

(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2017-534639

(P2017-534639A)

(43) 公表日 平成29年11月24日 (2017.11.24)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
A 6 1 K 8/35 (2006.01)	A 6 1 K 8/35	4 C 0 8 3
A 6 1 K 8/84 (2006.01)	A 6 1 K 8/84	4 H 0 5 9
A 6 1 K 8/368 (2006.01)	A 6 1 K 8/368	
A 6 1 K 8/34 (2006.01)	A 6 1 K 8/34	
A 6 1 Q 13/00 (2006.01)	A 6 1 Q 13/00 1 0 2	
審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 30 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号	特願2017-524348 (P2017-524348)	(71) 出願人	501105842
(86) (22) 出願日	平成27年10月27日 (2015.10.27)		ジボダン エス エー
(85) 翻訳文提出日	平成29年7月10日 (2017.7.10)		スイス国 1 2 1 4 ヴェルニエ、 シュ
(86) 国際出願番号	PCT/EP2015/074812		マン ド ラ パルフュムリー 5 番
(87) 国際公開番号	W02016/071150	(74) 代理人	100102842
(87) 国際公開日	平成28年5月12日 (2016.5.12)		弁理士 葛和 清司
(31) 優先権主張番号	14290338.4	(72) 発明者	オーソン, エマヌエル
(32) 優先日	平成26年11月7日 (2014.11.7)		フランス国 エフ-7 5 0 1 1 パリ、リ
(33) 優先権主張国	欧州特許庁 (EP)		ュ サン モール 2 1
		(72) 発明者	ファデル, アッディ
			フランス国 エフ-7 5 0 1 6 パリ、リ
			ュ ド ラ ポンプ 8 2
		(72) 発明者	ハリソン, イアン, ミヒャエル
			フランス国 エフ-7 8 3 0 0 ポアシ
			、アベニュー モーリス ベルトー、6 9
			最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機化合物におけるまたは関連する改良

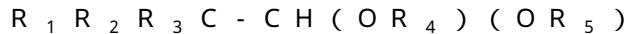
(57) 【要約】

シェルがポリウレタ樹脂を含有し、コアが、アルデヒド含有香料成分 (1 または複数) 、非芳香族環状香料成分、およびアルキルサリチラートおよび / または 2 , 2 , 2 - 三置換アセタールを含む香料を含有する、カプセル化香料組成物。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

シェルがポリウレア樹脂を含有し、コアが、アルデヒド含有香料成分（１または複数）、非芳香族環状香料成分、およびアルキルサリチラートおよび／または 2, 2, 2 - 三置換アセタールを含む香料を含有する、カプセル化香料組成物であって、前記アセタールが、次の一般式を有し：



式中、 R_1 は、少なくとも 4 個の炭素原子、より好ましくは少なくとも 5 個の炭素原子、および最も好ましくは少なくとも 6 個の炭素原子を、ただし 10 個を超えない炭素原子を有する、飽和または不飽和のアルキルまたは芳香族残基であり； R_2 および R_3 は独立して、少なくとも炭素原子を有する飽和または不飽和のアルキル残基から選択され；および、 R_4 および R_5 は独立して、メチル基および／またはエチル基のいずれかから選択される、前記カプセル化香料組成物。

10

【請求項 2】

アルデヒド香料成分（１または複数）が、全香料成分の 0.01 ~ 約 6 重量 % の量で存在する、請求項 1 に記載のカプセル化香料組成物。

【請求項 3】

カプセル化香料が、15,000 ppm 以下の水への溶解度を有する香料成分を少なくとも 60 重量 % 含む、請求項 1 または 2 に記載のカプセル化香料組成物。

【請求項 4】

カプセル化香料が、溶媒を含有しない、請求項 1 ~ 3 のいずれか一項に記載のカプセル化香料組成物。

20

【請求項 5】

ポリウレアカプセルが、約 20 ~ 250 ミクロンの体積平均直径を有する、請求項 1 ~ 4 のいずれか一項に記載のカプセル化香料組成物。

【請求項 6】

カプセルシェルの重量が、カプセルの総重量に基づき 5 ~ 40 % である、請求項 1 ~ 5 のいずれか一項に記載のカプセル化香料組成物。

【請求項 7】

水性分散媒体中に分散された 1 種以上のコア - シェルカプセルを含むスラリーの形態である、請求項 1 ~ 6 のいずれか一項に記載のカプセル化香料組成物であって、コアが香料を含み、シェルがポリウレア樹脂を含み、ここでカプセルが、25 の温度で 21 s^{-1} の剪断速度にて 3000 センチポアズまでの、より特に約 150 ~ 3000 センチポアズの粘度を有する安定な懸濁液の形態である、前記カプセル化香料組成物。

30

【請求項 8】

水性分散媒体が、ヒドロキシエチルセルロース分散助剤を含有する、請求項 7 に記載のカプセル化香料組成物。

【請求項 9】

ヒドロキシエチルセルロースが、スラリーの総重量に基づき 0.05 ~ 約 1.0 % の量で存在する、請求項 7 または 8 に記載のカプセル化香料組成物。

40

【請求項 10】

ヒドロキシエチルセルロースが、Natrosol（商標）ヒドロキシエチルセルロースである、請求項 9 に記載のカプセル化香料組成物。

【請求項 11】

請求項 1 ~ 10 のいずれか一項に規定のカプセル化香料組成物を含む、消費者製品。

【請求項 12】

リーブオンパーソナルケア製品である、請求項 11 に記載の消費者製品。

【請求項 13】

消臭製品の形態の、請求項 10 または 11 に記載のリーブオン製品。

【請求項 14】

50

発汗抑制剤の形態の、請求項 10 または 11 に記載のリーブオン製品。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、1 種以上のコア - シェルカプセルを含むカプセル化香料組成物であって、コアが、アルデヒド香料成分を含む香料を含有し、シェルが、ポリウレア樹脂を含有する（「ポリウレアカプセル」）、前記カプセル化香料組成物に関する。本発明はまた、前記カプセル化香料組成物を含有する、パーソナルケアおよび家庭用ケアの組成物にも関する。

【背景技術】

【0002】

10

カプセル化香料組成物は、当技術分野で知られている。これは、小さな固体粒子または液滴をシェル材料の薄膜でコーティングするプロセスによって、形成されてもよい。事実上あらゆる被覆材料が、少なくとも概念的には、候補のカプセルシェル材料であるが、実際には商業的および規制上の理由から、これまで市販品に使用された材料は比較的少ない。カプセルシェル材料の選択は、コスト、入手可能性、処理の容易さ、および固有のバリア特性を含む多くの要因によって決定される。所与の用途に最適なシェル材料を定義することは複雑になり得るが、これは、多くの相互作用するパラメータが、所与のカプセルシェル材料の成功を決定するからである。

【0003】

香料を含有するポリウレアカプセルが、当技術分野において記載されている。ポリウレアカプセルに基づくカプセル化香料組成物は、当技術分野で記載された条件下での、アミンとイソシアナートモノマーのポリ付加によって生産することができる。例えばWO2011/161229を参照。

20

【0004】

ところが、文献におけるポリウレアに基づくカプセル化香料組成物への言及にもかかわらず、香料をポリウレアカプセル中にカプセル化することに関連する実際上の困難がある。特に、実質的に全ての香料配合物は、アルデヒド官能基を含有する香料成分を使用しており、多くの香料成分は、ポリウレアカプセルの調製に使用されるアミンモノマーと反応し得る。最悪の場合には、この望ましくない反応は、カプセルを形成することの失敗をもたらし得る。しかしながらカプセルを調製することができるときにさえ、香料負荷量（perfume loading）が影響を受け得、形成されるカプセルはより凝集しやすくなり得る。香料負荷量が低いことはカプセルの製造にコストを加え、一方、凝集は審美的に望ましくなく、製造上の問題や貧弱なカプセル性能をももたらし得るので、できるだけ避けるべきである。

30

【0005】

WO2011/161265にはこの問題に対する解決策が提案されており、解決策は、アルデヒド香料成分を、アルデヒド官能基が保護されしがつてカプセル形成中にアミンモノマーと反応することができないアルデヒド前駆体の形態で提供することからなる。これは問題に対する興味深い解決策であるが、しかし、アルデヒド香料成分の前駆体の調製に付随する、追加のコストおよび複雑さが存在する。

40

【発明の概要】

【0006】

出願人は今や、本発明に至る研究の過程で、アルデヒド香料成分を、本明細書下に詳述するとおり、ある他の香料成分の種類と混合して用いれば、アルデヒド香料成分の改善されたカプセル化を達成することが可能であることを見出した。

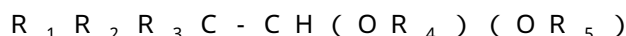
【0007】

したがって、本発明は、第 1 の側面において、アルデヒド香料成分を含む香料をカプセル化している 1 種以上のポリウレアカプセルを含み、ここで香料が、さらに加えて非芳香族環状香料成分を含む、カプセル化香料組成物を提供する。

【0008】

50

本発明の特定の態様において、カプセル化香料は、アルデヒド香料成分、非芳香族環状香料成分、およびアルキルサリチラートおよび/または2, 2, 2-三置換アセタールを含み、ここで前記アセタールは、次の一般式を有し：



式中、 R_1 は、少なくとも4個の炭素原子、より好ましくは少なくとも5個の炭素原子、および最も好ましくは少なくとも6個の炭素原子を、ただし10個を超えない炭素原子を有する、飽和または不飽和のアルキルまたは芳香族残基であり； R_2 および R_3 は独立して、少なくとも炭素原子を有する飽和または不飽和のアルキル残基から選択され；および R_4 および R_5 は独立して、メチル基および/またはエチル基のいずれかから選択される。

10

【0009】

本発明のさらに特定の態様において、アルデヒド含有香料成分に加えて、カプセル化香料は、非芳香族環状香料成分およびアルキルサリチラートを含む。

本発明のさらに特定の態様において、カプセル化香料は、アルデヒド含有香料成分に加えて、上記定義の、非芳香族環状香料成分およびアルキルサリチラートおよび2, 2, 2-三置換アセタールを含む。

【0010】

本明細書で使用する用語「環状香料成分」は、その化学構造内に閉じた環を形成する一連の原子を含有する、香料成分として有用な分子を指す。この環は、芳香族または脂肪族であってもよい。単環式でも多環式でもよく、ヘテロ原子を含んでいてもよい。この環は置換基を有していてもよく、または置換されていなくてもよい。

20

アルデヒド香料成分は、香料製造においてまたは風味剤として有用な、あらゆるアルデヒドであってよい。香料製造技術分野の当業者であれば、アルデヒド官能基を含有する成分の利用可能なパレットを有し、これらの成分は本発明において、アルデヒド香料成分を表すものとして企図される。アルデヒドは、脂肪族アルデヒド、脂環式アルデヒド、および非環状テルペンアルデヒド、環状テルペンアルデヒド、または芳香族アルデヒドであってよい。

【0011】

より特に、アルデヒドは、限定されないが、以下のアルデヒドの群を含み、ここでCAS番号が括弧内に示されている。本明細書中では、芳香成分に、慣用名または非体系的な名称が用いられるが、当業者は、これらの名称およびCAS番号が、より正式な命名体系、例えばIUPACなどに基づく同義語も含むことを意図していることを理解する：

30

【0012】

デカナール(112-31-2)、2-メチルデカナール(アルデヒドC-11)(19009-56-4)、10-ウンデセン-1-オール(112-45-8)、ウンデカナール(112-44-7)、ドデカナール(112-54-9)、2-メチルウンデカナール(110-41-8)、ヘプタナール(111-71-7)、オクタナール(124-13-0)、グリーンヘキサナール(5435-64-3)、ノナナール(124-19-6)、ウンデカナール混合物(1337-83-3)、(Z)-4-デセナール(21662-09-9)、(E)-4-デセナール(65405-70-1)、9-デセナール(39770-05-3)、イソバレアルデヒド(590-86-3)、アミルシンナムアルデヒド(122-40-7)、メチルシンナムアルデヒド(101-39-3)、メチルフェニルヘキサナール(21834-92-4)、フェニルプロピオンアルデヒド(104-53-0)、パラトリルアルデヒド(104-87-0)、パラアニスアルデヒド(123-11-5)、ベンズアルデヒド(100-52-7)、CYCLAL C(68039-49-6)、TRICYCLAL(68039-49-6)、CYCLOMYRAL(68738-94-3)、イソシクロシトラール(1335-66-6)、MACEAL(68259-31-4)、サフラナール(116-26-7)、ヘリオトロピン(120-57-0)、ヘキシルシンナムアルデヒド(101-86-0)、BOURGEONAL(18127-01-0)、シンナムアルデヒド(104-55-2)、クミンアルデヒド(122-03-2)、シクラメンアルデヒド(103-95-7)、CYCLOHEXAL(31906-04-4)、フェンアルデヒド(5462-06-6)、FLORALOZONE(67634-15-5)、FLORHYDRAL(125109-85-5)、HYDRATROPIC ALDEHYDE(93-53-8)、リリアール(80-54-6)、メフラナールMEFRANAL(55066-49-4)、MYRALDENE(37677-14-8)、SILVIAL(6658-48-6)

40

50

、TRIFERNAL (16251-77-7)、2 - トリデセナル (7774-82-5)、DUPICAL (30168-23-1)、SCENTENAL (86803-90-9)、PRECYCLEMONE B (52475-86-2)、VERNALDEHYDE (66327-54-6)、ヘキサナル (66-25-1)、ADOXAL (141-13-9)、CALYSPONE (929253-05-4)、CETONAL (65405-84-7)、シトラール (5392-40-5)、シトロネラル (106-23-0)、シトロネリルオキシアセトアルデヒド (7492-67-3)、ジヒドロファルネサル (32480-08-3)、ヒドロキシシトロネラル (107-75-5)、メロナル (106-72-9)、メトキシメロナル (62439-41-2)、ノナジエナル (557-48-2)、ONCIDAL (54082-68-7)、ピノアセトアルデヒド (33885-51-7)、テトラヒドロシトラール (5988-91-0)、TROPIONAL (1205-17-0)、エチルパニリン (121-32-4)、パニリン (121-33-5)。

【0013】

10

香料成分をカテゴリーに割り当てる場合、アルデヒド官能基と環の両方を含む香料成分は、本発明の目的のためのアルデヒド香料成分であり、環状香料成分ではないとみなされる。

凝集現象の程度は多くの要因に依存し、これには、カプセルシェルを形成するのに使用されるアミンモノマーに対するアルデヒド香料成分の反応性、ならびにアルデヒド香料成分の水性媒体への溶解性を含む。カプセルシェル形成プロセスが界面プロセスであり、使用されるアミンが実質的に水相に含まれるので、アルデヒド香料成分が水相に分配される程度は、アミンに対するその反応性に影響する。

【0014】

20

本発明の特定の態様によると、カプセル化香料組成物の調製に用いられる香料組成物は、約6重量%までのアルデヒド香料成分を含有する。より特には、香料組成物は、アルデヒド香料成分を、0.01重量%~6重量%、より特には、さらに0.01~5.5重量%、さらにより特に0.01~5重量%、さらにより特に0.01~4.5重量%、さらにより特に0.01~4.0重量%、さらにより特に0.01~3.5重量%、さらにより特に0.01~3重量%、さらにより特に0.01~2重量%、さらにより特に0.01~1重量%の範囲内で含む。

【0015】

30

非芳香族環状香料成分としては、限定されないが、環状エステル、ケトン、ケタールおよびアルコールが含まれる。本発明において特に有用な非芳香族環状香料成分は、環状エステルである。有用な環状エステルの例としては、以下が含まれる：

アセチル化チョウジ油テルペン (68425-19-4)、AGRUMEX (88-41-5)、シクロヘキシルプロピオン酸アリル (2705-87-5)、AMBER CORE (139504-68-0)、アンブレイン (8016-26-0)、AMBREINOL (73138-66-6)、アンブレトリド (28645-51-4)、アンブリノール (41199-19-3)、AMBROFIX (6790-58-5)、APHERMATE (25225-08-5)、AZARBRE (68845-36-3)、ピシクロノナラクトン (4430-31-3)、BOISIRIS (68845-00-1)、ボルネオール (507-70-0)、ボルニルアセタートリキッド (125-12-2)、パラブチルシクロヘキサノール (98-52-2)、パラブチルシクロヘキシルアセタート (32210-23-4)、CAMONAL (166301-22-0)、合成カンファー (76-22-2)、LAEVO CARVONE (6485-40-1)、CASHMERAN (33704-61-9)、セドレン (11028-42-5)、セドレノール (28231-03-0)、セドロール (77-53-2)、ウッディエポキシド (71735-79-0)、セドリルアセタート結晶 (77-54-3)、セドリルメチルエーテル (19870-74-7)、CELERY KETONE (3720-16-9)、CETALOX (3738-00-9)、シベトン (542-46-1)、CONIFERAN (67874-72-0)、CORANOL (83926-73-2)、COSMONE (259854-70-1)、CYCLOGALBANATE (68901-15-5)、シクロヘキシルエチルアセタート (21722-83-8)、CYPRISSATE (23250-42-2)、ダマセノン (23696-85-7)、アルファダマスコン (24720-09-0)、ベータダマスコン (23726-92-3)、デルタダマスコン (57378-68-4)、デルタデカラクトン (705-86-2)、ガンマデカラクトン (706-14-9)、

40

【0016】

DECATONE (34131-98-1)、ジヒドロアンブレート (37172-02-4)、ベータジヒドロイオノン (17283-81-7)、ジヒドロジャスモン (1128-08-1)、デルタドデカラクトン (713-95-1)、ドデカラクトンガンマ (2305-05-7)、DUPICAL (30168-23-1)、エチルサフラネー

50

ト (35044-59-8)、エチレンブラシレート (105-95-3)、ユーカリプトール (470-82-6)、アルファフェンコン (7787-20-4)、酢酸フェンチル (13851-11-1)、フェンチルアルコール (1632-73-1)、FLOROCYCLEN (68912-13-0)、FLOROSA (63500-71-0)、FLORYMOS S (681433-04-5)、FOLENOX (26619-69-2)、FOLROSIA (4621-04-9)、FRESKOMENTHE (14765-30-1)、FRUITATE (80623-07-0)、ガルパノンピュア (56973-85-4)、GARDOCYCLEN (67634-20-2)、GEORGYWOOD (185429-83-8)、GIVESCONE (57934-97-1)、GLYCOLIERRAL (68901-32-6)、GRISALVA (68611-23-4)、GYRANE (24237-00-1)、HABANOLIDE (111879-80-2)、HEDIONE (24851-98-7)、ヘプタラクトンガンマ (105-21-5)、HERBANATE (116126-82-0)、HERBAVERT (67583-77-1)、ヘルボキサン (54546-26-8)、ペータイオノン (8013-90-9)、IRISANTHEME (1335-46-2)、ALPHA IRISONE (8013-90-9)、アルファイロン (79-69-6)、イロン F (54992-91-5)、イソ E スーパー (54464-57-2)、イソジャスモン B 1 1 (95-41-0)、ISOLONGIFOLANONE (23787-90-8)、イソメントン D L (491-07-6)、イソプレゴール (89-79-2)、イソラルデイン 40、70 および 90 (1335-46-2)、JASMACYCLEN (5413-60-5)、JASMATONE (13074-65-2)、JASMOLACTONE (32764-98-0)、シスジャスモン (488-10-8)、JASMONYL (18871-14-2)、KARANAL (117933-89-8)、KEPHALIS (36306-87-3)、LAITONE (4625-90-5)、LIGANTRAAL (68738-99-8)、MAYOL (13828-37-0)、メントン (89-80-5)、METAMBRATE (72183-75-6)、メチルセドリルケトン (32388-55-9)、ガンマメチルデカラクトン (7011-83-8)、メチルジヒドロイソジャスモナー ト (37172-53-5)、

10

20

【 0 0 1 7 】

メチルエピジャスモナー ト (39924-52-2)、METHYL TUBERATE (33673-62-0)、MUSCENONE (82356-51-2)、ムスコン (541-91-3)、エチレンドデカノアート (54982-83-1)、ムスクラクトン (3391-83-1)、MYRALDYL ACETATE (72403-67-9)、NECTARYL (95962-14-4)、NIMBEROL (70788-30-6)、NIRVANOLIDE (329925-33-9)、ノートカトン (4674-50-4)、NOPYL ACETATE (128-51-8)、デルタオクタラクトン (698-76-0)、ガンマオクタラク トン (104-50-7)、OKOUMAL (131812-67-4)、OPALAL (62406-73-9)、ORIVONE (16587-71-6)、OXYOCTALINE FORMATE (65405-72-3)、PIVACYCLEN (68039-44-1)、PLICATONE (41724-19-0)、POIRENATE (2511-00-4)、クイントン (4819-67-4)、RHUBOFIX (41816-03-9)、RHUBOFLO (93939-86-7)、ROSE OXIDE CO (16409-43-1)、ROSE OXIDE LAEVO (3033-23-6)、ROSSITOL (215231-33-7)、SAFRALEINE (54440-17-4)、SANDELA (66068-84-6)、SPIRAMBRENE (121251-67-0)、スピロガルパノン (224031-70-3)、SUPERFIX (3910-35-8)、THIBETOLIDE (106-02-5)、TIMBEROL (70788-30-6)、TRIMOFIX O (144020-22-4)、デルタウンデカラクトン (710-04-3)、ガンマバレロラクトン (108-29-2)、VELOUTONE (65443-14-3)、VELVIONE (37609-25-9)、VERDALIA (27135-90-6)、VERDOL (13491-79-7)、VERTOFIX COEUR (32388-55-9)、VETIKOL ACETATE (68083-58-9)、酢酸ベチベリル (68917-34-0)、VETYNAL (57082-24-3)。

30

【 0 0 1 8 】

有用なアルキルサリチラートとしては、以下が含まれる：アミルサリチラート (2050-08-0)、エチルサリチラート (118-61-6)、ヘキセニル - 3 - シスサリチラート (65405-77-8)、ヘキシルサリチラート (6259-76-3)、イソブチルサリチラート (87-19-4)、イソブチルサリチラート (87-19-4)、KARMAFLOR (873888-84-7)、メチルサリチラート (119-36-8)。

40

有用な 2, 2, 2 - 置換アセタールとしては、METHYL PAMPLEMOUSSE (67674-46-8)、AMAROCIT B (72727-59-4)、NEROLIACETAL (99509-41-8) が含まれる。

【 0 0 1 9 】

非芳香族環状香料成分およびアルキルサリチラートは、互いに独立して、カプセル化香料組成物の調製に用いられる香料の総重量に基づき、約 10 重量%以上、より特に 15%以上、より特に 20%以上、より特に 25%以上、さらにより特に 30%以上、より特に 33%以上、例えば 20 ~ 99.99%、または 25 ~ 99.99%、または 25 ~ 99.99%、または 30 ~ 99.99%、または 33 ~ 99.99% の量で存在することが

50

できる。

【0020】

本発明の特定の態様において、アルデヒド香料成分は、約1重量%～6重量%、より特に2重量%～5.5重量%、さらにより特に3重量%～5重量%の量で存在し；および、非芳香族環状香料成分および/またはアルキルサリチラート香料成分は、独立して、30重量%を超える、さらにより特に33重量%を超える量で、存在する。

本発明の別の特定の態様において、アルデヒド香料成分は、約1重量%～6重量%、より特に2重量%～5.5重量%、さらにより特に3重量%～5重量%の量で存在し；非芳香族環状香料成分および/またはアルキルサリチラート香料成分は、独立して、10重量%～33重量%の量で存在する。

10

【0021】

本発明のさらに別の特定の態様において、アルデヒド香料成分は、約1重量%～6重量%、より特に2重量%～5.5重量%、さらにより特に3重量%～5重量%の量で存在し；非芳香族環状香料成分およびアルキルサリチラート香料成分は独立して、10重量%～33重量%の量で存在し、2,2,2-置換アセタールは25重量%を超える、より特に30重量%を超える、さらにより特に33重量%を超える量で存在する。

【0022】

本明細書上記において言及した香料成分に加えて、カプセル化香料組成物は、香料製造用途において有用なありとあらゆる様式のさらなる香料成分をカプセル化することに用いることができる。一般論では、さらなる香料成分は、アルコール、ケトン、エステル、エーテル、アセタート、テルペン炭化水素、含窒素または亜硫酸複素環化合物、および天然または合成起源のエッセンシャルオイルなどの、多様な化学種に属する。これらのさらなる香料成分の多くは、いずれの場合にも、S. Arctander, Perfume and Flavor Chemicals, 1969, Montclair, New Jersey, USAの書籍もしくはそのより最近のバージョン、または同様の性質の他の研究などの参考文献、ならびに香料製造分野の豊富な特許文献に記載されている。これらの成分はまた、種々のタイプの香り付け化合物を制御された様式で放出することが知られている化合物でもあり得ることが、理解される。

20

【0023】

当技術分野で一般的に知られているように、カプセル形成中の香料保持、ならびにカプセルが形成された後の漏れに対する安定性は、比較的高いC logPを有する多量の香料成分の使用によって促進される。特に、少なくとも約50%、より特に約60%より多く、さらにより特に約80%より多くの成分は、約2.5以上、より特に3.3以上、さらにより特に4.0以上のC logP値を有するべきである。かかる香料成分の使用は、特定の時間、温度および濃度の条件下で、カプセルシェルを通して製品基剤への香料の拡散を低減するのに役立つと考えられている。

30

香料成分のC logPの値は、Daylight Chemical Information Systems, Inc., Daylight CIS, Irvine, Californiaから入手可能なPomona92データベースを含む、多くのデータベースで報告されている。

【0024】

香料成分に加えて、溶媒を、本発明のカプセル化香料組成物において用いてもよい。溶媒材料は、香料成分に混和性であり、使用される量において匂いがほとんどないかまたは全くない、疎水性材料である。一般に使用される溶媒は、高いC logP値、例えば6より大きい、さらには10より大きいC logP値を有する。溶媒としては、トリグリセリド油、モノおよびジグリセリド、鉱油、シリコン油、ジエチルフタレート、ポリアルファオレフィン、ひまし油およびミリスチン酸イソプロピルが含まれる。

40

US2011071064は、パーソナルケア用途における使用のためのポリウレアカプセルに関する。これは特に、カプセルの安定性および放出プロフィールを操作するための、シェル特性を操作する手段に関する。その中には、溶媒をコア中において、香料組成物の重量に基づいて10重量%より大きい、より特に30重量%より大きい、さらにより特に70重量%より大きい量で用いるべきであることが述べられている。

50

【 0 0 2 5 】

しかしながら、本出願人は、驚くべきことに、本発明のポリウレアカプセルのコア材料中に実質的に溶媒材料を用いないことが可能であることを見出した。実際に、本出願人は、カプセル化されたコアが完全に香料成分で構成されて溶媒を含まない、カプセル化香料組成物を調製することが可能であることを見出した。溶媒非含有のカプセル化香料組成物は、特に、コア材料を構成する香料成分が限られた水溶性しか有しないように形成される場合に、用いられ得る。特に、コア材料は、水への溶解度が15,000ppm以下、より特に5000ppm以下、さらにより特に3000ppm以下である、香料成分を大部分として形成するべきである。より特に、少なくとも60%、より特に少なくとも70%、さらにより特に少なくとも80%の香料成分の、水への溶解度が、15,000ppm以下、より特に5000ppm以下、さらにより特に3000ppm以下であるべきである。

10

【 0 0 2 6 】

カプセルコアにおいて溶媒の使用を避けることは、コストおよび環境の面で一般的に有利である。しかしより特に、リーブオン製品との関係では、高い香料負荷量を有するカプセルの調製が、溶媒の使用を避けることによって可能になるならば、より低いレベルのカプセルを含むカプセル化香料組成物を、調製することができる。用いるカプセルの数が少ないほど、前記組成物で処置された部位、例えば対象の皮膚に、または対象の皮膚と密接に接触する布地もしくは衣類に、目に見える残留物が付着する可能性は低い。

20

【 0 0 2 7 】

本発明によるカプセル化香料組成物は、水性分散媒体中に分散されたポリウレアカプセルを含むスラリーの形態で調製され、これはアミンとイソシアナートの界面重付加によってカプセルを生産するための当技術分野で知られているあらゆる方法により、調製することができる。

代表的な調製方法は、WO 2011/161229およびWO 2011/160733に開示されている。WO 2011/161229またはWO 2011/160733によれば、ポリウレアマイクロカプセルは、保護コロイドとしてのポリビニルピロリドン(PVP)の存在下で調製される。

【 0 0 2 8 】

WO 2012/107323には、ポリイソシアナートとグアナゾールおよびアミノ酸との反応生成物であって、アニオン性安定剤またはアニオン性ポリビニルアルコールなどの界面活性剤、例えばKurarayにより販売されているMowiol(登録商標)KL-506などの存在下における、前記反応生成物を含むポリウレアシェルを有するポリウレアマイクロカプセルが、開示されている。

30

EP-B-0 537 467には、ポリビニルアルコールなどの安定剤、例えば部分的または完全に鹸化されたポリビニルアセタートの存在下での、ポリエチレンオキシド基を含有するイソシアナートから調製されたマイクロカプセルが記載されている。

【 0 0 2 9 】

WO 2007/096592には、油相を、ポリビニルアルコールまたはそのカルボキシル化およびスルホン化誘導体などの界面活性剤系によって一般に安定化された連続水性相中に乳化させる、マイクロカプセル化法が記載されている。

40

典型的な調製方法において、カプセル化香料組成物は、以下に記載するような、界面活性剤および/または保護コロイドを含有する水相を調製する手順に従って、調製することができる。水相を、僅か数秒から数分までの時間、激しく攪拌する。次いで、疎水相を水相に添加することができる。疎水相は、カプセル化される香料およびイソシアナートを含有する。疎水相はまた、好適な溶媒を含んでもよいが、本発明の好ましい側面においては、溶媒は使用されない。激しく攪拌した後、疎水相が水性連続相中に小さな液滴として分散されたエマルジョンが得られる。攪拌の速度は、水相中の疎水相の液滴の大きさに影響を及ぼすように、調整することができる。

【 0 0 3 0 】

次いで、アミンを含有する水溶液を添加して、重付加反応を開始させる。導入されるア

50

ミンの量は、遊離イソシアナート基を変換するのに必要な化学量論的量に対して、大抵は過剰である。

重付加反応は、一般に約 0 ~ 100 の範囲の温度で、数分から数時間の範囲の時間、進行する。

【0031】

界面重付加によるカプセルの製造条件は当技術分野において周知であり、当業者の範囲内にあるこれらの条件の更なる詳細化は、ここでは必要とされない。カプセルの調製に関する具体的な記載は、以下の実施例で提供される。

カプセルの形成に有用なアミンとしては、イソシアナートと反応してポリウレアを形成することができる、1以上の第1級または第2級アミン基を含有する化合物が含まれる。アミンが1個のみのアミノ基を含む場合、化合物は、重合反応によってネットワークを形成する1以上の追加の官能基を含む。

【0032】

好適なアミンの例としては、1,2-エチレンジアミン、1,3-ジアミノプロパン、1,4-ジアミノブタン、1,6-ジアミノヘキサン、ヒドラジン、1,4-ジアミノシクロヘキサンおよび1,3-ジアミノ-1-メチルプロパン、ジエチレントリアミン、トリエチレントトラアミン、およびビス(2-メチルアミノエチル)メチルアミンが含まれる。

他の有用なアミンとしては、ポリエチレンアミン(poly ethyleneamine) ($\text{CH}_2\text{CH}_2\text{NH}$)_n、例えばエチレンアミン、ジエチレンアミン、エチレンジアミン、トリエチレントトラミン、テトラエチレンペンタミンなど；BASFにより販売されるポリビニルアミン(CH_2CHNH_2)_n (Lupamineの異なるグレード)；BASFによりLupasol(商標)グレードとして販売されるポリエチレンイミン($\text{CH}_2\text{CH}_2\text{N}$)_x - ($\text{CH}_2\text{CH}_2\text{NH}$)_y - ($\text{CH}_2\text{CH}_2\text{NH}_2$)_z；ポリエーテルアミン(HuntsmanからのJeffamine)；グアニジン、グアニジン塩、メラミン、ヒドラジンおよび尿素が含まれる。

【0033】

特に好ましいアミンはポリエチレンイミン(PEI)であり、より特には、BASFにより供給されるLupasol(商標)範囲からのPEI、さらにより特にはLupasol(商標)PR8515である。

ポリウレアマイクロカプセルの形成に有用なイソシアナートとしては、2-および3官能性イソシアナート、例えば1,6-ジイソシアナートヘキサン、1,5-ジイソシアナート-2-メチルペンタン、1,5-ジイソシアナート-3-メチルペンタン、1,4-ジイソシアナート-2,3-ジメチルブタン、2-エチル-1,4-ジイソシアナートブタン、1,5-ジイソシアナートペンタン、1,4-ジイソシアナートブタン、1,3-ジイソシアナートプロパン、1,10-ジイソシアナートデカン、1,2-ジイソシアナートシクロブタン、ビス(4-イソシアナートシクロヘキシル)メタン、または3,3,5-トリメチル-5-イソシアナートメチル-1-イソシアナートシクロヘキサンが含まれる。

【0034】

他の有用なイソシアナートとしては、イソシアナートモノマーに基づくオリゴマー、例えば1,6-ジイソシアナートヘキサンのホモポリマーも含まれる。これらのモノマーおよびオリゴマーは全て、Bayerにより商品名Desmodurとして販売されている。改質されたイソシアナート、特に水分散性イソシアナートも含まれ、例えば、ヘキサメチレンジイソシアナート(Hexamethylene Diisocyanate)に基づく親水性脂肪族ポリイソシアナート(BA YHYDUR(商標)の名称で販売)などである。

【0035】

使用してもよい保護コロイドまたは乳化剤の種類としては、マレイン酸ビニルコポリマー、例えばビニルエーテルと無水マレイン酸またはマレイン酸のコポリマー、リグノスルホン酸ナトリウム、無水マレイン酸/スチレンコポリマー、エチレン/無水マレイン酸コポリマー、およびプロピレンオキシド、エチレンジアミンおよびエチレンオキシドのコポリマー、ポリビニルピロリドン、ポリビニルアルコール、ポリオキシエチレン化ソルビト

10

20

30

40

50

ールおよびドデシル硫酸ナトリウムの脂肪酸エステルが含まれる。ポリビニルアルコールが特に好ましい。特に好ましいポリビニルアルコールは、Nichigoから入手可能なGポリマータイプである。

特定の保護コロイドとしては、85～99.9%の範囲の加水分解度を有するポリビニルアルコールコポリマーが含まれる。本明細書で使用する場合、用語「ポリビニルアルコールコポリマー」は、ビニルアルコール/ビニルアセタートとモノマーとのポリマーを意味する。

【0036】

ポリビニルアルコールは、ポリビニルアセタートの加水分解（脱アセチル化）により生産され、これによりポリビニルアセタートのエステル基がヒドロキシル基へ加水分解されて、ポリビニルアルコールを形成することが知られている。

加水分解度は、加水分解によって変換される基の割合を反映する。したがって、加水分解度によって認定される「ポリビニルアルコール」という用語は、エステル基とヒドロキシル基の両方を含有するビニルポリマーを意味する。

本発明の特定の態様において、加水分解度の範囲が85～99.9%、より特に85～95%であるポリビニルアルコールのコポリマーを、保護コロイドとして使用することができる。

【0037】

加水分解度は、当技術分野で周知の技術、例えばDIN 53401に従って決定することができる。

ポリビニルアルコールコポリマーは、付加モノマーを、すなわち、第1のステップでビニルエステルと重合され、続いて第2のステップでエステル基を加水分解してポリビニルアルコールのコポリマーを形成するモノマーを、含有する。コポリマーは、ビニルアセタートとモノマーのラジカル重合により、それ自体知られている方法で形成することができる。

【0038】

ポリビニルアルコールコポリマーは、不飽和炭化水素をモノマーとして含有してもよい。これらの炭化水素は、荷電または非荷電官能基で修飾されてもよい。特定のモノマーは、以下を含むが、これらに限定されない：

- 2または3個の炭素原子を有し官能基を有さない不飽和炭化水素、例えば、エチレン；
- 2～6個の炭素原子およびヒドロキシル基などの非荷電官能基を有する不飽和炭化水素、例えば、ブテン-1，4-ジオール；
- カルボキシル基および/またはスルホン酸基などのアニオン性基を有する、不飽和炭化水素；
- 第四級アンモニウム基などのカチオン性基を有する、不飽和炭化水素。

【0039】

ポリビニルアルコールの特定のコポリマーには、加水分解度が85～99.9%、より特に85～95%のものが含まれ；これらは以下を含む：

- 0.1～30モル%の、上記のようなアニオン性基を含有するモノマー；または
- 0.1～30モル%の、上記のようなカチオン性基を含有するモノマー；または
- 2～6個の炭素原子と非荷電官能基、特に2つのヒドロキシル基を有する不飽和炭化水素を有する、0.1～30モル%のモノマー；

ここで、モル%は、ビニルアセタート/モノマー重合混合物に基づく。

ポリビニルアルコールと1，2-ジオール構造を有するモノマーの好適なコポリマーは、EP 2 426 172およびEP 2 648 211に記載されており、これらは本明細書に参照により組み込まれる。

【0040】

以下の保護コロイドは、本発明のポリウレアカプセル組成物の調製において特に有用である：

- 80%より大きい、好ましくは85.0%~99.5%の加水分解度および2 m P a s ~ 70 m P a s (D P 100 ~ 6000) の粘度を有する、アニオン性ポリビニルアルコールコポリマー、例えばKuraray製のK-polymer KL-318 (粘度20 ~ 30 m P a s 、加水分解度85.0 ~ 90.0%) 。Nippon GohseiからのGohsenal T-350 (粘度27 ~ 33 m P a s 、加水分解度93.0 ~ 95.0%) ; Nippon GohseiからのGohseran L-3266 (粘度2.3 ~ 2.7 m P a s 、加水分解度86.5 ~ 89.0%) ;
- 80%より大きい、好ましくは85.0~99.5%の加水分解度および2 m P a s ~ 70 m P a s (D P 100 ~ 6000) の粘度を有する、非荷電ポリビニルアルコールコポリマー、例えばNippon GohseiからのG-polymer OKS-8041 (粘度2.8 ~ 3.3 m P a s 、加水分解度88.0 ~ 90.0%) 、Nippon GohseiからのG-polymer AZF-8035 (粘度2.8 ~ 3.3 m P a s 、加水分解度98.5 ~ 99.5%) ; および
- 80%より大きい、より特に85.0~99.5%の加水分解度および2 m P a s ~ 70 m P a s (D P 100 ~ 6000) の粘度を有する、カチオン性ポリビニルアルコールコポリマー、例えばNippon GohseiからのGohsefimer K-210 (粘度18.0 ~ 22.0 m P a s 、加水分解度85.5 ~ 88.0%) 。

【0041】

保護コロイドは、カプセルシェルの構成成分であってもなくてもよい。一般に、スラリーの重量に基づいて重量パーセントで表される保護コロイドの総量は、約0.1~20重量%、より特に1~10重量%、さらにより特に1.5~5重量%の範囲である。

2種以上の異なる保護コロイドの組み合わせも、本発明において使用してよい。

【0042】

上述した方法は、本発明のカプセル化香料組成物を調製するための、便利で用途の広い手段である。カプセル化香料組成物は、広範囲の寸法を有するポリウレアカプセルを含有するように調製することができる。本発明によるカプセル化香料組成物は、体積平均カプセル直径が約20~250ミクロン、より特に20~90ミクロン、さらにより特に20~75ミクロン、さらに特に30~50ミクロンのカプセルを、含むことができる。

【0043】

本明細書で用いる場合、体積平均粒径は、Malvern 2000S装置およびM i e 散乱理論を用いた光散乱測定によって測定される。M i e 理論の原理および光散乱を如何にしてカプセルサイズの測定に使用できるかについては、例えばH. C. van de Hulst, Light scattering by small particles. Dover, New York, 1981に見出すことができる。静的光散乱によってもたらされる主な情報は、光散乱強度の角度依存性であり、これはカプセルのサイズおよび形状に関連する。しかし標準的な操作方法では、回折対象のサイズに等しいサイズを有する球のサイズは、この対象の形状がどのようなであっても、装置に付属のMalvern独自のソフトウェアによって計算される。多分散試料の場合、全体の散乱強度の角度依存性は、試料中のサイズ分布に関する情報を含む。出力は、所与のサイズクラスに属するカプセルの総容量を、カプセルサイズの関数として表すヒストグラムであるが、任意数である50のサイズクラスが、典型的には選択される。

【0044】

実験的には、約10%のカプセルを含有する数滴のスラリーを、散乱セルを通して流れる脱気された水の循環流に添加する。散乱強度の角度分布を測定し、Malvern独自のソフトウェアによって分析して、試料中に存在するカプセルの平均サイズおよびサイズ分布を提供する。本発明の文脈において、パーセントイルD v 10、D v 50およびD v 90が、カプセルサイズ分布の特性として使用され、D v 50は、分布の中央値に対応する。

【0045】

ポリウレアカプセル(コア材料+シェル材料)の総重量のパーセンテージとして表されるシェル重量は、本発明のカプセル化香料組成物の安定性と性能の両方を決定する重要なパラメータである。

本出願人は、ポリウレアカプセルを高度に均一なシェル厚さで生産することが、困難となり得ることを見出した。

10

20

30

40

50

【 0 0 4 6 】

ポリウレアカプセルは、界面重合のプロセスによって形成される。水中油型エマルジョンが調製され、シェル形成材料は分散油相および連続水性相の両方に含まれる。シェル形成を行うために、シェル形成材料は、2つの異なる相を通して拡散して、カプセルシェルの形成のために反応する前に、油 - 水の界面に到達しなければならない。シェル特性または特徴は、油相の組成に直接影響され、香油の場合には、典型的には数十または数百の異なる香料成分を含み、それぞれがそれ自体の物理的および化学的特性（例えば、溶解度および分配係数）を有する。シェル形成材料が油 - 水界面に向かって拡散することができる速度は、複合香油の組成に依存して変化する。その結果、シェルの形態、特にシェルの厚さの均一性は、正確に制御するのが難しい場合がある。したがって、シェルの厚さは信頼性の低いパラメータである可能性があり、カプセルの性能とは十分に相関しない。

10

【 0 0 4 7 】

これは、例えば、複雑なコアセルベーションプロセスによって作られたコア - シェルカプセル（例えば、ゼラチンカプセル）と対照的であり得る。かかるプロセスにおいて、コロイドは、外部水相に分散された油滴の周囲にコアセルベートされる。しかし、ポリウレアカプセルの形成に使用される方法とは異なり、全てのシェル形成材料は単一相（外部水相）に含まれ、この相を介して油水界面に移動することのみが必要である。さらに、これらのカプセルは典型的には、非常に高いC logPを有する犠牲油または溶媒の小滴の周囲に形成される。カプセルは形成されるとただちに香料組成物中に浸漬され、香料組成物はカプセルコアに拡散して油 / 溶媒を置き換える。このコアセルベーションプロセスは、均一なシェル厚さを有する規則的な形状のカプセルの形成を促進する。

20

【 0 0 4 8 】

したがって本出願人は、ポリウレアカプセルの品質を制御するためには、シェルの重量がシェルの厚さよりも信頼できるパラメータであることを見出した。シェル重量は、カプセル化プロセスの間に添加されるシェル形成モノマーの量を制御することによって、直接的に操作することができる。

本発明の特定の態様において、カプセル（カプセル化材料 + シェル材料）の総重量のパーセンテージとして表されるポリウレアカプセルのシェル重量は、約 5 % ~ 40 %、さらにより特に 10 % ~ 25 %、さらにより特に 12 % ~ 20 % である。

カプセルの体積平均直径に対するシェル重量の関係もまた、カプセル化香料組成物の放出特性を決定する。

30

【 0 0 4 9 】

より特に、出願人は、破碎可能で十分に機械的に頑丈なカプセルであって、圧縮またはせん断力を受けない場合にはほとんど香料印象を提供せず、激しい機械的攪拌に回答して香料を放出するような前記カプセルを形成できることを見出した。出願人は、このことが次の場合、すなわち、シェル重量（カプセル = カプセル材料 + シェル材料の総重量に対するパーセンテージで表される）とカプセル直径（ミクロンで表される）の比が、約 0.7 ミクロン^{-1} 以下、より特に約 0.6 ミクロン^{-1} 以下、さらにより特に約 0.2 ミクロン^{-1} 以下の場合に、達成できることを見出した。この比によって特徴付けられるカプセルは、リーブオン製品、例えば、適用により、皮膚と皮膚または衣類との摩擦接触に回答して香料を放出することができる消臭剤および発汗抑制剤などへの組み込みに、特に適している。

40

本発明の態様において、ポリウレアカプセルの公称破断応力は、MPaとして表して、約 $0.1 \sim 2 \text{ MPa}$ 、より特に $0.2 \text{ MPa} \sim 1.5 \text{ MPa}$ 、さらにより特に $0.4 \text{ MPa} \sim 1 \text{ MPa}$ の範囲である。

【 0 0 5 0 】

公称破断応力は、当技術分野で知られているマイクロマニピュレーション技術によって測定することができる。カプセルを蒸留水で希釈し、顕微鏡ステージ上、室温（ 24 ± 1 ）で約 30 分乾燥させる。マイクロマニピュレーション技術の原理は、単一のカプセルを2つの平行な表面の間で圧縮することである。単一のカプセルを圧縮して保持し、圧縮

50

して解放し、圧縮して予め設定された $1\text{ }\mu\text{m}$ / 秒の速度で大きな変形または破断させる。同時に、それらに加えられる力およびそれらの変形を、決定することができる。この技術は、カプセル試料の表面に対して垂直に配置された細いプローブを使用する。プローブは、所定の速度で移動するようにプログラム可能な 3 次元マイクロマニピュレータに取り付けられた、カトランスデューサに接続されている。全プロセスは、倒立顕微鏡上で実施される。力対サンプリング時間の曲線から、力と破断までのカプセル変形との関係、およびその初期直径が得られる。マイクロマニピュレーション技術は、Zhang, Z., Saunders, R. and Thomas, C. R., Micromanipulation measurements of the bursting strength of single microcapsules, Journal of Microencapsulation 16(1), 117-124 (1999) にさらに完全に記載されており、この文献は参照により本明細書に組み込まれる。カプセル破断時の力は力単位（ニュートン）で表され、これは次に、破断力をカプセルの断面積で割ることにより、圧力単位（パスカル）で表される破断応力に変換される。マイクロマニピュレーションに使用されるチップまたはプローブは、カプセルとほぼ同じサイズでなければならず、典型的には $10\sim 50$ ミクロンである。典型的には、破断時の力を単一のカプセルで測定し、典型的には 50 個のカプセルにわたって繰り返し、平均値を用いて、本発明による公称破断応力を計算する。

10

【0051】

カプセル負荷量は、カプセル形成プロセスで使用するシェル形成材料およびコア形成材料の割合を変えることによって、決定される。高レベルの香料を、本発明のカプセル化香料組成物中にカプセル化することができる。

20

本発明の特定の態様において、スラリー中のカプセル（カプセル化材料 + シェル材料）の量は、スラリーの重量に基づき、約重量 $5\% \sim 75$ 重量%、より特に 25 重量% ~ 50 %、さらにより特に 30 重量% ~ 40 重量%である。

【0052】

さらにまた、スラリーの重量に基づいて重量パーセンテージとして表される、カプセル中に含有されている香料成分の量は、約 10 重量% ~ 50 重量%、より特に 20 重量% ~ 40 重量%、さらにより特に $25\sim 35$ 重量%の範囲である。

さらに、これらの香料成分の高い負荷量は、比較的低いシェル重量にもかかわらず、カプセル化することができる。実際、本発明の別の側面において、香料成分合計の、シェル材料に対する比は、約 60 重量% ~ 95 重量%、より特に 75 重量% ~ 80 重量%、さらにより特に 80 重量% ~ 88 重量%の範囲であり得る。

30

【0053】

コア - シェル重量比は、予め水で洗浄し、濾過により分離したカプセルを秤量することによって得ることができる。次に、コアを溶媒抽出技術によって抽出し、コア重量を得る。シェル重量は、カプセル化材料の初期量の重量%を考慮した、単純な質量バランスから得られる。

【0054】

スラリーの生産においては、カプセルが分散媒体中に良好に分散することを確実にしなければならない、具体的には、確実に、カプセルが水性分散媒体から相分離してクリーミングする（cream）か、沈降するかまたは凝固するようなことがないようにしなければならない。時間が経っても安定に水性分散媒体中でカプセルを適切に分散および懸濁させるためには、スラリー中において分散助剤を使用することができる。

40

【0055】

様々な分散助剤が当技術分野で知られており、これには以下が含まれる：多糖類、ペクチン、アルギン酸塩、アラビノガラクトン、カラギーナン、ゲランガム、キサンタンガム、グアーガム、アクリラート / アクリルポリマー、デンプン、水膨潤性粘土、アクリラート / アミノアクリラートコポリマー、およびそれらの混合物、マルトデキストリン；アルギン酸エステルなどの天然ゴム；ゼラチン、タンパク質加水分解物およびそれらの四級化形態；合成ポリマーおよびコポリマー、例えばポリ（ビニルピロリドン - co - ビニルアセタート）、ポリ（ビニルアルコール - co - ビニルアセタート）、ポリ（マレイン酸）、ポ

50

リ（アルキレンオキシド）、ポリ（ビニルメチルエーテル）、ポリ（ビニルエーテル-co-マレイン酸無水物）など、ならびにポリ-（エチレンイミン）、ポリ（（メタ）アクリルアミド）、ポリ（アルキレンオキシド-co-ジメチルシロキサン）、ポリ（アミノジメチルシロキサン）など。

【0056】

利用可能な分散助剤の多様性にもかかわらず、適切な助剤の選択は、カプセルシェル化学、その形態、サイズおよび密度、ならびにpHおよび電解質含量などの水性分散媒体の組成を含む、多くの要因に依存し、これらはカプセル化プロセス条件によってかなりの程度まで決定される。

本出願人は、信頼性が高く再現性のある様式で、水性スラリーの形態のポリウレアカプセルを含むカプセル化香料組成物を調製することは、困難であることを見出した。特に、相分離およびスラリーの粘度を制御することが、課題であった。スラリーの粘度が高すぎると、それを操作するために過度の加工力が必要であり、そしてそれはカプセルを損傷する可能性がある。さらに、高粘性のスラリーは取り扱いが困難であり得、カプセル化香料組成物を消費者製品の基剤に組み込む際に、困難をもたらすことがある。

【0057】

本出願人は、ヒドロキシエチルセルロースを分散助剤として用いることによって、ポリウレアカプセルが安定して分散されていて、かつ許容される粘度を有する、スラリーの形態にてカプセル化香料組成物を形成することが可能であることを、今も見出した。

よって、本発明は、別の側面において、上述した1種以上のポリウレアカプセルを含むカプセル化香料組成物であって、コアが香料を含有し、シェルがポリウレア樹脂を含有し、ここでカプセルは、25の温度にて21 s⁻¹の剪断速度で回転するディスクを使用して、レオメーター、例えばRheoStress（商標）1装置（ThermoScientific）で測定した場合に、3000センチポアズまでの、より特に約150～3000センチポアズの粘度を有する安定な懸濁液の形態である、前記カプセル化香料組成物を提供する。

【0058】

上述したように、用語「安定な懸濁液」とは、目視検査において、50の温度で2週間保存した場合に、クリーミング、沈降、沈殿または凝固などの相分離の兆候を示さない、ポリウレアカプセルの懸濁液を意味することを意図している。

消費者製品での使用に適したあらゆるヒドロキシエチルセルロースを、本発明による分散助剤として使用することができる。しかし好ましいグレードは、化粧品での使用に適したグレードである。特に好ましいグレードのヒドロキシエチルセルロースとしては、当技術分野で知られているNatrosol（商標）製品、特にNatrosol（商標）250 HXが含まれる。

【0059】

本発明の特定の態様において、スラリー中で用いられるヒドロキシエチルセルロースの量は、スラリーの総重量に基づき約0.05～約1.0重量%、より特に、0.05～0.5重量%である。

ヒドロキシエチルセルロースが分散助剤として用いられるならば、追加の分散助剤もまた用いられてもよい。好適な追加の分散助剤の例には、本明細書上記のあらゆるものが含まれる。特に、前記追加の分散助剤には、デンプン、例えばNational 465、Purity W、もしくはデンプンB990など；またはアクリレートポリマーもしくはコポリマー、例えばTino vis CD、Ultrageel 300およびRheocare TTAなど、が含まれる。

【0060】

追加の分散助剤が使用される場合、それらは、スラリーの重量に基づき、約0.1～約5.0重量%、より特に0.5～4重量%、さらにより特に1～3重量%の範囲の量で使用されてよい。

ヒドロキシエチルセルロースは、好ましくは、一旦スラリーが形成されたら添加する。カプセルの形成中にヒドロキシエチルセルロースを添加することは、好ましくは避けるが、それは粘度を増加させカプセル形成に有害となり得るためである。

【0061】

10

20

30

40

50

本発明のカプセル化香料組成物が、スラリーの形態にて、保存されおよびさらに加工されることを意図する場合、スラリーのpHは、約5～10のレベルに調節される。アルカリ性スラリーにおいて、これは、適切な酸、例えばクエン酸またはギ酸の添加によって、達成することができる。

【0062】

さらに、微生物汚染を防止するため、防腐剤を添加することが慣習的である。防腐剤はカプセル化されていてもよく、および/またはスラリーの水性懸濁媒体中に含まれていてもよい。好適な防腐剤としては、第四級化合物、ビッグアニド化合物、およびそれらの混合物が含まれる。第四級化合物の非限定的な例としては、塩化ベンザルコニウムおよび/または置換塩化ベンザルコニウムが含まれ、例えば、市販のBarquat（登録商標）（Lonzaから入手可能）、Maquat（登録商標）（Masonから入手可能）、Variquat（登録商標）（Witco/Sherexから入手可能）、およびHyamine（登録商標）（Lonzaから入手可能）；ジ（C6～C14）アルキルジ短鎖（C1～4アルキルおよび/またはヒドロキシアルキル）第四級物、例えばLonzaからのBardac（登録商標）製品；N-（3-クロロアリル）ヘキサミニウムクロリド、例えばDowより入手可能なDowicide（登録商標）およびDowicil（登録商標）；塩化ベンゼトニウム、例えばRohm&HaasからのHyamine（登録商標）；Rohm&Haasから供給されるHyamine（登録商標）10*に代表される塩化メチルベンゼトニウム、Merrell Labsから入手可能なCepacolなどの塩化セチルピリジニウム；およびジエステル第四級アンモニウム化合物が含まれる。好ましいジアルキル四級化合物の例は、ジ（C8～C12）ジアルキルジメチルアンモニウムクロリド、例えば塩化ジデシルジメチルアンモニウム（Bardac（登録商標）22）、および塩化ジオクチルジメチルアンモニウム（Bardac（登録商標）2050）などである。本明細書のカチオン性防腐剤および/または抗菌剤として有用な第四級化合物は、好ましくは、塩化ジアルキルジメチルアンモニウム、塩化アルキルジメチルベンジルアンモニウム、塩化ジアルキルメチルベンジルアンモニウム、およびそれらの混合物からなる群から選択される。本明細書で有用な他の好ましいカチオン性抗菌活性物質としては、塩化ジイソブチルフェノキシエトキシエチルジメチルベンジルアンモニウム（Rohm&HaasからHyamine（登録商標）1622の商品名で市販されている）および（メチル）ジイソブチルフェノキシエトキシエチルジメチルベンジルアンモニウムクロリド（すなわち塩化メチルベンゼトニウム）が含まれる。

【0063】

カプセル化香料組成物スラリーは、界面活性剤を含有してもよい。界面活性剤としては、非イオン性、カチオン性、アニオン性および双性イオン性の種類が含まれる。

カプセル化された香料に加えて、スラリーは、カプセル化されていない、すなわち遊離の香料を、カプセルの外に水性担体媒体中に含有してもよい。

所望の場合には、スラリーの形態の、本明細書に記載のカプセル化香料組成物を、脱水して粉末の形態のカプセル化香料組成物を提供してもよく、これは本発明の別の側面を表す。

【0064】

スラリーは、当技術分野で知られている技術を用いて乾燥することができる。例えば、液体を懸濁液からデカントして乾燥し、カプセルをオープン中で乾燥してケーキを生成し、これを次に、続く粉碎工程によって粉末形態にすることができる。

しかし好ましくは、スラリーの乾燥は、噴霧乾燥または流動床乾燥により、それ以上の処理をすることなく行われる。

【0065】

噴霧乾燥技術および装置は、当技術分野において周知である。噴霧乾燥プロセスでは、懸濁されたカプセルをノズルを通して乾燥チャンバに押し込む。カプセルは、乾燥チャンバの内部を移動する流体（空気など）に同伴されてもよい。流体（例えば150および120、より好ましくは170と200との間、さらにより好ましくは175と185の間の温度で加熱されてもよい）は、液体を蒸発させて、乾燥したカプセルを残し、その後乾燥カプセルは、処理装置から回収してさらに処理することができる。

【 0 0 6 6 】

噴霧乾燥されたカプセルを流動助剤と混合して、ケーキングすることのない流動性粉末を生産することは、慣習的である。流動助剤としては、沈降シリカ、ヒュームドシリカまたはコロイドシリカなどのシリカまたはシリカート；デンプン；炭酸カルシウム；硫酸ナトリウム；変性セルロース；ゼオライト；または当技術分野で周知の他の無機微粒子が含まれる。

噴霧乾燥手順中に遭遇する高い温度および衝突力を考えると、コアシェルカプセルがそのコア材料の一部を失うことはごく普通のことである。さらに、カプセルの熱安定性を犠牲にすることなく、スラリーからのすべての水分を追い出すために十分に高い温度で十分に長い時間作業することは、可能でない場合もある。したがって、本明細書に記載の噴霧乾燥プロセスから出現するポリウレアカプセルは、少量の表面油（コアから失われた油）および残留水分を含み得る。しかし本出願人は、乾燥カプセルに添加された流動助剤の従来の使用は、ケーキング傾向のない自由流動性の形態で本発明のポリウレアカプセルを生産するのに、完全に有効ではないことを見出した。

【 0 0 6 7 】

しかし驚くべきことに、本出願人は、噴霧乾燥工程の前に流動助剤をスラリーに添加すると、得られたポリウレアカプセルは、ケーキングしなかったかまたは凝集の兆候を示さなかった、微細な自由流動性粉末を生成することを見出した。

より特には、本出願人は、スラリーに添加された流動助剤が、ミクロンサイズの、より特には1～約8ミクロン、さらにより特には1～7、より特には1～6、さらにより特には1～5ミクロンの体積平均粒径を有するシリカの形態である場合に、自由流動性であり、ケーキングに抵抗性であり、残留水分および表面油が低レベルの、特に良好な粉末が形成されることを見出した。

【 0 0 6 8 】

さらに、本出願人は、約5～約30 lbs / ft³の嵩密度を有するシリカを使用すると、自由流動性であり、ケーキングに抵抗性であり、残留水分および表面油が低レベルの、特に良好な粉末が得られることを見出した。

特に好ましい流動助剤は、Sylloid FPグレードのシリカであり、例えばSylloid FP 244、Sylloid FP 72、またはSylloid FP 63であった。

したがって本発明は、その別の側面において、本明細書で定義される、粉末形態のカプセル化香料組成物を作る方法であって、本明細書で定義される複数のポリウレアカプセルを、本明細書で定義されるシリカ流動助剤を含む水性媒体中に分散して含むスラリーを、噴霧乾燥するステップを含む、前記方法を提供する。

【 0 0 6 9 】

本発明の別の側面において、本明細書中で上に記載した流動助剤を含む粉末の形態の、本明細書で定義されるカプセル化香料組成物が提供され、該粉末は、残留水分含量として、スラリー重量に基づき、約0.1～約8重量%、より特に0.5%～5重量%、さらにより特に1～3重量%を有する。

本発明のさらに別の側面において、本明細書中で上に記載した流動助剤を含む粉末の形態の、本明細書で定義されるカプセル化香料組成物が提供され、該粉末は、表面油含量として、粉末の重量に基づき約5%未満、より特に約4%未満、さらにより特に約0.5%未満を有する。

【 0 0 7 0 】

残留水分はKarl Fisher法を用いて測定することができる、一方表面油の量は、粉末を油用の溶媒で抽出し、GCMSを用いて分析することによって測定することができる。

本発明はまた、上に定義したカプセル化香料組成物を、パーソナルケア製品および家庭用ケア製品の全ての様式に組み込むことに関する。製品の特定のカテゴリーには、パーソナルケア製品、特に、対象の皮膚または毛髪に塗布され、その上に残るように適合された製品が含まれる。本発明はまた、上で定義したカプセル化香料組成物を含有する、パーソナルケア製品または家庭用ケア製品にも関する。

【0071】

本発明によるカプセル化香料組成物は、前記製品にスラリーまたは粉末の形態で組み込むことができる。

カプセル化香料組成物の消費者製品への組み込みのレベルは、香り付けされるべき製品および達成されるべき効果に依存して変化する。典型的には、カプセルは、それを含有する消費者製品の約0.01～50重量%、最も好ましくはそれを含有する消費者製品の0.1～2重量%を、形成してよい。

【0072】

本発明のカプセル化香料組成物は、前記製品に組み込まれる香料材料の唯一の供給源であってもよい。しかしながら、追加の香料も前記製品に、遊離（カプセル化されていない）香料の形態で組み込むことができ、または他の種類のカプセル化香料組成物を、本発明のカプセル化香料組成物と共に使用することもできる。他の種類のカプセル化香料組成物は、香料を含有することが知られているあらゆるカプセル、例えばゼラチンカプセル、デンプンカプセル、アクリルカプセル、アミノプラスチックカプセルなどを含んでよい。他のカプセル種類はそれらの香料を、拡散によって、または熱、湿気、光、または剥離によるなどの、あらゆる外部物理的刺激によって、放出することができる。

【0073】

本発明のさらに別の側面において、パーソナルケア製品または家庭用ケア製品、特にリーブオン製品に、嗅覚特性を付与、増強、改善または変更する方法が提供され、この方法は、前記製品に、上記定義されたカプセル化香料組成物を組み込むことを含む。

上記定義されたカプセル化香料組成物を含有する消臭および発汗抑制製品であって、ヒトまたは動物の皮膚に対する、または織物などの無生物の表面に対する皮膚の摩擦力などの剪断力にさらされた場合に、香料を確実に放出し、これを、6時間まで、より好ましくは10時間までの時間行う、前記製品の提供は、満たされていないニーズに対処する。

【0074】

したがって、本発明の別の側面において、本明細書に記載のカプセル化香料組成物の、消費者製品、特に家庭用またはパーソナルケア製品を香り付けするための使用が提供される。本発明の組成物は、化粧用クリームおよびローション、または消臭剤配合物および発汗抑制剤配合物などの、リーブオン用途における使用に特に適している。

本発明の一態様において、ヒトまたは動物の皮膚または毛髪を香り付けするための、上に定義したカプセル化香料組成物を含む、パーソナルケア製品が提供される。

【0075】

本発明の態様において、すすぎ落とし製品またはリーブオン製品である、上記定義のカプセル化香料組成物を含む、ヒトまたは動物の皮膚または毛髪を香り付けするための、パーソナルケア製品が提供される。

本発明の態様において、リーブオン製品は、消臭剤、例えばロールオンまたはスティック消臭剤または発汗抑制エアロゾルスプレーなどの脇の下用消臭剤、またはボディローション、ボディスプレー、またはクリーム、またはコーミングクリームなどのヘアクリーム、またはタルカムパウダーであってもよい。

本発明の態様において、すすぎ落とし製品は、シャワーゲル、固体もしくは液体石鹸、シャンプーまたはコンディショナーであってもよい。

【0076】

さらに、本発明のカプセル化香料組成物は、現代の香料製造のすべての分野において、組成物が添加された製品の匂いを積極的に付与または変更するために、使用することができる。香り付けされた製品の構成成分の性質および種類は、ここではより詳細な説明を保証せず、いずれの場合にも網羅的ではなく、当業者は、その一般的な知識および前記製品の性質および所望の効果に基づき、これを選択できる。

適切な製品の例には、賦香石鹸、シャワーまたはバスソルト、ムース、オイルまたはゲル、衛生製品またはシャンプーなどのヘアケア製品、ボディケア製品、消臭剤および発汗抑制剤が含まれる。

10

20

30

40

50

【 0 0 7 7 】

本発明の特定の側面において、カプセル化香料組成物は、発汗抑制性および／または消臭性のロールオン、スティックまたはエアロゾルパーソナルケア製品に組み込まれる。発汗抑制および／または消臭パーソナルケア製品は、有効量のカプセルを含有する。本発明のカプセル剤を含むことに加えて、本発明の発汗抑制剤および／または消臭剤の側面は、少なくとも1つの消臭剤活性成分および／または少なくとも1つの発汗抑制塩もしくは錯体を含むことができる。

本発明の意味において、「消臭活性成分」とは、細菌によるヒトの汗の分解に起因する不快な臭いを、マスキング、吸収、改善または低減することができるあらゆる物質を意味すると理解される。

10

【 0 0 7 8 】

より具体的には、消臭活性成分は、静菌剤または殺菌剤、例えば2,4,4'-トリクロロ-2'-ヒドロキシジフェニルエーテル(Triclosan(登録商標))、2,4-ジクロロ-2'-ヒドロキシジフェニルエーテル、3',4',5'-トリクロロサリチルアニリド、1-(3',4'-ジクロロ-フェニル)-3-(4'-クロロフェニル)尿素(Triclocarban(登録商標))、または3,7,11-トリメチルドデカ-2,5,10-トリエノール(Farnesol(登録商標))；第四級アンモニウム塩、例えばセチルトリメチル-アンモニウム塩またはセチルピリジニウム塩、DPTA(1,3-ジアミノプロパン四酢酸)または1,2-デカンジオール(SymriseからのSimclariol)であることができる。

20

【 0 0 7 9 】

さらに挙げられるのは、亜鉛塩の消臭活性成分の中では、例えばサリチル酸亜鉛、グルコン酸亜鉛、ピドリル酸亜鉛、硫酸亜鉛、塩化亜鉛、乳酸亜鉛またはフェノイシルホン酸亜鉛など；クロルヘキシジンおよびその塩；重炭酸ナトリウム；サリチル酸およびその誘導体、例えば5-(n-オクタノイル)サリチル酸；グリセロール誘導体、例えばカプリル酸／カプリン酸グリセリド(AbitecからのCapmul MCM)、グリセロールカプリラートもしくはカプラート(それぞれ、StraetmansからのDermosoft GMCYおよびDermosoft GMC)、またはポリグリセリル-2カプラート(StraetmansからのDermosoft DGMC)；ピグアニド誘導体、例えばポリヘキサメチレン-ピグアニド塩；銀、ゼオライトまたは銀非含有ゼオライトである。

30

【 0 0 8 0 】

組成物の発汗抑制効果を改善するために、ブレンステッド酸、特にマレイン酸および／または無水マレイン酸に由来するものを含む、1種以上の水溶性アニオン性ポリマーを使用することができ、これは特許出願WO 02/49590に記載されている。

さらに、本明細書における「発汗抑制塩または錯体」は、それ自体が単独で、汗の流れを低減または制限し、および／またはヒトの汗を吸収する効果を有する、あらゆる塩または錯体をいう。かかる発汗抑制塩または錯体の例は、OTC final monograph on Antiperspirant Activesおよび米国特許公開第20100196484号、第20050031565号、第20050238598号、および第20110212144号に見出すことができ、これらの開示全体は本明細書に参照により組み込まれる。

40

【 0 0 8 1 】

発汗抑制塩または錯体は、一般にアルミニウムおよび／またはジルコニウム塩または錯体から選択される。それらは典型的には、ハロゲン化水素酸アルミニウム；ハロゲン化水素酸アルミニウムジルコニウム、またはジルコニウムヒドロキシクロリドとの、およびアルミニウムヒドロキシクロリドとの錯体(アミノ酸を有するものまたは含まないもの)、例えば、米国特許第3,792,068号に記載のものである。

特に挙げられるのは、アルミニウム塩の中でも、活性化または非活性化形態のアルミニウムクロロ水和物、アルミニウムクロロハイドレックス、アルミニウムクロロハイドレックスポリエチレングリコール錯体、アルミニウムクロロハイドレックスプロピレングリコール錯体、アルミニウムジクロロ水和物、アルミニウムジクロロハイドレックスポリエチ

50

レングリコール錯体、アルミニウムジクロロハイドレックスプロピレングリコール錯体、アルミニウムセスキクロロ水和物、アルミニウムセスキクロロハイドレックスポリエチレングリコール錯体、アルミニウムセスキクロロハイドレックスプロピレングリコール錯体、または乳酸アルミニウムナトリウムで緩衝された硫酸アルミニウムである。

【0082】

特に挙げられるのは、アルミニウムジルコニウム塩の中でも、アルミニウムジルコニウムオクタクロロ水和物、アルミニウムジルコニウムペンタクロロ水和物、アルミニウムジルコニウムテトラクロロ水和物またはアルミニウムジルコニウムトリクロロ水和物である。

ヒドロキシ塩化ジルコニウムおよびヒドロキシ塩化アルミニウムの、アミノ酸との錯体は、ZAGという名称で一般に知られている（アミノ酸がグリシンである場合）。ここで挙げられるのは、これらの生成物の中で、アルミニウムジルコニウムオクタクロロハイドレックスグリシン錯体、アルミニウムジルコニウムペンタクロロハイドレックスグリシン錯体、アルミニウムジルコニウムテトラクロロハイドレックス（tetrathiorohydrex）グリシン錯体、およびアルミニウムジルコニウムトリクロロハイドレックスグリシン錯体である。

本発明およびその利点をさらに説明するために、以下の特定の実施例および比較例が与えられているが、これらは単に例示的であり限定的ではないことが意図されていると、理解される。

【実施例】

【0083】

例 1

マイクロカプセルを次のように調製した：

25 g のポリビニルピロリドン（K60）および650 g の水を含むプレミックス（I）を調製し、pHを水酸化ナトリウム溶液を用いて10.0に調節した。カプセル化する香料300 g、20 g のDesmodur（登録商標）Wおよび5 g のBayhydur（登録商標）XP 2547を含むプレミックス（II）を調製した。

2つのプレミックスを合わせ、室温で攪拌装置を用いて乳化させた。乳化プロセスは、所望の液滴サイズになるまで行った。次に、エマルジョンのpHを、水酸化ナトリウム水溶液を用いて8に調節した。次に、10 g のLupasol（登録商標）PR8515溶液を1ステップで添加した。

【0084】

反応混合物を、反応が開始されるまで加熱した。

次いで、混合物を室温まで冷却した。

カプセル化香料組成物を得た。Malvern 2000S装置を用いた光散乱測定で得られた体積平均カプセルサイズ分布は、 $D_{50} = 20 \mu m$ および $D_{90} = 50 \mu m$ であり、シェル重量は全スラリー重量組成の6%であった。スラリーの固形分は40重量%であった。

【0085】

例 2

カプセル化香料組成物は、例1に記載された技法に従って調製した。組成物は、以下の表1～5に特定される成分を有する香料組成物のスラリーを25重量%含有していた。カプセル化プロセスは、上の例1に記載されている。香料に含有されるアルデヒド、非芳香族環状香料成分およびアルキルサリチラートの量を示す（香料の重量部）。香料の残余は、香料製造において通常使用される他の香料成分から形成される。

実施例で使用された香料の組成を、表1～5に列挙する。「イオノン系」の下では、イオノン、イロン、イソラルデイン、ダマスコン、ダマセノン、ガルバノンなどが意味される。

【0086】

10

20

30

40

【表 1】

表 1：香料 1 の組成

	その他の成分	非芳香族環状成分	アルキルサリチラート	アルデヒド
芳香族エステル	3			
非環状非芳香族エステル	7			
アルキルカルボナート	1.5			
ジメチルベンジルカル				10
ビニルアセタート	2			
AGRUMEX		5		
パラアニスアルデヒド				0.3
テルペンアルコール	22			
テルピネオール		2		
テルペニルアセタート		2		
シトロネリルニトリル	1			
イオノン系		10.7		20
ユーカリプトール		0.8		
FLOROSA		5		
GARDOCYCLENE		1		
INDOFLO	0.3			
イソEスーパー		10		
ジャスモン系		1		
MAYOL		2		
芳香族アルコール	5			
メントン		0.3		30
ラクトン		0.5		
ヘキシルサリチラート			10	
RADJANOL	2			
芳香族エーテル	0.3			
ローズオキシド		0.3		
大環状ムスク		5		
合計	44.1	45.6	10	0.3

【 0 0 8 7 】

【表 2】

表 2：香料 2 の組成

	その他の成分	非芳香族環状成分	アルキルサリチラート	アルデヒド
芳香族エステル	3			
非環状非芳香族エステル	8			
ルキルカルボナート	3			
ボルニルアセタート		3		
アルデヒド C 12 MNA				1
FLORALOZONE				1
テルペンアルコール	37			
ケタール	5			
LEMONILE	0			
イオノン系		3		
樟脳 (CAMPBRE)		2		
フェノール	0			
JASMACYLENE		2		
イソ E スーパー		10		
芳香族アルコール	4			
シス-3-ヘキセニルサリチラート			3	
ヘキシルサリチラート			10	
芳香族エーテル	0			
大環状ムスク		5		
合計	59	26	13	2

10

20

30

【 0 0 8 8 】

【表 3】

表 3：香料 3 の組成

	その他の成分	非芳香族環状成分	アルキルサリチラート	アルデヒド
芳香族エステル	8			
非環状非芳香族エステル	15			
アルキルカルボナート	2			
パラ-tert-ブチルシクロヘキシルアセター		5		
ト		8		
AGRUMEX				
テルペンアルコール	11			
FLORHYDRAL				2
ヘリオトロピン				1
イオノン系		8		
FLOROCYCLENNE および				
HERBANATE		6		
INDOFLO				
イソEスーパー		4		
ジャスモン系		2		
芳香族アルコール	1			
ラクトン		5		
		5		
大環状ムスク				
フェノール	0.2			
HEDIONE		16		
NECTARYL		2		
合計	38	60	0	2

10

20

30

【 0 0 8 9 】

【表 4】

表 4：香料 4 の組成

	その他の成分	非芳香族環状成分	アルキルサリチラート	アルデヒド
非環状非芳香族エステル	16.0			
シクロヘキシルプロピオン酸アリル		2.0		
AGRUMEX		35.4		
アルコール	3.0			
リリアール				5.0
イオノン系		1.1		
JSMACYCLEN		20.0		
ラクトン		10.0		
シス-3-ヘキセニルサリチラート			2.0	
NECTARYL		5.0		
合計	19.0	73.5	2.0	5.0

10

20

【 0 0 9 0 】

【表 5】

表 5：香料 5 の組成

	その他の成分	非芳香族環状成分	アルキルサリチラート	アルデヒド	アセタール(1)
芳香族エステル	3.4				
非環状非芳香族エステル	6.0				
アルキルカルボナート	4.8				
ジメチルカルボニルアセタート			6.0		
アルデヒド C 12 MNA				0.7	
FLORAL OZONE				1.4	
テルペンアルコール	43.4				
METHYL PAMPLEMOUSSE					12.0
シトロネリルニトリル	2.4				
LEMONILE	0.2				
ボルニルアセタート		2.4			
INDOFLOR					
イソ E スーパー		12.0			
樟脳 (CAMPHERE)		1.7			
SYLKOLIDE	1.0				
芳香族エーテル	0.4				
大環状ムスク	0.5				
微量成分	1.4				
合計	63.6	16.1	6.0	2.2	12.0

(1) 2, 2, 2-三置換アセタール

【 0 0 9 1 】

【表 6】

表 6：香料組成物のカプセル化性能

	アルデヒド	非芳香族環状成分	サリチラート	2, 2, 2-三置換アセタール	カプセル化
香料 1	0.3	45.6	10		有
香料 2	2.0	26.0	13.0		有
香料 3	2.0	60.0	0		有
香料 4	5.5	73.5	2.0		有
香料 5	2.2	16.1	6.0	12.0	有

【 0 0 9 2 】

例 3

官能検査を実施して、例 1 の方法に従って形成された、同じ香料を含有するが、D 5 0 が 1 0 ミクロンと 3 0 ミクロンである 2 つの異なるサイズのカプセル化香料組成物の 2 つの試料の強度を、ロールオン消臭基剤において経時的に比較した。ロールオン消臭剤は、訓練された感覚パネリストによって皮膚上で試験された。製品は、新たに適用した時点、次いで適用の 2 時間後、6 時間後および 1 0 時間後に評価した。1 0 時間後には製品を、こすった後、および皮膚から直接、評価した。

知覚された全体的な強度は、訓練された感覚パネリストにより、0 ~ 1 0 0 の尺度を用いて評価した。

【 0 0 9 3 】

パネリストは、サンプル適用の直後、2 時間後、6 時間後、1 0 時間後、および 1 0 時間後でこすった後に、T シャツを通して脇の下の匂いを嗅ぐよう指示された。適用の 1 0 時間後にこすった後には、脇の下の皮膚からの直接の評価も行った。

こすり評価では、パネリストは次のように指示された：左腕を前方に、同時に右腕を後方に動かし、この時に上腕が身体の側面をこすり、下腕がそれらの前に水平に出るように保つこと。彼らはこの動作を合計 4 回行うよう求められた。

どの試料をどちらの腕（左または右）に適用するか割り振りは、所定の無作為化に従って行い、パネリストは常に、左脇の下を最初に評価するように求められた。各試料を、2 1 人のパネリストが 1 回評価した。

データは、スチューデント T 検定を用いて分析した。信頼区間は 9 5 % であった。

【 0 0 9 4 】

【表 7】

表 7

カプセル直径	シェル重量(1) (%)	時間 0 初期	時間 2 時間	時間 6 時間	時間 10 時間	時間 10 時間 こすった 後
D50 = 10 ミクロン	15	28	22	19	13	18
D50 = 30 ミクロン	15	38	30	23	13	20
D50 = 30 ミクロン	19	37	27	23	14	20
D50 = 30 ミクロン	23	28	23	20	13	18

(1) カプセル重量（カプセル化された材料＋シェル材料）に基づく重量%

結果は、約 0. 7 未満のシェル重量対直径比を有するカプセルの、有意な利益を示す。

【 0 0 9 5 】

例 4

ポリウレアカプセルを含有する一連のスラリーを、表 8 に開示するように配合し、相分離の程度を 1 週間後に 5 0 で測定した。結果から明らかなように、ヒドロキシエチルセ

ルロース (Natrosol 250HX) を 0.4 重量 % で使用した場合、相分離は観察されず、スラリーは流動可能なままである。他の全ての分散助剤は、試験期間中スラリーを安定化できなかった。

相分離は裸眼評価によって測定し、水相の高さのスラリーの全高に対する比として表した。

【 0 0 9 6 】

【表 8】

表 8

	1 %	2 %	3 %	4 %	5 %	6 %	Natrosol 250 HX (重量%)	相分離 %	粘度 (cps)
スラリーA						1.5	0	40	
スラリーB							0.4	0	2400
スラリーC	3						0	10	
スラリーD		3.5					0	10	
スラリーE			1.5				0	15	
スラリーF				0.5			0	30	
スラリーG					2		0	40	

1 =National 465 ; 2 =デンプン B990 ; 3 =Tinovis CD ; 4 =Ultragel 300 ;
5 =Rheocare TTA ; 6 =Purity W

【 0 0 9 7 】

例 5

例 1 の手順に従って形成されたカプセル化香料組成物 90 g を、スラリーとして形成した。このスラリーに、9 g のCapsul E (水中で 23 %) および 1 g のシリカ (Syloid FP 244) を添加した。スラリーを 250 rpm で 30 分間攪拌し、噴霧乾燥機 (実験室) 中で噴霧器を用いて噴霧乾燥させた。入口温度は 180 であり、出口温度は 90 であった。30 ミクロンの D50 および 65 % の芳香負荷を有する、自由流動性粉末が得られた。残留水分定数は 4 重量 % であり、表面油は 0.8 重量 % であった。

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/EP2015/074812

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER INV. A61Q13/00 A61Q15/00 A61K8/84 A61K8/11 C11D3/50 A61K8/368 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) A61Q A61K C11D 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, BIOSIS, EMBASE, WPI Data		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2012/107323 A1 (FIRMENICH & CIE [CH]; OUALI LAHOUSINE [CH]; JACQUEMOND MARLENE [CH]) 16 August 2012 (2012-08-16)	1,11
Y	claim 1 page 8, line 29 - page 9, line 1 page 10, lines 15-19 examples 1,12 page 9, lines 14-16 page 6, lines 15-21	1-14
X	US 2011/071064 A1 (LEI YABIN [US] ET AL) 24 March 2011 (2011-03-24)	1,5,7,11
Y	page 7, paragraph 99 examples 1,3,4,17,18 page 5; table 1 claims 23-35 table 9	1-14
----- -/--		
<input checked="" 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
30 November 2015		14/12/2015
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 Tullberg, Erik

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No

PCT/EP2015/074812

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	W0 2011/161265 A2 (GIVAUDAN SA [CH]; VAUTRIN CLAIRE [FR]) 29 December 2011 (2011-12-29) example 1 page 1, line 23 - page 2, line 6 page 5, lines 3-8 page 7, lines 19-28 page 9, lines 23-28 examples 1,4 -----	1-14
Y	W0 01/94001 A2 (SYNGENTA LTD [GB]) 13 December 2001 (2001-12-13) claim 1 page 31, lines 18-20 pages 1-10 page 20, lines 12-23 -----	1-14
Y	W0 2011/154893 A1 (FIRMENICH & CIE [CH]; STRUILLLOU ARNAUD [FR]; PICHON NICOLAS [FR]; ROND) 15 December 2011 (2011-12-15) page 8, lines 3-7 claims 1-3 page 8, line 33 - page 9, line 3 claims 12,15 example 29 table 1a page 5, lines 22-29 examples 1-4,13 -----	1-14
A	US 2007/202063 A1 (DIHORA JITEN O [US] ET AL) 30 August 2007 (2007-08-30) the whole document -----	1-14

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/EP2015/074812

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 2012107323 A1	16-08-2012	CN 103370126 A EP 2673078 A1 ES 2539491 T3 JP 2014507433 A US 2013295149 A1 WO 2012107323 A1	23-10-2013 18-12-2013 01-07-2015 27-03-2014 07-11-2013 16-08-2012
US 2011071064 A1	24-03-2011	NONE	
WO 2011161265 A2	29-12-2011	CN 103140208 A EP 2585034 A2 JP 2013530979 A KR 20130097140 A US 2013089591 A1 WO 2011161265 A2	05-06-2013 01-05-2013 01-08-2013 02-09-2013 11-04-2013 29-12-2011
WO 0194001 A2	13-12-2001	AT 309858 T AU 7420801 A AU 2001274208 B2 BR 01111465 A CN 1446120 A DE 60115033 D1 DE 60115033 T2 DK 1292386 T3 EP 1292386 A2 ES 2248340 T3 JP 2004502519 A KR 20030034085 A MX PA02011951 A NO 20025827 A NZ 522785 A PL 359225 A1 TW 587956 B US 2002136773 A1 WO 0194001 A2	15-12-2005 17-12-2001 17-03-2005 01-07-2003 01-10-2003 22-12-2005 01-06-2006 27-03-2006 19-03-2003 16-03-2006 29-01-2004 01-05-2003 14-07-2003 03-02-2003 28-05-2004 23-08-2004 21-05-2004 26-09-2002 13-12-2001
WO 2011154893 A1	15-12-2011	CN 102939151 A EP 2579976 A1 JP 2013530825 A US 2013230574 A1 WO 2011154893 A1	20-02-2013 17-04-2013 01-08-2013 05-09-2013 15-12-2011
US 2007202063 A1	30-08-2007	AR 059456 A1 CA 2642954 A1 CN 101389743 A EP 1988990 A2 EP 1989283 A2 EP 2305787 A2 JP 2009524723 A JP 2009528161 A US 2007202063 A1 US 2010086575 A1 WO 2007099469 A2 WO 2007100501 A2	09-04-2008 07-09-2007 18-03-2009 12-11-2008 12-11-2008 06-04-2011 02-07-2009 06-08-2009 30-08-2007 08-04-2010 07-09-2007 07-09-2007

フロントページの続き

(51) Int.Cl.		F I		テーマコード (参考)
A 6 1 Q	15/00	(2006.01)	A 6 1 Q	15/00
A 6 1 K	8/11	(2006.01)	A 6 1 K	8/11
C 1 1 B	9/00	(2006.01)	C 1 1 B	9/00
				Z

(81) 指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, 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, KM, 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, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, 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, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US

(72) 発明者 ケレ, クリスチャン

スイス国 シーエイチ - 2 5 0 2 ビエンヌ、リュ ニーヴ 2 0

F ターム(参考) 4C083 AC152 AC171 AC172 AC211 AC212 AC232 AC332 AC342 AC471 AC472
AC842 AD071 AD072 AD261 AD262 AD532 CC17 DD14 DD39 EE18
KK02 KK03
4H059 BA19 BA24 BA29 BC10 BC23 CA53 DA09 EA36