

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第5778757号
(P5778757)

(45) 発行日 平成27年9月16日 (2015. 9. 16)

(24) 登録日 平成27年7月17日 (2015. 7. 17)

(51) Int. Cl. F I
C O 8 F 220/28 (2006. 01) C O 8 F 220/28
A 6 1 K 8/81 (2006. 01) A 6 1 K 8/81
A 6 1 Q 19/00 (2006. 01) A 6 1 Q 19/00
A 6 1 Q 5/00 (2006. 01) A 6 1 Q 5/00

請求項の数 23 (全 97 頁)

(21) 出願番号 特願2013-504934 (P2013-504934)
(86) (22) 出願日 平成23年4月4日 (2011. 4. 4)
(65) 公表番号 特表2013-525521 (P2013-525521A)
(43) 公表日 平成25年6月20日 (2013. 6. 20)
(86) 国際出願番号 PCT/US2011/031044
(87) 国際公開番号 W02011/130030
(87) 国際公開日 平成23年10月20日 (2011. 10. 20)
審査請求日 平成24年10月24日 (2012. 10. 24)
(31) 優先権主張番号 13/035, 383
(32) 優先日 平成23年2月25日 (2011. 2. 25)
(33) 優先権主張国 米国 (US)
(31) 優先権主張番号 61/323, 484
(32) 優先日 平成22年4月13日 (2010. 4. 13)
(33) 優先権主張国 米国 (US)

(73) 特許権者 591035368
エア プロダクツ アンド ケミカルズ
インコーポレイテッド
AIR PRODUCTS AND CH
EMICALS INCORPORATE
D
アメリカ合衆国 ペンシルヴェニア アレ
ンタウン ハミルトン ブールヴァード
7201
7201 Hamilton Boule
vard, Allentown, Pe
nnsylvania 18195-15
01, USA

前置審査

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 カチオン性／カチオン生成性の櫛形ポリマー組成物及びそれを含むパーソナルケア製品

(57) 【特許請求の範囲】

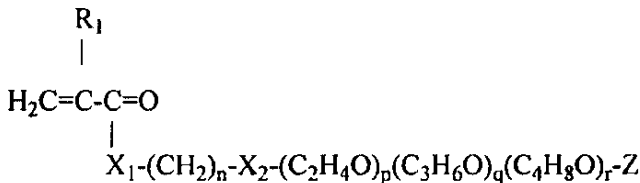
【請求項 1】

以下の繰返し単位を有する、櫛形コポリマー：

A) オレフィン系不飽和カチオン性モノマー又はカチオン生成性モノマーから導かれる 1 種以上の繰返し単位；及び

B) 以下の式のモノマーから導かれる 1 種以上の繰返し単位：

【化 1】



10

(式中、 X_1 及び X_2 は、独立して O、S、NH 又は NHCOO のいずれかであり； R_1 は、H 又は CH_3 のいずれかであり； n は、0～6 であり ($n=0$ の場合、 X_2 は省略される)； p は 0～50、 q は 0～50、かつ r は 0～50 であり、また p 、 q 及び r の繰返し単位は、ランダムで、交互で、ブロックで又は勾配構造で組み込まれてもよく； Z は、8～50 の範囲の炭素原子を有する直鎖、分岐鎖及び環状のアルキル基、アリール基及

20

びアラルキル基からなる群より選択される)、

ここで、前記会合性部位 Z の、前記グループ A) の繰返し単位を導くための前記モノマーに対する重量比は、0.15～6.5である。

【請求項 2】

以下のグループの少なくとも 1 つより選択されるモノマーから導かれる、1 種以上の繰返し単位をさらに有する、請求項 1 に記載の楕形コポリマー：

C) アクリルアミドモノマー；

D) A、B、又は C ではない、1 種以上のオレフィン系不飽和親水性モノマー；又は

E) A、B、C、又は D ではない、1 種以上のオレフィン系不飽和モノマー。

【請求項 3】

10

グループ C、D、又は E の少なくとも 2 つより選択されるモノマーから導かれる繰返し単位を 1 つ以上有する、請求項 2 に記載の楕形コポリマー。

【請求項 4】

グループ C、D、及び E のそれぞれより選択されるモノマーから導かれる繰返し単位を 1 種以上有する、請求項 3 に記載の楕形コポリマー。

【請求項 5】

前記コポリマー中のイオン性モノマー及びイオン生成性モノマーの重量パーセントが、2～45%である、請求項 2 に記載の楕形コポリマー。

【請求項 6】

前記コポリマー中のイオン性モノマーの重量パーセントが、2～45%である、請求項 2 に記載の楕形コポリマー。

20

【請求項 7】

前記コポリマー中の会合性部位 Z の重量パーセントが、2～50%である、請求項 2 に記載の楕形コポリマー。

【請求項 8】

会合性部位 Z の、イオン性モノマー及びイオン生成性モノマーに対する重量比が、0.1～5.5である、請求項 2 に記載の楕形コポリマー。

【請求項 9】

非結晶性である、請求項 2 に記載の楕形コポリマー。

【請求項 10】

30

100wt%固形分のポリマーについて示差走査熱量分析によって測定した場合に 3 J/g 超の融解熱を与える発熱ピークの温度が、100℃未満である、請求項 2 に記載の楕形コポリマー。

【請求項 11】

25℃での希釈水中の 3wt%（固形分）溶液の粘度が、250cP 未満である、請求項 2 に記載の楕形コポリマー。

【請求項 12】

架橋していない、請求項 2 に記載の楕形コポリマー。

【請求項 13】

前記グループ E のモノマーが、モノオレフィン系不飽和モノマーである、請求項 2 に記載の楕形コポリマー。

40

【請求項 14】

以下を含有するパーソナルケア製品：

化粧品基礎媒体；及び

0.1wt%～20wt%の請求項 1～10、12、及び 13 のいずれか一項に記載の楕形コポリマー。

【請求項 15】

さらに有効成分を含有するパーソナルケア製品であって、前記楕形コポリマーを含有していない同じ配合のパーソナルケア製品に対して、前記楕形コポリマーが前記有効成分のケラチン質構造への沈着を少なくとも 10%向上させている、請求項 14 に記載のパーソ

50

ナルケア製品。

【請求項 16】

化粧品基礎媒体、及び請求項 1 ～ 13 のいずれか一項に記載の楕形コポリマーを含有する、パーソナルケア組成物。

【請求項 17】

前記楕形コポリマーの量が、前記化粧品媒体の以下の特性の少なくとも 1 つを変性するのに十分な量である、請求項 16 に記載のパーソナルケア組成物：有効成分の沈着及び保持、シリコンオイルの沈着及び保持、並びに感触性。

【請求項 18】

前記楕形コポリマーが架橋していない、請求項 16 に記載のパーソナルケア組成物。

10

【請求項 19】

前記楕形コポリマーが 25℃未満の T_m を有する、請求項 16 に記載のパーソナルケア組成物。

【請求項 20】

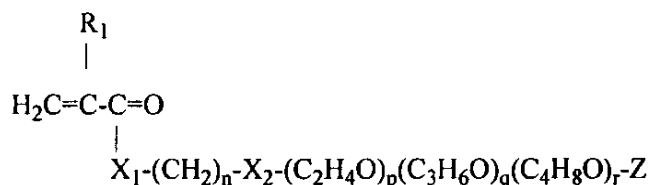
前記楕形コポリマーが 50wt% 未満の水溶解度を有する、請求項 18 に記載のパーソナルケア組成物。

【請求項 21】

前記楕形コポリマーが、12～22wt% のグループ A のモノマーで構成され、25～75wt% の以下の構造を有するモノマーで構成される、請求項 16 に記載のパーソナルケア組成物：

20

【化 2】



(式中、 $X_1 = O$ であり、 $n = q = r = 0$ であり、 p は 3～30 であり、 Z は 10～18 の範囲の炭素原子を有するアルキル基であり、前記コポリマー中で 7～30wt% の会合性部位 Z を有する)、

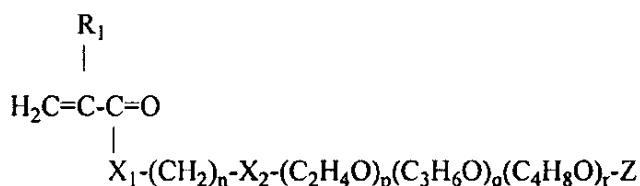
30

ここで、前記楕形コポリマーは架橋されておらず、かつ 25℃で測定した場合に 3重量% (固形分) での水中の溶液粘度が 100cP 未満を示す。

【請求項 22】

前記楕形コポリマーが、12～22wt% のグループ A のモノマーで構成され、25～75wt% の以下の構造を有するモノマーで構成される、請求項 16 に記載のパーソナルケア組成物。

【化 3】



40

(式中、 $X_1 = O$ であり、 $n = q = r = 0$ であり、 p は 3～30 であり、 Z は 10～18 の範囲の炭素原子を有するアルキル基であり、グループ C のアクリルアミドモノマーから構成され、前記コポリマー中で 7～30wt% の会合性部位 Z を有する)、

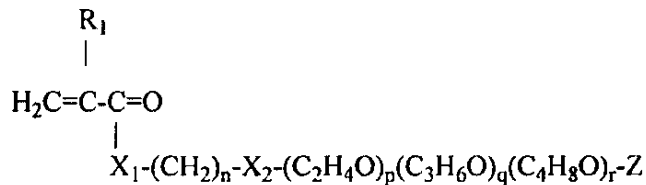
50

ここで、前記櫛形コポリマーは架橋されておらず、かつ 25℃で測定した場合に 3 重量 % (固形分) での水中の溶液粘度が 100 cP 未満を示す。

【請求項 23】

前記櫛形コポリマーが、12～22 wt % のグループ A のモノマーで構成され、25～75 wt % の以下の構造を有するモノマーで構成される、請求項 16 に記載のパーソナルケア組成物。

【化 4】



10

(式中、 $X_1 = O$ であり、 $n = q = r = 0$ であり、 p は 3～30 であり、 Z は 10～18 の範囲の炭素原子を有するアルキル基であり、前記コポリマー中で 7～30 wt % の会合性部位 Z を有する)、

ここで、前記櫛形コポリマーは架橋されておらず、かつ 25℃で測定した場合に 3 重量 % (固形分) での水中の溶液粘度が 100 cP 未満を示す。

20

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本開示は、コポリマーの分野に広く関連し、より詳しくはカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマー組成物並びにパーソナルケア製品及び他の製品でのそれらの使用に関する。

【背景技術】

【0002】

化粧品及び他のパーソナルケア製品に、ポリマー増粘剤が用いられることがある。多くの公知の増粘剤は、アニオン性官能基を有する親水性ポリマーを用いる。これは、高レベルの酸性モノマー、例えば (メタ) アクリル酸又は 2-アクリルアミド-2-メチルプロパンスルホン酸 (AMPS) から導かれるか、エトキシ化モノマー (ethoxylated monomer) 又はグラフトにより生成されたポリエチレングリコール (PEG) 包含体から導かれるかのいずれかである。いくつかの場合には、増粘効果は、架橋及び／又は疎水化変性により高められ、ごくわずかな疎水性を付与する会合性モノマーを含めることによって高められることがある。これらのポリマーは、シャンプー及び他の洗浄剤に用いられるアニオン性界面活性剤との適合性を与えるが、それらは限られた沈着性及び耐洗出性 (wash-off resistance) を与える。

30

【0003】

合成カチオン性ポリマーは、多くは架橋を有し、かつ／又は限られた沈着性及び感触的な効果のみを与える高分子量ポリマーである。これらのポリマーは、親水性のアミド官能基又はヒドロキシル官能基を通常は有する非イオン性のモノマーで多くの場合変性され、化粧品配合物への適合性を向上させる。いくつかのカチオン性ポリマーは、ごく少量の酸性官能基を含めることによって両性とされて、これは肌及び毛髪の配合物で望ましい pH 5～6 での適合性及び安定性を向上させる。

40

【0004】

これらの事前変性剤を用いることは、任意の 1 つの領域において適度な利益を越える利益を与えることができず、また望ましい特性の複数の領域にわたる利益を与えないので、通常不満足であり、これは複数の異なる変性剤及び他の添加剤を組み込んで、それらの個々の欠点を克服する必要性をもたらす。カチオンに変性した多糖は、例えば滑り (slip

50

p) 性及び感触的效果を与えるが、限られた沈着性を与える。

【0005】

特許文献1は、アニオン生成性／アニオン性基よりも過剰なモルのカチオン生成性／カチオン性基を有する第4級窒素含有モノマーに基づく両性コポリマーに関し、また少なくとも1種のそのような両性コポリマーを含む化粧品組成物又は薬剤組成物に関する。

【0006】

特許文献2は、少なくとも1種のカチオン性モノマーと、少なくとも1種の中性モノマー及び少なくとも1種の非イオン性界面活性剤モノマーとの共重合により得られる、直鎖でかつ架橋したカチオン性高分子電解質、並びに化粧品組成物又は薬剤組成物及び他の用途のための増粘剤としてのその使用に向けられる。

10

【0007】

特許文献3は、化粧品、薬剤、及び皮膚科学用途での、増粘剤、分散剤、懸濁剤、乳化剤、安定剤、可溶化剤、調節剤、調和性付与剤、潤滑剤、結合剤及び調整剤としてのアクリロイルジメチルタウリン及び／又はアクリロイルジメチルタウリン酸の櫛形ポリマーの使用に関する。このコポリマーは、アクリロイルジメチルタウリン（AMP S）及び／又はアクリロイルジメチルタウリン酸；並びに随意の1種以上のさらなるオレフィン系不飽和非カチオン性モノマー；随意の1種以上のオレフィン系不飽和カチオン性モノマー；随意の1種以上のケイ素含有成分；随意の1種以上のフッ素含有成分；随意の1種以上のマクロモノマーのフリーラジカル共重合によって得られ、かつ随意にこの共重合は、アクリロイルジメチルタウリン（AMP S）及び／又はアクリロイルジメチルタウリン酸を、ケイ素含有成分、フッ素含有成分、マクロモノマー又はポリマー添加剤の少なくとも1種と共重合する場合には、少なくとも1種のポリマー添加剤の存在下で行われる。

20

【0008】

特許文献4では、特定の式の1つ以上の構造単位、及び第二の式の1つ以上の構造単位を有する1種以上の水溶性非架橋コポリマーを含む、化粧品及び薬剤の調製が記載されている。この式は、水溶性又は水膨潤性の、架橋又は非架橋のコポリマー又はホモポリマーの増粘剤の1種以上も包含する。これらのポリマーは、一般的に高いイオン含量及び水溶性を有している。

【0009】

特許文献5は、低pHでカチオン性である少なくとも1つの塩基性のアミノ置換基、及び会合性ビニルモノマーから導かれる疎水性に変性した2つ以上のポリオキシアルキレン置換基を有するコポリマーについて記載している。そのビニルモノマーは、他のモノマー単位、例えば架橋モノマー単位、ヒドロキシ置換した非イオン性ビニルモノマー単位、連鎖移動剤単位及びポリマー安定剤から導びかれる置換基を随意に有することができ、これらは、一般に水溶液中で会合性を示すといわれる。

30

【0010】

以下に特定した特許及び特許出願の開示は、参照により本明細書に組み込まれる。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0011】

40

【特許文献1】カナダ国特許出願公開2662401号公報

【特許文献2】米国特許第7015279号公報

【特許文献3】米国特許第7279154号公報

【特許文献4】米国特許出願公開第2007／0248561号公報

【特許文献5】米国特許出願公開第2010／0056647号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0012】

しかし、これらの特許文献のいずれもが、多くの化粧品配合物中で実質的なレオロジーの向上と組み合わされる感触的效果及び沈着性の効果の両方を与える組成物、並びに有効

50

成分を沈着又は保持させる性質を有する組成物を、開示又は認識していないと考えられる。既存のカチオン性ポリマーは、通常にはケラチン質物質に対する持続性を有するが、活性物質の沈着／保持を顕著には改良しない。さらに、会合性モノマーをイオン性モノマー又はイオン生成性モノマーとの組合せで用いる多くの文献では、イオン性基又はイオン生成性基の会合性基に対する割合は、非常に高い。

【0013】

複数の利益を与えることができ、かつパーソナルケア製品及び他の製品に望ましい特性のバランスを与えることができるカチオン性コポリマーを提供することは有益であろう。特に、向上した沈着有効性と良好な感触性との両方を達成することは有益であろう。

【0014】

本発明の典型的な実施態様は、パーソナルケア製品での使用に関して望ましい特性のバランスを与えるカチオン性コポリマー組成物を提供することによって、これらの欠点及び他の欠点を克服する。これは、コポリマーの骨格にある親油性会合基と、イオン性基／イオン生成基との重量パーセントの関係を評価することによって、それぞれの望ましい特性を得るために用いる必要がある個々の成分の数を減らしながら、優れた結果を達成する。

【課題を解決するための手段】

【0015】

1つの実施態様では、カチオン性又はカチオン生成性櫛形コポリマーは、以下の繰返し単位を有する：

A) オレフィン系不飽和カチオン性又はカチオン生成性モノマーから導かれる1種以上の繰返し単位；及び

B) 以下の式を有する、1種以上の繰返し単位：

【化1】



(式中、Yは、コポリマー骨格の一部を形成する部位であり；Zは、他のZ部位の存在下で会合を示す部位、又はこのコポリマーが用いられる最終の配合物内の他の部位と会合を示す部位であり；かつbは、Z部位をY部位につなぐ部位又は結合である)。

【0016】

このコポリマーは、通常、以下のカテゴリーの少なくとも1つから導かれる1種以上の繰返し単位をさらに含む：

C) アクリルアミドモノマー；

D) A、B、又はCではない、1種以上のオレフィン系不飽和親水性モノマー；又は

E) A、B、C、又はDではない、1種以上のオレフィン系不飽和モノマー。

【0017】

他の1つの実施態様では、カチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーは、そのコポリマーに組み込まれるイオン性モノマー及びイオン生成性モノマーの重量%を、約2～約45%で有し、コポリマー中の会合性基Zの重量%は、約2～約50%であり、そしてイオン性モノマー及びイオン生成性モノマーに対する会合性基Zの重量比は、約0.1～約5.5である。

【0018】

他の1つの実施態様では、カチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーは、そのコポリマーに組み込まれるイオン性モノマーの重量%を約2～約45%で有し、コポリマー中の会合性基Zの重量%は、約2～約50%であり、そしてイオン性モノマーに対する会合性

基 Z の重量比は、約 0.15 ～ 約 6.5 である。

【0019】

さらに他の 1 つの実施態様では、カチオン性／カチオン生成性楕形コポリマーは、そのコポリマーに組み込まれるイオン性モノマー及びイオン生成性モノマーの重量％を約 2 ～ 約 45 % で有し、コポリマー中の会合性基 Z の重量％は、約 2 ～ 約 50 % であり、そして蒸留水中の 3 重量％（固形分）のコポリマーの粘度は、約 250 センチポアズ（cP）未満である。

【0020】

本明細書に開示されるカチオン性／カチオン生成性楕形コポリマーを、化粧品に許容可能な任意の媒体に組み込むことができ、いくつかの実施態様では、パーソナルケア製品は、化粧品に許容可能な基礎媒体、及び約 0.1 ～ 約 20 wt % のカチオン性／カチオン生成性楕形コポリマーを含有する。

10

【0021】

特定の実施態様では、このパーソナルケア製品はさらに有効成分を含有し、ここでは、上記カチオン性／カチオン生成性楕形コポリマーを除いて同じ配合を有するパーソナルケア製品に対して、カチオン性／カチオン生成性楕形コポリマーが、有効成分のケラチン質構造への沈着を少なくとも約 10 % 向上させる。さらに、他の実施態様では、カチオン性／カチオン生成性楕形コポリマーを用いること自体が、ケラチン基質への沈着を示すことができる。

【0022】

20

ある種の実施態様では、パーソナルケア製品は、楕形ポリマーを含有し、このポリマーは、（以下に定義されるような）架橋をしておらず、比較的低い（以下に定義されるような）水溶性を有する。

【0023】

典型的な実施態様による組成物及び方法を、パーソナルケア用途に用いて、レオロジー変性／増粘、有効物質の沈着及び保持、耐水性及び感触（調整、滑り、絹のような（silkly）感触）の利益を与えることができ、これらは全て化粧品媒体で単一のポリマーを用いて達成することができる。ある種の実施態様では、良好な安定性を示し、pH の低い系で特定の利益を与える。

【0024】

30

典型的な実施態様は、特定の組合せの繰返し単位を有するカチオン性／カチオン生成性楕形コポリマーを与えて、パーソナルケア製品の脂肪族成分又は親油性成分と共に、レオロジー変性をもたらす。水性配合物に適合させるために十分な量の水性モノマーと、実質的な疎水性の含量との組合せは、会合により増粘効果を高め、かつ沈着性及び耐洗出性を劇的に向上させる。

【0025】

本発明の他の特徴及び利点は、例及び発明の原理を示す典型的な実施態様の以下の詳細な記載によって明らかとなるであろう。

【発明を実施するための形態】

【0026】

40

コポリマー及びその構成基の説明

実施態様は、少なくとも 2 つのカテゴリのモノマーから形成され、そして典型的には 3 つのカテゴリのモノマーから形成される、会合性部位を有する繰返し単位を含む、カチオン性及びカチオン生成性楕形コポリマーに向けられる。いくつかの実施態様では、4 つ又は 5 つのカテゴリを用いてもよい。実施態様は、パーソナルケア製品、及び成分としてこれらのコポリマーを含む他の有用な組成物にも向けられる。

【0027】

そのカチオン性又はカチオン生成性楕形コポリマーは、以下の繰返し単位を有する：
A) オレフィン系不飽和カチオン性モノマー又はカチオン生成性モノマーから導かれる 1 種以上の繰返し単位；及び

50

B) 以下の式を有する、1 種以上の繰返し単位：

【化 2】



(式中、Yは、コポリマー骨格の一部を形成する部位であり；Zは、他のZ部位の存在下で会合を示す部位、又はこのコポリマーが用いられる最終の配合物内で他の部位と会合を示す部位であり；かつbは、Z部位をY部位につなぐ結合又は部位である)。

「会合を示す」は、当業者には容易に認識され、そして理解されるように、Z部位を互いに会合させ、又は最終の配合物内で他の部位と会合させる、弱く引付け合う結合（例えば、ファンデルワールス相互作用、水素結合）をZ部位がすることを意味する。この会合は、ミセルの動的な三次元ネットワーク構造の形成、又はミセル状の特徴を有する動的な三次元ネットワーク構造の形成をもたらすことができる。ネットワーク中の会合は動的であり、そしてこの力は弱い、この会合は、向上した粘度を与えるのに十分な寿命及び強度を、多くの場合に有する。

【0028】

典型的な実施態様では、コポリマーは、以下のカテゴリーの少なくとも1つから導かれる1つ以上の繰返し単位をさらに含む：

C) アクリルアミドモノマー；

D) A、B、又はCではない、1 種以上のオレフィン系不飽和親水性モノマー；又は

E) A、B、C、又はDではない、1 種以上のオレフィン系不飽和モノマー。

【0029】

すなわち、典型的な実施態様では、このコポリマーは、A及びBのそれぞれ少なくとも1つを含み、かつC、D、又はEの少なくとも1つから導かれる繰返し単位をさらに含む。他の実施態様では、このコポリマーは、A及びBのそれぞれ少なくとも1つと、C、D、及びEのカテゴリーの2つのモノマーから導かれる繰返し単位をさらに含む。一方、さらに他の実施態様では、このコポリマーは、A及びBのそれぞれ少なくとも1つと共に、C、D、及びEの3つ全てのモノマーから導かれる繰返し単位を含む。いずれの場合においても、同じグループから複数の繰返し単位が存在してもよいと認識されるであろう。

【0030】

グループAの構成要素が選択されるカチオン性モノマー及びカチオン生成性モノマーは、任意のカチオン性モノマー又はカチオン生成性モノマーであってよい。特に適切なカチオン性モノマーとしては、第4級窒素を有するモノマー、あるいは形成されるコポリマーの骨格又は側鎖にN⁺を導入するモノマーが挙げられる。適切なカチオン生成性モノマーとしては、窒素を含み、そして酸中和されて荷電したカチオン性基を形成することができるモノマー、又は適切なアルキル化剤と反応して、第4級アンモニウム基を形成することができるモノマーが挙げられ、これらはコポリマーの形成前又は形成後のいずれの場合にも形成できる。

【0031】

窒素を含む典型的なカチオン性モノマーとしては、限定されないが、(メタ)アクリレートを含むアンモニウム塩、トリメチルアンモニウムメチルメタクリレートクロリド、メタクリルアミドプロピルトリメチルアンモニウムクロリド、トリメチルアンモニウムエチルメタクリレートクロリド、N, N- (ジチル又はジエチル) アミノエチル(メタ)アクリレートメトスルファート、[2- (メタクリロイルオキシ) アルキル] トリアルキルアンモニウムハライド、[2- (メタクリロイルオキシ) アルキル] トリアルキルアンモニ

ウムアルコスルファート (alkosulfate)、[2-(メタクリロイルオキシ)エチル]トリメチルアンモニウムクロリド、[2-(アクリロイルオキシ)アルキル]トリアルキルアンモニウムハライド、[2-(アクリロイルオキシ)アルキル]トリアルキルアンモニウムアルコスルファート、[2-(アクリロイルオキシ)エチル]トリメチルアンモニウムクロリド、及び[2-(アクリルアミド)エチル]トリメチルアンモニウムクロリドからなる群より選択される少なくとも1つが挙げられる。

【0032】

カチオン状態(すなわち、カチオン生成性)に変化させることができる窒素含有モノマーの例としては、限定されないが、N、N-ジアルキルアミノ(メタ)アクリレート、例えば、ジメチルアミノエチル(メタ)アクリレート、ジメチルアミノプロピル(メタ)アクリレート、ジエチルアミノエチル(メタ)アクリレート及びジエチルアミノプロピル(メタ)アクリレートからなる群より選択される少なくとも1つが挙げられる。N、N-ジアルキルアミノ(メタ)アクリルアミドを用いることもでき、例えばジメチルアミノプロピル(メタ)アクリルアミド及びジエチルアミノプロピル(メタ)アクリルアミドを用いることができる。他の典型的なカチオン生成性モノマーとしては、2-メタクリルオキシ-N-エチルモルホリン、2-tert-ブチルアミノエチルメタクリレート、アクリロイルモルホリン、1-ピペリジノエチル(メタ)アクリレート及びジメチルアミノシクロヘキシル(メタ)アクリレートからなる群より選択される少なくとも1つが挙げられる。

【0033】

グループAのカチオン性モノマーは、例えば、クロリド、ブロミド、スルファート及びホスファートを含む1以上の対イオンを組み込むことができると認識されるであろう。いくつかの場合には、ハライド対イオンが望ましい場合がある(例えば、このハライドが色又は香りを導入しない傾向を有する場合には、他の対イオンより望ましい)。適切なアルキル化剤としては、1~4の炭素原子を有するアルキルハライド又はアルキルスルファート、例えばエチルクロリド若しくはメチルクロリド又はエチルブロミド若しくはメチルブロミド、ジメチルスルファート又はジエチルスルファートが挙げられる。他の適切なアルキル化剤としては、鉍酸、例えばリン酸、硫酸又は塩酸が挙げられる。

【0034】

グループBの繰返し単位では、会合性部位Zを、共重合に用いるモノマーの1成分として楕形ポリマーに組み込むことができ、又は重合中若しくは重合後に、この会合性基と官能性モノマーとの反応からもたらしてもよい。それゆえ、会合性部位Zが伸びる繰返し単位中のコポリマー骨格部位Yは、A、C、D、又はEのモノマーから導かれる繰返し単位であるが、会合性部位Zに後に結合することによって、それがグループBに該当することになる場合も可能である。

【0035】

Z部位は、実際には、通常疎水性であり、アルキル、アリール、アラルキル、フルオロアルキル、シリコン又はシランであってよい。例えば、炭化水素Z基としては、8~50の範囲の炭素原子を有する直鎖、分岐鎖又は環状のアルキル基、アリール基又はアラルキル基が挙げられ、1つの実施態様では、これらの基は10~22の範囲の炭素原子を有し、そして他の1つの実施態様では、これらの基は10~18の範囲の炭素原子を有する。例えば、Zのアルキル要素としては、限定されないが、脂肪族アルコール、脂肪族アミン又は脂肪酸から導かれるアルキル基(例えば、オクチル、ノニル、デシル、ドデシル、トリデシル、テトラデシル、ペンタデシル、ヘキサデシル、ヘプタデシル、オクタデシル、ノナデシル、エイコシル、アラキジル及びベヘニル)からなる群より選択される少なくとも1種が挙げられる。適切なZのアルキル要素としては、このような化合物の混合物を挙げることでもでき、またアルキル要素の混合物が上記の炭素原子の範囲を用いる場合は、その組合せの重量平均に基づく。典型的な市販の混合物としては、SasolからAlfoll及びNovelの商標で販売されているアルコール、ShellからNeodolの商標で販売されているアルコール、及びBarker PetroliteからUnilinアルコールの商標で販売されているアルコール混合物が挙げられ、これらの平均鎖長

10

20

30

40

50

は、C 2 5、C 3 0、C 4 0又はC 5 0であり、ココナッツオイル又は他の天然オイルから導かれるアルコールも挙げられる。また、ドデセニル、トリデセニル、テトラデセニル、ペンタデセニル、ヘキサデセニル、オクタデセニル、及びドコセニルからなる群より選択される少なくとも1種を含む、大部分が直鎖のアルケニル鎖も挙げられる。

【0036】

シリコン含有Z基は、3～25の結合したSiO単位を有する直鎖基、分岐鎖基又は環状基であってもよい。1つの実施態様では、これは3～8のSiO単位を有し、他の1つの実施態様では、3～5のSiO単位を有する。フルオロアルキル含有Z基としては、6～50の範囲の炭素を有するフルオロカーボン基が挙げられ、他の1つの実施態様では、8～30の範囲の炭素原子を有するフルオロカーボン基が挙げられる。

10

【0037】

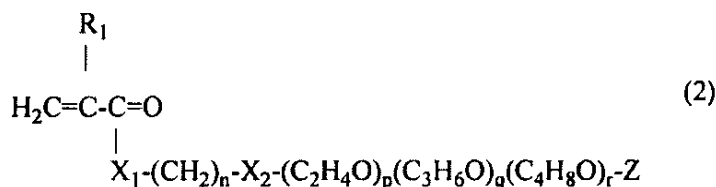
連結bの例としては、コポリマー骨格を会合性基Zに結合する、エステル、カルボニル、アミド、アミノオキシド、炭化水素、アミノ、エーテル及びポリオキシアルキレン基の少なくとも1種により形成される共有結合が挙げられる。また、連結bを、イオン性塩の連結により生じさせてもよい。

【0038】

以下の式の構造は、随意のポリオキシアルキレン要素を有する、グループBの繰返し単位を形成するモノマーの一般構造である：

【化3】

20



【0039】

X₁及びX₂は、独立してO、S、NH又はNHCOOのいずれかであり；R₁は、H又はCH₃のいずれかであり；nは、0～6であり（n＝0の場合、X₂は省略される）；pは0～50、qは0～50、かつrは0～50である。p、q及びrの繰返し単位を、ランダムで、交互で、ブロックで又は勾配構造（gradient structure）で組み込んでよい。p＝q＝r＝0の実施態様では、グループBのモノマーの重量パーセントは、約50wt%未満となってもよく、いくつかの場合には約25wt%未満、他の1つの場合では約10wt%未満、さらなる場合では約5wt%未満となってもよい。例えば、この実施態様の1つの態様では、p、q又はrの少なくとも1つは、1～50（例えば1以上）の整数である。例えば、この実施態様の他の1つの態様では、pは1～50であり、いくつかの場合には3～30であり、そして他の場合では2～10である。特定の実施態様では、X₁＝O、n＝q＝r＝0であり、pは3～30であり、Zは10～18の炭素原子を有するアルキル基である。他の1つの実施態様では、R₁＝H、X₁＝O、n＝q＝r＝0であり、pは2～10であり、Zは10～16の炭素原子を有するアルキル基である。グループBの繰返し単位を形成することになる構造（2）のモノマーの例としては、例えば、ステアリルポリ（オキシエチル）₂₅メタクリレート、ラウリルポリ（オキシエチル）₄アクリレート、オクチルポリ（オキシプロピル）₆ポリ（オキシエチル）₁₂－N－メチルアクリルアミド、N－オクタデシルメタクリルアミド及びラウリル（メタ）アクリレートからなる群より選択される少なくとも1つが挙げられる。

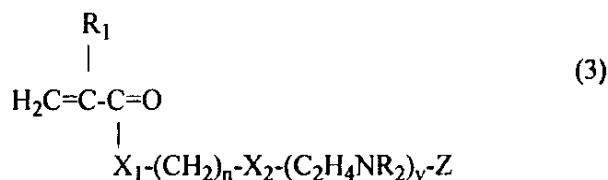
30

40

【0040】

以下の式の構造は、ポリアルキルアミン基を有する、グループBの繰返し単位を形成するモノマーの一般構造である：

【化 4】



【0041】

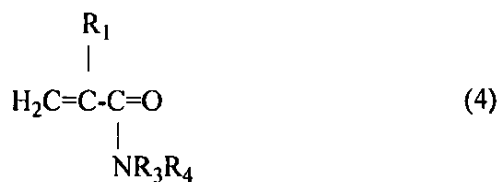
10

X_1 及び X_2 は、独立して O、S、NH、又は $NHCOO$ のいずれかであり； R_1 及び R_2 は、独立して H 又は CH_3 のいずれかであり； n は、0～6 であり（ $n=0$ の場合、 X_2 は省略される）；かつ v は、1～50 である。Z 部位は、上記の通りである。

【0042】

グループ C のアクリルアミドモノマーは、以下の式を有する任意のモノマーであってよい：

【化 5】



20

【0043】

R_1 は、H 又は CH_3 のいずれかであり、 R_3 及び R_4 は、独立して H、C1～C6 アルキル、C1～C6 アルケニル、C1～C6 アルコシアルキル又はアルキルアミノアルキルである。典型的なグループ C のモノマーとしては、限定されないが、アクリルアミド、メタクリルアミド、N-メチルアクリルアミド、N-メチルメタクリルアミド、N、N-ジメチルアクリルアミド、N、N-ジメチルメタクリルアミド、N、N-ジエチルアクリルアミド、ジアセトンアクリルアミド、N、N-ジメチルアミノプロピルアクリルアミド、N-ブトキシメチルアクリルアミド、N-エトキシメチルアクリルアミド、N-n-ブチルアクリルアミド、N-tert-ブチルアクリルアミド、N-イソプロピルアクリルアミド、N-メチロールアクリルアミド、N-メトキシメチルアクリルアミド、N-エチルアクリルアミド、N-(3-メトキシプロピル)アクリルアミド、N-n-プロピルアクリルアミド、N-トリメチルブチルアクリルアミド、N-イソオクチルアクリルアミド、N-アセチルメタクリルアミド、N-ブトキシメチルメタクリルアミド、N、N-ジブチルアミノプロピルメタクリルアミド、N、N-ジメチルアミノプロピルメタクリルアミド、N、N-ジエチルメタクリルアミド、N-(2, 2-ジメトキシエチル)メタクリルアミド、N、N-ジメチルアミノエチルメタクリルアミド、N-エチルメタクリルアミド、N-メトキシメチルメタクリルアミド、N-(3-メトキシプロピル)メタクリルアミド及び N-メチロールメタクリルアミドからなる群より選択される少なくとも 1 種のモノマーを含む。

30

40

【0044】

グループ D のモノマーは、グループ A、B、又は C 内に該当しない任意のオレフィン系不飽和親水性モノマーであり、一般的に約 50 g/L 超の 25℃での水溶解度を有する。これらのモノマーは、イオン性、イオン生成性又は非イオン性であってもよい。典型的なアニオン性モノマーとしては、カルボン酸基若しくはジカルボン酸基、無水物、及びスルホン酸又はホスホン酸の塩、並びにジカルボン酸の半エステル塩を有するモノマーの少な

50

くとも1つの塩が挙げられる。このようなモノマーとしては、例えば、アンモニウム（メタ）アクリレート、ナトリウムイタコナート、ナトリウムシトラコナート、ナトリウムメレエート、ナトリウム（メタ）アクリレート、及びアンモニウムアクリルアミドメチルプロパンスルホナートからなる群より選択される少なくとも1種のモノマーが挙げられる。アニオン生成性モノマーとしては、アクリル酸、イタコン酸、クロトン酸、シトラコン酸、マレイン酸、メチルマレエート、ブチルマレエート、アクリルアミドメチルプロパンスルホン酸、フマル酸、メサコン酸、グルタコン酸、無水マレイン酸及びイタコン酸無水物からなる群より選択される少なくとも1種のモノマーが挙げられる。

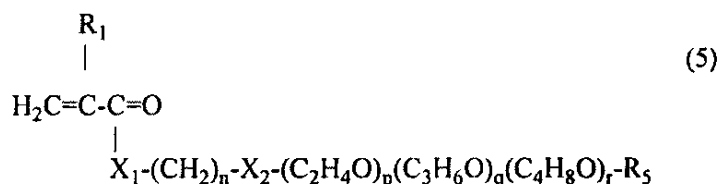
【0045】

また、双性イオン性モノマー及び／又は両性イオン性モノマーを、グループDのモノマーとして用いることができる。双性イオンモノマー又は双性イオン繰返し単位は、異なる原子に正及び負の両方の形式電荷を有するものであるが；それらの正味の電荷量はゼロであり、イオン性モノマーとして考慮される。グループDのモノマーとして用いることができる双性イオン性モノマーの例としては、カルボキシペタイン、ホスホペタイン又はスルホペタインのペンダント部位を有するモノマーが挙げられ；特定の例としては、2-メタクリロキシエチルホスホリルコリン、2-（メタクリロイルオキシ）エチル-2'-（トリメチルアンモニウム）エチルホスファート分子内塩、1（4（4'-ビニルベンジルオキシ）ブタン）-2'（トリメチルアンモニウム）エチルホスホン酸塩及び〔3-（メタクリロイルアミノ）プロピル〕ジメチル（3-スルホプロピル）アンモニウム水酸化物塩が挙げられる。両性イオン性モノマーは、酸性基及び塩基性基の両方を有するイオン生成性モノマーである。

【0046】

また、グループDのモノマーとしては、随意のポリエチレングリコール（PEG）要素を有する以下の構造の非イオン性モノマーであってよい：

【化6】



【0047】

X_1 及び X_2 は、独立してO、S又はNHのいずれかであり； R_1 は、独立してH又は CH_3 のいずれかであり； R_5 は、H又は炭素原子数が1～4の直鎖若しくは分岐鎖のアルキルのいずれかであり； n は、0～6であり（ $n=0$ の場合、 X_2 は省略される）； p は、1～50であり、 q は、1～50であり、かつ r は、1～50である。 p 、 q 及び r の繰返し単位を、ランダムで、交互で、ブロックで又は勾配構造（gradient structure）で組み込んでもよい。

【0048】

（5）式の構造を有するグループDのモノマーの例としては、ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート、ヒドロキシヘキシル（メタ）アクリレート、ヒドロキシエチル（メタ）アクリルアミド、ヒドロキシプロピル（メタ）アクリルアミド、ヒドロキシブチル（メタ）アクリルアミド、ヒドロキシヘキシル（メタ）アクリルアミド並びに対応する（メタ）アクリルアミド、例えばヒドロキシエチル（メタ）アクリルアミド、ヒドロキシプロピル（メタ）アクリルアミド、ヒドロキシブチル（メタ）アクリルアミド、ヒドロキシヘキシル（メタ）アクリルアミド、ポリ（オキシエチル）₁₀メタクリレート及びメチルポリ（オキシエチル）₈アクリレートからなる群より選択される少なくとも1種のモノマーが挙

げられる。

【0049】

グループDに含まれる他の典型的な非イオン性モノマーとしては、（酢酸ビニルからの）ビニルアルコール、ビニルポリピロリジノン及びN-ビニルホルムアミドの少なくとも1種が挙げられる。

【0050】

グループEのモノマーは、グループA～Dには該当しない、幅広い他の任意のオレフィン系不飽和モノマーである。主な典型的なモノマーとしては、一価不飽和モノマー、例えばC1～C4アルキル（メタ）アクリレート、C1～C4アルキルフルオロ（メタ）アクリレート、ビニルエステル、アルキルビニルエーテル、ビニルアミド、スチレン及びp-
アルキルスチレンからなる群より選択される少なくとも1種のモノマーが挙げられる。し
かし、多価不飽和モノマーも使用できる。

【0051】

いくつかの実施態様では、望ましいならば、グループEを用いて、架橋を与えてもよい。典型的な架橋モノマーとしては、（メタ）アクリル酸エステル並びにビニルエーテル及びアリルエーテルの二官能又は多官能アルコール、例えば1, 2-エタンジオール、1, 2-
プロパンジオール、1, 3-プロパンジオール、1, 2-ブタンジオール、1, 3-
ブタンジオール、2, 3-ブタンジオール、1, 4-ブタンジオール、b u t - 2 - e n
e - 1, 4-ジオール、1, 2-ペンタンジオール、1, 5-ペンタンジオール、1, 2-
ヘキサンジオール、1, 6-ヘキサンジオール、1, 10-デカンジオール、1, 2-
ドデカンジオール、1, 12-ドデカンジオール、ネオペンチルグリコール、3-メチル
ペンタン-1, 5-ジオール、2, 5-ジメチル1, 3-ヘキサンジオール、2, 2, 4-
トリメチル-1, 3-ペンタンジオール、1, 2-シクロヘキサンジオール、1-シク
ロヘキサンジオール、1, 4-ビス（ヒドロキシメチル）シクロヘキサン、ジエチレング
リコール、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール、ジプロピレングリコ
ール、トリプロピレングリコール、テトラプロピレングリコール、ポリエチレングリコ
ール、ポリプロピレングリコール、ポリテトラヒドロフラン、トリメチロールプロパン、グリ
セロール、ペンタエリスリトール、1, 2, 5-ペンタントリオール、1, 2, 6-ヘキ
サントリオール及びソルビトールからなる群より選択されるモノマーが挙げられる。

【0052】

さらに適切な架橋剤としては、ウレタンジアクリレート；少なくとも2つの二重結合を有する直鎖（s t r a i g h t）若しくは分岐鎖の、直線状の（l i n e a r）若しくは環状の、脂肪族の又は芳香族の炭化水素、例えばジビニルベンゼン；（メタ）アクリルアミド及びN-アリルアミンの二官能アミン、例えば1, 2-ジアミノエタン、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；トリアリルアミン及びトリアリルアンモニウム塩、例えばトリアリルメチルアンモニウムクロリド又はメ
チルスルファート；尿素誘導体のN-ビニル化合物、例えばN, N'-ジビニルエチレン
ウレア又はN, N'-ジビニルプロピレンウレア；2官能、3官能又は4官能のスルフヒ
ドリル化合物、例えばエチレングリコールジメルカプトプロピオナート、グリセロール、
トリメルカプトアセテート及びペンタエリスリトールテトラメルカプトプロピオナート；
アルコキシシラン基を有するメルカプタン、例えば3-メルカプトプロピルトリメトキシ
シラン；及びアルコキシシラン基を有するアルキル（メタ）アクリレート又はアルキル（
メタ）アクリルアミド、例えばメタクリロキシプロピルトリエトキシシラン及びメタクリ
ルアミドプロピルトリメトキシシランの少なくとも1種を挙げることができる。

【0053】

コポリマーの特性／性質の説明

本明細書に記載したカチオン性／カチオン生成性楕形コポリマー内のイオン性モノマー及びイオン生成性モノマーの合計重量パーセントは、約2～約45%の範囲である。いくつかの実施態様では、この範囲は、約5～約35%であり、他の実施態様では、約10～約25%である。

【0054】

本明細書に記載したカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマー内のイオン性モノマーの重量パーセントは、約2～約45%の範囲である。いくつかの実施態様では、この範囲は、約5～約30%であり、他の実施態様では、約5～約25%であり、さらに他の実施態様では、約12～約22%である。

【0055】

このコポリマー内の会合性部位Zの重量パーセントは、約2～約50%の範囲となってもよく、いくつかの実施態様では、約4～約40%であり、他の実施態様では、約7～約30%であり、さらに他の実施態様では、約20～約30%である。

【0056】

あらゆる理論又は説明に拘束されないことを望むが、コポリマー中の、会合性部位Zのイオン性モノマー及び／又はイオン生成性モノマーに対する重量比は、得られる優れた結果の少なくとも部分的な原因となる。すなわち、特定の典型的な実施態様によると、グループAのカチオン性及び／又はカチオン生成性モノマー、並びにグループC～Eから組み込まれる任意の他のイオン性モノマーは、コポリマーに存在する会合性基Zの量と、関係性を有する。

【0057】

コポリマー中の会合性部位Zの、イオン性モノマー及び／又はイオン生成性モノマーに対する比(wt%:wt%)は、約0.1～約5.5の範囲であってもよい。いくつかの実施態様では、この比は、約0.25～約4の間であり、他の1つの場合には、約0.4～約3であり、さらに他の場合には、約0.7～約2.5である。さらに他の1つの実施態様では、コポリマー中の、会合性部位Zの、イオン性モノマー及び／又はイオン生成性モノマーに対する重量比は、約1.2～約2.2である。コポリマー中の、会合性部位Zの、イオン性モノマーに対する比(wt%:wt%)は、約0.15～約6.5の範囲であってもよい。いくつかの場合には、この比は、約0.3～約4.5の間であり、他の1つの場合には、約0.4～約3.5であり、さらに他の場合には、約0.7～約2.5である。さらに他の1つの実施態様では、コポリマー中の、会合性部位Zの、イオン性モノマーに対する重量比は、約1.2～約2.2である。

【0058】

このカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーは、結晶性であってもよく、又は非結晶性であってもよい。約3J/g超の融解熱と共にコポリマーが融点T_mを示す結晶性である実施態様において、コポリマーの融点は、通常約100℃未満であり、いくつかの場合には、約50℃未満であり、多くの場合には約25℃未満であり、他の場合には約15℃未満であり、そしてさらに他の場合には約0℃未満である。

【0059】

追加の成分を含むパーソナルケア製品を増粘する性能にもかかわらず、特定の典型的な実施態様では、本明細書に記載したカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーの3重量%（固形分）の水溶液は、25℃で約250cP未満の粘度を有し、いくつかの実施態様では、25℃で約100cP未満の粘度を有する。さらに他の実施態様では、カチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーの3重量%（固形分）の溶液は、25℃で約50cP未満の粘度を有する。それゆえ、特定の典型的な実施態様では、従来技術のカチオン性ポリマー添加剤より感触及び沈着の実質的な効果を与えることができるが、従来技術とは異なり、現行用いられている高分子量で、かつ通常架橋しているポリマーでは一般的である、パーソナルケア配合物の水相の増粘をする必要がない。

【0060】

このポリマーの化学的性質を、ヒドロキシル、アミド及び酸性の第二のモノマーの影響を調節することによって、様々な水系化粧品配合物における溶解性及び適合性のために調整してもよい。例えば、アミドモノマー中に窒素が含有することで、比較的低いカチオンレベルが望ましい場合に沈着性を高めることができ、かつこれが適合性及び粘度の両方に寄与する。限られた量の酸性モノマーを用いることで、粘性を低下させ、かつ後の配合の

10

20

30

40

50

適合性を向上させることができる。一定のヒドロキシモノマーを含有させることで、水系又はアルコール系でのポリマー及び配合物の透明性を向上させることができる。

【0061】

1つの実施態様では、カチオン性／カチオン生成性楕形コポリマーは、水溶性に範囲を示す。いくつかの実施態様では、25℃での水溶性は、比較的低く、例えば、約50wt%未満の水溶性であり、他の実施態様では、約20wt%未満であり、さらに他の実施態様では約10wt%未満である。「水溶性」又は「水溶性の」は、コポリマーの水への溶解性を、水溶液の濁度が250 EBC (European Brewery Convention Standard) 単位をまず測定する濃度であって、より低い濃度では水溶液の濁度が250 EBC未満を測定する濃度として、測定することを意味する。

10

【0062】

また、有利には、特定の典型的な実施態様は、従来技術が必要としないのとは異なり、望ましくない色又は香りをもたらすことがあるスルファートの存在及び／又はコポリマーの架橋を含めてもよい。「架橋」又は「架橋した」は、多官能モノマーの故意の導入を通じて形成される共有結合によって、コポリマーの隣接した鎖を連結することを意味する。架橋をもたらすこの共有結合は、縮合反応及び付加反応を含む任意の反応によって形成することができる。

【0063】

1つの実施態様では、カチオン性／カチオン生成性楕形コポリマーは、約12～約22wt%のグループAのモノマーから構成され、約25～約75wt%の構造2のモノマーから構成され、ここでは $X_1 = O$ 、 $n = q = r = 0$ であり、 p は3～30であり、 Z は10～18の炭素原子を有するアルキル基であり、約7～約30wt%の会合性部位 Z を有し、架橋されておらず、そして3重量%（固形分）での水中の溶液粘度は、25℃で測定した場合に約100 cP未満を示す。この実施態様の1つの態様では、構造2のモノマーの量は、25wt%超であり、そして典型的には約30wt%超である（例えば、約30wt%～約75wt%）。

20

【0064】

他の1つの実施態様では、カチオン性／カチオン生成性楕形コポリマーは、約12～約22wt%のグループAのモノマーから構成され、約25～約75wt%の構造2のモノマーから構成され、ここでは $X_1 = O$ 、 $n = q = r = 0$ であり、 p は3～30であり、 Z は10～18の炭素原子を有するアルキル基であり、グループCのアクリルアミドモノマーから構成され、約7～約30wt%の会合性部位 Z を有し、架橋されておらず、そして3重量%（固形分）での水溶液粘度は、25℃で測定した場合に約100 cP未満を示す。 A が15wt%であるこの実施態様の1つの態様では、構造2のモノマーは、 $p = 4$ を有し、かつこのコポリマーの70wt%を構成し、グループCのモノマーは、 N ， N -ジメチルアクリルアミドであり、水溶解度を測定すると約8wt%であった（例えば、例72）。この実施態様の1つの態様では、構造2のモノマーの量は25wt%超であり、いくつかの場合には、約30wt%超であり、典型的には約50wt%超である（例えば、約50wt%～約75wt%）。

30

【0065】

さらなる他の1つの実施態様では、カチオン性／カチオン生成性楕形コポリマーは、約12～約22wt%のグループAのモノマーから構成され、約25～約75wt%の構造2のモノマーから構成され、ここでは $X_1 = O$ 、 $n = q = r = 0$ であり、 p は3～30であり、 Z は10～18の炭素原子を有するアルキル基であり、グループDのヒドロキシアルキル（メタ）アクリレートモノマーから構成され、約7～約30wt%の会合性部位 Z を有し、架橋されておらず、そして3重量%（固形分）での水溶液粘度は、25℃で測定した場合に約100 cP未満を示す。 A が15wt%であるこの実施態様の1つの態様では、構造2のモノマーは、 $p = 4 \sim 25$ を有し、かつこのコポリマーの70wt%を構成し、グループDのモノマーは、ヒドロキシプロピルメタクリレートであり、水溶解度を測定すると約8wt%であった（例えば、例71）。この実施態様の1つの態様では、構造2

40

50

のモノマーの量は25wt%超であり、いくつかの場合には、約30wt%超であり、典型的には約50wt%超である（例えば、約50wt%～約75wt%）。

【0066】

このカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーを、所望の鎖構造に組み込まれるモノマーをもたらし、あらゆる適切なプロセスによって製造することができる。コポリマー合成の1つの特定の適切な方法は、あらゆる架橋成分が存在しない下での、アルコール、グリコール、又は水系アルコール混合物中での溶液重合である。溶液重合を用いると、ランダムに組み込まれるコポリマーの繰返し単位がもたらされるが、ブロック、交互、又はグラフトの配置の繰返し単位も可能である。

【0067】

いくつかの実施態様では、コポリマーを、化粧品に許容可能な基礎材料及び少なくとも1種の有効成分を含むパーソナルケア組成物又はパーソナルケア製品に配合する。本明細書に記載したカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマー組成物を用いることで、このコポリマーを用いない同様の配合物よりも、ケラチン基質への有効成分の沈着性を高めることができる。組成物内又は製品内の有効成分の沈着は、次のようにして測定する：ケラチン基質、例えば体外人工皮膚に、その組成物又は製品を約1～約4mg/cm²で適用し、続いてその基質を5～30分乾燥させ、その後300rpmの速度での速いマグネティックスターラーでの攪拌の下で、30mLの脱イオン水を有するペトリ皿にその基質を浸漬させ、そして30秒～20分の試験時間の間、室温（22℃±2）と体温（37℃±2）との間の温度に一定に維持する。浸漬の後に、基質への有効成分の沈着を、有効成分を定量化するための任意の適切な分析法によって測定する（例えば、適切な方法の中でも特に、HPLC、エネルギー分散型X線分析）。有効成分が50g/L未満の水溶性を有する場合、沈着性は、約10%以上向上し、いくつかの場合には20%以上向上し、そして他の場合には沈着性は、約50%以上向上する。有効成分が50g/L超の水溶性を有する場合、このコポリマーを用いることで、沈着性は約10%以上向上する場合があります、いくつかの場合には約20%以上向上し、そして他の場合には約200%以上向上する。いくつかの場合には、有効成分の沈着性は、約500%以上向上する場合があります。本明細書に記載したカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーは、水溶性が約50g/L未満の有効成分と、水溶性が約50g/L超の有効成分との両方の沈着性を、上記の率で向上させることができる。

【0068】

さらに他の実施態様では、本明細書に記載したカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーを用いることと自体が、ケラチン基質への沈着を示す。

【0069】

コポリマーを用いたパーソナルケア製品及び典型的な配合物

それゆえ、本明細書に開示したカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーを、有効成分の沈着及び保持について有効性を向上させ、かつ優れた感触特性を有するパーソナルケア製品を作製する際の成分、及び／又は増粘剤として用いることができる。カチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマー組成物は、一般にそのような製品中に約0.1～約20重量%で存在し、いくつかの場合には約0.5～約10重量%で存在し、そしてさらに他の場合には約1～約5重量%で存在する。例えば、コスメティックオイル（すなわち、化粧品用途に適合可能なオイル）、水、アルコール及びこれらの混合物から選択される少なくとも1種を含むことができる基礎媒体を有する幅広いパーソナルケア製品と共に、この組成物を用いることができる。

【0070】

カチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーを、純粋なコポリマーとして、又は水、任意の適切な有機溶媒、複数の溶媒及び／若しくは水の組合せの溶液若しくは懸濁体として、パーソナルケア製品に添加することができる。アルコール及びグリコールは、特に適切な有機溶媒である。任意の適切なグリコールを用いることができるが、適切なグリコールの例には、プロピレングリコール、ブチレングリコール及びグリセロールの少なくとも1

10

20

30

40

50

種が含まれる。例えば、カチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーを、ブチレングリコール及び水の溶液として与えることができる。グリコールの量は、その溶液の約10wt%～約70wt%の範囲であってよく、いくつかの場合には、約20～約60wt%、他の場合には、その溶液の約30～約50wt%の範囲であってよい。

【0071】

このカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーを用いることができる、典型的な化粧品用、洗面用品用及び局所ヘルスケア用品用のパーソナルケア製品としては、限定されないが、シャンプー；化学的及び非化学的なヘアカール製品及びヘアストレート製品；ヘアスタイル保持製品及びヘアコンディショニング製品；ネイル、手、足、顔、頭皮及び／又は体用のローション及びクリーム；染毛剤；顔及び身体メイクアップ；ネイルケア製品；収斂剤（astringent）；デオドラント；制汗剤；脱毛剤；スキンコンディショナー；化粧水（skintoner）；肌安定化組成物（skinfirming composition）；液体石鹸；棒状石鹸；バス製品；シェービング製品；及び口腔衛生製品（例えば、歯磨き粉、経口懸濁液及びマウスケア製品）が挙げられ、これらはいずれも医薬品用成分、植物性医薬品用（phytopharmaceutical）成分及び／又は栄養補助（nutraceutical）成分を追加して含有してもよい。

10

【0072】

このようなパーソナルケア製品の形態は、限定されないが、多くの中でも特に液体、ジェル、噴霧体、エマルジョン（例えば、ローション及びクリーム）、シャンプー、ポマード、発泡体、軟膏、タブレット、スティック（例えば、リップケア製品）、メイクアップ、座薬となってもよい。これら全てを肌又は毛に適用することができ、また通常は、除去されるまで、例えば水で濯がれるまで又はシャンプー若しくは石鹸で洗浄されるまで、接触してとどまるように設計される。ジェルは、柔軟性があってもよく、硬くてもよく又は絞れるようなもの（squeezable）であってもよい。エマルジョンは、水中油型、油中水型、水－シリコーン、又は多相であってもよい。噴霧体は、手動で噴出させる指で作動させるスプレーから提供される非加圧エアロゾル又は加圧エアロゾルであってもよい。いくつかの実施態様では、典型的なカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーを、化学的推進剤又はガス状推進剤を用いるエアロゾル組成物、例えばムース、噴霧体又は発泡体を形成する配合物に配合する。

20

30

【0073】

典型的な実施態様に従ってカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーを有利に広く用いることができる上述のパーソナルケア製品を、無水のオイルベース製品、油中水型エマルジョン、水中油型エマルジョン又は水性系若しくはアルコール系に幅広く分類することができる。

【0074】

様々な中でも特に、エステル（例えば、12～15の炭素原子を有するアルキルベンゾエート）、トリグリセリド（例えば、カプリン酸／カプリル酸トリグリセリド）、炭化水素（例えば、鉱油、ひまわり油）、天然オイル（例えば、ホホバオイル、ベニバナオイル）及びキャスターオイルの少なくとも1種を用いたカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマー組成物は、効果的となることができる。適切なオイルは、例えば、参照により本明細書に組み込まれる米国特許第5,736,125号の第3欄第37行目～第4欄第4行目にも開示されている。シリコーンオイルも、化粧品オイルとして用いることができる。一般的に、化粧品用のあらゆる天然オイル又は合成オイルが、本発明の組成物に関して適切である。天然オイルの非限定的な例は、アボカドオイル、ココナツオイル、パームオイル、ゴマ油、ピーナツオイル、ひまわり油、アーモンドオイル、ピーチカーネルオイル（Peach Kernel Oil）、小麦胚芽オイル、マカデミアナツオイル、月見草油（night primrose oil）、ホホバオイル、キャスターオイル、オリーブオイル、大豆油及びこれらの誘導体の少なくとも1種である。鉱油、例えばパラフィンオイル及びペトロラタムも適切である。

40

50

【0075】

適切な合成オイルは、例えば、脂肪アルコール；脂肪酸エステル、例えばミリスチン酸イソプロピル、パルミチン酸イソプロピル、ステアリン酸イソプロピル、イソステアリン酸イソプロピル；オレイン酸オレイル；ステアリン酸イソセチル；ラウリン酸ヘキシル；アジピン酸ジブチル；アジピン酸ジオクチル；ミリスチン酸ミリスチル；エルカ酸オレイル；ポリエチレングリコール及びその誘導体；ポリグリセリル脂肪酸エステル；及びパルミチン酸セチルからなる群より選択される少なくとも1種である。

【0076】

シリコンオイルも適切である。有用なシリコンオイルは、INCI名によって知られた不揮発性シリコンオイルであり、これはジメチコン又はジメチコノールを含む。揮発性シリコンオイル、例えばシクロメチコンを用いてもよい。

10

【0077】

以下は、本明細書に記載したようなカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーが組み込まれた、変性オイルを含有する無水の化粧品配合物の非限定的な例である。

A) パーソナルケア用途（例えば、ヘアジェル）に適切な増粘した無水のオイル：

オイルー約50～約95wt%

カチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーー約0.1～約20wt%

補助ポリマーー最大約5wt%

他の添加剤又は有効成分ー約0.1～約30wt%

B) 無水のスカルプセラム：

20

オイルー約50～約95wt%

カチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーー約0.1～約20wt%

補助ポリマーー最大約5wt%

他の添加剤又は有効成分ー約0.1～約30wt%

C) 無水の日焼け止めスティック又はジェル：

オイルー約50～約95wt%

カチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーー約0.1～約20wt%

補助ポリマーー最大約5wt%

他の添加剤又は有効成分ー約0.1～約30wt%

D) 無水の制汗デオドラントスティック又はジェル：

30

エモリエントー約50～約95wt%

カチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーー約0.1～約20wt%

補助ポリマーー最大約5wt%

制汗デオドラント (APDO: Antiperspirant deodorant)

有効成分ー約0.1%～約30wt%

他の添加剤又は有効成分ー約0.1～約30wt%

E) カラー化粧品（例えば、頬紅、リップスティック）

オイルー約50～約95wt%

カチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーー約0.1～約20wt%

補助ポリマーー最大約5wt%

40

顔料ー約0.1%～約30wt%

他の添加剤又は有効成分ー約0.1～約10wt%

【0078】

通常増粘剤、特に例えば、カルナバワックス、ミツロウ、キャンデリラワックス等の少なくとも1種を含むワックスを、カチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーによって得られる配合物の増粘効果を補強するための添加剤として用いてもよい。

【0079】

油中水型エマルジョンを、(1) 上述の任意のオイル中にあるカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーの加熱した（すなわち、溶融した）溶液と、(2) そのオイル溶液に近い温度（通常、約10℃以内）の水性相とを共に混合し；そして、攪拌しながらその混

50

合物を冷却することによって、調製することができる。あるいは、代わりにカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマー組成物を、水性相にまず添加してもよく、又はこれを、油相及び水性相を乳化させた後に添加してもよい。カチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーを添加する方法によらず、水性相の油相に対する比は、例えば、約0.5：1～約9：1となることができる。

【0080】

以下は、油中水型エマルジョンを含む化粧品配合物の非限定的な例である：

A) 肌用保湿剤

水—約50～約90wt%
シリコーン—約1～約10wt%
乳化剤—約0.5～約5wt%
エモリエント—約5～約20wt%
カチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマー—約0.1～約20wt%
補助ポリマー—最大約5wt%
他の添加剤又は有効成分—約0.1～約3wt%

10

B) 日焼け止め

水—約50～約90wt%
シリコーン—約1～約10wt%
乳化剤—約0.5～約5wt%
エモリエント—約5～約20wt%
カチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマー—約0.1～約20wt%
補助ポリマー—最大約5wt%
日焼け止め有効成分—約1～約25wt%
他の添加剤又は有効成分—約0.1～約3wt%

20

C) 制汗デオドラント

水—約50～約90wt%
シリコーン—約1～約10wt%
乳化剤—約0.5～約5wt%
エモリエント—約1～約20wt%
カチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマー—約0.1～約20wt%
補助ポリマー—最大約5wt%
APDO有効成分—約0.1～約30wt%
他の添加剤又は有効成分—約0.1～約5wt%

30

【0081】

水中油型エマルジョンを、(1)油相中のカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマー組成物の加熱した(すなわち、溶融した)溶液、及び(2)そのエモリエント溶液に近い温度(通常、約10℃以内)である水系相を共に混合し；そして、攪拌しながらその混合物を冷却することによって調製する。しかし、油中水型エマルジョンのように、カチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマー組成物を、水性相にまず添加してもよく、又は乳化後に添加してもよい。油相の水性相に対する比は、例えば、約0.1：1～約1：1とすることができる。以下は、水中油型エマルジョンを含有する化粧品配合物の非限定的な例である：

40

A) 肌用保湿剤

水—約50～約90wt%
乳化剤—約0.5～約5wt%
エモリエント—約1～約20wt%
カチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマー—約0.1～約20wt%
補助ポリマー—最大約5wt%
他の添加剤又は有効成分—約0.1～約3wt%

B) 日焼け止め

50

水—約 50～約 90 w t %
 乳化剤—約 0.5～約 5 w t %
 エモリエント—約 1～約 20 w t %
 カチオン性／カチオン生成性橢形コポリマー—約 0.1～約 20 w t %
 補助ポリマー—最大約 5 w t %
 日焼け止め有効成分—約 1～約 25 w t %
 他の添加剤又は有効成分—約 0.1～約 3 w t %

C) ムース又は他のヘアスタイリング製品

水—約 50～約 90 w t %
 乳化剤—約 0.5～約 1 w t %
 界面活性剤—約 0.1～約 2 w t %
 カチオン性／カチオン生成性橢形コポリマー—約 0.1～約 20 w t %
 補助ポリマー—最大約 5 w t %
 他の添加剤又は有効成分—約 0.1%～約 2 w t %
 溶媒—約 1～約 25 w t %
 噴射剤—最大約 10 w t %

10

【0082】

以下は、アルコールの系又は水性系を含む化粧品配合物の非限定的な例である：

A) カラーリングシャンプー

水—約 50～約 90 w t %
 界面活性剤—約 2～約 20 w t %
 起泡増進剤—最大約 20 w t %
 カチオン性／カチオン生成性橢形コポリマー—約 0.1～約 20 w t %
 補助ポリマー—最大約 5 w t %
 他の添加剤又は有効成分—約 0.1～約 10 w t %

20

B) ヘアスプレー（エアロゾル及び非エアロゾル）

水—約 10～約 90 w t %
 カチオン性／カチオン生成性橢形コポリマー—約 0.1～約 20 w t %
 補助ポリマー—最大約 5 w t %
 エタノール又は他の溶媒—約 33～約 90 w t %
 エアロゾル用の随意の噴射剤—約 0～約 50 w t %
 他の添加剤又は有効成分—約 0.1～約 2 w t %

30

C) シャンプー

水—約 50～約 90 w t %
 界面活性剤—最大約 20 w t %
 起泡増進剤—約 2～約 20 w t %
 カチオン性／カチオン生成性橢形コポリマー—約 0.1～約 20 w t %
 補助ポリマー—最大約 5 w t %
 他の添加剤又は有効成分—約 0.1～約 10 w t %

D) ヘアスタイリング製品

水—約 10～約 90 w t %
 カチオン性／カチオン生成性橢形コポリマー—約 0.1～約 20 w t %
 補助ポリマー—最大約 5 w t %
 エタノール又は他の溶媒—約 0～約 10 w t %
 他の添加剤又は有効成分—約 0.1～約 10 w t %

40

E) 体用洗剤製品

水—約 50～約 90 w t %
 界面活性剤—約 2～約 20 w t %
 カチオン性／カチオン生成性橢形コポリマー—約 0.1～約 20 w t %
 補助ポリマー—最大約 5 w t %

50

起泡増進剤—最大約 20 wt %

他の添加剤又は有効成分—約 0.1 ~ 約 10 wt %

【0083】

エモリエントが用いられる製品においては、化粧品組成物中での用途に適切なあらゆるエモリエントを用いることができる。適切なエモリエントの例としては、エステル（例えば、C12~15の安息香酸アルキル）、トリグリセリド（例えば、カプリン酸／カプリル酸トリグリセリド）、炭化水素オイル（例えば、鉱油）、天然オイル（例えば、ホホバオイル、ペニバナオイル）、トリメリット酸トリデシル、ひまわり油、キャスターオイル、パーソナルケア組成物の感触的特性又は審美的特性に改良を与えるのに用いられる化合物が特に挙げられる。

10

【0084】

乳化剤が用いられる製品においては、約1~約20の範囲の親水親油バランス（HLB）を有するあらゆる適切な化粧品用乳化剤を用いることができる。乳化剤は、非イオン性、カチオン性、アニオン性又は両性イオン性であってもよく、又はこのような乳化剤の組合せを用いてもよい。

【0085】

非イオン性乳化剤の例は、ラウレス類、例えばラウレスー4；セテス類、例えばセテスー1；ポリエチレングリコールセチルエーテル；セテアレス類、例えばセテアレスー25；ポリグリコール脂肪酸グリセリド；水酸化レシチン；脂肪酸のラクチルエステル；アルキルポリグリコシドである。

20

【0086】

カチオン性乳化剤の例は、リン酸二水素セチルジメチルー2-ヒドロキシエチルアンモニウム；セチルトリモニウムクロリド；セチルトリモニウムブロミド；ココトリモニウムメトスルフェート；及び第4級窒素を含む乳化剤の少なくとも1種である。

【0087】

アニオン性乳化剤の例は、例えば、アルキルスルファート；アルキルエーテルスルファート；アルキルスルホナート；アルキルアリアルスルホナート；アルキルスクシナート；アルキルスルホスクシナート；N-アルコイルサルコシナート；アシルタウラート；アシルイセチオナート；アルキルホスファート；アルキルエーテルホスファート；アルキルエーテルカルボキシラート；アルファオレフィンスルホナート並びにこのような材料のアルカリ金属塩及びアルカリ土類金属塩（例えばナトリウム、カリウム、マグネシウム、カルシウム）並びにアンモニウム塩、トリアルキルアミン塩、トリアルカノールアミン塩及びアルキルアルカノールアミン塩の少なくとも1種である。アルキルエーテルスルファート、アルキルエーテルホスファート及びアルキルエーテルカルボキシラートは、エチレンオキシド単位又はプロピレンオキシド単位を有してもよい。

30

【0088】

界面活性剤及び／又は起泡増進剤を用いることもでき、そして乳化剤のように、非イオン性、カチオン性、アニオン性又は両性イオン性であってもよく、又はこれらの界面活性剤の組合せであってもよい。

【0089】

適切なアニオン性界面活性剤は、例えばアルキルスルファート；アルキルエーテルスルファート；アルキルスルホナート；アルキルアリアルスルホナート；アルキルサクシナート；N-アルキルサルコシナート；アシルタウラート；アシルイセチオナート；アルキルホスファート；アルキルエーテルホスファート；アルキルエーテルカルボキシラート；アルファオレフィンスルホナートの少なくとも1種であり、また、このような材料のアルカリ金属塩及びアルカリ土類金属塩（例えばナトリウム、カリウム、マグネシウム、カルシウム）並びにアンモニウム塩、トリアルキルアミン塩、トリアルカノールアミン塩及びアルキルアルカノールアミン塩であってもよい。アルキルエーテルスルファート、アルキルエーテルホスファート及びアルキルエーテルカルボキシラートは、エチレンオキシド単位又はプロピレンオキシド単位を有してもよい。

40

50

【0090】

適切な両性イオン性の界面活性剤は、例えばアルキルベタイン；アルキルアミドプロピルベタイン；アルキルスルホベタイン；アルキルグリシナート；アルキルカルボキシグリシナート；アルキルアンホアセテート又はアルキルアンホプロピオナート；及びアルキルアンホジアセタート又はアルキルアンホジプロピオナートの少なくとも1種である。例えば、ココジメチルスルホプロピルベタイン、ラウリルベタイン及びココアミドプロピルベタイン又はコカンホプロピオン酸ナトリウムを界面活性剤として用いることもできる。

【0091】

非イオン性界面活性剤の例は、直鎖又は分岐鎖となることがある、アルキル鎖に6～20の炭素原子を有する脂肪族アルコールと、エチレンオキシド及び／又はプロピレンオキシドとの反応生成物である。また、適切なものは、アルキルアミノオキシド；モノー又はジアルキルアルカノールアミド；ポリエチレングリコールの脂肪酸エステル；アルキルポリグリコシド及びソルビタンエーテルエステルの少なくとも1種である。

【0092】

カチオン性界面活性剤の例は、第4級アンモニウム化合物、例えばセチルトリメチルアンモニウムクロリド、及び第4級窒素を含む他の界面活性剤である。

【0093】

噴射剤又は溶媒を用いる製品では、それらは特にイソブタン、ブタン、ジメチルエーテル及びエタノールの少なくとも1種を含んでもよい。

【0094】

他の添加剤の例としては、多くの化合物の中でも特に、シリコン系可塑剤、天然又は合成の化合物（例えば、多糖、天然ゴム又は合成ゴム、安定化剤、油相若しくは水相に溶解性であるアニオン性及び非イオン性の会合性増粘剤又はレオロジー変性剤）、他の膜形成ポリマー、例えば、ポリウレタン、ピロリジン（例えば、ポリビニルピロリジン）からなる群より選択される1種以上の化合物が挙げられる。この添加剤は、多くの添加剤の中でも特に、保存料、安定化剤（例えば、キサントゲン）、保湿剤（例えば、MPジオール（MP Diol）、ソルビトール及びヘキシレングリコール）、抗酸化剤（例えば、ビタミン）、レオロジー変性剤、フレグランス及び顔料からなる群より選択される化合物を含むことができる。

【0095】

いくつかのパーソナルケア製品においては、肌又は髪に作用し又はこれらを保護する有効成分の化合物を含むことができる。そのような有効成分の化合物の例としては、全て例示のみであるが、日焼け止め化合物（例えば、酸化亜鉛、二酸化チタン、オクチノキサート、オクトクリレン、サリチル酸エチルヘキシル、オキシベンゾン）；スキンホワイトナー（例えば、サリチル酸）；脂肪沈着防止化合物（anti-cellulite compound）；アンチエイジング化合物（例えば、アルギニン／リジン等のポリペプチド、アルギニンPCA、アルペルギルス／アスピドスペルマケブラコ酵素（Aspergillus/Aspidosperma Quebracho Ferment）、カラスムギ穀粒タンパク（Avena Sativa (Oat) Kernel Protein）及びアボカドステロール、タンパク質、ペプチド、銅ペプチド、発酵バイオポリマー、ベータグルカン、植物有効成分、ビフィズス菌発酵エキス（Bifida Ferment Lysate）、テリハポク種子油（Calophyllum Inorhyllum seed oil）、カメリアシネンシス抽出物、セラミド、クロレラブルガリス抽出物、カワラタケ抽出物、セイヨウハシバミ（ヘーゼル）種子抽出物、ヒアルロン酸、エリソルビン酸、加水分解エラスチン、加水分解タンパク質、加水分解大豆粉、加水分解ペプチド、ビタミンA、E、C、K及びB5、並びにナイアシンアミド）；ふけ防止化合物（例えば、ジnkピリチオン）；APDO化合物（例えば、クロルヒドロキシアルミニウム、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）；ビタミン（例えば、天然トコフェロール、合成トコフェロール、合成トコフェロールアセテート、レチノール、レチニルパルミテート、レチニルアセテート、プロビタミンB-5、アスコルビン酸、リ

10

20

30

40

50

ン酸アスコルビルナトリウム、アスコルビルグルコシド、リン酸アスコルビルマグネシウム）；多糖（例えば、ヒアルロン酸、B-1, 3-グルカン、キトサン）；植物成分（例えば、アロエ、緑茶抽出物、ブドウ種子抽出物、イソフラボン類、カモミール／ビスボロール、フェネル、イチョウ、朝鮮人参、グアバ）；アルファヒドロキシ酸（例えば、クエン酸、グリコール酸、乳酸）；サトウキビ抽出物；防虫剤；並びに補酵素及び酵素（ユビキノン、コエンザイムQ10）の少なくとも1種が挙げられる。ある種の有効成分の化合物が、2つ以上のカテゴリーに該当してもよく、2つ以上の成果を達成するために用いてもよいということが認識されるであろう。

【0096】

本発明の目的のために、シリコーンオイル及びシリコーン添加剤は有効成分であると考えられる。パーソナルケア製品に組み込むことができるシリコーンオイル及びシリコーン添加剤の非限定的な例は、INCI名により知られており、ジメチコン、ジメチコノール、シロキサン及びシクロメチコンを含む。ある種の実施態様では、本発明のカチオン性櫛形コポリマーは、シリコーンオイル等の有効成分の沈着を改良することができる。

【0097】

パーソナルケア配合物でのカチオン性櫛形コポリマーと共に随意に用いられる「他のポリマー」の議論

パーソナルケア製品は、カチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマー組成物を、沈着性向上剤、感触向上剤及び／又は増粘剤として単独で用いてもよいが、他の実施態様では、この組成物は、約5重量%までの1種以上のさらなる補助ポリマーを随意に用いてもよい。この補助ポリマーは、任意の種類のポリマーであってよく、非イオン性、両性イオン性、双性イオン性、アニオン性、カチオン性又はこれらを組合せた種類のポリマーの少なくとも1種のポリマーを挙げることができる。

【0098】

典型的な非イオン性合成補助ポリマーとしては、ビニルピロリドンホモポリマー及びコポリマー、並びにこれらの酢酸ビニル基を有するものの少なくとも1種、例えば「Luviskol」の商標の下で販売されているものが挙げられる。これには、BASF AGから入手可能なホモポリマーのLuviskol（商標）K30、K60、K90、並びにコポリマーのLuviskol（商標）VA55及びVA64 Plusが含まれ、加えてISPからのAdvantage（商標）LS-Eも挙げられる。これらは単に例である。本発明の組成物に適切な天然の非イオン性ポリマーとしては、セルロース、デンプン、キトサン、キサンタンゴム、グアーガム、中和シェラック及びこれらの誘導体を挙げることができる。

【0099】

パーソナルケア組成物にカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーと共に組み込むことができる典型的な両性イオン性ポリマーとしては、次の少なくとも1種が挙げられる。単なる例示であるが、アクリルアミド、（メタ）アクリル酸、及びtert-ブチルアミノエチルメタクリレートから導かれるポリマー及びコポリマー、例えばAmphomerの商標の下で入手できるオクチルアクリルアミド／アクリレート／ブチルアミノエチル（メタ）アクリレートコポリマー；メタクリロイルエチルベタイン及びアルキル（メタ）アクリレートコポリマー、例えばYukaformer（商標）AM75等のYukaformerの商標の下で入手可能なコポリマー；カルボキシル基及び／又はスルホ基（例えば、（メタ）アクリル酸及びイタコン酸）を有するモノマーを、モノ若しくはジアルキルアミノアルキル（メタ）アクリレート、又はモノ若しくはジアリルアミノアルキル（メタ）アクリルアミド等のモノマーと共重合して導かれるコポリマー；並びにN-オクチルアクリルアミド、メチル（メタ）アクリレート、ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、n-tert-ブチルアミノエチル（メタ）アクリレート、及び／又はアクリル酸から導かれるコポリマーである。

【0100】

適切なアニオン性の補助ポリマーとしては、少なくとも1種の次のホモポリマー及びコ

10

20

30

40

50

ポリマーが挙げられる：（メタ）アクリル酸又はこれらの塩のホモポリマー及びコポリマー；メタアクリル酸及びアクリルアミド又はこれらの塩のコポリマー；ポリヒドロキシカルボン酸のナトリウム塩；水溶性又は水分散性のポリエステル、ポリウレタン（L u v i s e t（商標）P. U. R）及びポリウレア；及びｔ－ブチルアクリレート、エチルアクリレート、メタクリル酸のコポリマー（例えば、L u v i m e r（商標）100P）。

【0101】

他の適切なアニオン性の補助ポリマーは、少なくとも1種のビニルアルキルエーテルコポリマーであり、例えば、ビニルエーテル／無水マレイン酸コポリマーの加水分解により得られ、また「G a n t r e z（商標）AN又はES」の商標の下で入手可能なメチルビニルエーテル／マレイン酸コポリマーがある。これらのポリマーは、例えば「G a n t r e z（商標）ES225」又は「ES435」のように、部分的にエステル化されていてもよい。エチルビニルエーテル／無水マレイン酸コポリマーのエチル、ブチル、イソブチルエステルも有用である。

【0102】

さらに典型的なアニオン性の補助ポリマーとしては、次の少なくとも1種が挙げられる：B a l a n c e（商標）CR（アクリレートコポリマー）、B a l a n c e（商標）47（オクチルアクリルアミド／アクリレート／ブチルアミノエチルメタクリレートコポリマー）、B a l a n c e（商標）0／55（アクリレートコポリマー）、A q u a f l e x（商標）FX64（ISP；イソブチレン／エチルマレイミド／ヒドロキシエチルマレイミド コポリマー）、A q u a f l e x（商標）SF－40（ISP；ビニルピロリドン／ビニルカプロラクタム／ジメチルアミノプロピルアミンアクリレートコポリマー）、A l l i a n c e（商標）LT－120（ISP／Rohm&Haas；アクリレート／C1－2スクシナート／ヒドロキシアクリレートコポリマー）、A q u a r e z（商標）HS（Eastman；ポリエステル－1）、D i a f o r m e r（商標）Z－400（C l a r i a n t；メタクリロイルエチルベタイン／メタクリレートコポリマー）、D i a f o r m e r（商標）Z－712又はZ－711（C l a r i a n t；メタクリロイルエチルN－オキシド／メタクリレートコポリマー）、O m n i r e z（商標）200（ISP；ポリ（メチルビニルエーテル／マレイン酸のモノエチルエステル）、A m p h o m e r（商標）HC（アクリレート／オクチルアクリルアミドコポリマー）A m p h o m e r（商標）28－4910（オクチルアクリルアミド／アクリレート／ブチルアミノエチルメタクリレートコポリマー）、A d v a n t a g e（商標）HC37（ISPビニルカプロラクタム／ビニルピロリドン／ジメチルアミノエチルメタクリレートのターポリマー）、A c u d y n e（商標）258（Rohm&Haas；アクリレート／ヒドロキシルエステルアクリレートコポリマー）、L u v i s e t（商標）PUR（BASF、ポリウレタン－1）、及びE a s t m a n（商標）A48（Eastman）。

【0103】

またさらに有用なアニオン性ポリマーは、次の少なくとも1種のポリマーである：単に例示であるが、「R e s y n（商標）」の商標の下で入手可能であるビニルアセテート／クロトン酸又はビニルアセテート／ビニルネオデカノエート／クロトン酸コポリマー；「H y d a g e n（商標）F」の商標の下で入手可能であるナトリウムアクリレート／ビニルアルコールコポリマー；ナトリウムポリスチレンスルホナート、例えば「F l e x a n（商標）140」；「U l t r a h o l d（商標）」の商標の下で入手可能であるエチルアクリレート／アクリル酸／N－tert－ブチルアクリルアミドコポリマー；ビニルピロリドン／ビニルアセテート／イタコン酸コポリマー；及び「R e t e n（商標）」の商標の下で入手可能であるアクリル酸／アクリルアミドコポリマー又はこれらのナトリウム塩；「S a l c a r e（商標）SC81」の商標の下で入手可能であるアクリレートコポリマー；「L u v i f l e x S i l k」の商標の下でBASFから入手可能であるPEG／PPG 25／25 ジメチコーン／アクリレートコポリマー；「U l t r a h o l d S t r o n g」の商標の下で入手可能であるアクリレート／ｔ－ブチルアクリルアミドコポリマー；「A d v a n t a g e L C－E」として入手可能なビニルカプロラクタ

10

20

30

40

50

ム／PVP／ジメチルアミノエチルメタクリレートコポリマー；並びに「Luviset（商標）C66」の商標の下で入手可能なビニルアセテート／クロトナートコポリマー。

【0104】

本明細書に記載したカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーに加えて、パーソナルケア製品に用いることができるカチオン性ポリマーとしては、次の少なくとも1種が挙げられる。「JR」の商標でAmerscolから入手可能であるセルロース型のカチオン性ポリマー、例えばポリクオタニウム10、及びカチオン性のグアーガム、例えばJaguar（商標）の商標名の下で入手可能なものを含むグアーヒドロキシプロピルトリモニウムクロリド。さらに、キトサン及びキチンも、天然のカチオン性ポリマーとして挙げることができ、天然ポリマーのカチオン性誘導体、例えばデンプン、セルロース及びキサンタンゴムのカチオン性誘導体も挙げるができる。

10

【0105】

他の適切なカチオン性ポリマーとしては、任意のポリクオタニウムポリマーが挙げられ、例えば、単なる例示であるが、ポリクオタニウム6、ポリクオタニウム7、ポリクオタニウム11、ポリクオタニウム16、ポリクオタニウム22、ポリクオタニウム24、ポリクオタニウム28、ポリクオタニウム30、ポリクオタニウム36、ポリクオタニウム37、ポリクオタニウム46、ポリクオタニウム67及びポリクオタニウム72並びにこれらの混合物が挙げられる。

【0106】

他の典型的なカチオン性の補助ポリマーとしては、次の少なくとも1種の塩が挙げられる：ビニルピロリドン／N-ビニルイミダゾリウムコポリマー（例えば、Luviquat（商標）FC、Luviquat HM、Luviquat MS、及びLuviquat Care）；ジエチルスルファートで四級化したN-ビニルピロリドン／ジメチルアミノエチルメタクリレートコポリマー（例えば、Luviquat PQ-11）；N-ビニルカプロラクタムN-ビニルピロリドン／N-ビニルイミダゾリウムコポリマーの塩（例えば、Luviquat Hold）；カチオン性セルロース誘導体（例えば、ポリクオタニウム-4及び-10）；並びにアクリルアミド及びジメチルジアリルアンモニウムクロリドコポリマー（例えば、ポリクオタニウム-7）。

20

【0107】

また、この補助ポリマーとして、シリコーン化合物を挙げてもよい。例えば、ポリジオルガノシロキサン、ポリジアルキルシロキサン、ポリアルキルシロキサン、ポリアリールシロキサン、シリコーン樹脂、シリコーンゴム又はジメチコンコポリオール及びアミノ変性シリコーン化合物、例えばアモジメチコン。他のシリコーン化合物としては、オルガノシロキサンのグラフトポリマー及びポリシリコーン-9のINCI名で知られるポリエチルオキサゾリン化合物が挙げられる。そのINCI名の一部にシリコーン、メチコン、ジメチコン、又はシロキサンを含むあらゆるポリマー化合物を用いることができる。

30

【実施例】

【0108】

生成したカチオン性櫛形ポリマーの実験例

本発明を、以下の例によってさらに説明するが、これは例示により提示されるものであり、添付の特許請求の範囲を限定しない。

40

【0109】

以下の例において、親水性エステル及び疎水性エステル、アミド、アルコール、酸及びカチオンから選択される合計で14種類のアクリルモノマー（以下にM1～M14として特定される）の中から8種までの様々な組合せを、典型的な実施態様によるカチオン性カチオン生成性櫛形コポリマー組成物を生成するのに用いた。

【0110】

この例において、組成物M1は、Bimax, Incから商業的に入手可能な、約75wt%のセチル／ステアシルポリエトキシ（25）メタクリレート、約5wt%のメタクリル酸及び約20wt%の水の混合物である、モノマーBX-CSEM-25／80に言

50

及している。M1を、グループBの繰返し単位を与えるために用いた。

【0111】

M2は、グループEのモノマーであり、そして様々な商業的な供給業者から99%の純度で得られるn-ブチルアクリレートに言及している。

【0112】

M3は、Sartomer Coから入手可能な、約98wt%のラウリルポリエトキシ(4)アクリレート及び2wt%のラウリルアルコール及びラウリルアルコールのエトキシレートの混合した商業グレードである、モノマーCD9075に言及している。M3を、グループBの繰返し単位を与えるために用いた。

【0113】

M4は、Kyowa Hakko Chemicalから98%の純度で商業的に得られるジアセトンアクリルアミドモノマーに言及している。M4を、グループCの繰返し単位を与えるために用いた。

【0114】

M5は、Kowa American Corpから98%の純度で商業的に得られるジメチルアクリルアミドモノマーに言及している。M5を、グループCの繰返し単位を与えるために用いた。

【0115】

M6は、Evonik Industriesから商業的に入手可能な約75wt%のヒドロキシプロピルメタクリレート及び25%のヒドロキシイソプロピルメタクリレートの97~98%の純度の混合物である、モノマーHPMA97に言及している。M6を、グループDの繰返し単位を与えるために用いた。

【0116】

M7は、様々な商業的な供給業者から99+%の純度で得られる、メタクリル酸に言及している。M7を、グループDの繰返し単位を与えるために用いた。

【0117】

M8は、Ciba Specialty Chemicalsから商業的に入手可能な2-アクリロイルオキシエチルトリメチルアンモニウムクロリドの80wt%水溶液である、モノマーAgeflex FA1Q80MC*500に言及している。M8を、グループAの繰返し単位を与えるために用いた。

【0118】

M9は、Bimax, Incから商業的に入手可能な、約94wt%のラウリルポリエトキシ(25)メタクリレート、5wt%のメタクリル酸及び約1wt%の水の混合物である、モノマーBX-LEM-23/100に言及している。M9を、グループBの繰返し単位を与えるために用いた。

【0119】

M10は、様々な商業的な供給業者から99+%の純度で得られる、メチルアクリレートモノマーに言及している。M10を、グループEの繰返し単位を与えるために用いた。

【0120】

M11は、Sigma-Aldrichから商業的に入手可能な[2-(メタクリロイルオキシ)エチル]トリメチルアンモニウムメチルスルファートの80wt%水溶液である、モノマーに言及している。M11を、グループAの繰返し単位を与えるために用いた。

【0121】

M12は、様々な商業的な供給業者から99+%の純度で得られる、n-ブチルメタクリレートモノマーに言及している。M12を、グループEの繰返し単位を与えるために用いた。

【0122】

M13は、Evonik Industriesから商業的に入手可能な、トリメチルアミノプロピルメタクリルアミドクロリドの50wt%水溶液である、モノマーMhor

10

20

30

40

50

omer BM613に言及している。M13を、グループAの繰返し単位を与えるために用いた。

【0123】

M14は、Sigma-Aldrichから98%の純度で商業的に入手可能な、メタクリルアミドモノマーに言及している。M14を、グループCの繰返し単位を与えるために用いた。

【0124】

特記しない限り、各ケースの開始剤は、Wako Chemicals USAから商業的に入手可能な、97wt%の2, 2'-アゾビス-2-メチルプロピオンアミジンジヒドロクロリド (V50として知られる) であった。

【0125】

例1

121.0グラムのM1、96.3グラムのM3、41.25グラムのM6、及び51.6グラムのM8を、220グラムの2-プロパノール (IPA) と共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0126】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその212グラム (40%) を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、65℃に加熱した。この加熱は、70℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.5グラムのIPAを、残りの318グラムのモノマー混合物に添加して、窒素を散布し、そしてFMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.1グラムのV50を6.1グラムの脱イオン水 (DI水) 及び6.1グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いてこの反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

【0127】

65℃で、1.0グラムのV50及び5.0グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。1分以内に、反応器内容物は、透明性を失うと同時に、温度が上昇し始めた。5分後に、この内容物は、半透明の白い混合物に変化し、そして温度は70℃に上昇した。6分後に、開始剤混合物及びモノマー混合物を遅延させて添加させるための両方のポンプを稼働させた。このモノマー混合物は、事前に60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。ウォーターバスの温度を、段階的に80℃に上昇させた。これは、遅延させた添加の開始30分の間で行った。そして、反応器の温度をゆっくりと73℃に上昇させた。全てのモノマー混合物が反応器に供給される時間までに、温度は81℃に上昇し、内容物は粘性となり、そして白色となった。全ての開始剤が供給された後、反応器をさらに加熱して、このプロセスを85℃でさらに2時間持続させた。

【0128】

そして、窒素散布を開始し、水流吸引器を取り付けて減圧にし、揮発性溶媒を除去した。これは、反応器内容物を86~87℃で維持するためのウォーターバスからの追加の熱と共に行った。15分の減圧散布 (vacuum sparging) の後で、150グラムの熱い (70~80℃) DI水を添加し、反応器内容物を完全に透明へと変えた。173グラム超の熱水を添加すると、内容物は不透明ではないが、半透明な状態となった。このポリマー溶液の粘度は、溶媒を除去するにしたがって上昇し、減圧散布をさらに3時間続けた。最終的に、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.0グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、半透明の粘性液体であった。

【0129】

例2

41.25グラムのM5、192.5グラムのM3、及び51.6グラムのM8を、2

10

20

30

40

50

20グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0130】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその202グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、65℃に加熱した。この加熱は、70℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.8グラムのIPAを、残りの303グラムのモノマー混合物に添加して、窒素を散布し、そしてFMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.4グラムのV50を8.0グラムのDI水及び7.7グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY 10
定量ポンプを用いてこの反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジパレルに加えた。

【0131】

65℃で、1.4グラムのV50及び7.1グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。1分以内に、反応器内容物は濁り(cloody)、そして非常に素早く74℃に温度が上昇した。さらに7.5グラムのIPAを添加し、その後温度は低下した。4分後に、開始剤混合物及びモノマー混合物を遅延させて添加させるための両方のポンプを稼働させた。このモノマー混合物は、60分 20
内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。ウォーターバスの温度を、段階的に75℃に上昇させた。これは、遅延させた添加の開始30分の間で行った。そして、反応器の温度をゆっくりと73℃に戻して上昇させた。全ての開始剤を供給した後、反応器をさらに加熱して、このプロセスを75℃でさらに2時間持続させた。

【0132】

そして、窒素散布を開始し、水流吸引器を取り付けて減圧にし、揮発性溶媒を除去した。これは、反応器内容物を82～87℃で維持するためのウォーターバスからの追加の熱と共に行った。1時間の減圧散布の後で、324グラムの熱い(70～80℃)DI水を添加し、循環が維持されるのに十分な粘度に低下させた。減圧散布をさらに2時間続けた。最終的に、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.0グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、不透明の液体であり、これはゆっくりと沈 30
降して2つの透明な層となった。

【0133】

例3

55.0グラムのM4、82.5グラムのM5、61.9グラムのM3、61.9グラムのM2、及び17.2グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0134】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその199グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、62℃に加熱した。この加熱は、70℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.5グラムのIPAを、残りの299グラムのモノマー混合物に添加して、窒素を散布し、そしてFMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.7グラムのV50を9.1グラムの脱イオン水(DI水)及び9.1グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY 40
定量ポンプを用いてこの反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジパレルに加えた。

【0135】

62℃で、1.6グラムのV50及び8.3グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。1分以内に、反応器内容物は、透 50

明性を失うと同時に、温度が上昇し始めた。17分後に、この内容物は、半透明の白い混合物に変化し、そして温度は80℃に上昇した。6分後に、開始剤混合物及びモノマー混合物を遅延させて添加させるための両方のポンプを稼働させた。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。ウォーターバスの温度を、段階的に80℃に上昇させた。これは、遅延させた添加の開始20分の間で行った。この時間内に反応器の温度はまず低下し、そして72℃付近で安定となった。全てのモノマー混合物が反応器に供給される時間までに、温度は81℃に上昇し、内容物は粘性となり、そして白色となった。全ての開始剤が供給された後、反応器をさらに加熱して、このプロセスを85℃でさらに2時間持続させた。

10

【0136】

そして、窒素散布を開始し、水流吸引器を取り付けて減圧にし、揮発性溶媒を除去した。これは、反応器内容物を74～78℃で維持するためのウォーターバスからの追加の熱と共に行った。10分の減圧散布の後で、250グラムの熱い(70～80℃)DI水を添加し、反応器内容物を完全に透明へと変えた。173グラムの熱水を添加しても、内容物は透明を維持した。このポリマー溶液の粘度は、溶媒を除去するにしたがって上昇し、減圧散布をさらに3時間続けた。最終的に、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.0グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、半透明の粘性液体であった。

20

【0137】

例4

75.6グラムのM3及び55.0グラムのM4を、121グラムのIPAと共に攪拌することによって、始めのモノマー混合物を調製した。

【0138】

この混合物を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして20分間、乾燥窒素を散布しながら、66℃に加熱した。この加熱は、71℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。

【0139】

75.6グラムのM3、55.0グラムのM4、及び8.6グラムのM8を、82.5グラムのIPAと共に攪拌することによって、第二のモノマー混合物を調製した。これを、窒素で散布し、50℃に温めて、そしてFMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。

30

【0140】

1.1グラムのV50を8.8グラムのDI水及び8.6グラムのM8に溶解した溶液からなる、始めの開始剤混合物を調製した。

【0141】

1.6グラムのV50を9.1グラムのDI水及び9.1グラムのIPAに溶解した溶液からなる、遅延させて添加する開始剤混合物を調製した。この混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いてこの反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

40

【0142】

重合を、始めの混合物を一度に反応器に添加することによって開始させた。

【0143】

20分後に、69℃でモノマー及び開始剤を供給するための遅延供給ポンプを始動させた。これらは、60分内で終了するように調節した。供給の間は最小限度で熱を放出させて、このプロセス温度を71～72℃で安定的に保持した。この温度を73～74℃に上昇させて、供給が終わった後に30分超保持した。そして、0.5グラムのV50が4.4グラムのDI水中にある混合物を添加し、そして温度を81℃に50分間で上昇させた。さらに0.6グラムのV50が5.4グラムのDI水中にある混合物を添加し、その温度を20分超保持した。79グラムの熱いDI水を添加したところ、このポリマー混合物

50

は透明になった。減圧を伴う窒素散布を行い、2時間半にわたって溶媒を除去した。この時間内に、合計で190グラム超の熱いDI水を添加した。このポリマー混合物は、パール状の光沢性(pearlescent)となり、かつ粘性がより強まった。

【0144】

最終の粘性ポリマー液体を、50℃のオーブンに終夜で置いた。すると、分離した低粘度の透明な層が分離して、この140グラムをデカンテーションし、約480グラムのポリマー混合物を得た。20℃での最終の外観は、パール状光沢性/半透明であり、高い粘性の液体となった。

【0145】

例5

121.0グラムのM1、96.3グラムのM3、41.25グラムのM6、及び51.6グラムのM8を、220グラムの2-プロパノール(IPA)と共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0146】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその212グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、67℃に加熱した。この加熱は、67℃超のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.5グラムのIPAを、残りの318グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1 C K C定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.1グラムのV50を3.3グラムの脱イオン水(DI水)及び8.8グラムのメタノール(MeOH)に溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0 S S Y定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

【0147】

67℃で、0.99グラムのV50、2.48グラムのDI水、及び2.48グラムのMeOHの混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。1分以内に、反応器内容物は、透明性を失い始めた。4分までに、このバッチの温度が上昇し始めた。9分後に、温度は67℃に上昇しており、開始剤混合物及びモノマー混合物を遅延させて添加させるための両方のポンプを稼働させた。このモノマー混合物は、事前に60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。ウォーターバスの温度を、23分で90℃の設定に上げた。全てのモノマー混合物が反応器に供給される時間までに、温度は76℃に上昇し、内容物は粘性となり、そして白色となった。全ての開始剤が供給された後、反応器は未だ76℃であり、このプロセスをさらに2時間20分持続させた。

【0148】

そして、窒素散布を開始し、水流吸引器を取り付けて減圧にし、揮発性溶媒を除去した。これは、反応器内容物を68~70℃で維持するためのウォーターバスからの追加の熱と共に行った。15分の減圧散布の後で、321グラムの熱い(70~80℃)DI水を添加した。1時間15分後、さらに139.5グラム超の熱水を添加した。このポリマー溶液の粘度は、溶媒を除去するにしたがって上昇し、減圧散布をさらに1時間15分続けた。最終的に、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.0グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、不透明の粘性液体であった。

【0149】

例6

41.25グラムのM5、192.5グラムのM3、及び51.6グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0150】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその202グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に

10

20

30

40

50

加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、65℃に加熱した。この加熱は、68℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.5グラムのIPAを、残りの303グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.4グラムのV50を4.3グラムのDI水及び11.4グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

【0151】

65℃で、1.4グラムのV50、3.6グラムのDI水、及び3.6グラムのMeOHの混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。1分以内に、反応器内容物は濁り、そして非常に素早く73℃に温度が上昇した。さらに2.3グラムのIPAを添加し、そして温度は安定させた。3分後に、開始剤混合物及びモノマー混合物を遅延させて添加させるための両方のポンプを稼働させた。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。ウォーターバスの温度を、遅延させた添加の間に段階的に79℃に上昇させた。そして、反応器の温度をゆっくりと77℃に上昇させた。全ての開始剤を供給した後、このプロセスを75℃でさらに2時間持続させた。

【0152】

そして、窒素散布を開始し、水流吸引器を取り付けて減圧にし、揮発性溶媒を除去した。これは、反応器内容物を66℃超で維持するためのウォーターバスからの追加の熱と共に行った。15分の減圧散布の後で、123グラムの熱い(70~80℃)DI水を添加すると、このバッチは透明へと変わった。さらに、321グラムへの水の添加は、このバッチを濁り／不透明へと変えた。減圧散布をさらに3.5時間続けた。最終的に、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.0グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は不透明の液体であり、これはゆっくりと沈降して2つの透明な層となった。

【0153】

例7

144.4グラムのM3、82.5グラムのM5、34.4グラムのM4、及び17.2グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0154】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその199グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、64℃に加熱した。この加熱は、66℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.5グラムのIPAを、残りの299グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.4グラムのV50を4.3グラムのDI水及び11.4グラムのMeOHに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

【0155】

64℃で、1.4グラムのV50、3.6グラムのDI水、及び3.6グラムのMeOHの混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。1分以内に、反応器内容物は、濁り始めた。わずかな熱応答があり温度の設定値を3分後に82℃へと上げた。バス温度と同等の温度を維持するバッチ温度で、開始剤の供給を16分に開始した。24分に、この温度を再び設定の90.7℃に上げて、そしてモノマーの供給を開始した。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつ

この開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。さらに、0.5グラムの開始剤混合物を、30分に添加したところ、発熱が起こった。ウォーターバスの温度を、この遅延させた添加の間に、70～80℃の間で維持した。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間までに、温度は77℃になり、そして内容物は濁り／乳白色 (m i l k y) となった。そして、このプロセスを2時間10分持続させた。

【0156】

そして、窒素散布を開始し、水流吸引器を取り付けて減圧にし、揮発性溶媒を除去した。これは、反応器内容物を70～80℃で維持するためのウォーターバスからの追加の熱と共に行った。15分後の減圧散布の後で、89グラムの熱い (70～80℃) D I 水を添加し、反応器内容物を完全に透明へと変えた。さらに、232グラムの熱水を添加すると、内容物は白色となった。このポリマー溶液の粘度は、溶媒を除去するにしたがって上昇し、減圧散布をさらに2時間20分続けた。最終的に、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.0グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、半透明の粘性液体であった。

【0157】

例 8

29.6グラムのM1、39.8グラムのM7、22.5グラムのM2、82.9グラムのM6、38.5グラムのM3、13.8グラムのM4、及び68.8グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0158】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその206グラム (40%) を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、65℃に加熱した。この加熱は、68℃のウォーターバスに浸漬させることによって行なった。さらに、27.5グラムのIPAを、残りの309グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1C KC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.4グラムのV50を4.3グラムのD I 水及び11.4グラムのMeOHに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

【0159】

65℃で、1.4グラムのV50、2.5グラムのD I 水、及び2.5グラムのMeOHの混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。3分以内に、反応器内容物は、温度が上昇しかつ濁り始めた。6分後に、このバッチは、白色となり、温度は設定の90℃に上昇した。8分で、このバッチは、粘度が上昇し、2つの異なる相を示した。9分で、内容物は82℃に上昇し、そして開始剤混合物及びモノマー混合物を遅延させて添加させるための両方のポンプを稼働させた。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物が反応器に供給される時間までに、温度は81℃に上昇し、開始剤の供給添加が終わるまでに76℃となった。内容物は粘性となり、そして白色となった。このプロセスを73～76℃でさらに2時間20分持続させた。

【0160】

この時点で、温度の設定値を100℃に上げて、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。10分の散布後に、176グラムの熱い (70～80℃) D I 水を添加し、この混合物を透明へと変えた。さらに159グラムの水を添加すると、いくぶんか透明なバッチをもたらした。散布をさらに2時間10分続けた。最終的に、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.0グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、半透明の粘性液体であった。

【0161】

例 9

122. 7グラムのM3、20.4グラムのM4、20.4グラムのM5、10.2グラムのM7、及び38.3グラムのM8を、128.3グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0162】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその170グラム(50%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして20分間、乾燥窒素を散布しながら、76℃に加熱した。この加熱は、88℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、29.0グラムのIPAを、残りの169グラムのモノマー混合物に添加して、窒素を散布し、そしてFMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。0.79グラムのV50を4.0グラムのDI水及び4.0グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

10

【0163】

0.79グラムのV50、4.0グラムのDI水、及び4.0グラムのIPAからなる開始剤混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加して、重合を開始した。

【0164】

ほとんどすぐに、内容物は白く混濁し(turbid)、温度が急激に上がった。3分後、温度は83℃で安定化し、そして開始剤混合物及びモノマー混合物を遅延させて添加させるための両方のポンプを稼働させた。このモノマー混合物及び開始剤混合物は、60分内で供給されるように調整していた。ウォーターバスの温度を、遅延させた添加の最初の20分間で段階的に88℃に上昇させた。モノマーと開始剤の両方の供給が終わった5分後に、バス温度を上昇させ、このバッチを83℃で1時間保持した。85グラムのDI水をこの混濁溶液に添加したとき、透明になった。さらに118グラムの水を添加したところ、これはより粘性が高くなり、乳白色となった。減圧を伴う窒素散布を開始して、4時間90℃で溶媒蒸気を除去した。減圧及び散布を終了させた後、室温に冷却した。最終の外観は、半透明の高粘性液体となった。

20

【0165】

30

例 10

112. 38グラムのM1、37.81グラムのM2、41.26グラムのM6、51.57グラムのM3、及び68.75グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0166】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその213グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、66℃に加熱した。この加熱は、68℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.5グラムのIPAを、残りの319グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.4グラムのV50を4.3グラムのDI水、及び11.4グラムのMeOHに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

40

【0167】

66℃で、1.4グラムのV50、2.5グラムのDI水、及び2.5グラムのMeOHの混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。1分以内に、反応器内容物は、温度が上昇し始め、そして白くなった。4分後に、このバッチは、70℃となり、温度を88℃の設定に上げた。6分で、内容物は71℃に上昇し、そ

50

して開始剤混合物及びモノマー混合物を遅延させて添加させるための両方のポンプを稼働させた。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は73～77℃であった。内容物は粘性かつ白色であった。このプロセスを71℃超でさらに2時間持続させた。

【0168】

この時点で、温度は71℃であった。設定値を100℃に挙げて、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にし、揮発性溶媒を除去した。40分の散布後に、160グラムの熱い(70～80℃)DI水を添加したところ、混合物はいくぶんか透明となった。さらに172グラムの水を添加すると、このバッチは再び白色となった。散布をさらに2時間10分続けた。最終的に、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.0グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、不透明の粘性液体であった。

10

【0169】**例11**

120.66グラムのM1、7.23グラムのM7、103.15グラムのM2、41.27グラムのM5、13.76グラムのM3、及び17.21グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0170】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその209グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、67℃に加熱した。この加熱は、68℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.6グラムのIPAを、残りの314グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1C KC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.4グラムのV50を4.3グラムのDI水、及び11.4グラムのMeOHに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

20

【0171】

67℃で、1.4グラムのV50、2.5グラムのDI水、及び2.5グラムのMeOHの混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。1分以内に、反応器内容物は白くなった。8分後に、このバッチは、67℃付近となり、温度を89℃の設定に上げた。23分で、内容物は71℃となり、そして開始剤添加を行うためのポンプを稼働させた。25分で、わずかな熱応答があり、さらに5.4グラムの開始剤の供給を直接的に添加した。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は79℃であった。内容物は粘性であり、かつ濁っていた。このプロセスを74℃超でさらに2時間持続させた。

30

40

【0172】

この時点で、温度は74℃であり、設定値を100℃に上げて、窒素散布を開始した。そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。このバッチは、赤みのある透明となった。40分の散布後に、25グラムの熱い(70～80℃)DI水を添加し、この混合物をいくぶんか濁りのあるものへと変えた。さらに182グラムの水を添加すると、このバッチは不透明になった。散布をさらに2時間10分続けた。最終的に、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.0グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、半透明の粘性液体であった。124グラムの最後の添加を与えても、このバッチは不透明であった。散布をさらに2時間10分続けた。最終的に、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.0グラムの10%過酸化水素を保存料と

50

して添加した。最終的な外観は、不透明の粘性液体であった。

【0173】

例12

129.67グラムのM1、29.77グラムのM2、41.29グラムのM6、73.35グラムのM3、及び34.90グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0174】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその211グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、63℃に加熱した。この加熱は、67℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.5グラムのIPAを、残りの317グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.4グラムのV50を4.3グラムのDI水、及び11.4グラムのMeOHに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

【0175】

63℃で、1.4グラムのV50、2.5グラムのDI水、及び2.5グラムのMeOHの混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。1分以内に、反応器内容物は白くなり、温度が上がり始めた。5分後に、このバッチは66℃であり、開始剤混合物及びモノマー混合物を遅延させて添加させるための両方のポンプを稼働させた。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は81℃であった。内容物は、青みがかり、濁った／半透明の性質であり、このプロセスを67℃超でさらに3時間20分持続させた。

【0176】

この時点で、反応混合物の温度は74℃であり、ウォーターバスの加熱設定値を101℃に上げた。窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。このバッチは、ブラウンの色相で濁っていた。1時間20分の散布後に、142グラムの熱い(70~80℃)DI水を添加し、この混合物は褐色(tan)で不透明になった。180グラムの最後の添加を与えても、このバッチは不透明であった。散布をさらに30分続けた。最終的に、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.0グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、不透明の粘性液体であった。

【0177】

例13

96.75グラムのM9、8.49グラムのM7、103.15グラムのM2、41.27グラムのM5、13.80グラムのM3、及び17.20グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0178】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその200グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、67℃に加熱した。この加熱は、70℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.5グラムのIPAを、残りの300グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.4グラムのV50を4.3グラムのDI水、及び11.4グラムのMeOHに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポン

プを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

【0179】

67℃で、1.4gのV50、2.5gのDI水、及び2.5gのMeOHの混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。1.5分以内に、反応器内容物は濁り、温度が上がり始めた。6分後に、このバッチは75℃であり、開始剤混合物及びモノマー混合物を遅延させて添加させるための両方のポンプを稼働させた。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は77℃であった。内容物は、不透明であり、このプロセスを75℃超でさらに1時間50分持続させた。

10

【0180】

この時点で、温度は75℃であり、加熱設定値を101℃に上げた。窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。このバッチは、赤い色相で不透明であった。1時間11分の散布後に、142gの熱い(70~80℃)DI水を添加したところ、比較的透明になった。205gの最後の添加を与えると、このバッチは赤い不透明色に戻ったが、これはエアバブルであるとも考えられる。散布をさらに1時間45分続けた。最終的に、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.0gの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、半透明の粘性液体であった。

20

【0181】

例14

84.33gのM9、68.75gのM10、55.0gのM6、41.25gのM3、及び34.38gのM8を、220gのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0182】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその201g(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、64℃に加熱した。この加熱は、66℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.9gのIPAを、残りの300gのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1C KC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.4gのV50を4.3gのDI水、及び11.4gのMeOHに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

30

【0183】

64℃で、1.4gのV50、2.5gのDI水、及び2.5gのMeOHの混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。1分以内に、反応器内容物は濁り、温度がわずかに上がり始めた。3分後に、温度の設定値を85℃に上げた。5分後に、このバッチは66℃であり、開始剤混合物及びモノマー混合物を遅延させて添加させるための両方のポンプを稼働させた。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は75℃であった。内容物は、パール状の光沢性の外観となり、このプロセスを71℃超でさらに2時間持続させた。

40

【0184】

この時点で、温度は71℃であり、加熱設定値を101℃に上げた。30分後に、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。このバッチは、パール状の光沢性があった。45分の散布後に、323gの熱い(70~8

50

0℃) D I 水を添加しても、この添加中に外観に変化はなかった。散布をさらに1時間37分続けた。最終的に、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.0グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、半透明の粘性液体であった。

【0185】

例15

112.45グラムのM9、82.52グラムのM6、55.01グラムのM3、及び34.38グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0186】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその202グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、67℃に加熱した。この加熱は、68℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.5グラムのIPAを、残りの300グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1C KC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.4グラムのV50を4.3グラムのD I 水、及び11.4グラムのMeOHに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

【0187】

67℃で、1.4グラムのV50、及び5グラムのD I 水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。1.5分以内に、反応器の内容物は濁り、かつ温度がわずかに上がり始めた。また、加熱の設定値を85℃に上げた。6分後に、このバッチは70℃であり、開始剤混合物及びモノマー混合物を遅延させて添加させるための両方のポンプを稼働させた。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。20分で設定値を90℃に上げたとき、温度は67℃であった。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は78.5℃であり、内容物は濁った。このプロセスを69℃超でさらに2時間20分持続させた。

【0188】

この時点で、温度は69℃であり、設定値を101℃に上げた。窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。1時間の散布後に、325グラムの熱い(70~80℃)D I 水を添加しても、この添加中に外観に変化はなかった。散布をさらに1時間50分続けた。最終的に、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.0グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、半透明の粘性液体であった。

【0189】

例16

139.18グラムのM1、33.69グラムのM7、96.27グラムのM2、及び42.05グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0190】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその213グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、65℃に加熱した。この加熱は、67℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.5グラムのIPAを、残りの319グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1C KC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.4グラムのV50を4.3グラムのD I 水、及び11.4グラムのMeOHに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポン

プを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

【0191】

65℃で、1.4gのV50、及び5gのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。1分未満で、反応器の内容物は濁り、かつ温度がわずかに上がり始めた。1分で、内容物は白色となり、温度の設定値を90℃に上げた。4分後に、このバッチは65℃であり、非常にわずかな熱応答の後で、開始剤混合物を遅延させて添加させるための供給ポンプを稼働させた。9分で、温度は66℃であり、モノマー供給ポンプを始動させた。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は76℃であり、内容物は白色であった。このプロセスを71℃超でさらに2時間30分持続させた。

10

【0192】

この時点で、温度は71℃であり、加熱設定値を101℃に上げた。窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。1時間の散布後に、61gの熱い(70~80℃)DI水を添加したところ、外観がパール状の光沢色となった。283gの水の最終的な添加によって、このバッチは白色に戻った。散布をさらに1時間20分続けた。最終的に、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.0gの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、半透明の粘性液体であった。

20

【0193】

例17

112.1gのM3、64.1gのM5、24.0gのM14、及び20.0gのM8を、120gのIPA及び4.8gのDI水と共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0194】

このモノマー混合物を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして15分間、乾燥窒素を散布しながら、71℃に加熱した。この加熱は、86℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。0.91gのV50を3.6gの脱イオン水(DI水)及び1.0gのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、反応器に一度で添加した。

30

【0195】

1分後に、内容物はだんだんと濁り、そして2分で、温度は急速に83℃に上がった。12分後に、この混濁溶液の粘度が実質的に上昇し、そして還流が止まった。このバッチを85℃でさらに58分間保持し、その後90gのDI水を加えたところ、内容物は透明になった。150g超のDI水を添加したところ、内容物は再び混濁した。減圧を伴う窒素散布を行って、90分間にわたって溶媒蒸気を除去した。その後、室温に冷却した。最終的な外観は、不透明な高粘性液体であった。

【0196】

40

例18

140.55gのM9、82.50gのM6、27.52gのM5、及び34.45gのM8を、220gのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0197】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその202g(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、66℃に加熱した。この加熱は、69℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.5gのIPAを、残りの303gのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1C

50

K C 定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500ml のPyrexの添加ロートに注いだ。1.4グラムのV50を4.3グラムのDI水、及び11.4グラムのMeOHに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

【0198】

65℃で、1.4グラムのV50、及び5グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。2分未満で、反応器の内容物は、濁って、温度がわずかに上がり始めた。この時、温度の設定値を90℃に上げた。5分後に、このバッチは70℃であり、発熱は一定に達し、開始剤混合物を遅延させて添加させるための供給ポンプを稼働させた。7分で、温度は未だ70℃であり、モノマー供給ポンプを始動させた。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は81℃であり、内容物は半透明であった。このプロセスを77℃超でさらに3時間20分持続させた。

10

【0199】

この時点で、温度は77℃であり、そして窒素散布を開始し、また水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。30分の散布後に、131グラムの熱い(70～80℃)DI水を添加したところ、外観がいくぶんか透明に変化した。194グラムの水の最終的な添加によって、外観は透明になった。散布をさらに1時間30分続けた。最終的に、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.0グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、透明の粘性液体であった。

20

【0200】

例19

121.1グラムのM1、68.79グラムのM10、96.28グラムのM5、及び17.20グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0201】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその209グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、66℃に加熱した。この加熱は、67℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.5グラムのIPAを、残りの314グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1C K C 定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.4グラムのV50を4.3グラムのDI水、及び11.4グラムのMeOHに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

30

【0202】

66℃で、1.4グラムのV50、及び5グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。2分で、反応器の内容物は濁り、かつ温度がすばやく上がり始めた。また、温度の設定値を90℃に調節し、そしてモノマーの供給を開始して、発熱を弱めた。3分後に、温度は82℃に上がり続けており、15.48グラムのIPAを添加して、この反応を冷却した。7分で、さらに熱を低減しようとして冷却水でバス温度を低下させ、開始剤混合物を遅延させて添加させるための供給ポンプを稼働させた。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。39分で、温度は76℃であり、さらに反応を冷却しようとして3.06グラムのIPAを添加した。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は76℃であり、内容物はピンクがかった透明の色相であった。このプロセスを73℃超でさらに2時間3

40

50

0分持続させた。

【0203】

この時点で、温度は74℃であり、そして窒素散布を開始し、また水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。50分の散布後に、106グラムの熱い(70～80℃)DI水を添加したところ、外観がいくぶんか透明に変化した。220グラムの水の最終的な添加によって、外観は透明になった。散布をさらに1時間30分続けた。最終的に、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.1グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、透明の粘性液体であった。

【0204】

例20

69.17グラムのM1、55.01グラムのM12、82.57グラムのM3、68.75グラムのM5、及び17.21グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0205】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその209グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、66℃に加熱した。この加熱は、68℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.5グラムのIPAを、残りの308グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1C KC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.4グラムのV50を4.3グラムのDI水、及び11.4グラムのMeOHに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

【0206】

66℃で、1.4グラムのV50、及び5グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。1分未満で、反応器の内容物は濁った。2.5分で、温度の設定値を90℃に調節し、3.42グラムの開始剤供給溶液を反応器に直接添加した。4.5分で、このバッチは未だ66℃であり、開始剤供給を開始した。10分で、温度は67℃であり、モノマー混合物を遅延させて添加させるための供給ポンプを稼働させた。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は81℃であり、内容物はピンクがかった不透明の色相であった。このプロセスを72℃超でさらに2時間持続させた。

【0207】

この時点で、温度は72℃であり、そして窒素散布を開始し、また水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。1時間の散布後に、70グラムの熱い(70～80℃)DI水を添加した。このとき外観は白色であった。262グラムの水の最終的に添加し、外観は白色であった。散布をさらに1時間20分続けた。最終的に、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.2グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、透明の粘性液体であった。

【0208】

例21

121.11グラムのM1、41.30グラムのM6、96.25グラムのM3、及び51.57グラムのM8を、55グラムのIPA及び165グラムのプロピレングリコールと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0209】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその212グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に

加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、65℃に加熱した。この加熱は、67℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.5グラムのIPAを、残りの318グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.4グラムのV50を12.1グラムのDI水に溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

【0210】

65℃で、1.4グラムのV50、及び7グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。1分未満で、反応器の温度が上がり始めた。3分で、温度の設定値を90℃に調節した。7分後に温度は80.5℃であり、モノマー混合物を遅延させて添加させるための供給ポンプを稼働させた。8分で、温度は82.7℃に上がり続けており、5.20グラムのIPAを添加して発熱を弱め、そして開始剤供給を開始した。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は73℃であり、内容物は透明であった。このプロセスを約75℃でさらに1時間40分持続させ、その後、反応器を停止して翌日に続けた。

【0211】

2日目に、反応器の温度は18℃であり、90℃へと加熱をした。3時間11分後に、温度は72℃に達し、そして窒素散布を開始し、また水流吸引器を取り付けて減圧にし、揮発性溶媒を除去した。25分の散布後、追加の1.65グラムのV50及び19.80グラムのプロピレングリコールを、反応器に直接添加した。4時間27分で、温度の設定値を110.7℃に上げた。最終的に7時間で、ポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.2グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、透明の粘性液体であった。

【0212】

例22

74.3グラムのM3、及び82.5グラムのM5を、100グラムのIPAと共に攪拌することによって、始めのモノマー混合物を調製した。

【0213】

この混合物を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして20分間、乾燥窒素を散布しながら、69℃に加熱した。この加熱は、72℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。

【0214】

第二のモノマーを、49.6グラムのM3、55.0グラムのM5、及び6.9グラムのM8を、99.1グラムのIPAと共に攪拌することによって調製した。これに窒素を散布し、50℃に温めて、そしてFMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。

【0215】

1.3グラムのV50、9.0グラムのDI水及び10.36グラムのM8からなる始めの開始剤混合物を調整した。

【0216】

1.3グラムのV50、6.9グラムのDI水及び6.9グラムのIPAからなる遅れて添加させる開始剤混合物を調整した。この混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いてこの反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

【0217】

この始めの混合物を反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。

【0218】

温度は非常に素早く上昇し、92℃で2分で還流した。この時、加熱したウォーターバスは取り除かれていた。30分で終了するように調節した遅延のモノマー供給ポンプ及び開始剤供給ポンプを稼働させた。これは、温度を65℃に低下させた。減圧を伴う窒素散布を行い、3時間にわたって溶媒を除去した。この間の最初の1時間に、合計で407グラムのDI水をポンプで添加した。ポリマー混合物は、極めて高い粘性あったが、終始透明を維持した。

【0219】

最終の粘性ポリマー液を、50℃で終夜保存して、窒素の多くの小さな泡を放出した。20℃での最終の外観は、透明であり極めて高い粘性のゲルであった。

【0220】

10

例23

25.94グラムのM1、20.67グラムのM7、13.80グラムのM2、6.92グラムのM3、48.14グラムのM4、及び34.37グラムのM8を、121.25グラムのIPAと共に攪拌することによって、反応器装填モノマー混合物を調製した。

【0221】

26.02グラムのM1、20.66グラムのM7、13.74グラムのM2、6.87グラムのM3、48.13グラムのM4、及び34.36グラムのM8を、132.58グラムのIPAと共に攪拌することによって、反応器供給モノマー混合物を調製した。

【0222】

モノマー混合物を、50℃に温めて、そして反応器装填モノマー混合物を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、58℃に加熱した。この加熱は、66℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。供給混合物を、FMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.4グラムのV50を8グラムの脱イオン水(DI水)及び8グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いてこの反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

20

【0223】

58℃で、1.6グラムのV50及び7.7グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。反応器の内容物は、7分で混濁し、そして10分で白くなった。この間、温度は徐々に上昇した。14.5分で、温度は72℃であり、開始剤混合物及びモノマー混合物を遅延させて添加させるための供給ポンプを稼働させた。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給されるまで、温度は70℃であり、このプロセスを72℃超でさらに2時間持続させた。

30

【0224】

この時点で、温度は80℃であり、170グラムの熱い(70~80℃)DI水を添加し、この混合物を透明へと変えた。3時間54分で、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。散布を止めて、そして21時間48分で再開させ、この時さらに183グラムの熱いDI水を添加し、これは粘度を上昇させた。散布をさらに0.5時間続け、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして数週間後に新たな容器に移す間に3.0グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、パール状光沢のある粘性液体であった。

40

【0225】

例24

56.19グラムのM1、37.81グラムのM2、6.88グラムのM3、20.63グラムのM5、及び34.38グラムのM8を、137.50グラムのIPAと共に攪拌することによって、反応器装填モノマー混合物を調製した。

50

【0226】

56.20グラムのM1、37.82グラムのM2、6.89グラムのM3、20.64グラムのM5、及び34.45グラムのM8を、104.50グラムのIPAと共に攪拌することによって、反応器供給モノマー混合物を調製した。

【0227】

モノマー混合物を、50℃に温めて、そして反応器装填モノマー混合物を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、61℃に加熱した。この加熱は、68℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。供給混合物を、FMI QG-50-1 C K C定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.3グラムのV50を7グラムの脱イオン水(DI水)及び7グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0 S S Y定量ポンプを用いてこの反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

10

【0228】

61℃で、1.1グラムのV50及び5.5グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。反応器の内容物は、7分までに濁って、66℃となった。開始剤混合物及びモノマー混合物を遅延させて添加させるための供給ポンプを稼働させた。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給されるまで、温度は71℃であり、このプロセスを1時間保持した。

20

【0229】

この時点で、温度は75℃であり、~100グラムの熱い(70~80℃)DI水を添加し、この混合物を透明へと変えた。224グラムの水を添加すると、外観は、より濁って、そして半透明になった。3時間58分で、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。さらに240グラムの熱いDI水を添加すると、粘度が低下した。散布をさらに1時間5分続けた。最終的に、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして数週間後に新たな容器に移す間に3.0グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、不透明な粘性液体であった。

30

【0230】

例25

31.13グラムのM1、19.29グラムのM2、5.50グラムのM3、55.06グラムのM5、及び6.88グラムのM8を、110.01グラムのIPAと共に攪拌することによって、反応器装填モノマー混合物を調製した。

【0231】

46.68グラムのM1、28.88グラムのM2、8.25グラムのM3、82.50グラムのM5、及び10.40グラムのM8を、132.00グラムのIPAと共に攪拌することによって、反応器装填モノマー混合物を調製した。

【0232】

40

モノマー混合物を、50℃に温めて、そして反応器装填モノマー混合物を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、55℃に加熱した。この加熱は、75℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。供給混合物を、FMI QG-50-1 C K C定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.7グラムのV50を9グラムの脱イオン水(DI水)及び7グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0 S S Y定量ポンプを用いてこの反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

【0233】

50

55℃で、1.4グラムのV50及び7.2グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。2分まで、反応器の温度は56.8℃であり、そして開始剤混合物を遅延させて添加させるための供給ポンプを稼働させた時、徐々に上がって12.5分で76℃となった。モノマー供給ポンプを14分で稼働させ、この時、発熱を弱めるためにバスに冷水を添加した。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給されるまで、3.2グラムの開始剤供給混合物が未使用であり、温度は70℃であった。このプロセスを1時間25分保持した。

【0234】

10

この時点で、温度は65℃であり、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。4時間2分で、362.96グラムの熱い(70~80℃)DI水を添加し、この混合物を乳白色へと変えた。散布をさらに1時間30分続けた。最終的に、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして数週間後に新たな容器に移す間に3.0グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、不透明の粘性液体であった。

【0235】**例26**

52.00グラムのM1、35.72グラムのM2、5.50グラムのM3、22.03グラムのM4、及び6.90グラムのM8を、110.01グラムのIPAと共に攪拌することによって、反応器装填モノマー混合物を調製した。

20

【0236】

77.80グラムのM1、53.64グラムのM2、8.25グラムのM3、33.00グラムのM4、及び10.33グラムのM8を、132.02グラムのIPAと共に攪拌することによって、反応器供給モノマー混合物を調製した。

【0237】

モノマー混合物を、50℃に温めて、そして反応器装填モノマー混合物を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、64℃に加熱した。この加熱は、70℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。供給混合物を、FMI QG-50-1 C K C 定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.1グラムのV50を6グラムの脱イオン水(DI水)及び6グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0 S S Y 定量ポンプを用いてこの反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

30

【0238】

64℃で、1.1グラムのV50及び5.6グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。バッチが69.4℃の時に、温度の設定値を徐々に上げて、19.5分までに90℃にした。23分で、バッチが70.5℃の時に、開始剤混合物及びモノマー混合物を遅延させて添加させるための供給ポンプを稼働させた。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給されるまで、温度は81℃であり、このプロセスを1時間10分保持した。

40

【0239】

この時点で、温度は80℃であり、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。3時間52分で、119グラムの熱い(70~80℃)DI水を添加したところ、この混合物は白くなり、粘度が劇的に上がった。さらに、199.57グラムの水及び155グラムのIPAを添加して粘度を低下させ、4時間19分で攪拌器のモーターを停止させた。粘度はさらに上がり続け、5.5時間で180グラ

50

ムの水をさらに添加し、散布をさらに30分続けた。このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして数週間後に新たな容器に移す間に3.0グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、パール状光沢のある粘性液体であった。

【0240】

例27

62.73グラムのM1、26.69グラムのM4、17.60グラムのM5、23.82グラムのM6、15.05グラムのM7、68.50グラムのM3、46.12グラムのM2、及び38.96グラムのM8を、110.05グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0241】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその206グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、63℃に加熱した。この加熱は、70℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.5グラムのIPAを、残りの309グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.4グラムのV50を8グラムの水、及び8グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

【0242】

63℃で、1.4グラムのV50、及び7グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。この混合物は、1.5分で濁った。10.8分で、温度の設定値を87℃に調節し、その2.5分後に、開始剤混合物を遅延させて添加させるための供給ポンプを稼働させた。20分で、加熱の設定値を、再び90℃に上げて、続いて8.5分後に開始剤/水を直接添加した。モノマー供給を36分で67℃の温度で開始した。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は75℃であった。このプロセスを80℃超でさらに2時間15分持続させた。

【0243】

この時点で、温度は76℃であり、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。25分の散布後に、301.8グラムの熱い(70~80℃)DI水を反応器に直接添加し、散布を続けた。最終的に、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.0グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、半透明の粘性液体であった。

【0244】

例28

55.0グラムのM5、82.5グラムのM6、92.81グラムのM3、30.94グラムのM2、及び17.19グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0245】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその206グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、60℃に加熱した。この加熱は、66℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.5グラムのIPAを、残りの309グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.5グラムのV50を8.5グラムのDI水に溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

【0246】

60℃で、1. 5グラムのV50、及び7. 7グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。この混合物は、1分未満で濁った。8分まで、温度は徐々に62. 1℃まで上がり、開始剤混合物及びモノマー混合物を遅延させて添加させるための供給ポンプを稼働させた。このモノマー混合物は、事前に60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は84℃であり、温度の設定値は100℃に上げていた。このプロセスを77℃超でさらに1時間45分持続させた。

【0247】

10

この時点で、温度は78℃であり、68. 8グラムの水を反応器に直接添加したところ、粘度が上昇した。合計で321. 88グラムの熱い(70～80℃)DI水を添加した後、内容物はさらに不透明になった。直後に、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。散布を3. 5時間続け、温度を108℃の設定に段階的に上げた。最終的に、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3. 0グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、半透明の粘性液体であった。

【0248】

例29

55. 0グラムのM5、82. 5グラムのM6、61. 92グラムのM3、61. 88グラムのM2、及び17. 23グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

20

【0249】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその199グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、62℃に加熱した。この加熱は、70℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27. 5グラムのIPAを、残りの299グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1. 65グラムのV50を9グラムの水及び9グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

30

【0250】

62℃で、1. 65グラムのV50、及び8. 4グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。この混合物は、1分未満で濁った。18. 4分まで、設定を徐々に90℃まで上げた後、温度は徐々に82℃まで上がり、開始剤混合物及びモノマー混合物を遅延させて添加させるための供給ポンプを稼働させた。このモノマー混合物は、事前に60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は75℃であり、温度の設定値は100℃に上げていた。このプロセスを75℃超でさらに1時間50分持続させた。

40

【0251】

この時点で、温度は75℃であり、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。12分の散布後に、250グラムの熱い(70～80℃)DI水を添加したところ、内容物は透明になった。さらに76グラムの水の添加によって、この混合物は白色に戻った。散布をさらに2時間40分続け、温度を104℃の設定値に上げた。最終的に、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3. 05グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、半透明の粘性液体であった。

【0252】

50

例 3 0

110.06グラムのM4、13.77グラムのM5、13.79グラムのM6、82.57グラムのM3、及び68.75グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0253】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその204グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、62℃に加熱した。この加熱は、68℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.5グラムのIPAを、残りの305グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1C KC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.27グラムのV50を6.9グラムの水及び6.9グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。62℃で、1.27グラムのV50、及び6.6グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。内容物は、2.5分未満で94℃に達し、開始剤混合物及びモノマー混合物を遅延させて添加させるための供給ポンプを稼働させた。

10

【0254】

モノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。4.5分までに、内容物はわずかに沸騰しており、粘度は顕著に上昇していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は73℃であり、温度の設定値を徐々に92℃に上げた。このプロセスをさらに1時間45分持続させた。

20

【0255】

この時点で、温度は71℃であり、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。30分の散布後に、322グラムの熱い(70~80℃)DI水を添加し、14分後に温度の設定値を98℃に上げた。散布をさらに2時間40分続け、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.06グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、透明の粘性液体であった。

30

【0256】

例 3 1

103.73グラムのM1、82.50グラムのM2、82.50グラムのM6、137.5グラムのM3、及び17.25グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0257】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその208グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、63℃に加熱した。この加熱は、70℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.5グラムのIPAを、残りの312グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1C KC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.49グラムのV50を8.25グラムの水及び8.25グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

40

【0258】

63℃で、1.50グラムのV50及び7.43グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。2分未満で、内容物は、白濁した。7分40秒までに、温度はゆっくりと65℃に上がり、開始剤混合物及びモノマー

50

混合物を遅延させて添加させるための供給ポンプを稼働させた。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は78℃であり、温度の設定値を徐々に98℃に上げた。このプロセスをさらに1時間30分持続させた。

【0259】

この時点で、温度は73℃であり、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。10分の散布後に、327グラムの熱い（70～80℃）DI水を添加し、温度の設定値を102℃に上げた。最終的に、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.06グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、半透明の粘性液体であった。

10

【0260】**例32**

51.86グラムのM1、55.01グラムのM5、82.50グラムのM6、41.28グラムのM3、及び68.75グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0261】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその208グラム（40%）を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、64℃に加熱した。この加熱は、69℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.5グラムのIPAを、残りの312グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.5グラムのV50を8.5グラムの水及び8.5グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

20

【0262】

64℃で、1.5グラムのV50及び7.7グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。内容物の粘度は、4分未満で上昇した。8分40秒までに、温度はゆっくりと71℃に上がり、開始剤混合物及びモノマー混合物を遅延させて添加させるための供給ポンプを稼働させた。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は78℃であり、温度の設定値を徐々に102℃に上げた。このプロセスをさらに1時間30分持続させた。

30

【0263】

この時点で、温度は77℃であり、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。325グラムの熱い（70～80℃）DI水を添加し、30分後に温度の設定値を106℃に上げた。散布をさらに2時間45分続け、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.06グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、透明の粘性液体であった。

40

【0264】**例33**

96.25グラムのM5、82.50グラムのM2、82.55グラムのM3、及び17.20グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0265】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその199グラム（40%）を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、65℃に加熱した。この加熱は、75

50

℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.5グラムのIPAを、残りの299グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1C KC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.8グラムのV50を9.8グラムの水及び9.7グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

【0266】

65℃で、1.8グラムのV50及び8.9グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。1分以内に、内容物は濁って、混濁し、温度は急速に73℃に上がった。3分で、温度は79℃まで上がっており、14グラムのIPAを添加して、発熱を弱めた。7分で、温度はわずかに77℃に低下しており、開始剤混合物及びモノマー混合物を遅延させて添加させるための供給ポンプを稼働させた。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は77℃であり、温度の設定値を徐々に98℃に上げた。このプロセスをさらに2時間12分持続させた。

10

【0267】

この時点で、温度は79℃であり、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。26分の散布後に、322グラムの熱い(70~80℃)DI水を添加した。その10分前には、温度の設定値を104℃に上げていた。散布をさらに2時間45分続け、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.03グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、透明の粘性液体であった。

20

【0268】

例34

29.04グラムのM1、13.35グラムのM4、8.80グラムのM5、30.41グラムのM6、85.86グラムのM3、74.58グラムのM2、及び36.38グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0269】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその203グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、64℃に加熱した。この加熱は、73℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.5グラムのIPAを、残りの305グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1C KC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.4グラムのV50を8.0グラムの水及び7.7グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

30

【0270】

64℃で、1.4グラムのV50及び7.2グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。内容物は、1.5分以内に白く変わった。11分で、65℃の温度であり、温度の設定値を88℃に上げた。13分までに、設定値を再び94℃に上げて、開始剤混合物及びモノマー混合物を遅延させて添加させるための供給ポンプを稼働させた。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は76℃であった。このプロセスをさらに1時間45分持続させた。

40

【0271】

この時点で、温度は71℃であり、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて

50

減圧にして揮発性溶媒を除去した。約1時間の散布後に、50グラムの熱い(70~80℃)DI水を添加したところ、内容物は透明になった。さらに277グラムの最終の添加をすると、内容物は白色となった。温度の設定値は、45分前に104℃に上げていた。散布をさらに2時間続け、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.05グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、半透明の粘性液体であった。

【0272】

例35

86.46グラムのM1、41.35グラムのM7、82.50グラムのM6、68.78グラムのM3、及び17.21グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

10

【0273】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその206グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、63℃に加熱した。この加熱は、70℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.5グラムのIPAを、残りの310グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.4グラムのV50を8.0グラムの水及び7.7グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

20

【0274】

63℃で、1.4グラムのV50及び7.2グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。4.5分で、温度は63℃であり、設定値を88℃に上げた。15分で、温度は67℃であり、遅延させた開始剤混合物の添加を開始して、発熱を誘導した。27分までに、温度は未だ67℃前後となっており、0.7グラムのV50及び3.7グラムのDI水の第二の開始剤混合物を、反応器装填物に直接添加した。30.5分で、モノマーの添加供給を開始し、温度は69℃であった。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は79℃であり、温度の設定値を段々と98℃に上げた。このプロセスをさらに2時間7分持続させた。

30

【0275】

この時点で、温度は74℃であり、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。1時間20分の散布後に、328グラムの熱い(70~80℃)DI水を添加し、温度の設定値を106℃に上げた。散布をさらに2時間40分続け、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.06グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、半透明の粘性液体であった。

【0276】

例36

40

109.98グラムのM4、75.63グラムのM3、75.64グラムのM2、及び17.35グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0277】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその199グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、64℃に加熱した。この加熱は、69℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.5グラムのIPAを、残りの299グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加

50

ロートに注いだ。1. 4グラムのV50を8. 0グラムの水及び7. 7グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

【0278】

64℃で、1. 4グラムのV50及び7. 2グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。5分で、温度は67℃であり、設定値を92℃に上げた。また、開始剤混合物及びモノマー混合物の遅延させた添加も開始した。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は73℃であり、温度の設定値を徐々に98℃に上げた。このプロセスをさらに2時間43分持続させた。

10

【0279】

この時点で、温度は72℃であり、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。温度の設定値を98℃に上げた。39分の散布後に、326グラムの熱い(70~80℃)DI水を添加したところ、内容物は白色になった。散布をさらに2時間23分続け、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3. 07グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、半透明の粘性液体であった。

【0280】

例37

20

41. 26グラムのM7、89. 45グラムのM3、89. 48グラムのM2、及び68. 82グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0281】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその204グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、65℃に加熱した。この加熱は、70℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27. 5グラムのIPAを、残りの305グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1. 5グラムのV50を8. 5グラムの水及び8. 5グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

30

【0282】

65℃で、1. 5グラムのV50及び7. 7グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。約2分で、内容物は濁った。8分で、温度は66℃であり、加熱の設定値を92℃に上げて、開始剤混合物及びモノマー混合物の遅延させた添加も開始した。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は79℃であり、このプロセスをさらに1時間45分持続させた。

40

【0283】

この時点で、温度は77℃であり、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。また、323グラムの熱い(70~80℃)DI水を添加した。14分後に、温度の設定値を104℃に上げた。散布をさらに2時間2分続けて、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3. 03グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、不透明の粘性液体であった。

【0284】

例38

47. 56グラムのM1、110. 05グラムのM4、27. 50グラムのM5、13

50

． 76 グラムの M3、 51． 52 グラムの M2、 及び 42． 97 グラムの M8 を、 220 グラムの IPA と共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0285】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその205グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、65℃に加熱した。この加熱は、70℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27． 5グラムの IPA を、残りの308グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1C KC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1． 4グラムのV50を7． 7グラムの水及び7． 4グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

10

【0286】

65℃で、1． 4グラムのV50及び7． 0グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。約2分で、温度は88℃に上昇し、12． 17gのIPAを内容物に添加して、反応を冷却した。4分で、温度は84℃であり、モノマー混合物の遅延させた添加も開始した。2分後に、79℃で、開始剤供給ポンプを稼働させた。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は75℃であり、このプロセスをさらに1時間45分持続させた。

20

【0287】

この時点で、温度は75℃であり、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。16分後に、温度の設定値を104℃に上げた。55分の散布後に、323グラムの熱い(70~80℃)DI水を添加した。散布をさらに2時間8分続け、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3． 06グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、透明の粘性液体であった。

【0288】

例39

29． 00グラムのM1、21． 27グラムのM7、20． 20グラムのM4、8． 81グラムのM5、11． 95グラムのM6、85． 80グラムのM3、74． 58グラムのM2、及び34． 72グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

30

【0289】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその203グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、65℃に加熱した。この加熱は、70℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27． 5グラムの IPA を、残りの305グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1C KC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1． 4グラムのV50を8． 0グラムの水及び7． 7グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

40

【0290】

65℃で、1． 4グラムのV50及び7． 2グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。約1分で、内容物は白色になった。12分までに、わずかに熱が生じ、温度の設定値を92℃に上げて、開始剤混合物及びモノマー混合物の遅延させた添加も開始した。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は

50

79℃であり、温度の設定値を1分後に98℃に上げた。このプロセスをさらに2時間32分持続させた。

【0291】

この時点で、温度は72℃であり、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。温度の設定値を徐々に108℃に上げた。13分の散布後に、322グラムの熱い(70~80℃)DI水を添加した。散布をさらに2時間15分続け、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.04グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、パール状光沢のある粘性液体であった。

【0292】

例40

10

【0293】

20.61グラムのM7、82.50グラムのM6、158.13グラムのM3、及び17.60グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0294】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその209グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、66℃に加熱した。この加熱は、71℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.7グラムのIPAを、残りの300グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1C KC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.4グラムのV50を8.0グラムの水及び7.7グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

20

【0295】

66℃で、1.4グラムのV50及び7.2グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。その添加後約6分で、一定状態の穏やかな発熱があり、開始剤混合物及びモノマー混合物の遅延させた添加を開始した。また、温度の設定値を94℃に上げた。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は78℃であり、内容物は黄褐色/ページュの色であった。このプロセスをさらに1時間27分持続させた。

30

【0296】

この時点で、温度は78℃であり、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。19分後に、温度の設定値を104℃に上げた。43分の散布後に、323グラムの熱い(70~80℃)DI水を添加した。散布をさらに2時間24分続け、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.05グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、不透明の粘性液体であった。

【0297】

40

例41

41.36グラムのM7、96.25グラムのM4、103.13グラムのM3、及び43.06グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0298】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその201グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、66℃に加熱した。この加熱は、77℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.5グラムのIPAを、残りの302グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1C

50

K C 定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500ml のPyrexの添加ロートに注いだ。1.4グラムのV50を8.0グラムの水及び7.7グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

【0299】

66℃で、1.4グラムのV50及び7.2グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。添加後2～3分で、内容物は白色／混濁となった。11分までに、76℃の温度で、温度の設定値を94℃に上げて、開始剤混合物及びモノマー混合物の遅延させた添加も開始した。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は76℃であり、このプロセスをさらに1時間44分持続させた。

10

【0300】

この時点で、温度は76℃であり、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。13分後に、温度の設定値を104℃に上げた。41分の散布後に、322グラムの熱い(70～80℃)DI水を添加した。散布をさらに2時間17分続け、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.07グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、パール状光沢のある粘性液体であった。

【0301】

20

例42

82.50グラムのM6、103.14グラムのM3、34.39グラムのM2、及び68.79グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0302】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその204グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、65℃に加熱した。この加熱は、69℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.6グラムのIPAを、残りの305グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1C KC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.5グラムのV50を8.0グラムの水及び8.0グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

30

【0303】

65℃で、1.5グラムのV50及び7.3グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。添加後1～2分で、内容物は混濁した。6分までに、66℃の温度で、温度の設定値を96℃に上げて、開始剤混合物及びモノマー混合物の遅延させた添加も開始した。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は77℃であり、このプロセスをさらに1時間18分持続させた。

40

【0304】

この時点で、温度は75℃であり、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。1時間7分の散布後に、323グラムの熱い(70～80℃)DI水を添加した。散布をさらに2時間25分続け、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.04グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、半透明の粘性液体であった。

【0305】

例43

50

17.29グラムのM1、41.25グラムのM7、6.87グラムのM4、6.88グラムのM5、82.50グラムのM6、27.50グラムのM3、41.40グラムのM2、及び68.75グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0306】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその205グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、64℃に加熱した。この加熱は、69℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.6グラムのIPAを、残りの307グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1C KC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.7グラムのV50を9.3グラムの水及び8.8グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

【0307】

64℃で、1.7グラムのV50及び8.3グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。添加後2～3分で、内容物は混濁した。10分までに、67℃の温度で、温度の設定値を95℃に上げて、開始剤混合物及びモノマー混合物の遅延させた添加を開始した。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。1時間4分で、内容物が沸騰し始めたため、モノマーの供給を終了し、ヒーターを止めた。6分後に、84℃の設定値で加熱を再開した。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は66℃であり、設定値を89℃に上げて、このプロセスをさらに1時間56分持続させた。

【0308】

この時点で、温度は73℃であり、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。38分の散布後に、322グラムの熱い(70～80℃)DI水を添加し、温度の設定値を104℃に上げた。粘度も上昇した。散布をさらに2時間27分続け、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.05グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、半透明の粘性液体であった。

【0309】

例44

77.80グラムのM1、13.74グラムのM7、109.98グラムのM4、13.75グラムのM6、13.76グラムのM3、48.11グラムのM2、及び17.25グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0310】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその206グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、62℃に加熱した。この加熱は、73℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.5グラムのIPAを、残りの309グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1C KC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.3グラムのV50を7.4グラムの水及び7.2グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

【0311】

62℃で、1.3グラムのV50及び6.9グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。添加後2～3分で、内容物は白色／混濁となった。8分までに、温度が67℃に上がっているときに、温度の設定値を92

℃に上げて、開始剤混合物及びモノマー混合物の遅延させた添加も開始した。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。30分で、温度の設定値を96℃に上げ、その29分後に、このバッチに浮いた白い粒子が観察された。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は70℃であり、このプロセスをさらに1時間47分持続させた。

【0312】

この時点で、温度は72℃であり、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。温度の設定値を104℃に上げた。1時間29分の散布後に、320グラムの熱い(70~80℃)DI水を添加した。散布をさらに1時間29分続け、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.03グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、パール状光沢のある粘性液体であった。

10

【0313】

例45

87.31グラムのM1、16.50グラムのM7、6.87グラムのM6、58.44グラムのM3、103.16グラムのM2、及び25.78グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0314】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその207グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、64℃に加熱した。この加熱は、70℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.7グラムのIPAを、残りの311グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.4グラムのV50を7.4グラムの水及び7.4グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

20

【0315】

64℃で、1.4グラムのV50及び7.1グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。1分未満に、内容物は混濁した。11分までに、66℃の温度で、温度の設定値を96℃に上げて、開始剤混合物及びモノマー混合物の遅延させた添加も開始した。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は77℃であり、このプロセスをさらに1時間38分持続させた。

30

【0316】

この時点で、温度は74℃であり、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。1分後に、温度の設定値を104℃に上げた。1時間47分の散布後に、306グラムの熱い(70~80℃)DI水を添加した。機能を停止していたヒーターを102℃に設定した。散布をさらに1時間30分続け、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.05グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、不透明な粘性液体であった。

40

【0317】

例46

82.12グラムのM1、41.27グラムのM7、48.30グラムのM5、65.30グラムのM3、及び68.72グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0318】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその210グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に

50

加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、64℃に加熱した。この加熱は、69℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.5グラムのIPAを、残りの315グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.8グラムのV50を9.7グラムの水及び9.7グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

【0319】

64℃で、1.8グラムのV50及び8.8グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。約2分以内に、内容物は白色となった。7分までに、温度は73℃に上がっており、温度の設定値を94℃に上げて、モノマー混合物の遅延させた添加も開始した。1分後に、開始剤混合物の遅延させた添加も開始した。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は76℃であり、1.5時間前に温度の設定値を96℃に上げていた。このプロセスをさらに1時間55分持続させた。

10

【0320】

この時点で、温度は74℃であり、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。43分後に、温度の設定値を104℃に上げた。内容物はピンクがかった。1時間3分の散布後に、303グラムの熱い(70~80℃)DI水を添加した。散布をさらに2時間1分続け、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.03グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、パール状光沢のある粘性液体であった。

20

【0321】

例47

56.30グラムのM1、41.26グラムのM7、134.06グラムのM3、及び68.77グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0322】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその208グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、65℃に加熱した。この加熱は、70℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.6グラムのIPAを、残りの312グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.4グラムのV50を7.7グラムの水及び7.7グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

30

【0323】

65℃で、1.4グラムのV50及び7.2グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。6~7分で、内容物は白色となった。9分までに、71℃の温度で、温度の設定値を98℃に上げて、開始剤混合物及びモノマー混合物の遅延させた添加も開始した。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は73℃であり、このプロセスをさらに1時間45分持続させた。

40

【0324】

この時点で、温度は74℃であり、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。18分後に、温度の設定値を104℃に上げた。この時に、321グラムの熱い(70~80℃)DI水を添加した。散布をさらに3時間5分

50

続け、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.07グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、パール状光沢のある粘性液体であった。

【0325】

例48

41.26グラムのM7、96.26グラムのM5、92.82グラムのM3、30.90グラムのM2、及び17.30グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0326】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその199グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、65℃に加熱した。この加熱は、70℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.8グラムのIPAを、残りの299グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。2.2グラムのV50を12.1グラムの水及び12.1グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

10

【0327】

65℃で、2.2グラムのV50及び11.0グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。9分で、温度はわずかに高くなって66℃であり、温度の設定値を96℃に上げて、開始剤混合物及びモノマー混合物の遅延させた添加も開始した。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。約1時間で、温度は74℃であり、内容物はオレンジがかった。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は81℃であり、このプロセスをさらに1時間38分持続させた。

20

【0328】

この時点で、温度は75℃であり、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。温度の設定値を104℃に上げた。1時間24分の散布後に、326グラムの熱い(70~80℃)DI水を添加した。散布をさらに2時間9分続け、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.12グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、透明の粘性液体であった。

30

【0329】

例49

42.00グラムのM7、55.00グラムのM4、41.25グラムのM6、61.88グラムのM3、61.91グラムのM2、及び18.19グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0330】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその199グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、63℃に加熱した。この加熱は、70℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.6グラムのIPAを、残りの299グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.7グラムのV50を9.4グラムの水及び8.8グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

40

【0331】

63℃で、1.7グラムのV50及び8.3グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。7分で、温度はわずかに高くなっ

50

て65℃であり、温度の設定値を96℃に上げて、開始剤混合物及びモノマー混合物の遅延させた添加も開始した。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。約1時間で、温度は74℃であり、内容物はオレンジがかった。これは約40分後に黄色に変わった。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は75℃であり、このプロセスをさらに1時間23分持続させた。

【0332】

この時点で、温度は74℃であり、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。温度の設定値を104℃に上げた。41分の散布後に、322グラムの熱い(70~80℃)DI水を添加した。散布をさらに2時間3分続け、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.07グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、半透明の粘性液体であった。

10

【0333】

例50

41.25グラムのM7、154.69グラムのM3、51.58グラムのM2、及び34.41グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0334】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその201グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、65℃に加熱した。この加熱は、70℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.8グラムのIPAを、残りの299グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.5グラムのV50を8.5グラムの水及び8.5グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

20

【0335】

65℃で、1.5グラムのV50及び7.7グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。9分で、温度はわずかに高くなって67℃であり、温度の設定値を96℃に上げて、開始剤混合物及びモノマー混合物の遅延させた添加も開始した。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は73℃であり、このプロセスをさらに1時間23分持続させた。

30

【0336】

この時点で、温度は74℃であり、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。温度の設定値を104℃に上げた。42分の散布後に、322グラムの熱い(70~80℃)DI水を添加した。散布をさらに2時間47分続け、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.04グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、不透明の粘性液体であった。

40

【0337】

例51

57.99グラムのM1、15.19グラムのM7、26.69グラムのM4、17.60グラムのM5、23.85グラムのM6、68.63グラムのM3、46.06グラムのM2、及び38.98グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0338】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその206グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に

50

加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、64℃に加熱した。この加熱は、70℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、28.8グラムのIPAを、残りの309グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1C KC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.4グラムのV50を7.7グラムの水及び7.7グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

【0339】

64℃で、1.4グラムのV50及び8.3グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。1分で、内容物は白くなった。5分で、温度は66℃であり、温度の設定値を96℃に上げた。7分で、温度はわずかに高くなって67℃であり、開始剤混合物及びモノマー混合物の遅延させた添加も開始した。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は70℃であり、このプロセスをさらに1時間23分持続させた。

10

【0340】

この時点で、温度は74℃であり、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。温度の設定値を104℃に上げた。41分の散布後に、322グラムの熱い(70~80℃)DI水を添加した。散布をさらに2時間48分続け、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.08グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、不透明の粘性液体であった。

20

【0341】

例52

91.25グラムのM1、75.65グラムのM4、72.19グラムのM3、及び68.75グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0342】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその211グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、63℃に加熱した。この加熱は、70℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、28.3グラムのIPAを、残りの316グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1C KC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.0グラムのV50を5.5グラムの水及び5.5グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

30

【0343】

63℃で、1.0グラムのV50及び5.5グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。1分で、内容物は濁って、2分で白くなった。5.5分で、温度は71℃であり、温度の設定値を96℃に上げた。7分で、温度は71℃に上がっており、開始剤混合物及びモノマー混合物の遅延させた添加も開始した。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は74℃であり、このプロセスをさらに2時間2分持続させた。

40

【0344】

この時点で、温度は73℃であり、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。温度の設定値を104℃に上げた。49分の散布後に、322グラムの熱い(70~80℃)DI水を添加した。散布をさらに2時間14分続

50

け、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.30グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、パール状光沢のある粘性液体であった。

【0345】

例53

104.38グラムのM9、55.01グラムのM5、103.18グラムのM3、及び17.48グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0346】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその200グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、64℃に加熱した。この加熱は、70℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.6グラムのIPAを、残りの300グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.3グラムのV50を7.3グラムの水及び7.3グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

10

【0347】

64℃で、1.3グラムのV50及び7.7グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。4分で、内容物は混濁した。5分で、温度は67℃であり、温度の設定値を96℃に上げ、開始剤混合物及びモノマー混合物の遅延させた添加も開始した。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は74℃であり、このプロセスをさらに1時間57分持続させた。

20

【0348】

この時点で、温度は73℃であり、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。温度の設定値を104℃に上げた。52分の散布後に、322グラムの熱い(70~80℃)DI水を添加した。散布をさらに2時間13分続け、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.03グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、パール状光沢のある粘性液体であった。

30

【0349】

例54

55.26グラムのM1、41.26グラムのM7、6.89グラムのM6、58.49グラムのM3、103.15グラムのM2、及び25.80グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0350】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその205グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、63℃に加熱した。この加熱は、67℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.8グラムのIPAを、残りの307グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.5グラムのV50を8.5グラムの水及び8.5グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いてこの反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

40

【0351】

63℃で、1.5グラムのV50及び7.7グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。1分で、内容物は濁った。6.5分で、温度は65℃であり、温度の設定値を96℃に上げた。9分で65℃であり、開始

50

剤混合物及びモノマー混合物の遅延させた添加も開始した。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は77℃であり、このプロセスをさらに1時間40分持続させた。

【0352】

この時点で、温度は75℃であり、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。温度の設定値を104℃に上げた。41分の散布後に、322グラムの熱い(70~80℃)DI水を添加した。散布をさらに2時間18分続け、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.03グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、不透明の粘性液体であった。

10

【0353】

例55

52.5グラムのM4、45.0グラムのM3、及び12.1グラムのM8を、91.6グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0354】

このモノマー混合物を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして15分間、乾燥窒素を散布しながら、68℃に加熱した。この加熱は、73℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。0.25グラムのV50及び2.25グラムのDI水及び2.5グラムのIPAの混合物を、反応器に一度で添加した。

20

【0355】

2分後に84℃に温度が上がっており、さらに15グラムのイソプロパノールを添加し、温度を80度に低下させて、バス温度に合わせた。

【0356】

さらに13分後、0.21グラムのV50、及び1.88グラムのDI水、及び2.1グラムのIPAからなる混合物を、反応器に添加した。そして、反応器内容物を、さらに100分間、88度のバス温度で、73~81℃に保持した。

【0357】

最終的に、このバッチを室温まで冷却し、172グラムの透明なアルコール系のポリマー溶液を得た。この粘度を測定すると、Brookfield LVTのスピンデル#4の60rpmで、1470センチポアズであった。

30

【0358】

例56

78.0グラムのM3、60.0グラムのM5、及び15.1グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0359】

このモノマー混合物を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして15分間、乾燥窒素を散布しながら、76℃に加熱した。この加熱は、86℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。0.86グラムのV50及び3.2グラムのDI水及び0.9グラムのIPAの混合物を、反応器に一度で添加した。

40

【0360】

2分後に温度が上がって91℃で還流した。12分後に、透明な溶液の粘度が実質的に上昇し、還流は止まった。このバッチをさらに40分78℃で保持した後、減圧吸引器の使用の下で窒素散布した。90分にわたる合計で106グラムのDI水の断続的な添加を、溶媒除去と共に行った。227グラムの粘性ポリマー溶液を、60℃で取り出して、これを、反応器をすすぐのに用いた75グラムのさらなるDI水と混合し、約350グラムの透明な液体を得た。最終的な外観は、透明な、高粘性液体であった。

【0361】

例57

50

86.45グラムのM1、138.50グラムのM3、55.00グラムのM5、及び17.29グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0362】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその206グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、65℃に加熱した。この加熱は、68℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.5グラムのIPAを、残りの310グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1C KC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.4グラムのV50を4.3グラムのDI水及び11.4グラムのMeOHに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

10

【0363】

65℃で、1.4グラムのV50及び5グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。1.5分以内に、反応器の内容物は濁って、温度がわずかに上がり始めた。この時、温度の設定値を90℃に調節した。3分で、このバッチは68℃であり、発熱が一定状態に達した。開始剤混合物を遅延させて添加するための供給ポンプを稼働させた。5分で、温度は依然68℃であり、モノマー供給ポンプを始動させた。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は76℃であり、内容物はピンクがかった。このプロセスを66℃超でさらに2時間30分持続させた。

20

【0364】

この時点で、温度は66℃であり、設定値を101℃に上げた。窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。1時間10分の散布後に、87グラムの熱い(70~80℃)DI水を添加し、外観を不透明に変えた。238グラムの水の最終的な添加により、白/不透明になった。散布をさらに1時間15分続けた。最終的に、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.0グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、半透明の粘性液体であった。

30

【0365】

例58

132.6グラムのM3、26.9グラムのM4、16.3グラムのM5、及び42.0グラムのM8を、135グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0366】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその158グラム(50%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして20分間、乾燥窒素を散布しながら、78℃に加熱した。この加熱は、83℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、30.6グラムのIPAを、残りの160グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1C KC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。0.8グラムのV50を4.1グラムのDI水及び4.1グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

40

【0367】

0.68グラムのV50、3.5グラムのDI水、及び3.4グラムのIPAの混合物を、反応器に一度で添加して、重合を開始した。

【0368】

50

ほぼすぐに、内容物のはじめに青みがかかり、そして混濁した白色となり、温度は急速に上昇した。1分後に、モノマー混合物及び開始剤混合物を遅延させて添加するためのポンプを稼働させた。このモノマー混合物及び開始剤混合物は、60分で提供するように調整した。ウォーターバス温度を、遅延させた添加の最初の20分で、徐々に93℃に上げた。この時、反応器の温度は約82℃で安定した。モノマー及び開始剤の供給が終わった10分後に、80グラムの熱いDI水を混濁した溶液に添加し、これを透明にした。さらに140グラムの熱い水を添加し、このバッチを濁らせた。そして、さらに150グラムのDI水を添加し、内容物を再び混濁させた。77℃で、減圧を伴う窒素散布を行い、2時間にわたって溶媒蒸気を除去し、続いて室温に冷却した。最終的な外観は、不透明の粘性液体であった。

10

【0369】

例59

122.4グラムのM3、30.6グラムのM4、21.0グラムのM5、及び38.3グラムのM8を、127.5グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0370】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその170グラム(50%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして20分間、乾燥窒素を散布しながら、76℃に加熱した。この加熱は、87℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、29.1グラムのIPAを、残りの170グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1C KC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.1グラムのV50を5.5グラムの水及び5.5グラムのIPAに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

20

【0371】

0.73グラムのV50、3.7グラムのDI水、及び3.7グラムのIPAの混合物を、反応器に一度で添加して、重合を開始した。

【0372】

ほぼすぐに、内容物のはじめに青みがかかり、そして混濁した白色となり、温度は急速に上昇した。4分後に、温度は84℃で安定し、モノマー混合物及び開始剤混合物を遅延させて添加するためのポンプを稼働させた。このモノマー混合物及び開始剤混合物は、60分で提供するように調整した。ウォーターバス温度を、遅延させた添加の最初の20分で、徐々に95℃に上げた。モノマー及び開始剤の供給が終わった5分後に、77℃で減圧を伴う窒素散布を行い、溶媒蒸気を除去した。さらに、0.2グラムのV50、及び5.8グラムの水である開始剤溶液を一度に添加し、続いて合計で324グラムのDI水を2時間半にわたってポンプで入れながら、75~76℃で溶媒の除去を続けた。減圧及び散布が終わった後、室温に冷却した。最終的な外観は、半透明の粘性液体であった。

30

【0373】

例60

74.22グラムのM1、37.22グラムのM7、41.26グラムのM2、82.52グラムのM6、及び68.75グラムのM8を、220グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

40

【0374】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその210グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、66℃に加熱した。この加熱は、69℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.5グラムのIPAを、残りの314グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1C KC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加

50

ロートに注いだ。1.4グラムのV50を4.3グラムのDI水及び11.4グラムのMeOHに溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

【0375】

66℃で、1.4グラムのV50、2.5グラムのDI水、及び2.5グラムのMeOHの混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。1分以内に、反応器の内容物の温度は上がり始め、濁った。5分後に、このバッチは白くなっており、温度を90℃の設定値に上げた。8分で、内容物は79℃に上がっており、開始剤混合物及びモノマー混合物を遅延させて添加するためのポンプを稼働した。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は76～78℃であった。内容物は粘性であり、かつ白くなっており、このプロセスを70℃超でさらに3時間持続させた。

10

【0376】

この時点で、温度は70℃であり、温度の設定値を100℃に上げた。窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。30分の散布後に、111グラムの熱い(70～80℃)DI水を添加し、この混合物をわずかに透明に変えた。さらに227グラムの水を添加したところ、このバッチは濁った／散布をさらに2時間47分続け、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.04グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、不透明の粘性液体であった。

20

【0377】

例61

132.8グラムのM3、40.8グラムのM4、及び38.6グラムのM8を、127.5グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0378】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその170グラム(50%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして20分間、乾燥窒素を散布しながら、71℃に加熱した。この加熱は、80℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、28.9グラムのIPAを、残りの169グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.2グラムのV50を12.0グラムのDI水に溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

30

【0379】

0.6グラムのV50、及び6.0グラムのDI水の混合物を、反応器に一度で添加して、重合を開始した。

【0380】

ほぼすぐに、内容物は混濁し白くなり始め、温度は急速に上昇した。3分後に、温度は86℃で安定し、モノマー混合物及び開始剤混合物を遅延させて添加するためのポンプを稼働させた。このモノマー混合物及び開始剤混合物は、60分で提供するように調整した。ウォーターバス温度を、遅延させた添加の最初の20分で、徐々に90℃に上げた。モノマー及び開始剤の供給が終わった8分後に、0.34グラムのV50、及び3.1グラムの水の混合物を添加し、温度を25分間81℃で保持した。そして65グラムの熱いDI水を、この混濁溶液に添加し、これを透明にした。さらに321グラムのDI水を添加したところ、これはより粘性が高くなり、そして乳白色となった。減圧を伴った窒素散布を開始して、溶媒蒸気を3時間、85℃で除去した。減圧及び散布が終わった後、室温に冷却した。最終的な外観は、半透明の粘性液体であった。

40

【0381】

50

例 6 2

1 3 2. 7 グラムの M 3、4 0. 8 グラムの M 5、及び 3 8. 3 グラムの M 8 を、1 4 0. 2 グラムの I P A と共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0 3 8 2】

このモノマー混合物を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた 1 L のガラス樹脂反応器に加え、そして 3 0 分間、乾燥窒素を散布しながら、6 5 °C に加熱した。この加熱は、7 0 °C のウォーターバスに浸漬させることによって行った。2. 1 4 グラムの V 5 0 及び 1 1. 4 グラムの D I 水及び 1 1. 4 グラムの I P A からなる開始剤混合物を、反応器に一度で添加した。

【0 3 8 3】

10

ほぼすぐに、内容物のはじめに青みがかかり、そして混濁し、温度は急速に上昇した。3 分後に、溶媒は還流しており、温度は 8 6 °C で安定し、開始剤混合物の残りを一度に添加した。ウォーターバス温度を、次の 2 0 分で、徐々に 9 0 °C に上げた。そして、8 7 グラムの熱い D I 水をこの混濁溶液に添加し、これを透明にした。さらに 2 1 5 グラムの D I 水を添加し、これは粘度が高くなりかつ乳白色にした。生成物を、開放している受け皿に注いで、6 0 °C のオープンで 1 4 時間減圧で保持した。最終的な外観は、半透明の高粘性液体であった。

【0 3 8 4】

例 6 3

1 3 4. 0 グラムの M 3、4 1. 2 グラムの M 5、及び 3 8. 6 グラムの M 8 を、1 2 8. 8 グラムの I P A と共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

20

【0 3 8 5】

このモノマー混合物を、5 0 °C に温めて、そしてその 1 7 0 グラム (5 0 %) を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた 1 L のガラス樹脂反応器に加え、そして 2 0 分間、乾燥窒素を散布しながら、6 6 °C に加熱した。この加熱は、7 0 °C のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、残りの 1 6 9 グラムのモノマー混合物を、窒素を散布しながら 1 5. 9 グラムの I P A と 1 6. 7 グラムの D I 水で希釈して、F M I Q G - 5 0 - 1 C K C 定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、5 0 0 m l の P y r e x の添加ポートに注いだ。1. 2 8 グラムの V 5 0 を 6. 8 グラムの I P A と 6. 8 グラムの D I 水に溶解した溶液からなる開始剤混合物を、F M I Q G - 6 - 0 S S Y 定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、5 0 m l のシリンジバレルに加えた。

30

【0 3 8 6】

0. 6 4 グラムの V 5 0、3. 4 グラムの I P A、及び 3. 4 グラムの D I 水からなる開始剤混合物を、反応器に一度で添加して、重合を開始した。

【0 3 8 7】

1 分以内に、内容物のはじめに青みがかかり、そして混濁し、温度が上がり始めた。3 分後に、温度は 6 5 °C であり、開始剤混合物及びモノマー混合物を遅延させて添加させるためのポンプを稼働させた。このモノマー混合物及び開始剤混合物は、6 0 分で供給されるように調整していた。ウォーターバス温度を、モノマーを遅延させて添加している間、徐々に 8 5 °C に上げた。モノマー及び開始剤の供給が終わった 3 0 分後に、7 9 グラムの熱い D I 水をこの青白い溶液に添加し、これを透明にした。さらに 2 1 9 グラムの D I 水を添加したところ、これはより粘性が高くなり、そして乳白色となった。減圧を伴った窒素散布を開始して、溶媒蒸気を 1 時間、7 5 °C で除去した。減圧及び散布が終わった後、室温に冷却した。2 日間置いた後、ほぼ透明な水性層が形成され、この 9 9 グラムを除去した。

40

【0 3 8 8】

残りの粘性ポリマー溶液を再加熱して、5 5 °C で 9 0 分間減圧ストリップングした。そして再度冷却して 3 3 7 グラムを得た。最終の外観は、半透明の粘性流体であった。

【0 3 8 9】

50

例 6 4

103. 1グラムのM3、9. 2グラムのM4、6. 3グラムのM7、及び129. 1グラムのM1を、165グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0390】

このモノマー混合物の半分に(206グラム)に、窒素を散布しながら、17. 2グラムのM8を添加した。これを50℃に温めて、FMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。残りの半分のモノマー混合物を、38. 5グラムのIPAで希釈して、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして20分間乾燥窒素を散布しながら、63℃に加熱した。この加熱は、72℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。1. 1グラムのV50、8. 9グラムのDI水、及び17. 4グラムのM8からなる始めの開始剤混合物を調製した。

【0391】

1. 50グラムのV50、8. 25グラムのDI水、及び8. 25グラムのIPAからなる遅延させて添加する開始剤混合物を調製した。この混合物をFMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジパレルに加えた。これは、40分で提供するように調整した。

【0392】

はじめの混合物を反応器に一度に添加することによって、重合を開始した。内容物ははじめに青みがかり、そして白濁し、温度は64℃に上昇した。4分後に、モノマー混合物及び開始剤混合物を遅延させて添加するためのポンプを稼働させた。モノマー混合物のポンプは、40分で提供するように調整した。ウォーターバス温度を、遅延させた添加の最初の20分で、徐々に84℃に上げた。この時間の間、反応器の温度は75℃付近で一定となった。モノマー及び開始剤の供給が終わった15分後に、79℃で減圧を伴った窒素散布を行って、80分間溶媒を除去した。この間に、383グラムの熱いDI水を添加した。はじめの60グラムの水を添加したところ、パッチは透明になったが、残りの水は内容物を半透明にし、そして強く混濁させた。終夜冷却した後、この粘性が強くかつ均一に混濁した液体を再加熱して、75～78℃でさらに5時間、窒素散布と共に減圧を続けた。この間に、さらに480グラムの熱いDI水を添加して粘度を低下させた。20℃での最終の外観は、不透明の流動性のないペーストとなった。

【0393】

例 6 5

103. 2グラムのM3、103. 2グラムのM2、及び55. 0グラムのM6を、165グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0394】

このモノマー混合物の半分に(213グラム)に、窒素を散布しながら、8. 6グラムのM8を添加した。これを50℃に温めて、FMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。残りの半分のモノマー混合物を、28. 6グラムのIPAで希釈して、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして20分間乾燥窒素を散布しながら、63℃に加熱した。この加熱は、73℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。1. 24グラムのV50、8. 8グラムのDI水、及び8. 6グラムのM8からなる始めの開始剤混合物を調製した。

【0395】

1. 9グラムのV50を、10. 3グラムのDI水及び10. 3グラムのIPAに溶解させてなる遅延させて添加する開始剤混合物を調製した。この混合物をFMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジパレルに加えた。これは、60分で提供するように調整した。

【0396】

始めの混合物を反応器に一度に添加することによって、重合を開始した。内容物はすぐに混濁し、温度は、粘度の上昇と共に71℃にゆっくりと30分にわたって上がった。ウォーターバス温度を、さらに6.4グラムのDI水をこのバッチに添加しながら、徐々に80℃に上げた。開始から80分後に、0.25グラムのV50及び2.5グラムのDI水をこのバッチに添加して、重合を再開し、モノマー混合物及び開始剤混合物を遅延させて添加するためのポンプを稼働させた。モノマー混合物のポンプは、60分で提供するように調整した。モノマー及び開始剤の供給が終わった15分後に、81℃で減圧を伴った窒素散布を行って、90分間溶媒を除去した。この間に、このはじめは半透明であった半透明のポリマー混合物に477グラムの熱いDI水を添加した。この水の添加は、この混合物をさらに混濁させ、不透明にただけであった。50℃で2日間置いた後、この混合物を、底部の211グラムの透明な水性層と、部分的に分離した。この水性層は、1.7%のNV固形分のみを測定し、その後廃棄した。冷却したポリマー混合物は、滑性が高すぎてBrookfield式粘度計では効果的に測定できなかった。20℃での最終の外観は、不透明の滑性のある粘性流体となった。

10

【0397】

例66

206.3グラムのM3、41.3グラムのM7、及び13.8グラムのM6を、165グラムのIPAと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0398】

このモノマー混合物の半分に(213グラム)に、窒素を散布しながら、8.6グラムのM8を添加した。これを50℃に温めて、FMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。残りの半分のモノマー混合物を、28.7グラムのIPAで希釈して、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして20分間乾燥窒素を散布しながら、63℃に加熱した。この加熱は、76℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。1.24グラムのV50、9.0グラムのDI水、及び8.6グラムのM8からなる始めの開始剤混合物を調製した。

20

【0399】

1.24グラムのV50を、6.9グラムのDI水及び6.8グラムのIPAに溶解させてなる遅延させて添加する開始剤混合物を調製した。この混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いてこの反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリジパレルに加えた。これは、85分で提供するように調整した。

30

【0400】

はじめの混合物を反応器に一度に添加することによって、重合を開始した。

【0401】

内容物は、温度がゆっくりとわずかに上がるにしたがって、すぐに混濁し始め、わずかに青みがかった。4分後に、モノマー混合物及び開始剤混合物を遅延させて添加するためのポンプを稼働させた。遅延させた供給の間に、ウォーターバス温度を、徐々に80℃に上げた。モノマーの供給が42分で完了したとき、このプロセスは76℃に達していた。モノマー及び開始剤の供給が終わった30分後に、減圧を伴った窒素散布を行って、溶媒を3時間にわたって除去した。この間に、合計で539グラムの熱いDI水を、このわずかに黄褐色に着色した不透明のポリマー混合物に添加した。20℃での最終の外観は、不透明の滑性のある粘性流体となった。

40

【0402】

例67

20.6グラムのM3、68.8グラムのM5、及び20.6グラムのM2を、79.8グラムのIPAと共に攪拌することによって、始めのモノマー混合物を調製した。

【0403】

このモノマー混合物を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして20分間、乾燥窒素を散布しながら、66℃

50

に加熱した。この加熱は、71℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。

【0404】

22.2グラムのM3、73.3グラムのM5、22.3グラムのM2、及び36.9グラムのM8を、169グラムのIPAと共に攪拌することによって、第二のモノマー混合物を調製した。これに窒素を散布し、50℃に温めて、そしてFMI QG-50-1 C K C 定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。

【0405】

1.66グラムのV50を11.9グラムのDI水及び34.4グラムのM8に溶解させてなる始めの開始剤混合物を調製した。

10

【0406】

2.44グラムのV50を12.4グラムのDI水及び12.4グラムのIPAに溶解させてなる、遅延させて添加する開始剤混合物を調製した。この混合物を、FMI QG-6-0 S S Y 定量ポンプを用いてこの反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。これは、51分で提供するように調整した。

【0407】

始めの混合物を反応器に一度に添加することによって、重合を開始した。3分で、温度は素早く90℃に上がり、15グラムの冷たいIPAを添加して還流を制御した。60分で完了するように調整した遅延させて提供するモノマーのためのポンプを始動した。さらに3分後に、84℃で、遅延させて添加する開始剤の供給を開始した。ウォーターバスを、この遅延させた供給の間に、徐々に80℃に上げて、約72~73℃の温度にプロセスを保持した。このモノマー混合物のポンプは、42分で提供するように調整していた。モノマー及び開始剤の供給が終わった20分後に、0.26グラムのV50、及び2.6グラムのDI水を添加し、プロセスをさらに35分間75℃で保持した。268グラムの熱いDI水を添加し、この転換溶液 (translation solution) をいくぶんかより透明にした。減圧を伴う窒素散布を行って、溶媒を3時間にわたって除去して、この間に合計で351グラムの熱いDI水を、このほぼ透明なポリマー混合物にさらに添加した。

20

【0408】

最終の粘性ポリマー液体を、50℃のオーブンに終夜置いた。20℃での最終の外観は、半透明の高粘性液体であった。

30

【0409】

例68

64.8グラムのM1、27.6グラムのM5、及び51.6グラムのM3を、137.3グラムのIPAと共に攪拌することによって、始めのモノマー混合物を調製した。

【0410】

このモノマー混合物を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして20分間、乾燥窒素を散布しながら、66℃に加熱した。この加熱は、71℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。

【0411】

40

64.9グラムのM1、27.5グラムのM5、51.6グラムのM3、及び8.6グラムのM8を、83グラムのIPAと共に攪拌することによって、第二のモノマー混合物を調製した。これに窒素を散布し、50℃に温めて、そしてFMI QG-50-1 C K C 定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。

【0412】

1.1グラムのV50を8.9グラムのDI水及び8.6グラムのM8に溶解させてなる始めの開始剤混合物を調製した。

【0413】

1.6グラムのV50を9.1グラムのDI水及び9.1グラムのIPAに溶解させて

50

なる、遅延させて添加する開始剤混合物を調製した。この混合物を、F M I Q G - 6 - 0 S S Y 定量ポンプを用いてこの反応器に遅延させて添加させるために、50 ml のシリンジバレルに加えた。

【0414】

始めの混合物を反応器に一度に添加することによって、重合を開始した。10分にわたって、温度は69℃に上がり、そして50分で完了するように調整した遅延させて供給するモノマー及び開始剤のためのポンプを始動した。供給の間に、このプロセスの温度を68~71℃に安定して保持し、その後の1時間で温度を80℃に上げた。そして、302グラムのD I 水を、18分にわたってゆっくりとポンプで入れた。これは、この溶液の粘性を高め、また透明にした。減圧を伴う窒素散布を行って、溶媒を2時間にわたって除去して、この間に合計で185グラムの熱いD I 水を添加した。これは、ポリマー混合物を不透明にし、またより高い粘性にした。

10

【0415】

最終の粘性ポリマー液体を、50℃のオープンに終夜置いた。20℃での最終の外観は、白い不透明の極めて高い粘性のペーストであった。

【0416】

例69

398.6グラムのM3、及び165.8グラムのM6を、217グラムのIPA及び272グラムの1, 3-ブタンジオール(BD)と共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

20

【0417】

このモノマー混合物の一部、263.1グラム(25%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのジャケット付きガラス樹脂反応器に加え、そして60分間、乾燥窒素を散布しながら、ジャケットの温度を制御して60℃に加熱した。残りの790.3グラムのモノマー混合物を、F M I Q G - 20 - 2 C S C 定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、1000 ml のPyrexの添加ロートに注いだ。このモノマーの添加ロートは、電気式ヒートテープで覆われており、このモノマー混合物を、加熱して反応器に添加するために35~40℃にした。6.25グラムのV50を48.0グラムのD I 水に溶解させてなる開始剤混合物を、F M I Q G - 6 - 0 S S Y 定量ポンプを用いてこの反応器に遅延させて添加させるために、125 ml の添加ロートに添加した。

30

【0418】

60℃で、1.7グラムのV50及び8.8グラムのD I 水の混合物を、攪拌した反応器に一度に添加することによって、重合を開始した。30秒以内に、反応器の内容物の温度が上がり始めたが、その透明性は維持した。1分以内に、内容物の温度は70℃に上がっており、モノマーの遅延供給ポンプを稼働した。反応器内容物の発熱が3分でピークに達したときに、開始剤の遅延供給ポンプを稼働した。このモノマー混合物は、62分で提供するように調整しており、開始剤混合物は、90分で提供するように調整していた。Pyrexロート内のモノマー混合物を、定期的に攪拌して、均質な外観を維持した。15%のモノマー混合物を反応器に提供する時間までに、反応器の温度はゆっくりと75℃に下がり、この間に反応器のジャケット温度を、徐々に77℃に上げた。内容物は粘性であり、ほぼ透明を維持した。全ての開始剤混合物を提供した後、反応器をさらに2時間、75℃に維持した。

40

【0419】

2時間保持した後、追加の5.9グラムのt-ブチルハイドロパーオキシド(水中に70wt%)を反応器に添加し、そして3.0グラムのヒドロキシメタンスルフィン酸無水物の一ナトリウム塩(SFS)、及び27.5グラムの水を20分間にわたって反応器に添加した。この追加の添加を、30分間続けて、ロータリーエバポレータに移すためにポリマー溶液を35℃に冷却した。ロータリーエバポレータの温度を65℃で維持し、そして減圧をゆっくりと250 mbarから20 mbarへと高めることによって、揮発

50

性溶媒を、5時間にわたってこのポリマー溶液から除去した。最終のポリマー溶液を透明な粘性液体として得た。

【0420】

例70

408. 1グラムのM1、及び50.2グラムのM8を、329グラムのIPA及び167グラムの脱イオン水と共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0421】

このモノマー混合物の一部、264.7グラム(28%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びフリードリッヒラックスコンデンサーを取り付けた1Lのジャケット付きガラス樹脂反応器に加え、そして60分間、乾燥窒素を散布しながら、ジャケットの温度を制御して65℃に加熱した。残りの690.6グラムのモノマー混合物を、FMI QG-20-2CSC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、1000mlのPyrexの添加ロートに注いだ。このモノマーの添加ロートは、電気式ヒートテープで覆われており、このモノマー混合物を、加熱して反応器へ添加するために35~40℃にした。4.2グラムのV50を37.0グラムのDI水に溶解させてなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いてこの反応器に遅延させて添加させるために、125mlの添加ロートに添加した。

【0422】

65℃で、1.1グラムのV50及び7.0グラムのDI水の混合物を、攪拌した反応器に一度に添加することによって、重合を開始した。2分以内に、反応器の内容物の温度が上がり始めたが、その透明性は維持した。9分後に、内容物の温度は69℃に上がっており、モノマー混合物及び開始剤混合物を遅延させて添加するための両方のポンプを稼働した。このモノマー混合物は、53分で提供するように調整しており、開始剤混合物は、93分で提供するように調整していた。全てのモノマー混合物を反応器に提供する時間までに、反応器の温度はゆっくりと75℃に下がり、この間に反応器のジャケット温度を、徐々に84℃に上げた。内容物は粘性であり、ほぼ透明を維持した。全ての開始剤混合物を提供した後、反応器をさらに2時間、75℃に維持した。

【0423】

2時間保持した後、追加の5.8グラムのt-ブチルハイドロパーオキシド(水中に70wt%)を反応器に添加し、そして3.0グラムのSFS及び27.5グラムの水を20分間にわたって反応器に添加した。この追加の添加を30分間続けて、205グラムのBDを反応器に添加し、そしてロータリーエバポレータに移すためにポリマー溶液を35℃に冷却した。ロータリーエバポレータの温度を65℃で維持し、そして減圧をゆっくりと250mbarから20mbarへと高めることによって、揮発性溶媒を、5時間にわたってこのポリマー溶液から除去した。最終のポリマー溶液を透明な高粘性液体として得た。

【0424】

例71

120. 7グラムのM1、96.3グラムのM3、41.25グラムのM6、及び51.6グラムのM8を、55グラムのIPA及び165グラムのBDと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0425】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその212グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、65℃に加熱した。この加熱は、67℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.5グラムのIPAを、残りの318グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.4グラムのV50を12.1グラムのDI水に溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延

させて添加させるために、50 ml のシリンジバレルに加えた。

【0426】

65℃で、1.3グラムのV50及び7.2グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。1分以内で、反応器の内容物は温度が上がり始めたが、その透明性は維持した。8分後に、内容物の温度は80℃に上がっており、開始剤混合物及びモノマー混合物を遅延させて添加させるためのポンプを稼働させた。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物が反応器に供給される時間までに、反応器の温度はゆっくりと73℃に上がっており、一方でウォーターバスの温度は徐々に76℃に上げていた。内容物は粘性で、かつほぼ透明を維持した。全ての開始剤混合物が供給された後、反応器をさらに加熱し、このプロセスをさらに2時間、80～85℃で維持した。

10

【0427】

窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。15分の散布後、1.45グラムのV50、17.4グラムのBD、及び1.8グラムの混合物を添加し、散布をさらに2時間続けた。最終的に、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.0グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、透明の粘性液体であった。

【0428】

例72

20

64.1グラムのM3、13.8グラムのM5、及び17.2グラムのM3を、81グラムのIPAと共に攪拌することによって、始めのモノマー混合物を調製した。

【0429】

このモノマー混合物を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして20分間、乾燥窒素を散布しながら、55℃に加熱した。この加熱は、58℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。

【0430】

149.5グラムのM3、32.1グラムのM5、及び40.1グラムのM8を、153グラムのBDと共に攪拌することによって、第二のモノマー混合物を調製した。これに窒素を散布し、50℃に温めて、そしてFMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500 ml のPyrexの添加ロートに注いだ。

30

【0431】

0.73グラムのV50を3.3グラムのDI水及び3.3グラムのメタノールに溶解させてなる始めの開始剤混合物を調製した。

【0432】

3.70グラムのV50を16.7グラムのDI水及び16.7グラムのメタノールに溶解させてなる、遅延させて添加する開始剤混合物を調製した。この混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いてこの反応器に遅延させて添加させるために、50 ml のシリンジバレルに加えた。これは、95分で供給するように調整していた。

【0433】

40

始めの開始剤混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。3分で、温度は素早く68℃に上がり、モノマーを遅延させて供給するためのポンプを始動した。これは64分で完了するように調整していた。さらに1分後、遅延させて添加する開始剤の供給を開始した。遅延させた供給の間に、ウォーターバスの温度を徐々に80℃に上げて、プロセス温度を70～74℃に維持した。モノマーと開始剤の供給の両方が完了した後、反応器を70℃でさらに90分間維持した。3.3グラムのt-ブチルハイドロパーオキシド（水中に70 wt %）を反応器に添加し；そして1.8グラムのSFS、及び16.5グラムの水を20分間にわたって反応器に添加することによって、追加の工程を開始し、続いてさらに30分、65～70℃で保持した。

【0434】

50

窒素散布及び減圧を適用して、揮発性溶媒を3時間にわたって除去した。室温への冷却後、透明な粘性ポリマー溶液を得た。

【0435】

例73

120.99グラムのM1、41.27グラムのM6、96.25グラムのM3、及び51.60グラムのM8を、55グラムのIPA及び165グラムのグリセロールと共に攪拌することによって、モノマー混合物を調製した。

【0436】

このモノマー混合物を、50℃に温めて、そしてその212グラム(40%)を、ステンレス鋼の攪拌器及びリフラックスコンデンサーを取り付けた1Lのガラス樹脂反応器に加え、そして30分間、乾燥窒素を散布しながら、68℃に加熱した。この加熱は、71℃のウォーターバスに浸漬させることによって行った。さらに、27.5グラムのIPAを、残りの318グラムのモノマー混合物に添加して、そしてFMI QG-50-1CKC定量ポンプで反応器に遅延させて添加させるために、500mlのPyrexの添加ロートに注いだ。1.4グラムのV50を12.1グラムのDI水に溶解した溶液からなる開始剤混合物を、FMI QG-6-0SSY定量ポンプを用いて、この反応器に遅延させて添加させるために、50mlのシリンジバレルに加えた。

【0437】

68℃で、1.4グラムのV50及び7グラムのDI水の混合物を、攪拌させた反応器に一度で添加することによって、重合を開始した。混合物は濁った。1分未満で、反応器の温度は、上がり始めた。3分で、温度の設定値を90℃にした。5分で、バッチは2つの目視できる相となり、温度は71.5℃であった。この時、開始剤混合物及びモノマー混合物を遅延させて添加させるための供給ポンプを稼働させた。このモノマー混合物は、60分内で供給されるように調整しており、かつこの開始剤混合物は、90分内で供給されるように調整していた。全てのモノマー混合物及び開始剤混合物が反応器に供給される時間まで、温度は82.4℃であり、内容物は白/不透明であった。このプロセスを80℃超でさらに3時間10分持続させた。

【0438】

この時点で、温度は80℃であり、窒素散布を開始し、そして水流吸引器を取り付けて減圧にして揮発性溶媒を除去した。1時間の散布後に、1.65グラムのV50、13.20グラムのグリセロール、及び7.15グラムの水を追加で、反応器に直接添加した。この追加を1時間30分続け、そして最終的に7時間で、このポリマー溶液を室温まで冷却し、そして3.03グラムの10%過酸化水素を保存料として添加した。最終的な外観は、透明の粘性液体であった。

【0439】

この73の例のそれぞれに関して、コポリマー中の合計の固形分重量の百分率として会合性のZ部位の重量を計算した。同様に、使用した始めのモノマーの特定の混合物に基づいてイオン生成性及びイオン性の単位の重量パーセントも計算した。これらの例において、各ケースの会合性のZ部位は、8以上の炭素原子を有するアルキル基(すなわち、モノマーM1、M3、及びM9から導かれたもの)であった。イオン性単位及びイオン生成性単位は、4級基を含む単位(すなわち、M8、M11、及びM13から導かれる繰り返し単位)又はメタクリル酸基を含む単位(すなわち、M7から導かれる繰り返し単位)であった。イオン性単位は、4級基を含む単位のみであった。また、次の2つの比率も計算した：会合性のZ部位の、イオン性基に対する重量比、及び会合性のZ部位の、イオン生成性基及びイオン性基の合計に対する重量比。また、表1は、水中のコポリマー(固形分5wt%)のpH、50℃及び20℃での最終のポリマー水溶液の粘度、並びに水又は溶媒を除去した後の(100wt%固形分の)最終のポリマーについて示差走査熱量分析によって測定した場合に3J/g超の融解熱を与える発熱ピークの温度(℃単位)も含んでいる。発熱ピークの温度は、多くは20℃未満である。粘度に関しての表1の空欄は、測定値が得られなかった箇所であり、発熱ピーク欄にある破線は、定めた基準に合う発熱ピー

10

20

30

40

50

クが観測されなかった箇所である。

【0440】

【表1】

表1

ホリマ- 例番号	%会合性 部位 (計算値)	%イオン生成性 部位 (計算値)	%イオン性 部位 (計算値)	会合性部位 のイオン生成性 + イオン性部位 に対する比	会合性部位 のイオン性部位 に対する比	pH (水中に 5%)	粘度 @50℃, Pa·s	粘度 @20℃, Pa·s	発熱 ピーク, ℃
1	20.9	15.0	15.0	1.39	1.39	3.2	35.6	410	3.1
2	29.6	15.0	15.0	1.97	1.97	5.0	0.4	1.6	-0.1
3	13.4	5.0	5.0	2.68	2.68	3.8	35.2	890	--
4	23.2	5.0	5.0	4.65	4.65	5.5	25		-37
5	20.9	15.0	15.0	1.39	1.39	3.4	15.2	200	2.7
6	29.6	15.0	15.0	1.97	1.97	4.2	2.2	9.8	-3.3
7	22.2	5.0	5.0	4.44	4.44	4.9	1.7	13.2	--
8	7.3	35.0	20.0	0.21	0.37	2.8	16.8	134	--
9	25.4	20.0	15.0	1.27	1.69	5.0	2.8	11.9	-3.2
10	13.6	20.0	20.0	0.68	0.68	3.1	0.8	248	22
11	7.8	10.0	5.0	0.78	1.55	4.9	0.2	36.4	23
12	17.8	10.0	10.0	1.78	1.78	3.3	5.5	24.5	--
13	6.4	10.0	5.0	0.64	1.28	4.6	11.9	224	--
14	10.3	10.0	10.0	1.03	1.03	3.5	3.4	48	--
15	13.7	10.0	10.0	1.37	1.37	3.4	27.8	875	-23.8
16	6.5	27.5	12.5	0.24	0.52	2.8	2.1	79	21
17	23.7	8.0	8.0	2.96	2.96	6.5	6.2	170	-17
18	6.6	10.0	10.0	0.66	0.66	3.7	9.5	520.0	4.8
19	6.1	5.0	5.0	1.22	1.22	4.5	19.0	334	--
20	15.3	5.0	5.0	3.06	3.06	4.4	0.5	73	--
21	20.9	15.0	15.0	1.39	1.39	3.1	3.0	25.4	15.9
22	19.0	5.0	5.0	3.80	3.80	6.6	12		--
23	4.7	35.0	20.0	0.13	0.24	3	5.0	100	--
24	7.8	20.0	20.0	0.39	0.39	3.8	1.2	33	25.8
25	6.0	5.0	5.0	1.20	1.20	4.5	6.3	14.7	21.8
26	8.6	5.0	5.0	1.72	1.72	3.9	9.9	230	-11.1
27	13.4	16.8	11.3	0.80	1.19	3.5	1.3	208	-8.9
28	14.3	5.0	5.0	2.85	2.85	4.8	9.3	93.5	-6.3

【0441】

【表 2】

サマ 例番号	%会合性 部位 (計算値)	%イオン生成性 部位 (計算値)	%イオン性 部位 (計算値)	会合性部位 のイオン生成性 +イオン性部位 に対する比	会合性部位 のイオン性部位 に対する比	pH (水中に 5%)	粘度 @50℃, Pa・s	粘度 @20℃, Pa・s	発熱 比、 ℃
29	9.5	5.0	5.0	1.90	1.90	6.2	0.5	13.8	-8.1
30	12.7	20.0	20.0	0.63	0.63	4.7	5.8	66	--
31	7.3	5.0	5.0	1.46	1.46	3.9	5.6	33.6	--
32	8.9	20.0	20.0	0.45	0.45	4.2	252	1870	--
33	12.7	5.0	5.0	2.54	2.54	5.8	1.2	6.4	-8.6
34	14.6	14.2	10.7	1.03	1.37	3.9	1.4	2.5	-6.0
35	14.9	20.0	5.0	0.75	2.98	3.8	9.7	192	--
36	11.6	5.0	5.0	2.32	2.32	5.4	0.1	0.5	-6.6
37	13.7	35.0	20.0	0.39	0.69	2.6	2.6	17.6	-13.6
38	4.5	12.5	12.5	0.36	0.36	4.1	4.9	74	--
39	14.6	18.4	10.7	0.80	1.37	3.1	13.4	140	-7.2
40	24.3	12.5	5.0	1.94	4.86	3.1	318		-6.9
41	15.8	27.5	12.5	0.58	1.27	2.9	65.6	580	--
42	15.8	20.0	20.0	0.79	0.79	3.7	10.8	150	--
43	5.1	35.0	20.0	0.15	0.25	2.9	15.0	332	-12.9
44	6.0	10.0	5.0	0.60	1.20	3.5	28.8		-11.1
45	13.4	13.5	7.5	0.99	1.78	3	1.9	14.4	--
46	14.2	35.0	20.0	0.40	0.71	4	66.4	1810	-3.7
47	23.4	35.0	20.0	0.67	1.17	2.7	14.4	159	2.1
48	14.3	20.0	5.0	0.71	2.85	5.5	21.2	198	--
49	9.5	20.0	5.0	0.48	1.90	2.9	268		-5.2
50	23.8	25.0	10.0	0.95	2.38	2.7	4.1	44	-8.5
51	13.4	16.8	11.3	0.80	1.19	3.6	13.6	264	--
52	15.7	20.0	20.0	0.78	0.78	2.9	12.2	615	--
53	20.8	5.0	5.0	4.16	4.16	4.8	25.4	1140	-0.7
54	11.8	22.5	7.5	0.52	1.57	2.9	4.6	168	-8.1
55	17.7	9.0	9.0	1.97	1.97			4.0	--
56	22.0	8.0	8.0	2.75	2.75	5.5	40	850	-24
57	25.5	5.0	5.0	5.09	5.09	4.3	12.9	1520	-3.1

【0442】

【表 3】

ポリマー 例番号	%会合性 部位 (計算値)	%イオン生成性 部位 (計算値)	%イオン性 部位 (計算値)	会合性部位 のイオン生成性 +イオン性部位 に対する比	会合性部位 のイオン性部位 に対する比	pH (水中に 5%)	粘度 @50℃, Pa・s	粘度 @20℃, Pa・s	発熱 ピーク, ℃
58	27.5	15.0	15.0	1.83	1.83	5.1	2.1	4.4	-1.1
59	25.4	15.0	15.0	1.69	1.69	5.1	2.5	3.9	-5.1
60	3.5	35.0	20.0	0.10	0.17	2.8	11.9	173	--
61	27.5	15.0	15.0	1.83	1.83	4.2	0.4	1.9	-1
62	27.5	15.0	15.0	1.83	1.83	5.5	6.8	35.4	0.5
63	27.5	15.0	15.0	1.83	1.83	5.5	2.5	14.2	0.1
64	24.7	13.6	11.1	1.82	2.23	3.3	13.4		22.2
65	15.8	5.0	5.0	3.17	3.17	4.8	5.0		--
66	31.7	20.0	5.0	1.58	6.34	3.2	0.6	0.9	1.4
67	6.3	20.0	20.0	0.32	0.32	6.5	4.3	30	--
68	22.4	5.0	5.0	4.47	4.47	4.9	104		24.1
69	31.7	25.0	25.0	1.27	1.27	3.8	0.8	3.6	--
70	15.5	11.0	11.0	1.41	1.41	3.1	66		31.2
71	20.9	15.0	15.0	1.39	1.39	3.2	2.8	28.0	17.1
72	29.6	15.0	15.0	1.97	1.97	3.6	0.9	11.7	--
73	20.9	15.0	15.0	1.39	1.39	3.1	25.8	64.4	22.9

【0443】

サンプルのコポリマーを組み込んだ典型的な配合物についての考察

例1～72で得たカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーを、以下に詳細に記載するような6つの異なるパーソナルケア製品配合物の1以上に成分として、別個に添加した。シリーズA～Fの配合物中に、指定した量のカチオン性／カチオン生成性櫛形ポリマーを、100%のポリマー成分で添加した。これらの配合物を、一般的なパーソナルケア製品の代表品として調製し、かつ／又は対照の配合物と比べた場合にこれらのコポリマーの使用によって得られる特徴の解析を促進するために調製した。

【0444】

シリーズAの配合物を、低pHの配合物の代表品として設計した。これは、例えば洗顔剤でみられる場合がある。この配合物は、表2に示す全ての組成を有していた。

【0445】

【表 4】

表2－低pH配合物（Aシリーズ）

成分	重量%
A相	
カプリル酸／カプリン酸トリグリセリド	13.0
セテアリアルアルコール	2.0
セテアレス20	4.0
ステアリン酸グリセリル	3.0
B相	
水	残部
サリチル酸	2.0
グリセリン	3.0
カチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマー	1.0
DMDMヒダントイン	0.5
合計	100.0

【0446】

例1～72で生成したカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーの1種をシリーズAの製造に用いた各ケースに関して、この製造では、次の同じ手順を行った。第一に、A相の全ての成分を一緒に容器に加えて、80℃に加熱した。脱イオン（DI）水を別個のB相の容器に添加し、サンプルのポリマーを加熱して攪拌しながら添加した。賢明な方法で、グリセリンをB相の容器に添加し、続いて混合物が80℃に達するまでサリチル酸を添加し、サリチル酸を完全に溶解した。A相の混合物をB相に添加し、除熱し、そして混合物を冷却した。温度が60℃未満に低下したときに、DMDMヒダントインを添加した。この配合物が室温に冷えるまで混合を続けた。

【0447】

10

そして、有効成分、体外の合成皮膚を用いて、サリチル酸の沈着の有効性を決定するために、シリーズAの配合物を検討した。2mg/cm²のシリーズAの配合物を、30秒間、この皮膚に適用しそして擦ることによってテストを行った。適用後、皮膚を15分乾燥させて、そして300rpmの速度に設定した速いマグネティックスターラーでの攪拌の下で、30mLの脱イオン水を有するペトリ皿にその基質を浸漬させた。例1～68のコポリマーを含有する配合物のテストに関して、水の温度は体温近辺（35±2℃）に維持した。例69～72のコポリマーを含有する配合物のテストに関して、水の温度は室温近辺（22±2℃）に維持した。

【0448】

浸漬後1分、2分、15分、及び20分で、水中のサンプルを取り出して、5ミクロンのフィルターで濾過した。次に、これらのサンプルを高速液体クロマトグラフィー（HPLC）にかけて、サンプルに抽出されたサリチル酸の量を解析した。そして、沈着したサリチル酸の量を計算した。この計算では、サンプルが収集した様々な時間間隔にわたって平均化した。

20

【0449】

この検討結果を表12に示す。表12は、シリーズA～Fのそれぞれについて行った検討により得られた結果の包括的なリストを有する。

【0450】

通常存在するよりも高い割合の水分を含有させて、カチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーによって与えられる感触を検討していることを除いて、シリーズBの配合物を、スキนครリーム配合物の代表品として設計した。Bシリーズの配合物は、表3に示した全ての組成を有していた。

30

【0451】

【表5】

表3－スキนครリーム（Bシリーズ）

成分	重量%
A相	
DI水	残部
カチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマー	1.0
B相	
オクチノキサート	1.0
セテアリルアルコール	5.5
セテアレス-25	0.5
合計	100.0

40

【0452】

例1～72のカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーの1つがシリーズBの配合物

50

を製造するのに用いられる各ケースに関して、その製造では、次の同じ手順を行った。第一に、B相の全ての成分を一緒に容器に加えて、混合しかつ80℃に加熱した。DI水及びカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーを別個の容器に添加し、これも混合しかつ80℃に加熱した。この時、B相をA相に加えた。この混合物を65℃に冷却し、3分間5000rpmで均質化处理をした。この配合物を室温に達するまで混合を続け、pHを約5.5に調整した。

【0453】

Bシリーズの配合物を、次の手順に従って感触の専門の識者によって、感触の特性を評価した。

【0454】

濡れていない手の裏側及び前腕の内側を検討に用いた。これに0.2～0.4グラムのBシリーズの配合物を1本の指で軽く塗って、別の指で2.5wt%のジメチコンを含みかつ陽性対照として用いる、同じ量の比較の市販品を適用した。

【0455】

サンプル及び対照の配合物を、前腕又は手の裏側の約2cm互いに離れた位置に同時に適用した。指の前後運動及び円運動によって、両方を同じ時間で擦った。配合物の適用には1～2分を要した。

【0456】

それぞれのサンプルの特性を、感覚(feel)、抵抗(drag)、滑性(slip)、及びタック／粘性(stickiness)に関して、市販の製品と比較して評価した。感覚は、良好な感覚の物質の知覚であり、通常は望ましい軽い絹のような感覚から望ましくない重い脂っぽい感覚までで特徴付けられる。抵抗は、配合物を適用する肌にわたって指を動かす際に受ける抵抗の知覚であり、特に配合物がほぼ乾燥段階及び乾燥段階に達する場合の知覚である。滑性は、配合物を適用する領域にわたって肌を動かす際に、わずか又は全く抗がないスムーズな膜の知覚であり、特に配合物が濡れている場合の知覚である。そして、タックは、擦るプロセスの前後の間の製品の肌への接着性についての知覚である。

【0457】

現状評価及び評価基準を確立した後、次の3つの対照の配合物に基づいた検討を開始した：陰性対照（表3のBシリーズからカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーを除いた配合物）、中間対照（表3のBシリーズのカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーの代わりにポリクオタリウム7を用いた配合物）、及び陽性対照（Johnson & Johnson Consumer Companies, Inc. から入手できるAveeno（商標）「Active Naturals（商標）Skin Relief Moisturizing Lotion」）。35～60歳の男女の通常の肌乃至乾燥肌を有する非喫煙者のパネリストが、この検討に参加した。パネリストは、検討前に手及び腕にあらゆる他の製品を使用しないように依頼されていた。パネリストは、感触の特性について訓練を受けており、同じ評価者が、感触の検討の全てを通して参加した。パネリストは、市販の配合物に対して、実験の配合物のそれぞれを主観的に評価するように依頼を受けていた。1が「市販品に比べて非常に劣る、及び陰性対照と同じ」、3が「中間対照と同じ」、4が「市販品の陽性対照と同じ」、5が「市販品より優れている」とした、1～5の格付けの等級を用いて配合物を評価した。

【0458】

Cシリーズの配合物をフェイシャルクリームの配合物の代表品として設計した。これは、表4に示した全ての組成を有していた。

【0459】

10

20

30

40

【表 6】

表 4－フェイシャルクリーム（Cシリーズ）

成分	重量%
A相	
DI水	残部
グリセリン	4.0
DMDMヒダントイン	0.5
カチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマー	1.0
B相	
イソプロピルパルミテート	6.0
C12-15のアルキルベンゾアート	5.0
PEG-100ステアラート	2.5
ステアリン酸グリセリル	2.5
セテアリルアルコール	2.0
ジメチコン	2.5
合計	100.0

10

【0460】

20

例 1～68 で生成したカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーの 1 つがシリーズ C の配合物を製造するのに用いられる各ケースに関して、その製造では、次の同じ手順を行った。第一に、B 相の成分と一緒に容器に加えて、80℃に加熱しながら混合した。別個の容器に、DI 水及びサンプルのカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーを混合しながら添加し、加熱を始めた。この混合物にグリセリンを添加した。両方の相が 80℃に達した後に、B 相の混合物を A 相の混合物に加え、そして除熱した。温度が 60℃未満に低下した後に、DMDMヒダントインを添加し、この配合物を室温に達するまで混合を続け、そして pH をトリエタノールアミンを用いて約 5～5.5 に調整した。

【0461】

D シリーズの配合物を、ヘアコンディショナー配合物の代表品として設計した。これは、表 5 に示す全ての組成を有していた。

30

【0462】

【表 7】

表 5－ヘアコンディショナー（Dシリーズ）

成分	重量%
A相	
DI水	残部
カチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマー	1.0
ジメチコール（及び）TEA- ドデシルベンゼンスルホナート	1.0
B相	
オクチノキサート	1.0
セテアリルアルコール	5.5
セテアレス-25	0.5
合計	100.0

40

【0463】

例 1～72 のカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーの 1 つがシリーズ B の配合物

50

を製造するのに用いられる各ケースに関して、その製造では、次の同じ手順を行った。第一に、B相の全ての成分を一緒に容器に加えて、混合の下で80℃に加熱した。DI水及びカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーを別個の容器に添加し、これも混合の下で加熱した。次に、ジメチコノール及びTEAードデシルベンゼンスルホナートをA相の容器に添加した。両方の相が80℃に達した後に、B相の混合物をA相の混合物に加え、そして除熱した。この組成物が65℃に達した時に、3分間5000rpmで均質化処理をし、続いてこの配合物が室温に達するまで混合を続けた。

【0464】

Eシリーズの配合物を、スキนครリーム配合物の代表品として設計した。これは、表6に示す全ての組成を有していた。

【0465】

【表8】

表6－スキนครリーム（Eシリーズ）

成分	重量%
A相	
鉱油	8.0
PPG-15ステアリルエーテル	1.0
ステアレス-21	2.5
ステアレス-2	1.1
セテアリルアルコール	4.0
ジメチコール（及び）TEA- ドデシルベンゼンスルホナート	2.5
B相	
DI水	残部
グリセリン	3.0
プロピレングリコール	1.0
カチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマー	1.0
DMDMヒダントイン	0.5
合計	100.0

【0466】

例1～72のカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーの1つがシリーズEの配合物を製造するのに用いられる各ケースに関して、その製造では、次の同じ手順を行った。DI水を、カチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーと共に容器に添加し、加熱の下で混合を開始した。そして、グリセリン及びプロピレングリコールをこの容器に添加した。別の容器に、A相の全ての成分を一緒に容器に加えて、加熱の下で混合した。両方の相が80℃に達した後に、A相の材料を含む容器を、B相の材料を含む容器に移し、そして除熱した。温度が60℃未満に低下した後に、DMDMヒダントインを添加し、この配合物を室温に達するまで混合を続け、そしてpHを、トリエタノールアミンを用いて約5～5.5に調整した。

【0467】

シリーズC、D、及びEの配合物の全てについて、（ジメチコン又はジメチコノールとして存在する）有効成分としてのシリコーンの沈着性の有効性に関して試験した。シリコーンの沈着性の検討を、体外の人工皮膚を用いて行った。これは、この皮膚に2mg/cm²の配合物を適用し、そして30秒間擦ることによってテストを行った。適用後、皮膚を15分乾燥させた。そして、300rpmの速度を有する速いマグネティックスターラーでの攪拌の下で、30mLの脱イオン水を有するペトリ皿にその皮膚を浸漬させた。例1～68のコポリマーを含有する配合物のテストに関して、水の温度は体温近辺（35±

2℃)に維持した。例69～72のコポリマーを含有する配合物のテストに関して、水の温度は室温近辺(22±2℃)に維持した。

【0468】

浸漬後の1分、2分、及び15分で、水中のサンプルを取り出して、5ミクロンのフィルターで濾過した。次に、これらのサンプルを、Perkin-Elmer Optima 5000のデュアルビュー発光分光計をバックグラウンド補正をした軸方向観察で用いて、誘導結合プラズマ原子発光分析(ICP-OES)を行った。ケイ素の結果は、次の3つの解析波長を用いて確認した：212.412nm、251.611nm、288.158nm。各抽出物のICPのシリコンの結果に基づいて、皮膚に沈着したシリコンの百分率を計算し、そしてサンプルが収集した様々な時間間隔にわたって平均化した。

10

【0469】

Fシリーズの配合物を、パーソナルケアの洗剤配合物の代表品として設計した。これは、表7に示す全ての組成を有していた。

【0470】

【表9】

表7－洗剤（Fシリーズ）

成分	重量%
A相	
ラウリル硫酸アンモニウム	11.0
コカミドプロピルベタイン	12.0
C12-15パレス-15硫酸ナトリウム	11.0
B相	
ナトリウムココイルイセチオナート	6.0
DI水	残部
カチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマー	1.0
塩化ナトリウム	3.0
合計	100.0

20

30

【0471】

例1～68で生成したカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーの1つがシリーズFの配合物を製造するのに用いられる各ケースに関して、その製造では、次の同じ手順を行った。第一に、A相の成分を一緒に容器に加えて、加熱しながら混合した。別個の容器に、NaClを除くB相の成分を一緒に容器に加え、そしてこれも加熱しながら混合した。両方の相が45℃に達したときに、A相の材料をB相の材料に添加した。そして、NaClを添加し、完全に溶解するまで混合した。そして、除熱し、配合物を室温にまで冷却させて、pHをトリエタノールアミンを用いて約5～5.5に調整した。

【0472】

40

Gシリーズの配合物を、パーソナルケアのアンチエイジング配合物の代表品として設計した。これは、表8に示す全ての組成を有していた。

【0473】

【表 10】

表 8－アンチエイジングクリーム 1（Gシリーズ）

成分	重量%
A相	
DI水	残部
カチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマー	1.0
ナイアシンアミド	2.0
B相	
オクチノキサート	1.0
セテアリルアルコール	5.5
セテアレス-25	0.5
合計	100.0

10

【0474】

例 7 1 及び 7 2 で生成したカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーの 1 つがシリーズ G の配合物を製造するのに用いられる各ケースに関して、その製造では、シリーズ B の配合物に関して記載した手順と同じ手順を行った。シリーズ G 及び H の配合物内で、指定した量のカチオン性／カチオン生成性櫛形ポリマーを、100%のポリマー成分で添加した。

20

【0475】

H シリーズの配合物を、パーソナルケアのアンチエイジング配合物の代表品として設計した。これは、表 9 に示す全ての組成を有していた。

【0476】

【表 11】

表 9－アンチエイジングクリーム 2（Hシリーズ）

成分	重量%
A相	
DI水	残部
カチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマー	1.0
エリソルビン酸	1.0
B相	
オクチノキサート	1.0
セテアリルアルコール	5.5
セテアレス-25	0.5
合計	100.0

30

【0477】

例 7 1 及び 7 2 で生成したカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーの 1 つがシリーズ H の配合物を製造するのに用いられる各ケースに関して、その製造では、シリーズ B の配合物に関して記載した手順と同じ手順を行った。

40

【0478】

シリーズ G 及び H の配合物の両方について、体外の人工皮膚を用いて、アンチエイジング有効成分、ナイアシンアミド又はエリソルビン酸の沈着性の有効性を評価するために検討を行った。この皮膚に $2 \text{ mg} / \text{cm}^2$ の配合物を 30 秒間、適用しそして擦ることによってテストを行った。適用後、皮膚を 15 分乾燥させた。そして、300 rpm の速度で設定した速いマグネティックスターラーでの攪拌の下で、30 mL の脱イオン水を有する

50

ペトリ皿にその皮膚を浸漬させた。水の温度は室温近辺 ($22 \pm 2^\circ\text{C}$) に維持した。

【0479】

浸漬後の1分、2分、及び15分で、水中のサンプルを取り出して、5ミクロンのフィルターで濾過した。次に、これらのサンプルを、高速液体クロマトグラフィー (HPLC) にかけて、サンプルに抽出されたナイアシンアミド又はエリスルビン酸の量を解析した。そして、沈着したアンチエイジング成分の量を計算した。この計算では、サンプルが収集した様々な時間間隔にわたって平均化した。

【0480】

この検討結果を表13に与える。これは、シリーズG～Jのそれぞれについて行った検討により得られた結果の包括的なリストを有する。

10

【0481】

シリーズA～Hのそれぞれに関して、「ブランク」の配合物は、比較目的の対照として製造した。これは、任意の典型的なカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーを除外したことを除いて同一である。

【0482】

シリーズIの配合物を、1重量パーセント (100%ポリマー成分) の例72のカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーを、Procter & Gambleから得られる市販品の「head & shoulders (商標) pyrithione zinc dandruff shampoo, classic clean」に混合することによって調製した。このカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーとシャンプーの混合を室温で行った。購入したままのカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーを含まない市販のシャンプーは、シリーズIの配合物に関して「ブランク」の配合物としている。

20

【0483】

シリーズJの配合物を、1重量パーセント (100%ポリマー成分) の例72のカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーを、Rite Aid Corporationから得られる市販品の「pyrithione zinc dandruff shampoo, classic clean」に混合することによって調製した。このカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーとシャンプーの混合を室温で行った。購入したままのカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーを含まない市販のシャンプーは、シリーズJの配合物に関して「ブランク」の配合物としている。

30

【0484】

シリーズI及びJの配合物の両方を、体外の人工皮膚を用いて、フケ防止有効成分であるジnkピリチオンの沈着性の有効性を評価するために試験した。この皮膚に $2\text{mg}/\text{cm}^2$ の配合物を30秒間、適用しそして擦ることによってテストを行った。適用後、皮膚を5分乾燥させた。そして、300rpmの速度で設定した速いマグネティックスターラーでの攪拌の下で、30mLの脱イオン水を有するペトリ皿にその皮膚を浸漬させた。水の温度は室温近辺 ($22 \pm 2^\circ\text{C}$) に維持した。

【0485】

浸漬後の30秒、1分、及び2分で、水中のサンプルを取り出して、5ミクロンのフィルターで濾過した。次に、サンプルに抽出されたジnkピリチオンの量を解析するために、これらのサンプルを、Perkin-Elmer Optima 5000のデュアルビュー発光分光計をバックグラウンド補正をした軸方向観察で用いて、誘導結合プラズマ原子発光分析 (ICP-OES) を行った。そして、沈着したフケ防止有効成分の量を計算し、これをサンプルが収集した様々な時間間隔にわたって平均化した。

40

【0486】

シリーズA～Fの様々な配合物について試験した結果を、表12に示す。有効成分の沈着の有効性を検討した配合物に関して、表12は、比較のブランク配合物に対して達成した沈着の向上性を示す比較結果も示す。

【0487】

50

また、表12は、配合物A～C及びE～Fの粘度を示す。これは、HelipathスピンドルB～Eを使ってBrookfield式の回転スピンドル粘度計を用いて、約10回転/分(rpm)で、周囲の室温(約20～25℃)で、パスカル秒(Pa・s)単位で測定した。スピンドル及びrpmの両方を調製して、この機器で推奨されている範囲内のトルクの表示で測定を行った。測定の前に終夜で配合物を室温で平衡にした。各サンプルに関して、サンプル容器内の異なる位置のそれぞれから3つを読み取り、その結果を平均化した。

【0488】

表12は、さらに次の2つの特性も示す：希釈水中のコポリマーの溶液(3wt%固形分)の外観及び粘度。この試験は、限られた数の代表のサンプルについて行った。表中の空欄は、特定のサンプルが対応する配合物に関して用いられていないこと、又はそのサンプルについて結果を得ていないことを示している。

10

【0489】

シリーズG～Jの様々な配合物について実行した試験の結果を表13に示す。ここでは、比較のブランクの配合物に対して達成した沈着性の向上を示す比較結果も示す。表中の空欄は、特定のサンプルが対応する配合物に関して用いられていないこと、又はそのサンプルについて結果を得ていないことを示している。

【0490】

高いエタノール含量の日焼け止め配合物の代表として配合物Kを設計した。これは、表10に示す全ての組成を有していた。

20

【0491】

【表12】

表10—高エタノール含量の日焼け止め(K配合物)

成分	重量%
エタノール	70.0
例72のカチオン性/カチオン生成性櫛形コポリマー	5.0
C12-15のアルキルベンゾアート(及び) ジプロピレングリコールベンゾアート(及び) PPG-15ステアリルエーテルベンゾアート	5.0
オクトクリレン	5.0
サリチル酸エチルヘキシル	3.0
ホモサラート	5.0
ブチルメトキシジベンゾイルメタン	4.0
ベンゾフェノン-3	3.0
合計	100.0

30

【0492】

配合物Kを、室温(22±2℃)で、示されている順で成分を添加することによって製造した。配合物K及びL内に、100%ポリマー成分で示した量のカチオン性/カチオン生成性櫛形コポリマーを添加した。各成分の添加に続いて、この混合物を均一になるまで手で攪拌した。安定でかつ均質な日焼け止め組成物を得た。

40

【0493】

続いて、「In Vitro water Resistance Protocol」を用いてIMS Inc.によって、配合物KのSPFを測定する。50+(すなわち、50以上)のSPFが得られ、この日焼け止め組成物は、耐水性である。

【0494】

日焼け止めクリーム配合物の代表として配合物Lを設計した。これは、表11に示す全

50

ての組成を有していた。

【0495】

【表13】

表11－日焼け止めクリーム（L配合物）

成分	重量%
A相	
鉱油	2.0
乳化ワックスNF	5.0
ステアレス－21	1.0
ステアレス－2	0.5
セチルアルコール	1.0
オクチノキサート	7.5
オキシベンゾン	6.0
オクチサラート	5.0
B相	
DI水	残部
ヒドロキシエチルセルロース	0.3
例72のカチオン性／カチオン 生成性櫛形コポリマー	1.5
プロピレングリオールジアゾリジニル尿素 メタルパラベン、プロピルパラベン	1.0
合計	100.0

【0496】

配合物Lを次の手順によって製造した。第一に、A相の全ての成分を一緒に容器に加えて、そして混合し、80℃に加熱した。DI水、ヒドロキシエチルセルロース、及びカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーを、別個の容器に添加し、そしてこれも混合して80℃に加熱した。ここで、相Aを相Bに添加した。この混合物を65℃に冷却し、そして3分間5000rpmで均質化处理した。この配合物が60℃未満に冷えたら、保存料（ジアゾリジニル尿素及びパラベンのプロピレングリコール中の混合物）を添加し、続いてこれが室温に達するまで混合を続けた。

【0497】

「In Vitro water Resistance Protocol」を用いてIMS Inc. によって、配合物LのSPFを測定する。30のSPFが得られ、この日焼け止め組成物は、耐水性である。

【0498】

【表 1 4】

表 12

ポリマー 例番号	%沈着 した ポリマー (Aシリーズ)	%沈着 した ポリマー (Aシリーズ) の向上	良好な 感触に 対する 官能評価 (Bシリーズ)	良好な 滑りに 対する 官能評価 (Bシリーズ)	%沈着 した (Cシリーズ)	%沈着 の向上 (Cシリーズ)	%沈着 した (Dシリーズ)	%沈着 の向上 (Dシリーズ)	%沈着 した (Eシリーズ)	%沈着 の向上 (Eシリーズ)	Aシリーズ の粘度 (Pa・s)	Bシリーズ の粘度 (Pa・s)	Cシリーズ の粘度 (Pa・s)	Eシリーズ の粘度 (Pa・s)	Fシリーズ の粘度 (Pa・s)	脱イオン水 中の3wt% のポリマー の外観	脱イオン水 中の3wt% のポリマー の粘度 (cP)
1	36	1700	3.8	3.9	88	79	58	130	66	57	0.18	41.2	31.4	9.9	20.3	透明	≤40
2	35	1700	3.9	3.5	81	65	77	210	81	93	2.3	20.3	17.0	16.0	3.9	白	≤40
3	37	1700	3.9	3.6	85	74	63	150	90	120	0.57	57.0	11.9	55.5	1.8	透明	≤40
4	29	1300	4.1	4.0	89	81	74	200	81	93	0.45	20.2	15.6	19.8	49.2		
5	20	880	4.0	3.8	89	82	84	240	83	99	2.7	51.0	45.7	11.3	30.2		
6	42	2000	4.3	4.0	89	81	75	200	87	110	0.68	27.0	61.0	7.3	33.3		
7	30	1400	3.5	3.5	61	25	62	150	73	74	0.72	22.8	27.5	11.5	16.8		
8	23	1100	3.0	3.5	90	83	65	160	85	100	0.60	11.6	24.2	14.9	9.0		
9	31	1500	4.0	4.0			53	110	86	100	0.97	69.0					
10	24	1100	3.8	3.6	88	80	69	170	87	110	3.0	25.4	39.6	9.7	23.4		
11	7	230	2.9	3.4	88	79	73	190	84	100	0.55	19.5	14.5	14.1	14.2		
12	17	760	4.1	3.3	85	73	69	180	83	99	6.2	12.2	14.5	18.9	11.1		
13	14	600	2.9	3.1	72	47	65	160	75	78	0.52	11.2	13.1	7.6	3.9		

【0 4 9 9】

10

20

30

40

【表 15】

表12

ポリマー 例番号	%沈着 した 判M酸 (Aシリーズ)	%判M酸 の沈着 の向上 (Aシリーズ)	良好な 感触に 対する 官能評価 (Bシリーズ)	良好な 滑り性に 対する 官能評価 (Bシリーズ)	%沈着 したSi (Cシリーズ)	%沈着 の向上 (Cシリーズ)	%沈着 したSi (Dシリーズ)	%沈着 の向上 (Dシリーズ)	%沈着 したSi (Eシリーズ)	%沈着 の向上 (Eシリーズ)	Aシリーズ の粘度 (Pa・s)	Bシリーズ の粘度 (Pa・s)	Cシリーズ の粘度 (Pa・s)	Eシリーズ の粘度 (Pa・s)	Fシリーズ の粘度 (Pa・s)	脱イオン水 中の3wt% の判M酸 の外観	脱イオン水 中の3wt% の判M酸 の粘度 (cP)
14	28	1300	2.1	2.4	86	75	58	130	69	64	3.5	11.8	65.5	7.3	5.0		
15	41	1900	2.1	2.5	90	83	66	160	88	110	0.35	10.8	75.1	7.6	12.4		
16	17	740	3.0	3.1	84	71	66	160	86	100	4.7	25.9	33.2	40.2	15.0		
17	25	1100	3.0	4.0			53	110			0.20	27.9					
18	47	2300	3.3	3.3	88	79	59	140	87	110	3.5	10.4	87.2	8.6	23.9		
19	21	950	3.5	3.3	90	84	57	130	89	110	30.1	12.0	39.6	13.9	38.2	透明	≤40
20	22	1000	3.4	3.4	89	81	61	140	87	110	2.9	23.1	36.9	7.0	35.0		
21	33	1500	3.4	3.4	86	75	70	180	88	110	1.2	15.6	43.9	12.6	12.4		
22	28	1300	4.3	4.1	98	100	61	140			1.1	32.6	15.8	11.0	9.2	透明	≤40
23	19	870	3.9	3.4	86	75	81	220	74	76	1.1	25.8	26.4	12.4	3.0		
24	17	740	3.5	3.4	89	82	70	180	79	89	5.0	65.7	31.7	9.7	9.5	透明	≤40
25	26	1200	3.9	3.8	86	75	45	80	52	24	1.3	22.0	31.0	10.7	3.1		
26	17	750	3.5	3.5	84	71	75	200	80	91	4.6	146.3	29.5	2.5	23.9		
27	23	1000	3.9	4.0	87	77	75	200	81	92	0.75	98.8	17.3	6.0	4.9		
28	31	1500	4.1	4.3	75	52	76	200	73	75	3.8	44.1	23.9	9.1	3.2		

【0500】

10

20

30

40

【表 16】

表 12

ポリマー 例番号	%沈着 した ポリマー (Aシリーズ)	%沈着 の沈着 の向上 (Aシリーズ)	良好な 感触に 対する 官能評価 (Bシリーズ)	良好な 滑り性に 対する 官能評価 (Bシリーズ)	%沈着 したSi (Cシリーズ)	%沈着 の向上 (Cシリーズ)	%沈着 したSi (Dシリーズ)	%沈着 の向上 (Dシリーズ)	%沈着 したSi (Eシリーズ)	%沈着 の向上 (Eシリーズ)	Aシリーズ の粘度 (Pa・s)	Bシリーズ の粘度 (Pa・s)	Cシリーズ の粘度 (Pa・s)	Eシリーズ の粘度 (Pa・s)	Fシリーズ の粘度 (Pa・s)	脱イオン水 中の3wt% のポリマー の外観	脱イオン水 中の3wt% のポリマー の粘度 (cP)
29	42	2000	4.4	3.1	82	66	58	130	90	120	1.8	24.3	31.2	14.6	2.0		
30	27	1200	4.3	4.1	78	60	75	200	76	80	1.0	23.6	11.1	21.4	15.5		
31	37	1800	3.0	3.5	84	71	61	140	88	110	0.91	111.3	8.0	33.4	9.4		
32	19	830	4.4	3.9	82	67	64	160	80	91	0.54	25.9	32.0	40.2	44.3	透明	≤40
33	25	1200	4.0	4.3	80	64	59	140	77	83	1.3	20.9	21.0	9.7	2.8		
34	16	710	3.6	4.1	82	66	65	160	87	110	4.9	30.3	6.0	13.6	7.9		
35	31	1400	3.3	3.9	83	69	63	150	81	92	1.4	100.1	29.2	11.4	13.0	透明	≤40
36	35	1600	3.3	3.6	83	69	63	150	85	100	2.6	17.3	19.6	16.2	2.1		
37	32	1500	4.0	3.5	74	52	59	140	81	94	0.78	19.7	12.2	8.5	3.5		
38	24	1100	3.4	3.6	81	66	66	160	82	95	0.79	19.4	19.6	16.5	1.8		
39	33	1600	3.6	3.9	82	67	67	170	81	92	1.9	24.0	6.3	10.4	10.9		
40	35	1600	3.9	3.8	87	78	76	210	80	89	7.0	26.1	10.1	21.2	8.5		
41	31	1500	3.8	4.0	84	72	70	180	80	91	0.34	18.7	6.5	10.7	9.8		
42	21	930	4.1	4.3	72	47	68	170	68	61	0.87	37.1	62.6	17.9	2.4		
43	36	1700	3.9	4.3	81	65	64	160	89	110	0.36	27.3	33.3	9.4	5.8		

【0501】

10

20

30

40

【表 17】

表12

ポリマー 例番号	%沈着 した ポリマー (Aシリーズ)	%沈着 の向上 (Aシリーズ)	良好な 感触に 対する 官能評価 (Bシリーズ)	良好な 滑り性に 対する 官能評価 (Bシリーズ)	%沈着 したSi (Cシリーズ)	%沈着 の向上 (Cシリーズ)	%沈着 したSi (Dシリーズ)	%沈着 の向上 (Dシリーズ)	%沈着 したSi (Eシリーズ)	%沈着 の向上 (Eシリーズ)	Aシリーズ の粘度 (Pa・s)	Bシリーズ の粘度 (Pa・s)	Cシリーズ の粘度 (Pa・s)	Eシリーズ の粘度 (Pa・s)	Fシリーズ の粘度 (Pa・s)	脱イオン水 中の3wt% のポリマー の外観	脱イオン水 中の3wt% のポリマー の粘度 (cP)
44	37	1700	3.8	3.6	83	70	67	170	95	130	2.1	115.7	21.9	5.2	4.0		
45	28	1300	3.0	3.3	81	64	59	140	83	98	4.7	137.0	33.2	12.2	15.0		
46	29	1400	3.4	3.4	81	66	67	170	78	87	3.8	103.7	20.3	9.0	6.0		
47	40	1900	3.4	3.8	84	71	66	160	76	80	1.6	112.7	23.0	24.0	10.5		
48	30	1400	4.1	4.3	83	69	79	220	80	89	0.63	17.8	28.7	18.0	6.0		
49	22	1000	4.1	4.4	86	75	78	210	82	95	1.0	23.7	14.6	17.7	6.9	白	≤40
50	28	1300	4.1	3.4	89	81	75	200	79	89	0.62	42.4	28.4	15.4	4.1		
51	35	1600	3.9	3.8	84	71	65	160	80	91	1.9	75.6	42.3	6.3	22.8		
52	44	2100	3.9	4.1	78	59	62	150	77	82	1.0	27.9	12.5	14.5	9.3		
53	28	1300	3.9	3.9	89	81	59	140	83	98	1.9	41.2	42.3	9.9	22.8		
54	27	1300	3.9	3.8	83	70	63	150	92	120	1.0	96.3	15.2	6.9	13.1		
55	43	2100	3.0	2.0			65	160	82	96	1.9	19.1					
56	36	1700	3.0	4.0			47	88	76	81	0.67	12.3					
57	28	1300	3.4	3.6	84	72	63	150	87	110	1.7	30.5	26.7	7.4	34.1		

【0502】

10

20

30

40

【表 18】

表12

ポリマー 例番号	%沈着 した ポリマー (Aシリーズ)	%ポリマー の沈着 の向上 (Aシリーズ)	良好な 感触に 対する 官能評価 (Bシリーズ)	良好な 滑り性に 対する 官能評価 (Bシリーズ)	%沈着 したSi (Cシリーズ)	%沈着 の向上 (Cシリーズ)	%沈着 したSi (Dシリーズ)	%沈着 の向上 (Dシリーズ)	%沈着 したSi (Eシリーズ)	%沈着 の向上 (Eシリーズ)	Aシリーズ の粘度 (Pa・s)	Bシリーズ の粘度 (Pa・s)	Cシリーズ の粘度 (Pa・s)	Eシリーズ の粘度 (Pa・s)	Fシリーズ の粘度 (Pa・s)	脱イオン水 中の3wt% のポリマー の外観	脱イオン水 中の3wt% のポリマー の粘度 (cP)
58	19	860	3.0	3.0			54	120	72	72	4.3	18.0					
59	44	2100	4.0	4.0			64	160	84	99	3.3	12.0					
60	17	760	3.1	3.1	87	78	69	170	84	100	2.0	29.7	7.5	9.4	30.9		
61	43	2100	4.0	4.0			51	100	80	90	4.6	72.0					
62	33	1500	3.5	3.0			42	68	71	69	0.87	39.5					
63	66	3200	3.5	3.5			48	92	85	100	0.51	55.0					
64	30	1400	4.0	3.4	84	70	76	200	78	87	0.43	222.3	15.1	4.9	4.6	濁り	≤40
65	8	320	4.0	3.8	88	80	77	210	77	83	1.1	10.9	22.4	16.4	48.7		
66	15	650	4.0	3.6	90	84	71	190	77	83	1.3	46.1	31.0	21.6	21.3		
67	13	570	4.0	4.0	83	70	76	200	77	84	0.35	23.0	71.8	31.4	5.9		
68	28	1300	3.5	3.9	65	32	73	190	79	89	5.5	164.0	6.1	18.8	3.8		
69	29	1350	4.3	4.0			80	220			11.0	7.6				白	≤40
70	17	750	4.2	4.5			83	230			4.3	29.5				透明	≤40
71			3.9	4.0			83	230	76	81		38.3		10.2		透明	≤40
72	20	900	4.1	4.1			84	240	80	90	7.1	16.1		13.8		透明	≤40
アライク	2	n/a	1.0	1.0	49	n/a	25	n/a	42	n/a	5.9	11.2	28.4	12.2	2.4		

【0503】

10

20

30

40

【表 1 9】

表13

ポリマー 例番号	%沈着した サイアジミド (G-シリ-ス)	%サイアジミドの 沈着の向上 (G-シリ-ス)	%沈着した エリルビン酸 (H-シリ-ス)	%エリルビン酸の 沈着の向上 (H-シリ-ス)	%沈着した ジックビリン酸 (I-シリ-ス)	%ジックビリン酸の 沈着の向上 (I-シリ-ス)	%沈着した ジックビリン酸 (J-シリ-ス)	%ジックビリン酸 (J-シリ-ス)
71	36	3500	64	68				
72	66	6500	73	92	96	14	90	14
ブランク	1	n/a	38	n/a	84	n/a	79	n/a

【0504】

パーソナルケア配合物の実験結果の簡単な考察

表12にまとめた結果は、有効成分を含有する4つの配合物のそれぞれにおける各ポリマーサンプルに関して、有効成分（サリチル酸及びシリコーン）の沈着性についての顕著な向上を示している。同様に、感覚及び滑性に関する官能評価は、この官能試験で低く評価された「ブランク」配合物に比べて、各ケースで優れていた。また、表13にまとめ

10

20

30

40

50

た結果は、カチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーを含有する配合物に関して、有効成分（ナイアシンアミド、エリソルビン酸、及びジンクピリチオン）の沈着性に顕著な向上を示した。

【0505】

ブランクの配合物と比べて、各ケースで配合物の増粘性向上を達成した。これらの配合物が、有効成分の沈着性及び優れた感触の効果の顕著な強化を示すので、増粘が観測されないケースでは、増粘剤をそれらのケースで添加剤として用いることができる。増粘を達成するために添加剤を用いることができるが、沈着性及び感触特性は、添加剤を包含させても容易には達成することができない。これは、そのような結果を達成することができる典型的な実施態様によるカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーの有効性を示す。

10

【0506】

実際に、このコポリマーが全体の配合物を増粘させる状況に関して、DI水中でこのコポリマーサンプル単独（3wt%固形分のコポリマー）の粘度を測定した各ケースにおいて、粘度は、粘度計の最も低い測定性能（40cP）未満であった。これは、水を増粘させてないことを示す。理論又は説明に拘束されることを望まないが、これは、典型的な実施態様によるカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーは水中で崩壊するが、パーソナルケア製品中では他の有機物の構成成分の存在による相互作用の結果として崩壊しないからであると考えられる。

【0507】

コポリマーが用いられてもよい他の製品についての考察

20

パーソナルケア製品での使用に関連して主に述べてきたが、典型的な実施態様によるカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマー組成物を、他の商用用途のための成分として用いることができると理解されるであろう。

【0508】

典型的な用途としては、例示のみであるが、家庭用の、産業用の、及び／又は研究用で用いられる洗浄製品、例えばキッチン及びバスルームを洗浄するための（例えば、調理台及びタイル表面を洗浄するための）表面洗浄剤、便器の縁用の洗浄剤、フロア洗浄剤、壁用洗浄剤、車用の洗浄剤、空気清浄剤、食器洗い機用洗剤、繊維柔軟剤、シミ消し剤等が挙げられる。このようなコポリマーを成分として用いる他の用途も挙げられる。例えば、例示のみであるが、金属洗浄剤、スケール除去剤、ペイント剥離剤、ワニス剥離剤、及び家具、靴、車又は金属のポリッシャーである。

30

【0509】

本明細書に開示したカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーは、様々な産業的プロセス及び方法でも適切となる。典型的な用途としては、生地染色／コーティングのための処理剤及び仕上げ剤としてのこのようなポリマーの使用；印刷用配合インク及び仕上げ用配合インクでのこのようなポリマーの使用；化学プロセス用の安定剤としてのこのようなポリマーの使用（例えば、水性溶液又はエマルジョン中で重合を行う場合、例えば写真用のエマルジョンの調製）；排水処理時の凝集剤としてのこのようなポリマーの使用；製紙用助剤、例えばインクジェットプリンタで用いられる紙の製紙用助剤としてのこのようなポリマーの使用；及び保湿剤又はゲル形成剤としてのこのようなポリマーが挙げられる。

40

【0510】

パーソナルケア製品と同様に、本明細書に開示したカチオン性／カチオン生成性櫛形コポリマーを含むこれらの他の種類の製品は、特定の組成物の意図した機能に望ましい場合には、あらゆる形態となることができ、限定しないが、液体、ゲル、噴霧体、エマルジョン、半固体（例えばペースト）、及び固体（例えば、スティック、タブレット又は棒状の形態）となることができる。

【0511】

本発明を特定の態様に言及して記載しているが、当業者に明らかな他の態様及び実施態様も特許請求の範囲に含まれる。

50

本発明の実施態様としては、以下を挙げられる：

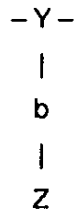
〈1〉

以下の繰返し単位を有する、楕形コポリマー：

A) オレフィン系不飽和カチオン性モノマー又はカチオン生成性モノマーから導かれる1種以上の繰返し単位；及び

B) 以下の式を有する、1種以上の繰返し単位：

【化1】



10

(式中、Yは、前記コポリマーの骨格の一部を形成する部位であり；Zは、他のZ部位と会合を示す部位、又は前記コポリマーが用いられる配合物中の他の部位と会合を示す部位であり；かつbは、前記Z部位を前記Y部位につなぐ部位又は結合である)。

〈2〉

20

以下のグループの少なくとも1つより選択されるモノマーから導かれる、1種以上の繰返し単位をさらに有する、〈1〉に記載の楕形コポリマー：

C) アクリルアミドモノマー；

D) A、B、又はCではない、1種以上のオレフィン系不飽和親水性モノマー；又は

E) A、B、C、又はDではない、1種以上のオレフィン系不飽和モノマー。

〈3〉

グループC、D、又はEの少なくとも2つより選択されるモノマーから導かれる繰返し単位を1つ以上有する、〈2〉に記載の楕形コポリマー。

〈4〉

グループC、D、及びEのそれぞれより選択されるモノマーから導かれる繰返し単位を1種以上有する、〈3〉に記載の楕形コポリマー。

30

〈5〉

前記コポリマー中のイオン性モノマー及びイオン生成性モノマーの重量パーセントが、約2～約45%である、〈2〉に記載の楕形コポリマー。

〈6〉

前記コポリマー中のイオン性モノマーの重量パーセントが、約2～約45%である、〈2〉に記載の楕形コポリマー。

〈7〉

会合性部位Zの重量パーセントが、約2～約50%である、〈2〉に記載の楕形コポリマー。

40

〈8〉

会合性部位Zの、イオン性モノマー及びイオン生成性モノマーに対する重量比が、約0.1～約5.5である、〈2〉に記載の楕形コポリマー。

〈9〉

会合性部位Zの、イオン性モノマーに対する重量比が、約0.15～約6.5である、〈2〉に記載の楕形コポリマー。

〈10〉

非結晶性である、〈2〉に記載の楕形コポリマー。

〈11〉

約100℃未満の温度に発熱ピークがある、〈2〉に記載の楕形コポリマー。

50

〈12〉

25℃での希釈水中の3wt%（固形分）溶液の粘度が、約250cP未満である、〈2〉に記載の楕形コポリマー。

〈13〉

架橋していない、〈2〉に記載の楕形コポリマー。

〈14〉

前記グループEのモノマーが、モノオレフィン系不飽和モノマーである、〈2〉に記載の楕形コポリマー。

〈15〉

以下を含有するパーソナルケア製品：

化粧品基礎媒体；及び

約0.1wt%～約20wt%の〈1〉～〈14〉のいずれか一項に記載の楕形コポリマー。

〈16〉

さらに有効成分を含有するパーソナルケア製品であって、前記楕形コポリマーを含有していない同じ配合のパーソナルケア製品に対して、前記楕形コポリマーが前記有効成分のケラチン質構造への沈着を少なくとも10%向上させている、〈15〉に記載のパーソナルケア製品。

〈17〉

化粧品基礎媒体、及び以下の繰返し単位を有する少なくとも1種の楕形コポリマーを含有する、パーソナルケア組成物：

A) オレフィン系不飽和カチオン性モノマー又はカチオン生成性モノマーから導かれる1種以上の繰返し単位；及び

B) 以下の式を有する、1種以上の繰返し単位：

【化2】

-Y-

|

b

|

Z

（式中、Yは前記コポリマーの骨格の一部を形成する部位であり、Zは他のZ部位と会合を示す部位、又は前記コポリマーが用いられる配合物中の他の部位と会合を示す部位であり、かつbは前記Z部位を前記Y部位につなぐ部位又は結合であり；前記コポリマー中の前記イオン性モノマーの重量パーセントは約2～約45%であり、会合性部位Zの重量パーセントは約2～約50%であり、かつ会合性部位Zのイオン性モノマー及びイオン生成性モノマーに対する重量比は約0.1～約5.5である）。

〈18〉

前記楕形コポリマーの量が、前記化粧品媒体の以下の特性の少なくとも1つを変性するのに十分な量である、〈17〉に記載のパーソナルケア組成物：有効成分の沈着及び保持、シリコンオイルの沈着及び保持、感触性、並びに粘度。

〈19〉

前記楕形コポリマーが架橋していない、〈17〉に記載のパーソナルケア組成物。

〈20〉

前記楕形コポリマーが約25℃未満のT_mを有する、〈17〉に記載のパーソナルケア組成物。

〈21〉

前記ポリマーが、25℃の温度で測定した場合に約250 c P未満の水中の粘度を示す、〈17〉に記載のパーソナルケア組成物。

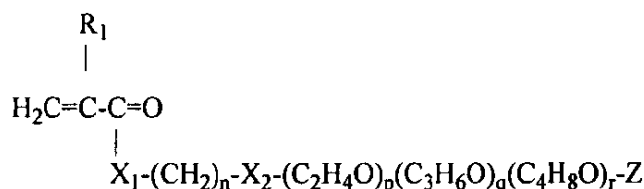
〈22〉

前記櫛形ポリマーが約50 wt %未満の水溶解度を有する、〈19〉に記載のパーソナルケア組成物。

〈23〉

前記櫛形コポリマーが、約12～約22 wt %のグループAのモノマーで構成され、約25～約75 wt %の以下の構造を有するモノマーで構成される、〈17〉に記載のパーソナルケア組成物：

【化3】

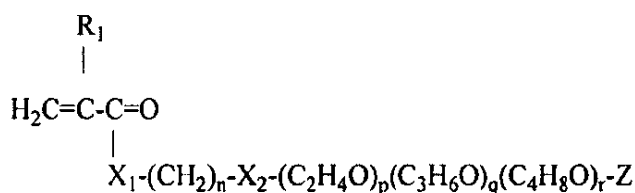


(式中、 $X_1=O$ であり、 $n=q=r=0$ であり、 p は3～30であり、 Z は10～18の範囲の炭素原子を有するアルキル基であり、約7～約30 wt %の会合性部位 Z を有し、架橋されておらず、かつ25℃で測定した場合に3重量% (固形分) での水溶液中の溶液粘度が約100 c P未満を示す)。

〈24〉

前記櫛形コポリマーが、約12～約22 wt %のグループAのモノマーで構成され、約25～約75 wt %の以下の構造を有するモノマーで構成される、〈17〉に記載のパーソナルケア組成物。

【化4】



(式中、 $X_1=O$ であり、 $n=q=r=0$ であり、 p は3～30であり、 Z は10～18の範囲の炭素原子を有するアルキル基であり、グループCのアクリルアミドモノマーから構成され、約7～約30 wt %の会合性部位 Z を有し、架橋されておらず、かつ25℃で測定した場合に3重量% (固形分) での水溶液中の溶液粘度が約100 c P未満を示す)。

〈25〉

前記櫛形コポリマーが、約12～約22 wt %のグループAのモノマーで構成され、約25～約75 wt %の以下の構造を有するモノマーで構成される、〈17〉に記載のパーソナルケア組成物。

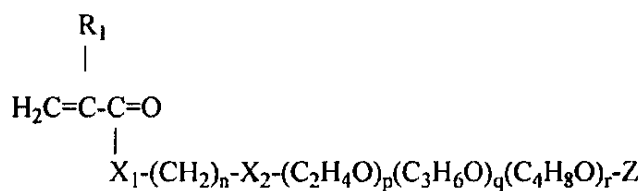
10

20

30

40

【化 5】



(式中、 $X_1 = O$ であり、 $n = q = r = 0$ であり、 p は3～30であり、 Z は10～18
 の範囲の炭素原子を有するアルキル基であり、ヒドロキシアルキル（メタ）アクリレート
 モノマーから構成され、約7～約30wt%の会合性部位 Z を有し、架橋されておらず、
 かつ25℃で測定した場合に3重量%（固形分）での水中の溶液粘度が約100cP未満
 を示す）。

10

フロントページの続き

(73)特許権者 398040734

ランデック コーポレイション

アメリカ合衆国 カリフォルニア 94025-1010, メンロ パーク, ヘブン アベニュー
3603

(74)代理人 100099759

弁理士 青木 篤

(74)代理人 100077517

弁理士 石田 敬

(74)代理人 100087413

弁理士 古賀 哲次

(74)代理人 100128495

弁理士 出野 知

(74)代理人 100123593

弁理士 関根 宣夫

(74)代理人 100170874

弁理士 塩川 和哉

(72)発明者 ムッサラート ヌーア

アメリカ合衆国, ニュージャージー 12534, ピッツタウン, ウィッコフ ドライブ 70

(72)発明者 リチャード ジョセフ ゴダード

アメリカ合衆国, ペンシルベニア 18051, フォーゲルズビル, アップル ロード 2152

(72)発明者 ジュリアン エバレット シェーフアー

アメリカ合衆国, カリフォルニア 94037, モンタラ, ポスト オフィス ボックス 371
201

(72)発明者 スティーブン ポール ビトラ

アメリカ合衆国, カリフォルニア 94025, メンロ パーク, ユニバーシティ ドライブ 4
44

審査官 上前 明梨

(56)参考文献 特開2005-281375 (JP, A)

特開2003-301085 (JP, A)

特開昭50-060593 (JP, A)

特表2010-503744 (JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C08F 6/00-246/00

C08F 301/00