

(12) 특허협력조약에 의하여 공개된 국제출원

(19) 세계지식재산권기구
국제사무국

(43) 국제공개일
2016년 12월 15일 (15.12.2016)



(10) 국제공개번호
WO 2016/199997 A1

- (51) 국제특허분류:
A61K 8/19 (2006.01) A61Q 17/04 (2006.01)
A61K 8/29 (2006.01) A61Q 19/00 (2006.01)
A61K 8/30 (2006.01)
- (21) 국제출원번호: PCT/KR2015/013715
- (22) 국제출원일: 2015년 12월 15일 (15.12.2015)
- (25) 출원언어: 한국어
- (26) 공개언어: 한국어
- (30) 우선권정보:
10-2015-0083169 2015년 6월 12일 (12.06.2015) KR
- (71) 출원인: 한국과학기술원 (KOREA ADVANCED INSTITUTE OF SCIENCE AND TECHNOLOGY) [KR/KR]; 305-338 대전시 유성구 대학로 291(구성동), Daejeon (KR).
- (72) 발명자: 전석우 (JEON, Seok-woo); 305-701 대전시 유성구 대학로 291(구성동), Daejeon (KR). 윤혜원 (YOON, Hye-won); 305-701 대전시 유성구 대학로 291(구성동), Daejeon (KR). 송성호 (SONG, Sung-ho); 305-701 대전시 유성구 대학로 291(구성동), Daejeon (KR).
- (74) 대리인: 박영우 (PARK, Young-woo); 135-080 서울시 강남구 논현로 414 세일빌딩 5층, Seoul (KR).

(81) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 국내 권리의 보호를 위하여): 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, 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, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

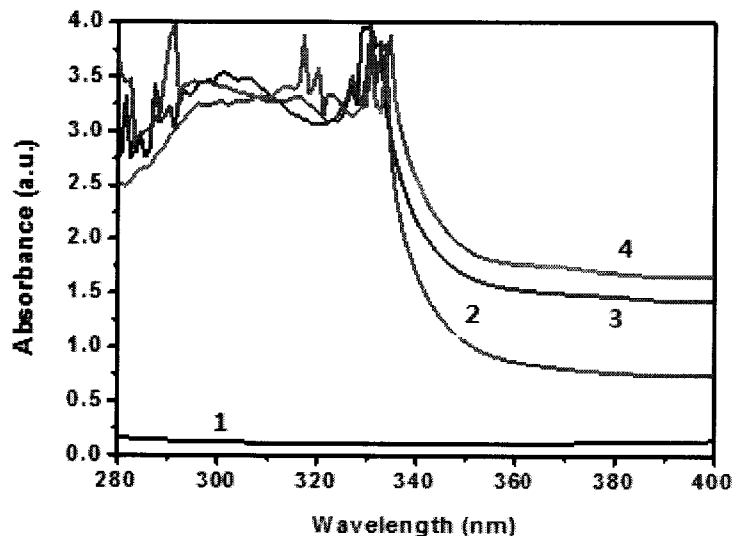
(84) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 역내 권리의 보호를 위하여): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), 유라시아 (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), 유럽 (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

공개:

— 국제조사보고서와 함께 (조약 제 21 조(3))

(54) Title: COSMETIC COMPOSITION PROVIDED WITH ULTRAVIOLET PROTECTION FUNCTION, AND METHOD FOR PREPARING SAME

(54) 발명의 명칭 : 자외선 차단 기능이 부여된 화장품 조성물 및 이의 제조 방법



(57) Abstract: Provided is a cosmetic composition which contains graphene quantum dots (GQD) and has an ultraviolet protection function. Ultraviolet absorption capacity can be strengthened as skin affinity is improved according to addition of the GQD.

(57) 요약서: 그래핀 양자점(Graphene Quantum Dots: GQD)을 포함하며 자외선 차단 기능을 갖는 화장품 조성물이 제공된다. 그래핀 양자점 추가에 따라 피부 친화도가 향상되면서 자외선 흡수능이 강화될 수 있다.

WO 2016/199997 A1

명세서

발명의 명칭: 자외선 차단 기능이 부여된 화장품 조성물 및 이의 제조 방법

기술분야

- [1] 본 발명은 자외선 차단 기능이 부여된 화장품 조성물 및 이의 제조 방법에 관한 것이다. 보다 상세하게는, 본 발명은 자외선 흡수가 가능하며 자외선 차단 기능이 부여된 화장품 조성물 및 이의 제조 방법에 관한 것이다.

배경기술

- [2] 환경 오염에 따라 자외선 노출 우려도 증가하고 있으며, 자외선 차단제의 수요 역시 함께 증가하고 있다. 예를 들면, 지표면에 도달하는 자외선은 파장대에 따라 UVC(약 200 nm 내지 약 280 nm), UVB(약 280 내지 약 320 nm) 및 UVA(약 320 nm 내지 약 400 nm)으로 분류되며, 이 중 UVC는 오존층에서 대부분 흡수되므로, UVA 및 UVB 영역의 자외선을 효과적으로 동시에 차단하기 위한 자외선 차단제가 필요하다.
- [3] 상기 자외선 차단제는 자외선 산란 기능을 갖는 이산화티탄과 같은 무기 계열 자외선 산란제, 및 화학적으로 자외선을 흡수하는 유기 화합물을 포함하는 유기 계열 자외선 흡수제를 포함할 수 있다.
- [4] 예를 들면, 특허문헌 1은 이산화티탄을 포함한 자외선 차단제를 개시하고 있다.
- [5] <선행기술문헌>
- [6] <특허문헌>
- [7] 1. 대한민국 공개특허공보 제2015-0035126호(2015.04.06)

발명의 상세한 설명

기술적 과제

- [8] 본 발명의 일 과제는 우수한 화학적 특성을 가지며 인체 적용성이 우수한 자외선 차단 기능이 부여된 화장품 조성물을 제공하는 것이다.
- [9] 본 발명의 일 과제는 우수한 화학적 특성을 가지며 인체 적용성이 우수한 자외선 차단 기능이 부여된 화장품 조성물을 제조 방법을 제공하는 것이다.
- [10] 다만, 본 발명이 해결하고자 하는 과제는 상기 언급된 과제에 한정되는 것이 아니며, 본 발명의 사상 및 영역으로부터 벗어나지 않는 범위에서 다양하게 확장될 수 있을 것이다.

과제 해결 수단

- [11] 상술한 본 발명의 일 과제를 달성하기 위한 본 발명의 예시적인 실시예들에 따른 화장품 조성물은 그래핀 양자점을 포함하며 자외선 차단 기능을 가질 수 있다.
- [12] 예시적인 실시예들에 따르면, 상기 화장품 조성물은 상기 그래핀 양자점, 무기 자외선 산란제, 유기 자외선 흡수제 및 에멀전을 포함할 수 있다.

- [13] 예시적인 실시예들에 따르면, 상기 조성물은 총 중량 대비 약 0.5 중량% 내지 약 5 중량%의 상기 그래핀 양자점, 약 5 중량% 내지 약 10 중량%의 상기 무기 자외선 산란제, 약 3 내지 약 7.5 중량%의 상기 유기 자외선 흡수제, 및 약 78 중량% 내지 약 91 중량%의 상기 에멀전을 포함할 수 있다.
- [14] 예시적인 실시예들에 따르면, 상기 무기 자외선 산란제는 금홍석(rutile) 이산화티탄을 포함할 수 있다.
- [15] 예시적인 실시예들에 따르면, 상기 유기 자외선 흡수제는 에틸헥실 메톡시신나메이트, 에틸헥실살리실레이트, 4-메틸벤질리덴캠퍼, 이소아밀 p-메톡시신나메이트, 옥토크릴렌, 페닐벤즈이미다졸설폰산, 호모살레이트, 시녹세이트, 에틸헥실트리아존, 폴리실리콘-15, 티이에이-살리실레이트, 팜바(PABA), 에틸헥실디메틸과바 또는 글리세릴과바를 포함할 수 있다. 이들은 단독으로 혹은 2 이상이 조합되어 사용될 수 있다.
- [16] 상술한 본 발명의 일 과제를 달성하기 위한 본 발명의 예시적인 실시예들에 따른 자외선 차단제의 제조 방법에 따르면 그래핀 양자점 분말을 준비한다. 상기 그래핀 양자점 분말 및 무기 자외선 산란제의 혼합물을 제조한다. 상기 혼합물을 열처리하여 복합 안료를 형성한다. 상기 복합 안료에 유기 자외선 흡수제 및 에멀전을 혼합한다.
- [17] 예시적인 실시예들에 따르면, 상기 그래핀 양자점 분말을 준비함에 있어서, 금속 이온이 그래파이트 층에 삽입된 그래파이트 층간 화합물로부터 금속 이온을 제거하여 그래핀 양자점 수분산체를 제조할 수 있다.
- [18] 예시적인 실시예들에 따르면, 상기 그래핀 양자점 분말을 준비함에 있어서 상기 그래핀 양자점 수분산체를 약 100°C 내지 약 130°C의 온도에서 건조시킬 수 있다.
- [19] 예시적인 실시예들에 따르면, 상기 혼합물을 열처리하는 단계는 약 100°C 내지 약 200°C의 온도에서 수행될 수 있다.
- [20] 예시적인 실시예들에 따르면, 상기 무기 자외선 산란제 및 상기 유기 자외선 흡수제로서 각각 금홍석 이산화티탄 및 에틸헥실 메톡시신나메이트를 사용할 수 있다.
- [21] 예시적인 실시예들에 따르면, 상기 자외선 차단제의 총 중량 대비 약 0.5 중량% 내지 약 5 중량%의 상기 그래핀 양자점 분말, 약 5 중량% 내지 약 10 중량%의 상기 무기 자외선 산란제, 약 3 내지 약 7.5 중량%의 상기 유기 자외선 흡수제, 및 약 78 중량% 내지 약 91 중량%의 상기 에멀전이 조합될 수 있다.

발명의 효과

- [22] 상술한 바와 같이 본 발명의 예시적인 실시예들에 따르면, 자외선 흡수 기능을 갖는 그래핀 양자점을 화장품 조성물에 포함시킬 수 있다. 예를 들어, 그래핀 양자점이 이산화티탄과 같은 무기계열 자외선 산란제 및 유기 계열 자외선 흡수제와 함께 사용되는 경우, 상기 무기 물질에 의한 피부 발림성 저하, 백탁

현상 등을 현저히 개선하여 피부에의 친화성을 증가시킬 수 있다. 또한, 이산화티탄에 의한 광촉매 반응을 억제하고, 자외선 흡수 가능한 파장 영역 및 흡수 세기를 확장시킬 수 있다.

- [23] 상기 그래핀 양자점은 저비용으로 표준화된 공정에 의해 생산될 수 있으므로, 화장료 조성물의 경제성 역시 향상될 수 있다.

도면의 간단한 설명

- [24] 도 1은 예시적인 실시예들에 따른 화장료 조성물의 제조 방법을 설명하기 위한 순서도이다.
- [25] 도 2는 건조된 분말상의 그래핀 양자점의 사진이다.
- [26] 도 3은 실험예 1에 따른 조성물들을 사용하여 자외선 흡수능을 측정한 UV/VIS 그래프이다.
- [27] 도 4는 실험예 2에 따른 조성물들을 사용하여 자외선 흡수능을 측정한 UV/VIS 그래프이다.
- [28] 도 5는 실험예 3에 따른 스킨 토너를 사용하여 자외선 흡수능을 측정한 UV/VIS 그래프이다.
- [29] 도 6은 예시적인 실시예들에 따른 화장료 조성물의 발색을 비교하기 위한 사진들이다.
- [30] 도 7은 예시적인 실시예들에 따른 화장료 조성물의 피부 발림성을 나타내는 사진들이다.
- [31] 도 8은 예시적인 실시예들에 따른 화장료 조성물의 피부 안정성을 나타내는 사진들이다.

발명의 실시를 위한 최선의 형태

- [32] 이하, 첨부한 도면을 참조하여 본 발명의 실시예에 대해 상세히 설명한다. 본 발명은 다양한 변경을 가할 수 있고 여러 가지 형태를 가질 수 있는 바, 특정 실시예들을 예시하고 본문에 상세하게 설명하고자 한다. 그러나 이는 본 발명을 특정한 개시 형태에 대해 한정하려는 것이 아니며, 본 발명의 사상 및 기술 범위에 포함되는 모든 변경, 균등물 내지 대체물을 포함하는 것으로 이해되어야 한다. 첨부된 도면에 있어서, 구조물들의 치수는 본 발명의 명확성을 기하기 위하여 실제보다 확대하여 도시한 것이다.
- [33] 본 출원에서 사용한 용어는 단지 특정한 실시예를 설명하기 위해 사용된 것으로, 본 발명을 한정하려는 의도가 아니다. 단수의 표현은 문맥상 명백하게 다르게 뜻하지 않는 한, 복수의 표현을 포함한다. 본 출원에서, "포함하다" 또는 "가지다" 등의 용어는 명세서상에 기재된 특징, 숫자, 단계, 동작, 구성요소 또는 이들을 조합한 것이 존재함을 지정하려는 것이지, 하나 또는 그 이상의 다른 특징들이나 숫자, 단계, 동작, 구성요소 또는 이들을 조합한 것들의 존재 또는 부가 가능성을 미리 배제하지 않는 것으로 이해되어야 한다.
- [34] 다르게 정의되지 않는 한, 기술적이거나 과학적인 용어를 포함해서 여기서

사용되는 모든 용어들은 본 발명이 속하는 기술분야에서 통상의 지식을 가진 자에 의해 일반적으로 이해되는 것과 동일한 의미를 가지고 있다. 일반적으로 사용되는 사전에 정의되어 있는 것과 같은 용어들은 관련 기술의 문맥 상 가지는 의미와 일치하는 의미를 가지는 것으로 해석되어야 하며, 본 출원에서 명백하게 정의하지 않는 한, 이상적이거나 과도하게 형식적인 의미로 해석되지 않는다.

[35] **화장료 조성물**

[36] 예시적인 실시예들에 따르면, 화장료 조성물은 그래핀 양자점(Graphene Quantum Dots: GQD)을 포함할 수 있다. 상기 그래핀 양자점이 포함됨에 따라 상기 화장료 조성물은 자외선 흡수 기능을 가지며 이에 따라, 자외선 차단 기능이 부여된 각종 화장품, 미용 제품으로 제공될 수 있다.

[37] 상기 그래핀 양자점은 최종적으로 건조된 분말 상으로 제조될 수 있다(도 2 참조). 일부 실시예들에 있어서, 상기 그래핀 양자점은 자외선 흡수 기능의 효율을 위해 예를 들면 약 20 nm 이하의 직경을 갖는 것을 사용할 수 있다. 일 실시예에 있어서, 약 10 nm 내지 약 20 nm의 직경을 갖는 그래핀 양자점을 사용할 수 있다.

[38] 일부 예시적인 실시예들에 따르면, 상기 화장료 조성물은 자외선 차단제로 제공될 수 있다. 예시적인 실시예들에 따르면, 상기 자외선 차단제는 에멀전, 무기 자외선 산란제, 유기 자외선 흡수제 및 상기 그래핀 양자점을 포함할 수 있다.

[39] 상기 에멀전은 상기 자외선 차단제의 도포성, 피부 적용성을 부여하기 위한 베이스 제제일 수 있다. 상기 에멀전은 다양한 유기 계열의 당해 기술 분야에서 공지된 물질을 포함할 수 있으며, 특별히 그 조성이 한정되는 것은 아니다.

[40] 예시적인 실시예들에 따르면, 상기 무기 자외선 산란제로서 이산화티탄(TiO_2)을 사용할 수 있다. 일부 실시예들에 있어서, 상기 무기 자외선 산란제로서 예를 들면, 약 100 nm 이하의 직경을 갖는 금홍석(rutile) 이산화티탄 나노입자를 사용할 수 있다. 아나타제(anatase) 형태의 이산화티탄 나노입자를 사용하는 경우, 자외선에 의해 광촉매 반응이 활성화되어 라디칼과 같은 활성종이 다량 생성될 수 있으므로, 금홍석 형태의 이산화티탄 나노입자를 사용할 수 있다.

[41] 상기 유기 자외선 흡수제로서 UVB 영역의 자외선을 흡수할 수 있는 유기 화합물을 사용할 수 있다. 예를 들면, 상기 유기 자외선 흡수제로서 에틸헥실 메톡시신나메이트(예를 들면, 2-Ethylhexyl 4-methoxycinnamate), 에틸헥실살리실레이트, 4-메틸벤질리텐캄퍼, 이소아밀 p-메톡시신나메이트, 옥토크릴렌, 페닐벤즈이미다졸설폰산, 호모살레이트, 시녹세이트, 에틸헥실트리아존, 폴리실리콘-15, 티이에이-살리실레이트, 팜바(PABA), 에틸헥실디메틸파바, 글리세릴파바 등을 사용할 수 있다. 이들은 단독으로 또는 2 이상이 조합되어 사용될 수 있다.

[42] 일부 예시적인 실시예들에 있어서, 상기 유기 자외선 흡수제로서 에틸헥실 메톡시신나메이트를 사용할 수 있다.

- [43] 예시적인 실시예들에 있어서, 상기 자외선 차단제는 총 중량 대비 약 0.5 중량% 내지 약 5 중량%의 상기 그래핀 양자점, 약 5 중량% 내지 약 10 중량%의 상기 무기 자외선 산란제, 약 3 내지 약 7.5 중량%의 상기 유기 자외선 흡수제, 및 잔량의 상기 에멀전을 포함할 수 있다. 예를 들면, 상기 에멀전은 상기 자외선 차단제의 총 중량 대비 약 78 중량% 내지 약 91 중량%의 함량으로 포함될 수 있다.
- [44] 상술한 바와 같이, 예시적인 실시예들에 따르면, 상기 그래핀 양자점의 첨가에 의해 상기 자외선 차단제의 자외선 흡수능력(예를 들면, 흡수 파장 영역 및 흡수 세기)이 보다 강화될 수 있다.
- [45] 추가적으로, 상기 자외선 차단제에 자외선 흡수 기능을 갖는 상기 그래핀 양자점이 포함되므로, 상기 무기 자외선 산란제 및 상기 유기 자외선 흡수제의 함량이 인체 적용을 위한 허용 한도보다 감소될 수 있다. 예를 들면, 피부 발림성이 약하고, 광촉매 반응을 유발할 수 있는 이산화티탄과 같은 상기 무기 자외선 산란제의 함량이 감소될 수 있다. 따라서, 피부 질환과 같은 부작용을 야기하지 않으면서 인체 친화도 및/또는 적합성이 향상된 자외선 차단제가 수득될 수 있다.
- [46] 또한, 상기 그래핀 양자점의 갈색 계통의 고유한 색상이 백색의 이산화티탄과 혼합되어, 자연스러운 피부색 발현이 가능할 수 있다. 따라서, 추가적인 색소, 안료의 첨가 없이도 적용 가능한 자외선 차단제가 수득될 수 있다.
- [47] 예시적인 실시예들에 따른 화장품 조성물은 상기 자외선 차단제에 제한되는 것은 아니다. 예를 들면, 상기 화장품 조성물은 상기 그래핀 양자점이 포함된 미백용 로션, 보습제, 스킨 등과 같은 다양한 화장품 제품으로 제조되어 자외선 흡수능이 부여된 기능성 조성물로 제공될 수 있다.
- [48] 도 1은 예시적인 실시예들에 따른 화장품 조성물의 제조 방법을 설명하기 위한 순서도이다. 예를 들면, 도 1은 그래핀 양자점이 첨가된 자외선 차단제의 제조 방법을 설명하고 있다. 한편, 도 2는 건조된 분말상의 그래핀 양자점의 사진이다.
- [49] 도 1 및 도 2를 참조하면, 단계 S10에서, 그래핀 양자점 분말을 준비할 수 있다.
- [50] 일부 실시예들에 있어서, 상기 그래핀 양자점은 금속 이온이 그래파이트 층에 삽입된 그래파이트 층간 화합물로부터 금속 이온을 제거함으로써 제조될 수 있다. 상기 그래핀 양자점의 제조 방법은 예를 들면, 본 출원에 참조로서 병합되는 본 출원인의 공개특허공보 제2015-0044326호(공개일 2015.05.04, 출원번호 2013-0127275)를 참조할 수 있다. 예를 들면, 상기 그래핀 양자점은 약 20 nm 이하의 직경을 갖는 수분산체로서 제조될 수 있다.
- [51] 이후, 물에 분산된 상기 그래핀 양자점을 예를 들면, 약 100°C 내지 약 130°C의 온도에서 건조시켜 도 2에 도시된 바와 같은 그래핀 양자점 분말을 수득할 수 있다.
- [52] 그러나, 상기 그래핀 양자점은 상기 그래파이트 층간 화합물 외에 다양한 탄소 전구체들로부터 수득될 수도 있다.

- [53] 다시 도 1을 참조하면, 단계 S20에서, 상기 그래핀 양자점 분말 및 무기 자외선 산란제의 혼합물을 제조할 수 있다.
- [54] 상술한 바와 같이, 상기 무기 자외선 산란제로서 금홍석 이산화티탄을 사용할 수 있다. 예를 들면, 상기 그래핀 양자점 분말 및 금홍석 이산화티탄을 유발 및 막자사발을 이용하여 고르게 혼합/교반하여 상기 혼합물을 제조할 수 있다.
- [55] 단계 S30에서, 상기 혼합물을 열처리하여 복합 안료를 형성할 수 있다.
- [56] 예시적인 실시예들에 따르면, 약 100°C 내지 약 200°C의 온도에서 상기 혼합물을 수분 내지 수백분 동안 가열하여 상기 그래핀 양자점 분말 및 금홍석 이산화티탄이 고르게 분포되어 실질적으로 균일상으로 형성된 복합 안료가 제조될 수 있다. 상기 열처리에 의해 상기 복합 안료들에 포함된 상기 그래핀 양자점 분말 및 금홍석 이산화티탄의 결정 구조가 안정화될 수 있다. 일부 실시예들에 있어서, 상기 열처리는 약 150°C 내지 약 200°C의 온도에서 수행될 수 있다.
- [57] 이후, 단계 S40에서, 상기 복합 안료에 유기 자외선 흡수제 및 에멀전을 혼합하여 예시적인 실시예들에 따른 화장료 조성물이 제조될 수 있다.
- [58] 상술한 바와 같이, 상기 유기 자외선 흡수제로서 에틸헥실 메톡시신나메이트와 같은 UVB 영역 자외선 흡수 기능을 갖는 유기 화합물을 사용할 수 있다.
- [59] 일부 실시예들에 따르면, 제조된 상기 화장료 조성물은 총 중량 대비 약 0.5 중량% 내지 약 5 중량%의 상기 그래핀 양자점, 약 5 중량% 내지 약 10 중량%의 상기 무기 자외선 산란제, 약 3 내지 약 7.5 중량%의 상기 유기 자외선 흡수제, 및 약 78 중량% 내지 약 91 중량%의 상기 에멀전을 포함할 수 있다.
- [60] 이하에서는, 구체적인 실험예를 참조로 예시적인 실시예들에 따른 화장료 조성물의 특성에 대해 보다 상세히 설명한다.
- [61]
- [62] **실험예 1: 그래핀 양자점 추가에 따른 자외선 흡수능 평가**
- [63] 도 1을 참조로 설명한 제조 방법에 따라, 하기의 표 1에 따른 조성을 갖는 조성물들을 제조하였다. 구체적으로, 무기 자외선 산란제로서 금홍석 이산화티탄(rutile TiO₂)을 사용하였고, 유기 자외선 흡수제로서 2-에틸헥실 4-메톡시신나메이트(OMC)를 사용하였다. 그래핀 양자점은 GQD로 표시된다

[64] [표1]

구분(No)	조성(중량%)			
	에멀전	OMC	rutile TiO ₂	GQD
1	100	-	-	-
2	94	6	-	-
3	95	-	5	-
4	99.75	-	-	0.25
5	89	6	5	-
6	93.75	6	-	0.25
7	94.75	-	5	0.25
8	88.75	6	5	0.25

[65] 도 3은 실험예 1에 따른 조성물들(표 1의 조성물들)을 사용하여 자외선 흡수능을 측정한 UV/VIS 그래프이다.

[66] 표 1 및 도 3을 참조하면, OMC를 포함한 조성물 2의 경우 약 320 nm 내지 약 340 nm 영역의 UV를 흡수하며, 조성물 6과 같이 그래핀 양자점이 추가됨에 따라 흡수의 세기가 보다 강해짐을 알 수 있다. 따라서, 상기 그래핀 양자점이 자외선 흡수 강화제로서 작용함을 알 수 있다.

[67] 한편, OMC 및 TiO₂가 함께 포함된 조성물 5의 경우 보다 넓은 파장 범위에서 UV 흡수능이 나타났으며, 조성물 8과 같이 그래핀 양자점이 추가됨에 따라 흡수 파장 영역 및 흡수의 세기가 보다 강화됨을 알 수 있다.

[68] 따라서, TiO₂의 첨가에 따라 흡수되는 파장의 범위가 보다 확대될 수 있으며, 그래핀 양자점이 첨가되면서 흡수의 세기가 강화됨을 예측할 수 있다.

[69]

[70] 실험예 2: 그래핀 양자점 함량에 따른 자외선 흡수능 평가

[71] 도 1 및 실험예 1을 참조로 설명한 제조 방법에 따라, 하기의 표 2에 따른 조성을 갖는 조성물들을 제조하였다.

[72] [표2]

구분(No)	조성(중량%)			
	에멀전	OMC	rutile TiO ₂	GQD
1	100	-	-	-
2	84	6	10	-
3	83.5	6	10	0.5
4	83	6	10	1.0

[73] 도 4는 실험예 2에 따른 조성물들(표 2의 조성물들)을 사용하여 자외선 흡수능을 측정한 UV/VIS 그래프이다.

[74] 표 2 및 도 4를 참조하면, 조성물 2에서 그래핀 양자점이 추가됨에 따라(조성물 3) 전체적으로 UV 흡수 세기가 증가하였으며, 특히 약 340 nm 이상의 범위에서 이러한 경향이 확인되었다. 또한, 그래핀 양자점이 더욱 증가됨에 따라(조성물 4) UV 흡수 세기가 추가적으로 증가되었다.

[75]

[76] **실험예 3: 그래핀 양자점이 첨가된 스킨 토너의 자외선 흡수능 평가**

[77] 상업적으로 시판되는 스킨 토너 제품에 그래핀 양자점을 아래의 표 3에 따라 첨가하여 자외선 흡수 특성을 평가하였다.

[78] [표3]

구분	조성	
	스킨 토너	GQD
1	5 mL	-
2	5 mL	0.5 mg
3	5 mL	1 mg
4	5 mL	2 mg

[79] 도 5는 실험예 3에 따른 스킨 토너를 사용하여 자외선 흡수능을 측정한 UV/VIS 그래프이다.

[80] 표 3 및 도 5를 참조하면, 일반 스킨 토너는 약 300 nm 이상의 파장 범위에서는 실질적으로 흡수능을 보이지 않으나, 그래핀 양자점의 양이 증가함에 따라 약 300 nm 이상의 파장의 UV 영역에서 흡수 세기가 증가함을 알 수 있다.

[81] 따라서, 자외선 차단제 뿐만 아니라 일반 화장품 제품에도 자외선 차단 기능을 부여하기 위해 그래핀 양자점을 첨가할 수 있음을 확인할 수 있다.

[82] 도 6은 예시적인 실시예들에 따른 화장품 조성물의 발색을 비교하기 위한 사진들이다. 구체적으로 도 6은 실험예 2의 조성물 2, 조성물 3 및 조성물 4(표 2 참조)의 발색을 나타내는 사진들이다.

[83] 도 6을 참조하면, 예컨대, OMC 및 이산화티탄만을 포함하는 조성물 2의 경우 백색을 나타내나, 그래핀 양자점이 추가되면서 피부색에 가까운 색상으로 변화함을 확인할 수 있다.

[84] 도 7은 예시적인 실시예들에 따른 화장품 조성물의 피부 발림성을 나타내는 사진들이다. 구체적으로, 도 7은 실험예 1의 조성물 8(표 1 참조)을 피부에 도포하는 과정을 나타내는 사진들이다.

[85] 도 7을 참조하면, 그래핀 양자점을 포함하는 예시적인 실시예들에 따른 자외선 차단제는 백탁 현상, 들뜸 현상 없이 실질적으로 피부색과 동일한 색상으로 도포됨을 확인할 수 있다.

[86] 도 8은 예시적인 실시예들에 따른 화장품 조성물의 피부 안정성을 나타내는 사진들이다. 구체적으로, 도 8은 실험예 2의 조성물 4(표 2 참조)을 피부에

적용시킨 후 24시간 이후에 촬영된 사진을 포함하고 있다.

- [87] 도 8을 참조하면, 그래핀 양자점을 포함하는 예시적인 실시예들에 따른 자외선 차단제를 적용 후, 장시간이 지난 경우에도 두드러기, 피부 변색 등과 같은 부작용이 관찰되지 않았다.

산업상 이용가능성

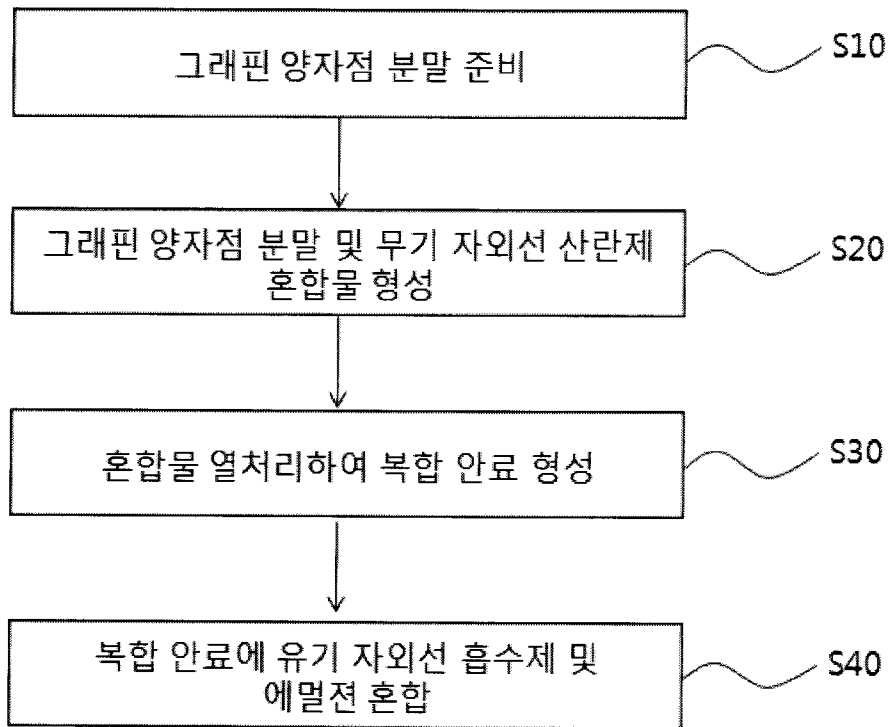
- [88] 전술한 예시적인 실시예들에 따른 화장료 조성물은 그래핀 양자점을 포함하며, 향상된 피부 친화도, 적용성을 가지며 자외선 차단 기능성을 보유할 수 있다. 상기 화장료 조성물은 자외선 차단제 뿐만 아니라 자외선 차단성이 부가된 스킨, 로션 등 다양한 화장료 제품으로 제공될 수 있다.
- [89] 이상에서는 본 발명의 실시예들을 참조하여 설명하였지만, 해당 기술 분야의 숙련된 당업자는 하기의 특허 청구의 범위에 기재된 본 발명의 사상 및 영역으로부터 벗어나지 않는 범위 내에서 본 발명을 다양하게 수정 및 변경시킬 수 있음을 이해할 수 있을 것이다.

청구범위

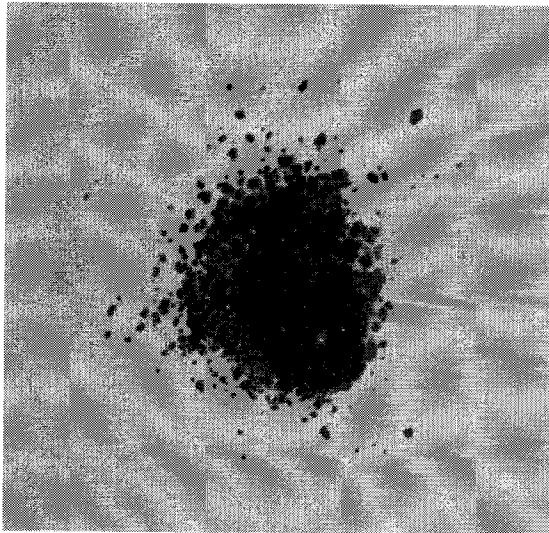
- [청구항 1] 그래핀 양자점(Graphene Quantum Dots: GQD)을 포함하며 자외선 차단 기능을 갖는 화장품 조성물.
- [청구항 2] 제1항에 있어서, 상기 조성물은 상기 그래핀 양자점, 무기 자외선 산란제, 유기 자외선 흡수제 및 에멀전을 포함하는 화장품 조성물.
- [청구항 3] 제2항에 있어서, 상기 조성물은 총 중량 대비 0.5 중량% 내지 5 중량%의 상기 그래핀 양자점, 5 중량% 내지 10 중량%의 상기 무기 자외선 산란제, 3 내지 7.5 중량%의 상기 유기 자외선 흡수제, 및 78 중량% 내지 91 중량%의 상기 에멀전을 포함하는 화장품 조성물.
- [청구항 4] 제2항에 있어서, 상기 무기 자외선 산란제는 금홍석(rutile) 이산화티탄을 포함하는 화장품 조성물.
- [청구항 5] 제2항에 있어서, 상기 유기 자외선 흡수제는 에틸헥실 메톡시신나메이트, 에틸헥실살리실레이트, 4-메틸벤질리덴캠퍼, 이소아밀 p-메톡시신나메이트, 옥토크릴렌, 페닐벤즈이미다졸설포닉산, 호모살레이트, 시녹세이트, 에틸헥실트리아존, 폴리실리콘-15, 티에이-살리실레이트, 팜바(PABA), 에틸헥실디메틸파마 및 글리세릴파마로 구성된 그룹에서 선택된 적어도 하나를 포함하는 화장품 조성물.
- [청구항 6] 그래핀 양자점 분말을 준비하는 단계;
상기 그래핀 양자점 분말 및 무기 자외선 산란제의 혼합물을 제조하는 단계;
상기 혼합물을 열처리하여 복합 안료를 형성하는 단계; 및
상기 복합 안료에 유기 자외선 흡수제 및 에멀전을 혼합하는 단계를 포함하는 자외선 차단제의 제조 방법
- [청구항 7] 제6항에 있어서, 상기 그래핀 양자점 분말을 준비하는 단계는 금속 이온이 그래파이트 층에 삽입된 그래파이트 층간 화합물로부터 금속 이온을 제거하여 그래핀 양자점 수분산체를 제조하는 단계를 포함하는 자외선 차단제의 제조 방법.
- [청구항 8] 제7항에 있어서, 상기 그래핀 양자점 분말을 준비하는 단계는 상기 그래핀 양자점 수분산체를 100°C 내지 130°C의 온도에서 건조시키는 단계를 더 포함하는 자외선 차단제의 제조 방법.
- [청구항 9] 제6항에 있어서, 상기 혼합물을 열처리하는 단계는 100°C 내지 200°C의 온도에서 수행되는 자외선 차단제의 제조 방법.
- [청구항 10] 제6항에 있어서, 상기 무기 자외선 산란제 및 상기 유기 자외선 흡수제로서 각각 금홍석 이산화티탄 및 에틸헥실 메톡시신나메이트를 사용하는 자외선 차단제의 제조 방법.
- [청구항 11] 제6항에 있어서, 상기 자외선 차단제의 총 중량 대비 0.5 중량% 내지 5

중량%의 상기 그래핀 양자점 분말, 5 중량% 내지 10 중량%의 상기 무기 자외선 산란제, 3 내지 7.5 중량%의 상기 유기 자외선 흡수제, 및 78 중량% 내지 91 중량%의 상기 에멀전이 조합되는 자외선 차단제의 제조 방법.

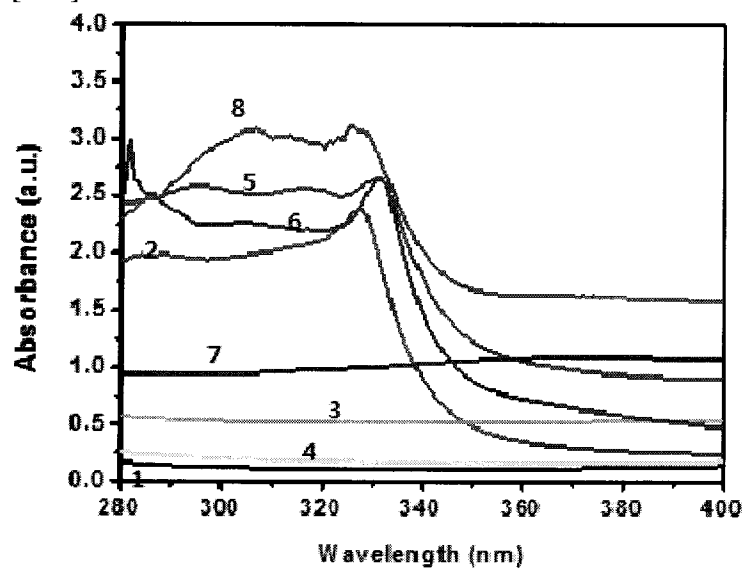
[도1]



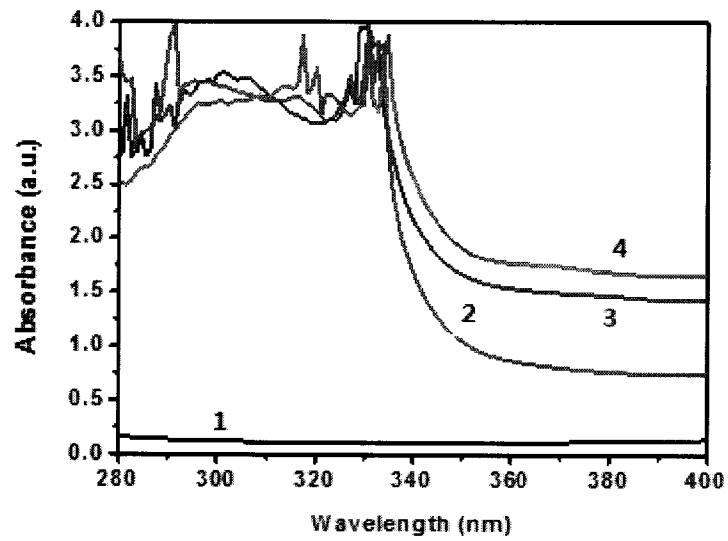
[도2]



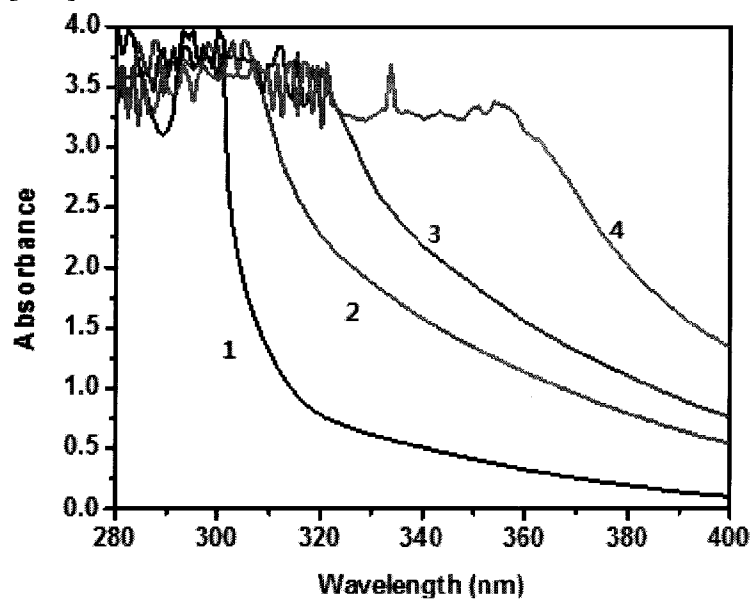
[도3]



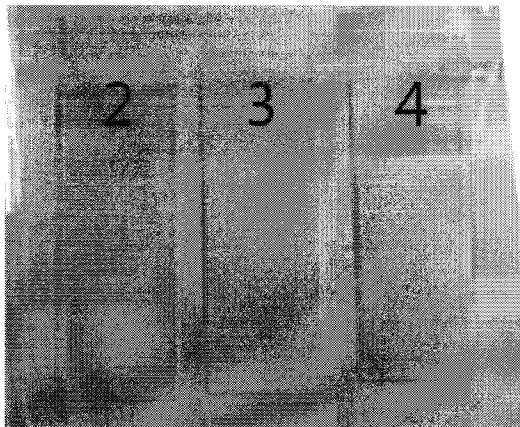
[도4]



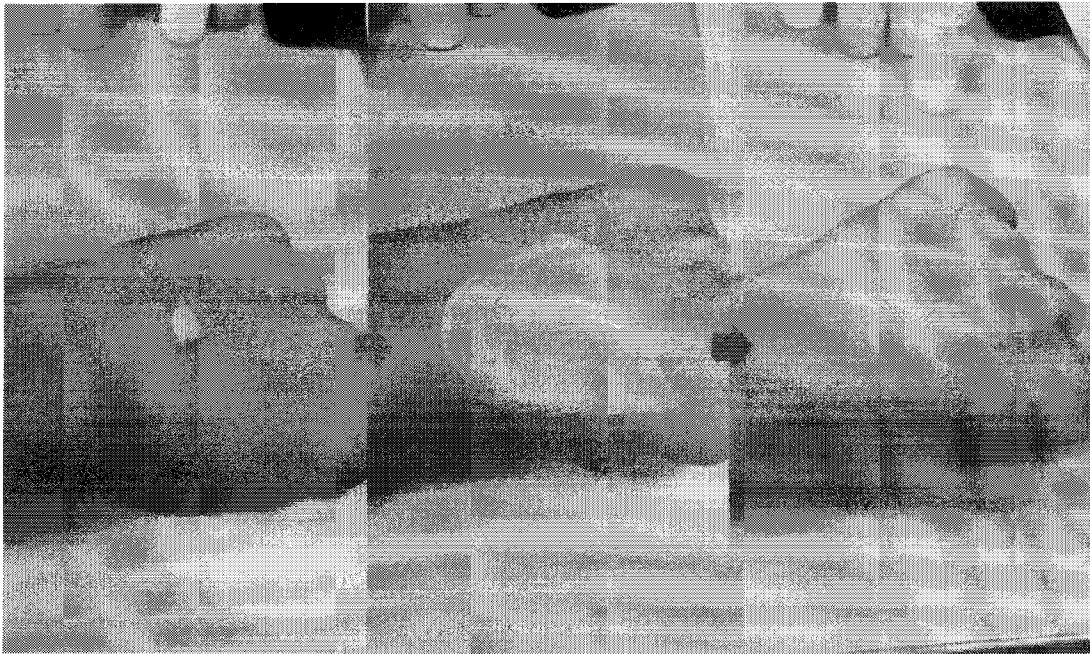
[도5]



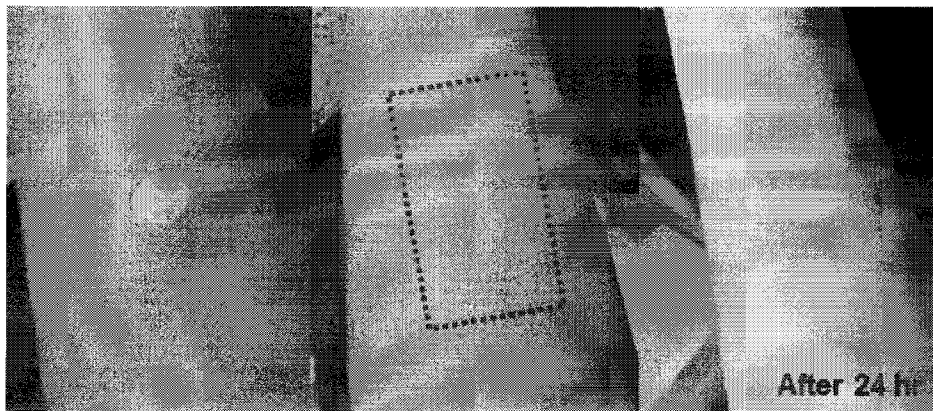
[도6]



[도7]



[도8]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/KR2015/013715

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

A61K 8/19(2006.01)i, A61K 8/29(2006.01)i, A61K 8/30(2006.01)i, A61Q 17/04(2006.01)i, A61Q 19/00(2006.01)i

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)

A61K 8/19; A61P 29/00; A61K 8/27; A61N 5/06; A61F 9/00; A61K 8/29; A61K 9/16; A61K 47/30; C12N 15/11; A61K 33/40; C12Q 1/68; A61K 8/30; A61Q 17/04; A61Q 19/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Korean Utility models and applications for Utility models: IPC as above

Japanese Utility models and applications for Utility models: IPC as above

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

eKOMPASS (KIPO internal) & Keywords: graphene quantum dots (graphene quantum dots: GQD), ultraviolet rays, cosmetic composition, inorganic UV scattering agent, organic UV absorber, emulsion

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	KR 10-2015-0054186 A (GRAF CO., LTD.) 20 May 2015 See abstract; claims 1-4	1-11
A	KR 10-2014-0030395 A (INDUSTRY-ACADEMIC COOPERATION FOUNDATION CHUNGWOON UNIVERSITY et al.) 12 March 2014 See abstract; claims 1-3.	1-11
A	WO 2015-034930 A1 (WILLIAM MARSH RICE UNIVERSITY et al.) 12 March 2015 See abstract; claims 1-10.	1-11
A	KR 10-2015-0035126 A (ASTIN CO., LTD.) 06 April 2015 See paragraphs [0006]-[0007]; claims 1-12.	1-11
A	US 2014-0135680 A1 (PEYMAN, G. A.) 15 May 2014 See abstract; claims 1-10.	1-11
A	ZHANG, Q. et al., "Solution-Processed Graphene Quantum Dot Deep-UV Photodetectors", ACS Nano, 24 February 2015, vol. 9, no. 2, pages 1561-1570 See abstract; figures 1-2.	1-11
A	KR 10-2014-0100235 A (GACHON UNIVERSITY OF INDUSTRY-ACADEMIC COOPERATION FOUNDATION) 14 August 2014 See abstract; claims 1-5	1-11



Further documents are listed in the continuation of Box C.



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

21 MARCH 2016 (21.03.2016)

Date of mailing of the international search report

21 MARCH 2016 (21.03.2016)

Name and mailing address of the ISA/KR

Korean Intellectual Property Office
Government Complex-Daejeon, 189 Seonsa-ro, Daejeon 302-701,
Republic of Korea

Facsimile No. 82-42-472-7140

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/KR2015/013715

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member	Publication date
KR 10-2015-0054186 A	20/05/2015	NONE	
KR 10-2014-0030395 A	12/03/2014	KR 10-1410043 B1	27/06/2014
WO 2015-034930 A1	12/03/2015	NONE	
KR 10-2015-0035126 A	06/04/2015	KR 10-1575591 B1 WO 2015-046968 A1	08/12/2015 02/04/2015
US 2014-0135680 A1	15/05/2014	US 2014-0056815 A1	27/02/2014
KR 10-2014-0100235 A	14/08/2014	KR 10-1493808 B1	17/02/2015

A. 발명이 속하는 기술분류(국제특허분류(IPC))

A61K 8/19(2006.01)i, A61K 8/29(2006.01)i, A61K 8/30(2006.01)i, A61Q 17/04(2006.01)i, A61Q 19/00(2006.01)i

B. 조사된 분야

조사된 최소문헌(국제특허분류를 기재)

A61K 8/19; A61P 29/00; A61K 8/27; A61N 5/06; A61F 9/00; A61K 8/29; A61K 9/16; A61K 47/30; C12N 15/11; A61K 33/40; C12Q 1/68; A61K 8/30; A61Q 17/04; A61Q 19/00

조사된 기술분야에 속하는 최소문헌 이외의 문헌

한국등록실용신안공보 및 한국공개실용신안공보: 조사된 최소문헌란에 기재된 IPC
일본등록실용신안공보 및 일본공개실용신안공보: 조사된 최소문헌란에 기재된 IPC

국제조사에 이용된 전산 데이터베이스(데이터베이스의 명칭 및 검색어(해당하는 경우))

eKOMPASS(특허청 내부 검색시스템) & 키워드: 그래핀 양자점(graphene quantum dots: GQD), 자외선, 화장료, 무기 자외선 산란제, 유기 자외선 흡수제, 에멀전

C. 관련 문헌

카테고리*	인용문헌명 및 관련 구절(해당하는 경우)의 기재	관련 청구항
A	KR 10-2015-0054186 A (주식회사 그래프) 2015.05.20 요약; 청구항 1-4 참조	1-11
A	KR 10-2014-0030395 A (청운대학교산학협력단 등) 2014.03.12 요약; 청구항 1-3 참조.	1-11
A	WO 2015-034930 A1 (WILLIAM MARSH RICE UNIVERSITY 등) 2015.03.12 요약; 청구항 1-10 참조.	1-11
A	KR 10-2015-0035126 A (에이스틴 주식회사) 2015.04.06 단락 [0006]-[0007]; 청구항 1-12 참조.	1-11
A	US 2014-0135680 A1 (PEYMAN, G. A.) 2014.05.15 요약; 청구항 1-10 참조.	1-11
A	ZHANG, Q. 등, "Solution-processed graphene quantum dot deep-UV photodetectors", ACS Nano, 2015.02.24., 9권, 2호, 페이지 1561-1570 요약; 도면 1-2 참조.	1-11
A	KR 10-2014-0100235 A (가천대학교 산학협력단) 2014.08.14 요약; 청구항 1-5 참조	1-11

☐ 추가 문헌이 C(계속)에 기재되어 있습니다.

☒ 대응특허에 관한 별지를 참조하십시오.

* 인용된 문헌의 특별 카테고리:

“A” 특별히 관련이 없는 것으로 보이는 일반적인 기술수준을 정의한 문헌

“T” 국제출원일 또는 우선일 후에 공개된 문헌으로, 출원과 상충하지 않으며 발명의 기초가 되는 원리나 이론을 이해하기 위해 인용된 문헌

“E” 국제출원일보다 빠른 출원일 또는 우선일을 가지나 국제출원일 이후에 공개된 선출원 또는 특허 문헌

“X” 특별한 관련이 있는 문헌. 해당 문헌 하나만으로 청구된 발명의 신규성 또는 진보성이 없는 것으로 본다.

“L” 우선권 주장에 의문을 제기하는 문헌 또는 다른 인용문헌의 공개일 또는 다른 특별한 이유(이유를 명시)를 밝히기 위하여 인용된 문헌

“Y” 특별한 관련이 있는 문헌. 해당 문헌이 하나 이상의 다른 문헌과 조합하는 경우로 그 조합이 당업자에게 자명한 경우 청구된 발명은 진보성이 없는 것으로 본다.

“O” 구두 개시, 사용, 전시 또는 기타 수단을 언급하고 있는 문헌

“&” 동일한 대응특허문헌에 속하는 문헌

“P” 우선일 이후에 공개되었으나 국제출원일 이전에 공개된 문헌

국제조사의 실제 완료일

2016년 03월 21일 (21.03.2016)

국제조사보고서 발송일

2016년 03월 21일 (21.03.2016)

ISA/KR의 명칭 및 우편주소

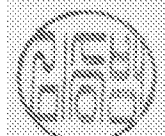
대한민국 특허청
(35208) 대전광역시 서구 청사로 189,
4동 (둔산동, 정부대전청사)

팩스 번호 +82-42-472-7140

심사관

김승범

전화번호 +82-42-481-3371



국제조사보고서에서 인용된 특허문헌	공개일	대응특허문헌	공개일
KR 10-2015-0054186 A	2015/05/20	없음	
KR 10-2014-0030395 A	2014/03/12	KR 10-1410043 B1	2014/06/27
WO 2015-034930 A1	2015/03/12	없음	
KR 10-2015-0035126 A	2015/04/06	KR 10-1575591 B1 WO 2015-046968 A1	2015/12/08 2015/04/02
US 2014-0135680 A1	2014/05/15	US 2014-0056815 A1	2014/02/27
KR 10-2014-0100235 A	2014/08/14	KR 10-1493808 B1	2015/02/17