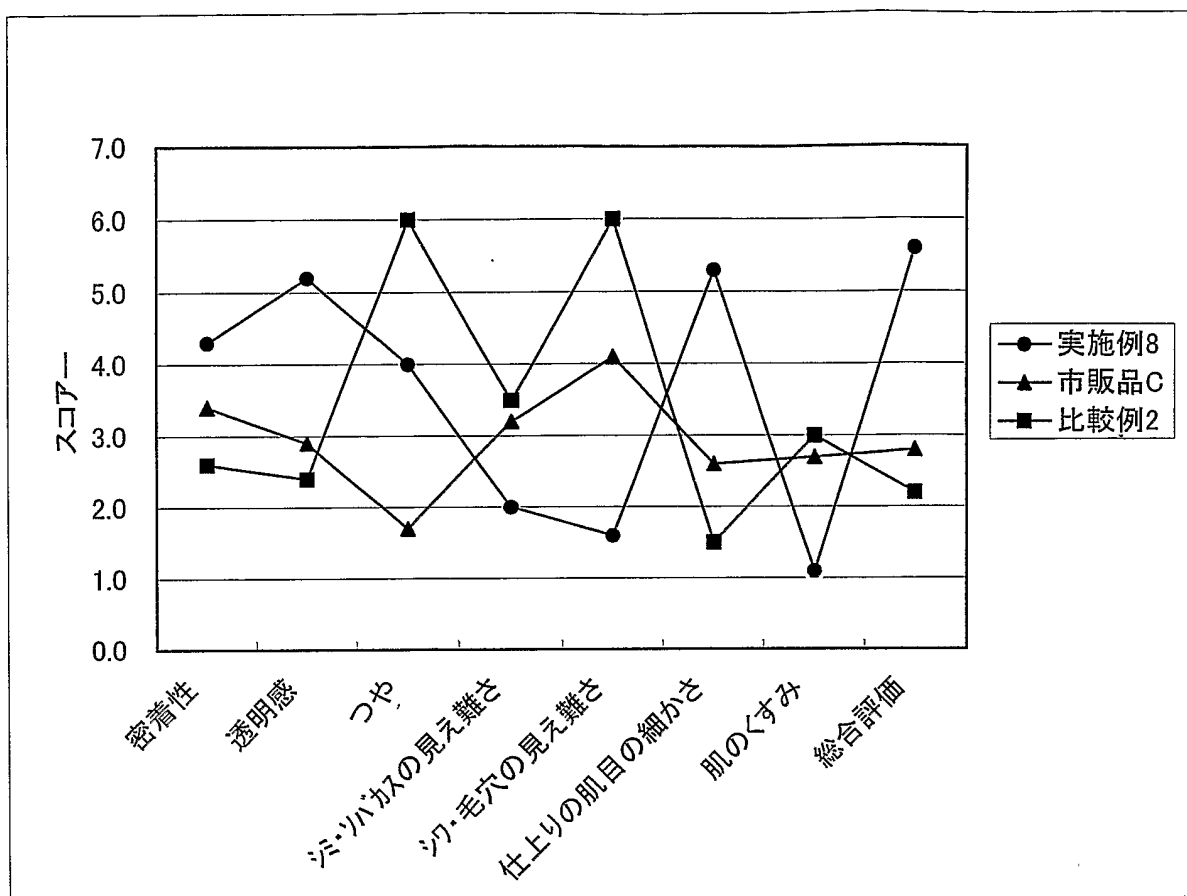
【図 4】



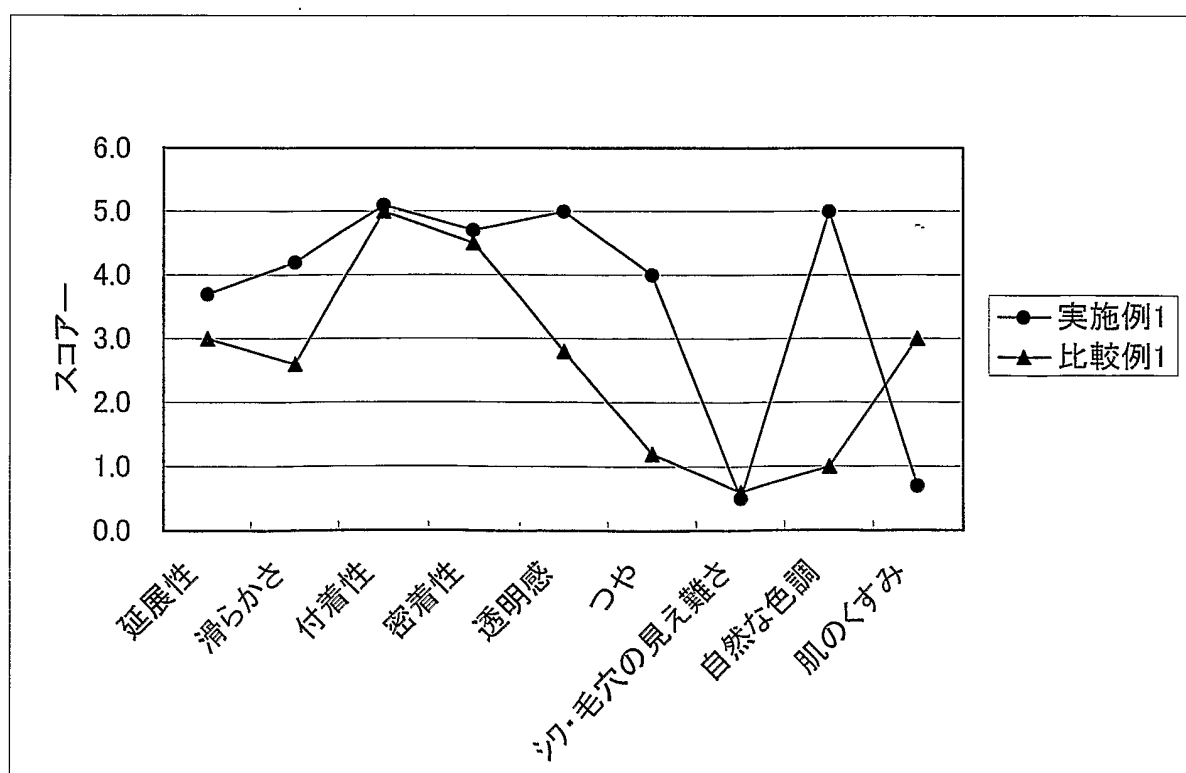
【図 5】



【図6】



【図7】



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP01/07047

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl.⁷ C09C3/06, A61K7/02

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)

Int.Cl.⁷ C09C3/06, A61K7/02

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)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 9-20609 A (Miyoshi Kasei K.K.), 21 January, 1997 (21.01.97), Claims; Par. No. [0019]; example (Family: none)	1 2-22
Y	JP 9-20621 A (Sumitomo Chemical Company, Limited), 21 January, 1997 (21.01.97), Par. No. [0010] (Family: none)	2-22
Y	US 5607504 A (BASF Aktiengesellschaft), 04 March, 1997 (04.03.97), Claims; Column 1, l.19; Column 2, l.43-67 & JP 8-209024 A (Claims; Par. Nos. [0002], [0022] to [0028]) & EP 708154 A2	4, 5, 8-10, 14-19, 21, 22
X A	JP 8-217635 A (Kao Corporation), 27 August, 1996 (27.08.96), Claims; Par. No. [0013] (Family: none)	1 2-22
X A	JP 4-330007 A (Daito Kasei Kogyo K.K.), 18 November, 1992 (18.11.92), Claims; Par. No. [0013] (Family: none)	1 2-22

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.
 ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"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
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"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
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"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
"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)	"&" document member of the same patent family
"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	

Date of the actual completion of the international search 02 November, 2001 (02.11.01)	Date of mailing of the international search report 13 November, 2001 (13.11.01)
---	--

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP01/07047

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	EP 982377 A1 (TODA KOGYO CORP.), 01 March, 2000 (01.03.00), Claim 5; Par. No. [0002] & JP 2000-136319 A (Claims; Par. No. [0002]) & US 6139618 A	1 2-22
E,X	JP 2001-302942 A (Miyoshi Kasei K.K.), 31 October, 2001 (31.10.01), Claims; Par. Nos. [0051] to [0053] (Family: none)	1-22

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C09C3/06, A61K7/02

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C09C3/06, A61K7/02

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	JP 9-20609 A(有限会社三好化成), 21. 1月. 1997 (21. 01. 97), 特許請求の範囲, 【0019】, 実施例 (ファミリーなし)	1 2-22
Y	JP 9-20621 A(住友化学工業株式会社), 21. 1月. 1997 (21. 01. 97), 【0010】 (ファミリーなし)	2-22
Y	US 5607504 A(BASF Aktiengesellschaft), 4. Mar. 1997 (04. 03. 97), Claims, Column 1, l. 19, Column 2, l. 43-67 & JP 8-209024 A(特許請求の範囲, 【0002】, 【0022】 - 【0028】) & EP 708154 A2	4, 5, 8-10, 14-19, 21, 22

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

- 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

- の日の後に公表された文献
「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

02. 11. 01

国際調査報告の発送日

13.11.01

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

松本 直子



4V

9546

電話番号 03-3581-1101 内線 3443

C (続き). 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X A	JP 8-217635 A(花王株式会社), 27. 8月. 1996(27. 08. 96), 特許請求の 範囲, 【0013】 (ファミリーなし)	1 2-22
X A	JP 4-330007 A(大東化成工業株式会社), 18. 11月. 1992(18. 11. 92), 特許請求の範囲, 【0013】 (ファミリーなし)	1 2-22
X A	EP 982377 A1(TODA KOGYO CORP.), 1. Mar. 2000(01. 03. 00), Claim 5, 【0002】 & JP 2000-136319 A(特許請求の範囲, 【0002】) & US 6139618 A	1 2-22
E, X	JP 2001-302942 A(三好化成株式会社), 31. 10月. 2001(31. 10. 01), 特許請求の範囲, 【0051】 - 【0053】 (ファミリーなし)	1-22