

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2022年1月20日(20.01.2022)



(10) 国際公開番号

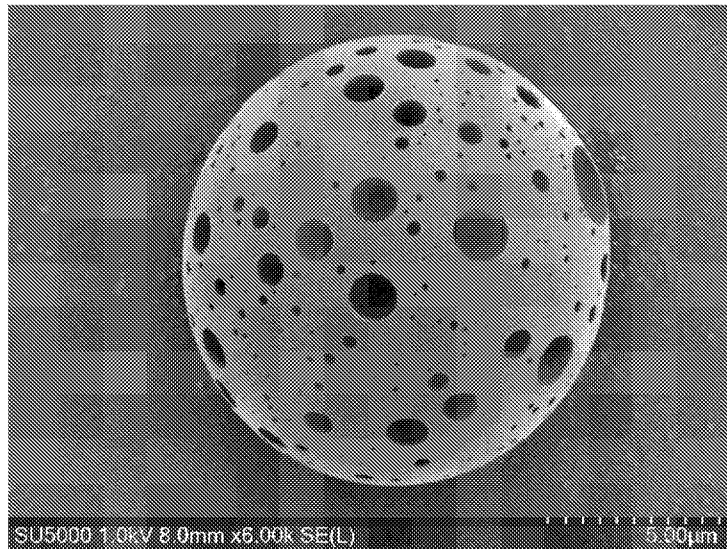
WO 2022/014463 A1

- (51) 国際特許分類:
A61Q 1/02 (2006.01) A61Q 19/00 (2006.01)
A61Q 1/04 (2006.01) A61K 8/37 (2006.01)
A61Q 1/10 (2006.01) A61K 8/73 (2006.01)
A61Q 17/04 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2021/025809
- (22) 国際出願日: 2021年7月8日(08.07.2021)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2020-120253 2020年7月13日(13.07.2020) JP
- (71) 出願人: 株式会社ダイセル (DAICEL CORPORATION) [JP/JP]; 〒5300011 大阪府大阪市北区大深町3番1号 Osaka (JP).
- (72) 発明者: 小林 慧子 (KOBAYASHI, Keiko); 〒1088230 東京都港区港南2丁目18番1号 株式会社ダイセル内 Tokyo (JP). 大村 雅也 (OMURA, Masaya); 〒1088230 東京都港区港南2丁目18番1号 株式会社ダイセル内 Tokyo (JP). 久住 拓也 (HISAZUMI, Takuya); 〒1088230 東京都港区港南2丁目18番1号 株式会社ダイセル内 Tokyo (JP). 早水 秀隆 (HAYAMIZU, Hidetaka); 〒1088230 東京都港区港南2丁目18番1号 株式会社ダイセル内 Tokyo (JP). 飯尾 淳平 (IIO, Junpei); 〒1088230 東京都港区港南2丁目18番1号 株式会社ダイセル内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 特許業務法人 有古特許事務所 (ARCO PATENT & TRADEMARK ATTORNEYS); 〒6510088 兵庫県神戸市中央

(54) Title: CELLULOSE ACETATE PARTICLES, COSMETIC COMPOSITION, AND METHOD FOR PRODUCING CELLULOSE ACETATE PARTICLES

(54) 発明の名称: セルロースアセテート粒子、化粧品組成物及びセルロースアセテート粒子の製造方法

[図3]



(57) Abstract: These cellulose acetate particles have an average particle diameter of 80 nm to 100 µm, a sphericity of 0.7-1.0, and a relative specific surface area of 3.0-20, wherein the total degree of acetyl substitution of the cellulose acetate is 0.7-3.0.

(57) 要約: セルロースアセテート粒子であって、前記セルロースアセテート粒子は、平均粒子径が80nm以上100µm以下、真球度が0.7以上1.0以下、及び相対的比表面積が3.0以上20以下であり、前記セルロースアセテートのアセチル総置換度が0.7以上3.0以下である、セルロースアセテート粒子。

[続葉有]



WO 2022/014463 A1

区小野柄通 7 丁目 1 番 1 号 日本生命三
宮駅前ビル 5 階 Hyogo (JP).

- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保
護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ,
BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH,
CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ,
EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN,
HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, IT, JO, JP, KE, KG, KH,
KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY,
MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ,
NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT,
QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL,
ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG,
US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保
護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS,
MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM,
ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ,
TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ,
DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT,
LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS,
SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM,
GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類：

- 一 国際調査報告 (条約第21条(3))

明 細 書

発明の名称：

セルロースアセテート粒子、化粧品組成物及びセルロースアセテート粒子の製造方法

技術分野

[0001] 本開示は、セルロースアセテート粒子、及びそれを用いた化粧品組成物及びその製造方法に関する。

背景技術

[0002] 従来、用途に応じた様々な高分子の微粒子が提案されてきた。例えば、化粧品に含有される微粒子が挙げられ、化粧品に含有される微粒子としてもその目的は様々である。化粧品に微粒子を含有する目的としては、化粧品ののびを向上する、触感に変化を与える、シワぼかし効果を付与する、及びファンデーション等の滑り性を向上すること等が挙げられる。

[0003] 特に真球度が高い微粒子は、触感に優れる。優れた触感のため、化粧品に配合する微粒子は、粒度分布が狭く、真球度が高い微粒子であることが必要とされ、このような微粒子として、ナイロン12等のポリアミド、ポリメチルメタクリレート（PMMA）、及びポリスチレン（PS）等の合成ポリマーからなる微粒子が提案されている。

[0004] また、従来、ポリアミド粉末が化粧品の基剤として、特にメーキャップ用の化粧品基剤として使用されていた。ポリアミド等の高分子は、光の屈折率が汗と似ているため、顔に付着させることで顔全体が均一に光り輝き肌に艶を与えること等の特徴があるためである。

[0005] 一般に、ペースト状化粧品又は半固形状化粧品の製造過程において、化粧品の各成分を油で混練する際、油分を多く含む方が練り易い。しかし、この油分がその製造過程で用いたままの状態では製品である化粧品に残ると、化粧した顔が脂ぎって見えると共に、化粧した本人もべとつき感を覚え不快である。

- [0006] 特開昭62-215638号公報（特許文献1）には、「ポリアミド粉末の各粒子は、真球に近い形状を有しておりその表面はほとんど凹凸のない滑らかなものである。よって、各粒子自体はほとんど吸着能力を有さず、粉末全体としてもその吸収能力は著しく低い。」と記載され、このような課題に対し、「ポリアミド樹脂を、アルカリ土類金属の無水塩化物を含む低級アルコール溶媒に加熱溶解したのち、除冷する方法」及び「全細孔容積が0.25cc/g以上で、比表面積が4.0m²/g以上で、球状であることを特徴とする多孔性ポリアミド粉末」が開示される。しかし、この粉末の真球度は不十分であり、真球状といえるものではない。
- [0007] また、近年環境問題特に海洋でのマイクロプラスチックの問題から、生分解性がある樹脂を用いようとする動きもある。例えば、特許第6609726号公報（特許文献2）には、真球度が高いセルロースアセテート粒子が開示され、また、その製造方法として、「アセチル総置換度が0.7以上2.9以下のセルロースアセテートと可塑剤とを混合して、前記可塑剤が含浸したセルロースアセテートを得る工程、前記可塑剤が含浸したセルロースアセテートと水溶性高分子とを200℃以上280℃以下で混練して、前記可塑剤が含浸したセルロースアセテートを分散質とする分散体を得る工程、及び前記分散体から前記水溶性高分子を除去する工程を含む、セルロースアセテート粒子の製造方法。」が記載されている。しかしながら、この方法では多孔質のセルロースアセテート粒子は得られず、十分な吸油量がない。
- [0008] また、生分解性のある粒子で多孔質の粒子を得ようとする試みもなされている。例えば、特開2015-214690号公報（特許文献3）には、吸油性に優れ、化粧品や塗料の添加剤等の用途に好適な脂肪族ポリエステル樹脂粒子とその製造方法が記載されている。具体的には、「本発明の脂肪族ポリエステル樹脂粒子の製造法は、（A）脂肪族ポリエステル樹脂と（B）脂肪族ポリエステル樹脂とは異なるポリマーと（C）ケトエステル化合物を含む有機溶媒とを溶解混合し、（A）脂肪族ポリエステル樹脂を主成分とする溶液相と、（B）脂肪族ポリエステル樹脂とは異なるポリマーを主成分とす

る溶液相の2相に相分離する系においてエマルジョンを形成させた後、(A) 脂肪族ポリエステル樹脂の貧溶媒をエマルジョンに接触させることにより、(A) 脂肪族ポリエステル樹脂を析出させることを特徴とするポリマー微粒子の製造方法である。」との記載がある。しかしながら、この製造方法は、いわゆる液滴法(乳化重合)を用いた微粒子の製造方法であり、製造時の固形分濃度が低く、目的の樹脂が粒子状を形成した後に体積収縮が起こり、得られる粒子はその内側に空間を有する比重が低く、真球状とは到底言えない形状になる。そのため、十分な生分解性及び触感を有する粒子は得られない。

[0009] 特開平6-136175号公報(特許文献4)には、「本発明によれば、A) 塩素化炭化水素とアルコールの混合溶媒に二酢酸セルロースを溶解させた二酢酸セルロース溶液、B) アルコールあるいはエステルとアルコールのアルコール系希釈剤およびC) 水性媒質をそれぞれ作成し、上記A) 二酢酸セルロース溶液にB) アルコール系希釈剤を混合し混合溶液とし、この混合溶液をC) 水性媒質中に懸濁させて、液滴を形成し、次いでこの液滴中の塩素化炭化水素を蒸発除去することを特徴とする二酢酸セルロース球状粒子の製造方法が提供される。」との記載がある。しかしながら、このような懸濁粒子化法を用いた製造方法では十分な生分解性及び触感を有する粒子は得られない。

[0010] 特許第4464815号公報(特許文献5)には、「熱可塑性樹脂で構成された樹脂成分(A)と、少なくともオリゴ糖(B1)及び糖アルコールで構成された可塑化成分(B2)を含む水溶性助剤成分(B)とを熔融混練して、連続相が前記助剤成分(B)で構成された海島構造の分散体を形成し、この分散体から前記助剤成分(B)を溶出することにより、前記樹脂成分(A)で構成された粒子を製造する方法。」との記載がある。しかしながら、この製造方法では十分な生分解性及び触感を有する粒子は得られない。

先行技術文献

特許文献

[0011] 特許文献1：特開昭62-215638号公報

特許文献2：特許第6609726号公報

特許文献3：特開2015-214690号公報

特許文献4：特開平6-136175号公報

特許文献5：特許第4464815号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0012] 上記のとおり、従来、生分解性に優れる材料であるセルロースアセテートを用い、優れた触感及び吸油性を有する粒子を製造することはできなかった。本開示は、生分解性、触感及び吸油性に優れた微粒子を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0013] 本開示の第一は、セルロースアセテート粒子であって、前記セルロースアセテート粒子は、平均粒子径が80nm以上100 μ m以下、真球度が0.7以上1.0以下、及び相対的比表面積が3.0以上20以下であり、前記セルロースアセテートのアセチル総置換度が0.7以上3.0以下である、セルロースアセテート粒子に関する。

[0014] 前記セルロースアセテート粒子において、表面平滑度が10%以上95%以下であってよい。

[0015] 前記セルロースアセテート粒子において、嵩比重が0.2以上0.7以下であってよい。

[0016] 前記セルロースアセテート粒子において、亜麻仁油を用いた吸油量が前記セルロースアセテート粒子100gあたり60ml以上であってよい。

[0017] 前記セルロースアセテート粒子において、前記セルロースアセテートのアセチル総置換度が1.6以上2.9未満であってよい。

[0018] 前記セルロースアセテート粒子において、相対的比表面積が10以上20以下であってよい。

[0019] 前記セルロースアセテート粒子が可塑剤を含有し、前記可塑剤の含有量が

、前記セルロースアセテート100重量部に対し、2重量部以上67重量部以下であってよい。

[0020] 前記セルロースアセテート粒子において、前記可塑剤が、クエン酸系可塑剤、グリセリンエステル系可塑剤、及びフタル酸系可塑剤からなる群より選択される少なくとも1種を含んでよい。

[0021] 本開示の第二は、前記セルロースアセテート粒子を含有する、化粧品組成物に関する。

[0022] 本開示の第三は、アセチル総置換度が0.7以上3.0以下のセルロースアセテート、可塑剤、第一の熱可塑性高分子、及び第二の熱可塑性高分子を混合して、前記可塑剤、前記第一の熱可塑性高分子、及び前記第二の熱可塑性高分子を含むセルロースアセテートの混合物を得る工程、前記混合物を200℃以上280℃以下で溶融混練する工程、並びに前記溶融混練した混合物から前記第一の熱可塑性高分子、及び前記第二の熱可塑性高分子を除去する工程からなり、前記セルロースアセテートのSP値をSPa、前記第一の熱可塑性高分子のSP値をSPbとし、前記第二の熱可塑性高分子のSP値をSPcとしたとき、SPa、SPb、SPcが以下の関係式を満たす、セルロースアセテート粒子の製造方法に関する。
$$0.1 \leq |SPc - SPa| / |SPb - SPa| \leq 0.9$$

[0023] 前記セルロースアセテート粒子の製造方法において、前記混合は、前記セルロースアセテート、前記可塑剤、前記第一の熱可塑性高分子、及び前記第二の熱可塑性高分子を、20℃以上200℃未満で混合した後、溶融混練するものであってよい。

[0024] 前記セルロースアセテート粒子の製造方法において、前記第一の熱可塑性高分子が、水溶性高分子であってよい。

[0025] 前記セルロースアセテート粒子の製造方法において、前記第二の熱可塑性高分子が、水溶性高分子であってよい。

[0026] 前記セルロースアセテート粒子の製造方法において、前記可塑剤が、クエン酸系可塑剤、グリセリンエステル系可塑剤、アジピン酸系可塑剤、及びフ

タル酸系可塑剤からなる群より選択される少なくとも1種を含んでよい。

[0027] 前記セルロースアセテート粒子の製造方法において、可塑剤が、クエン酸トリエチル、クエン酸アセチルトリエチル、クエン酸アセチルトリブチル、トリアセチン、ジアセチン、アジピン酸ジイソノニル、及びフタル酸ジエチルからなる群より選択される少なくとも1種を含んでよい。

[0028] 前記セルロースアセテート粒子の製造方法において、前記可塑剤が、クエン酸アセチルトリエチル、トリアセチン、ジアセチン、及びフタル酸ジエチルからなる群より選択される少なくとも1種を含んでよい。

[0029] 前記セルロースアセテート粒子の製造方法において、前記可塑剤が、クエン酸アセチルトリエチル及びトリアセチンからなる群より選択される少なくとも1種を含んでよい。

[0030] 前記セルロースアセテート粒子の製造方法において、前記第一の熱可塑性高分子が、ポリビニルアルコール及び熱可塑性デンプンからなる群より選択される少なくとも1種を含んでよい。

[0031] 前記セルロースアセテート粒子の製造方法において、前記第二の熱可塑性高分子が、ポリエチレングリコールであってよい。

発明の効果

[0032] 本開示によれば、生分解性、触感及び吸油性に優れた微粒子を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0033] [図1]図1は、実施例A-1のセルロースアセテート粒子の走査型電子顕微鏡(SEM)画像(倍率:3000倍)である。

[図2]図2は、実施例A-1のセルロースアセテート粒子のSEM画像(倍率:5000倍)である。

[図3]図3は、実施例A-1のセルロースアセテート粒子のSEM画像(倍率:6000倍)であり、表面平滑度(%)の評価方法を説明する図面である。

[図4]図4は、図3を二値化した画像であり、表面平滑度(%)の評価方法を

説明する図面である。

[図5]図5は、実施例A-12のセルロースアセテート粒子のSEM画像（倍率：3000倍）である。

[図6]図6は、実施例A-12のセルロースアセテート粒子のSEM画像（倍率：5000倍）である。

[図7]図7は、比較例A-1のセルロースアセテート粒子のSEM画像（倍率：3000倍）である。

[図8]図8は、比較例A-1のセルロースアセテート粒子のSEM画像（倍率：5000倍）である。

発明を実施するための最良の形態

[0034] [セルロースアセテート粒子]

本開示のセルロースアセテート粒子は、セルロースアセテート粒子であって、前記セルロースアセテート粒子は、平均粒子径が80nm以上100 μ m以下、真球度が0.7以上1.0以下、及び相対的比表面積が3.0以上20以下であり、前記セルロースアセテートのアセチル総置換度が0.7以上3.0以下である。

[0035] 本開示のセルロースアセテート粒子の平均粒子径は、80nm以上100 μ m以下であるところ、その平均粒子径は、100nm以上であってよく、1 μ m以上であってよく、2 μ m以上であってよく、4 μ m以上であってよい。また、80 μ m以下であってよく、40 μ m以下であってよく、20 μ m以下であってよく、14 μ m以下であってよい。平均粒子径が大きすぎると、その触感に劣る。また、平均粒子径が小さすぎると、製造が困難となる。なお、触感としては、セルロースアセテート粒子に直接接触する場合の他、例えば、化粧品組成物に配合した場合の肌触りや触感が挙げられる。

[0036] 平均粒子径は、動的光散乱法を用いて測定することができる。なお、ここでいう平均粒子径（nm及び μ m等）とは、この粒度分布における散乱強度の積算50%に対応する粒子径の値のことをいう。

[0037] 本開示のセルロースアセテート粒子の粒子径変動係数は、0%以上60%

以下であってよく、2%以上50%以下であってよい。

- [0038] 粒子径変動係数 (%) は、粒子径の標準偏差 / 平均粒子径 × 100 によって算出できる。
- [0039] 本開示のセルロースアセテート粒子の真球度は、0.7 以上 1.0 以下であるところ、0.8 以上 1.0 以下が好ましく、0.9 以上 1.0 以下がより好ましい。0.7 未満であると、その触感に劣り、例えば、化粧品組成物に配合した場合にも、肌触りが低下する。
- [0040] 真球度は、次の方法により測定できる。走査型電子顕微鏡 (SEM) で観察した粒子の画像を用いて得られる各粒子の短径 / 長径比の平均値を真球度とする。なお、真球度が 1 に近いほど真球であると判断できる。
- [0041] 本開示のセルロースアセテート粒子の相対的比表面積 (relative specific surface area、以下、RSSA と称する場合がある) は、3.0 以上 20 以下である。前記相対的比表面積は 5.0 以上が好ましく、7.0 以上がより好ましく、8.5 以上がさらに好ましく、9.0 以上がよりさらに好ましく、10 以上が特に好ましい。また、前記相対的比表面積は 18 以下であってよい。3.0 未満であると、表面が平滑な真球微粒子となり、孔部分が少なすぎるか無い粒子になり、加えられた外力に対して変形しにくく、触感 (特に柔らかさ) に劣る。20 を超えると、粒子は、高い真球度を保つことが困難になり、触感に劣る。
- [0042] 相対的比表面積 (RSSA) は、以下の関係式にて規定される。RSSA = 比表面積測定値 / 理論比表面積
- [0043] 理論比表面積は、粒子が真球で表面が平滑な微粒子であると仮定した場合に、粒子径分布の測定結果から算出される比表面積であり、以下のとおり規定される。
- 理論比表面積 = $(1/d) \sum (P_i * S_i / V_i)$
- d : 真比重 (1350 (kg/m³) で一定)
- P_i : 分布 (体積分率)
- S_i ; セルロースアセテート粒子 1 個の表面積 (m²)、つまり、直径 L_i (

m) の真球のセルロースアセテート粒子の表面積 $(4/3) * \pi * (L_c / 2)^2$

V_c : セルロースアセテート粒子1個の体積 (m^3)、つまり、直径 L_c (m) の真球のセルロースアセテート粒子の体積 $4 \pi * (L_c / 2)^2$

- [0044] 比表面積測定値は、窒素法 B E T 比表面積測定法によって求められる。
- [0045] 本開示のセルロースアセテート粒子の表面平滑度は、10%以上95%以下が好ましく、50%以上92%以下がより好ましく、75%以上90%以下がさらに好ましい。表面平滑度が小さすぎるということは、粒子中の凹に当たる部分（孔部分）の割合が多すぎることであり、面平滑度が小さすぎると、真球状の形を成すことが困難になり、真球度が0.7以上を満たさない場合がある。真球度が0.7未満であると、本開示の効果が発揮できない。特に、触感が極端に悪くなる。一方、表面平滑度が大きすぎるということは、粒子中の孔部分の割合が少なすぎるか無い粒子になり、加えられた外力に対して変形しにくく、触感（特に柔らかさ）に劣り、十分な吸油量が得られない場合がある。
- [0046] 表面平滑度は、粒子の走査型電子顕微鏡写真を撮り、粒子表面の凹凸を観察し、凹部の面積に基づいて求めることができる。
- [0047] 本開示のセルロースアセテート粒子のセルロースアセテートは、アセチル総置換度が、0.7以上3.0以下であるところ、0.7以上2.9未満が好ましく、1.0以上2.9未満がより好ましく、1.4以上2.9未満がさらに好ましく、1.8以上2.9未満が特に好ましく、1.6以上2.9未満が最も好ましい。
- [0048] アセチル総置換度が0.7未満であると水溶性が高くなり、後述するセルロースアセテート粒子の製造における混合物から第一の熱可塑性高分子、及び第二の熱可塑性高分子を除去する工程において、セルロースアセテートが溶出しやすく、得られる粒子の真球度が低下する場合があり、そのため触感に劣る場合がある。
- [0049] セルロースアセテートのアセチル総置換度は、以下の方法により測定でき

る。まず、アセチル総置換度とは、セルロースアセテートのグルコース環の2, 3, 6位の各アセチル置換度の和であり、セルロースアセテート粒子のグルコース環の2, 3, 6位の各アセチル置換度は、手塚 (Tezuka, Carbohydr. Res. 273, 83 (1995)) の方法に従いNMR法で測定できる。すなわち、セルロースアセテート試料の遊離水酸基をピリジン中で無水プロピオン酸によりプロピオニル化する。得られた試料を重クロロホルムに溶解し、 ^{13}C -NMRスペクトルを測定する。アセチル基の炭素シグナルは169 ppmから171 ppmの領域に高磁場から2位、3位、6位の順序で、そして、プロピオニル基のカルボニル炭素のシグナルは、172 ppmから174 ppmの領域に同じ順序で現れる。それぞれ対応する位置でのアセチル基とプロピオニル基の存在比から、元のセルロースアセテートにおけるグルコース環の2, 3, 6位の各アセチル置換度を求めることができる。アセチル置換度は、 ^{13}C -NMRのほか、 ^1H -NMRで分析することもできる。

[0050] さらに、アセチル総置換度は、ASTM: D-817-91 (セルロースアセテートなどの試験方法) における酢化度の測定法に準じて求めた酢化度を次式で換算することにより求められる。これは、最も一般的なセルロースアセテートの置換度の求め方である。

$$DS = 162.14 \times AV \times 0.01 / (60.052 - 42.037 \times AV \times 0.01)$$

上記式において、DSはアセチル総置換度であり、AVは酢化度(%)である。なお、換算して得られる置換度の値は、前記のNMR測定値との間に若干の誤差が生じることが普通である。換算値とNMR測定値とが異なる場合は、NMR測定値を採用する。また、NMR測定の具体的方法によって値が相違する場合は、上記手塚の方法によるNMR測定値を採用する。

[0051] ASTM: D-817-91 (セルロースアセテートなどの試験方法) の酢化度の測定方法の概略は以下の通りである。まず、乾燥したセルロースアセテート1.9gを精秤し、アセトンとジメチルスルホキシドとの混合溶液

(容量比4 : 1) 150 mLに溶解した後、1 N-水酸化ナトリウム水溶液30 mLを添加し、25℃で2時間ケン化する。フェノールフタレインを指示薬として添加し、1 N-硫酸(濃度ファクター:F)で過剰の水酸化ナトリウムを滴定する。また、上記と同様の方法でブランク試験を行い、下記式に従って酢化度を計算する。

$$\text{平均酢化度 (\%)} = \{6.5 \times (B - A) \times F\} / W$$

(式中、Aは試料の1 N-硫酸の滴定量(mL)を、Bはブランク試験の1 N-硫酸の滴定量(mL)を、Fは1 N-硫酸の濃度ファクターを、Wは試料の重量を示す)。

[0052] 本開示のセルロースアセテート粒子は、嵩比重が0.1以上0.9以下であってよく、0.2以上0.9以下であってよく、0.2以上0.7以下であってよい。例えば、その粒子を化粧品に配合した場合、粒子の嵩比重が高い程、その化粧品組成物の流動性が良くなる。嵩比重は、JIS K 1201-1に準拠した方法により測定することができる。

[0053] 本開示のセルロースアセテート粒子の亜麻仁油を用いた吸油量は、セルロースアセテート粒子100gあたり60mL以上が好ましく、70mL以上がより好ましく、80mL以上がさらに好ましい。また、前記吸油量は、200mL以下であってよく、100mL以下が好ましく、90mL以下がより好ましい。前記吸油量が、セルロースアセテート粒子100gあたり60mL以上であると、特にその触感に優れ、例えば、化粧品組成物に配合した場合にも、肌触りがより向上する。前記吸油量が、セルロースアセテート粒子100gあたり200mLを超えると、化粧品組成物を使用したときに必要以上に皮膚の油分を吸い取るため、乾燥を引き起こす場合がある。過度な乾燥を防ぎ、かつ、肌触りが良好な化粧品組成物が得られるとの観点から、前記吸油量は、セルロースアセテート粒子100gあたり、60mL~200mLであってよく、60mL~100mLであってよく、60mL~90mLであってよく、70mL~200mLであってよく、70mL~100mLであってよく、70mL~90mLであってよく、80mL~200m

lであってよく、80ml~100mlであってよく、80ml~90ml
であってよい。

[0054] 亜麻仁油を用いた吸油量は、JIS K5101-13-1:2004 (ISO 787-5:1980) 顔料試験方法-第13部:吸油量-第1節:精製あまに油法により求めることができる。

[0055] 本開示のセルロースアセテート粒子は可塑剤を含有してよく、含有しなくてもよい。本開示において可塑剤とは、セルロースアセテートの可塑性を増加させることができる化合物をいう。可塑剤は、特に限定されるものではなく、例えば、アジピン酸ジメチル、アジピン酸ジブチル、アジピン酸ジイソステアリル、アジピン酸ジイソデシル、アジピン酸ジイソノニル、アジピン酸ジイソブチル、アジピン酸ジイソプロピル、アジピン酸ジエチルヘキシル、アジピン酸ジオクチル、アジピン酸ジオクチルドデシル、アジピン酸ジカプリル、及びアジピン酸ジヘキシルデシル等のアジピン酸エステルを含むアジピン酸系可塑剤；クエン酸アセチルトリエチル、クエン酸アセチルトリブチル、クエン酸イソデシル、クエン酸イソプロピル、クエン酸トリエチル、クエン酸トリエチルヘキシル、及びクエン酸トリブチル等のクエン酸エステルを含むクエン酸系可塑剤；グルタル酸ジイソブチル、グルタル酸ジオクチル、及びグルタル酸ジメチル等のグルタル酸エステルを含むグルタル酸系可塑剤；コハク酸ジイソブチル、コハク酸ジエチル、コハク酸ジエチルヘキシル、及びコハク酸ジオクチル等のコハク酸エステルを含むコハク酸系可塑剤；セバシン酸ジイソアミル、セバシン酸ジイソオクチル、セバシン酸ジイソプロピル、セバシン酸ジエチル、セバシン酸ジエチルヘキシル、及びセバシン酸ジオクチル等のセバシン酸エステルを含むセバシン酸系可塑剤；トリアセチン、ジアセチン、及びモノアセチン等のグリセリンアルキルエステルを含むグリセリンエステル系可塑剤；ネオペンチルグリコール；フタル酸エチル、フタル酸メチル、フタル酸ジアリール、フタル酸ジエチル、フタル酸ジエチルヘキシル、フタル酸ジオクチル、フタル酸ジブチル、及びフタル酸ジメチル等のフタル酸エステルを含むフタル酸系可塑剤；リン酸トリオレイル、

リン酸トリスチアール、及びリン酸トリセチル等のリン酸エステルを含むリン酸系可塑剤が挙げられる。その他、フタル酸ジ-2-メトキシエチル酒石酸ジブチル0-ベンゾイル安息香酸エチル、エチルフタルルエチルグリコレート (EPEG)、メチルフタルルエチルグリコレート (MPEG)、N-エチルトルエンスルホンアミド、p-トルエンスルホン酸0-クレジルリン酸トリエチル (TEP)、リン酸トリフェニル (TPP)、及びトリブプロピオン等も挙げられる。これらの可塑剤は、単独で用いてもよく、2以上の可塑剤を組み合わせて用いてもよい。

[0056] これらの中でも、クエン酸トリエチル、クエン酸アセチルトリエチル、及びクエン酸アセチルトリブチル等のクエン酸エステルを含むクエン酸系可塑剤；トリアセチン、ジアセチン、及びモノアセチン等のグリセリンアルキルエステルを含むグリセリンエステル系可塑剤；並びにフタル酸エチル、フタル酸メチル等のフタル酸系可塑剤からなる群より選択される少なくとも1種を含むことが好ましく、クエン酸トリエチル、クエン酸アセチルトリエチル、クエン酸アセチルトリブチル、トリアセチン、ジアセチン、アジピン酸ジイソノニル、及びフタル酸ジエチルからなる群より選択される少なくとも1種を含むことがより好ましく、クエン酸アセチルトリエチル、トリアセチン、ジアセチン及びフタル酸ジエチルからなる群より選択される少なくとも1種を含むことがさらに好ましく、クエン酸アセチルトリエチル及びトリアセチンからなる群より選択される少なくとも1種を含むことが特に好ましい。ただし、フタル酸系可塑剤は環境ホルモンとの類似性が懸念されるため使用には注意が必要である。

[0057] セルロースアセテート粒子が可塑剤を含有する場合、セルロースアセテート粒子に含まれる可塑剤の含有量は、特に限定されない。例えば、セルロースアセテート100重量部に対し、0重量部を超え67重量部以下であってよく、2重量部以上67重量部以下であってよく、11重量部以上43重量部以下であってよく、18重量部以上25重量部以下であってよい。

[0058] セルロースアセテート粒子における可塑剤の含有率は、¹H-NMR測定に

よって求められる。

- [0059] 本開示のセルロースアセテート粒子は生分解性に優れるものである。生分解速度が30日以内に40重量%以上が好ましく、50重量%以上がより好ましく、60重量%以上がさらに好ましい。
- [0060] 生分解速度は、JIS K6950に準じた活性汚泥を使用する方法により測定することができる。
- [0061] 本開示のセルロースアセテート粒子は、後述の製造方法により製造することができる。
- [0062] 本開示のセルロースアセテート粒子は、生分解性、触感及び吸油性に優れることから、例えば、化粧品組成物に好適に用いることができる。化粧品組成物に配合した場合、本開示のセルロースアセテート粒子は吸油量が高いことから、皮脂を吸収し化粧崩れを防止することができる、また、本開示のセルロースアセテート粒子は、高い真球度を有すると共に加えられた外力に対し変形しやすく、柔らかさに優れることから、化粧品組成物の触感を向上することができる。さらに、本開示のセルロースアセテート粒子は、多孔を有するので、その孔に機能性薬剤等を担持させることが容易であり、機能性粒子として好適に用いることができる。
- [0063] 化粧品組成物としては、リキッドファンデーション及びパウダーファンデーション等のファンデーション；コンシーラー；日焼け止め；化粧下地；口紅及び口紅用下地；ボディーパウダー、固形白粉、及びフェイスパウダー等のおしろい；固形粉末アイシャドー；皺隠しクリーム；並びにスキンケアローション等の主に化粧を目的とした皮膚及び毛外用剤が含まれ、その剤型は限定されない。剤型としては、水溶液、乳液、懸濁液等の液剤；ゲル及びクリーム等の半固形剤；粉末、顆粒及び固形等の固形剤のいずれあってもよい。また、クリームや乳液等のエマルション剤型；口紅等のオイルゲル剤型；ファンデーション等のパウダー剤型；及びヘアスタイリング剤等のエアゾール剤型等であってもよい。
- [0064] [セルロースアセテート粒子の製造方法]

本開示のセルロースアセテート粒子の製造方法は、以下のとおりである。アセチル総置換度が0.7以上3.0以下のセルロースアセテート、可塑剤、第一の熱可塑性高分子、及び第二の熱可塑性高分子を混合して、前記可塑剤、前記第一の熱可塑性高分子、及び前記第二の熱可塑性高分子を含むセルロースアセテートの混合物を得る工程、前記混合物を200℃以上280℃以下で熔融混練する工程、並びに前記熔融混練した混合物から前記第一の熱可塑性高分子、及び前記第二の熱可塑性高分子を除去する工程からなり、前記セルロースアセテートのSP値をSPa、前記第一の熱可塑性高分子のSP値をSPbとし、前記第二の熱可塑性高分子のSP値をSPcとしたとき、SPa、SPb、SPcが以下の関係式を満たす、セルロースアセテート粒子の製造方法。

$$0.1 \leq |SPc - SPa| / |SPb - SPa| \leq 0.9$$

[0065] (セルロースアセテートの混合物を得る工程)

前記可塑剤、前記第一の熱可塑性高分子、及び前記第二の熱可塑性高分子を含むセルロースアセテートの混合物を得る工程においては、アセチル総置換度が0.7以上3.0以下のセルロースアセテート、可塑剤、第一の熱可塑性高分子、及び第二の熱可塑性高分子を混合する。

[0066] アセチル総置換度が0.7以上3.0以下のセルロースアセテートは、公知のセルロースアセテートの製造方法により製造できる。このような製造方法としては、無水酢酸を酢化剤、酢酸を希釈剤、硫酸を触媒とするいわゆる酢酸法が挙げられる。酢酸法の基本的工程は、(1) α -セルロース含有率の比較的高いパルプ原料(溶解パルプ)を、離解・解砕後、酢酸を散布混合する前処理工程と、(2) 無水酢酸、酢酸及び酢化触媒(例えば硫酸)よりなる混酸で、(1)の前処理パルプを反応させる酢化工程と、(3) セルロースアセテートを加水分解して所望の酢化度のセルロースアセテートとする熟成工程と、(4) 加水分解反応の終了したセルロースアセテートを反応溶液から沈澱分離、精製、安定化、乾燥する後処理工程より成る。

[0067] 上記セルロースアセテートのアセチル総置換度は、0.7以上3.0以下

であるところ、0.7以上2.9未満が好ましく、1.0以上2.9未満がより好ましく、1.4以上2.9未満がさらに好ましく、1.8以上2.9未満が特に好ましく、1.6以上2.9未満が最も好ましい。アセチル総置換度の調整は、熟成工程の条件（時間や温度等の条件）を調整することにより可能となる。

[0068] 可塑剤としては、セルロースアセテートの溶融押出加工において可塑効果を有するものであれば特に限定無く使用することができ、具体的には、セルロースアセテート粒子に含有される可塑剤として例示した上記可塑剤を、単独又は2以上組み合わせて使用することができる。

[0069] 例示した上記可塑剤の中でも、クエン酸トリエチル、クエン酸アセチルトリエチル、及びクエン酸アセチルトリブチル等のクエン酸エステルを含むクエン酸系可塑剤；トリアセチン、ジアセチン、及びモノアセチン等のグリセリンアルキルエステルを含むグリセリンエステル系可塑剤；アジピン酸ジイソノニル等のアジピン酸系可塑剤；並びにフタル酸エチル、フタル酸メチル等のフタル酸系可塑剤からなる群より選択される少なくとも1種を含むことが好ましく、クエン酸トリエチル、クエン酸アセチルトリエチル、クエン酸アセチルトリブチル、トリアセチン、ジアセチン、アジピン酸ジイソノニル、及びフタル酸ジエチルからなる群より選択される少なくとも1種を含むことがより好ましく、クエン酸アセチルトリエチル、トリアセチン、ジアセチン及びフタル酸ジエチルからなる群より選択される少なくとも1種を含むことさらに好ましく、クエン酸アセチルトリエチル及びトリアセチンからなる群より選択される少なくとも1種を含むことが特に好ましい。ただし、フタル酸系可塑剤は環境ホルモンとの類似性が懸念されるため使用には注意が必要である。

[0070] 可塑剤の配合量は、セルロースアセテート100重量部に対し、0重量部を超え67重量部以下であってよく、2重量部以上67重量部以下であってよく、11重量部以上43重量部以下であってよく、18重量部以上25重量部以下であってよい。少なすぎると、得られるセルロースアセテート粒子

の真球度が低下する傾向となり、多すぎると粒子の形状を保つことができず、真球度が低下する傾向となる。

[0071] 第一の熱可塑性高分子及び第二の熱可塑性高分子は、それぞれ以下の関係式を満たすものであれば特に限定無く使用することができる。

[0072] 前記セルロースアセテートのSP値をSP_a、前記第一の熱可塑性高分子のSP値をSP_bとし、前記第二の熱可塑性高分子のSP値をSP_cとするとき、SP_a、SP_b及びSP_cが下記式を満たす。

$$0.1 \leq |SP_c - SP_a| / |SP_b - SP_a| \leq 0.9$$

[0073] 本明細書における熱可塑性高分子とは、広く熱可塑性を有する高分子であれば、特に限定されない。第一の熱可塑性高分子又は第二の熱可塑性高分子はいずれも水溶性を有することが好ましい、言い換えれば、水溶性高分子であることが好ましい。ここで、水溶性とは、25℃において、高分子1gを100gの水に溶解した際に、不溶分が50重量%未満であることをいう。また、「高分子」とは、1種又は2種以上の構成単位が繰り返し結合することにより構成された構造を有する化合物として定義される。本願明細書においては、重量平均分子量1万以上の化合物を「高分子」と称する。

[0074] 第一の熱可塑性高分子又は第二の熱可塑性高分子としては、例えば、ポリビニルアルコール、ポリエチレングリコール、ポリアクリル酸ナトリウム、ポリビニルピロリドン、ポリプロピレンオキシド、ポリグリセリン、ポロエチレンオキシド、ポリ酢酸ビニル、変性デンプン、熱可塑性デンプン、メチルセルロース、エチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、及びヒドロキシプロピルセルロース等が挙げられる。なお、熱可塑性デンプンは、公知の方法で得ることができる。例えば、特公平6-6307号、WO92/04408号などが参照でき、さらに具体的には、例えば、タピオカデンプンに可塑剤としてグリセリンを20%程度混合し、二軸押し出し機で混練したものが利用できる。

[0075] 第一の熱可塑性高分子としては、ポリビニルアルコール、ポリアクリル酸ナトリウム、ポリビニルピロリドン及び熱可塑性デンプンからなる群より選

択される少なくとも1種を含むことが好ましく、ポリビニルアルコール及び熱可塑性デンプンからなる群より選択される少なくとも1種を含むことがさらに好ましい。また、ポリビニルアルコールの重量平均分子量は、500以上50,000以下が好ましい。

[0076] 第二の熱可塑性高分子としては、 $0.1 \leq |SPc - SPa| / |SPb - SPa| \leq 0.9$ を満たすものであればよく、 $0.2 < |SPc - SPa| / |SPb - SPa| < 0.8$ を満たすものが好ましい。この値が、 $|SPc - SPa| / |SPb - SPa| < 0.1$ もしくは、 $|SPc - SPa| / |SPb - SPa| > 0.9$ となる場合には、得られるセルロースアセテート粒子に形成される孔が小さく、孔の数も少なくなり、相対的比表面積(RSSA)が低下し、触感に劣るので、望ましくない。

[0077] 第二の熱可塑性高分子としては、ポリエチレングリコールが好ましい。

[0078] 第一の熱可塑性高分子として、ポリビニルアルコール、熱可塑性デンプン、又は変性デンプンを用いる場合、第二の熱可塑性高分子として、ポリエチレングリコールを用いることが特に好ましい。ポリビニルアルコール、熱可塑性デンプン、変性デンプン及びポリエチレングリコールは、すべて水溶性であり熱可塑性があるためである。また、ポリエチレングリコールの重量平均分子量は、500以上50,000以下が好ましい。

[0079] ここで、重量平均分子量(Mw)とは個々の分子にその分子量を掛けて加重平均をとった値であり、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー(GPC)によって求められる。

[0080] 第一の熱可塑性高分子の配合量は、セルロースアセテート100重量部に対し、110重量部以上15000重量部以下が好ましく、180重量部以上1200重量部以下がより好ましく、200重量部以上800重量部以下がさらに好ましい。110重量部未満であると、真球度に劣り、球状ではない異形のセルロースアセテート粒子が生成する恐れがあり、15000重量部を超えると、得られるセルロースアセテート粒子の粒子径が小さくなりすぎる恐れがある。

- [0081] 第二の熱可塑性高分子の配合量は、セルロースアセテート100重量部に対し、1重量部以上1500重量部以下が好ましく、2重量部以上150重量部以下がより好ましく、3重量部以上100重量部以下がさらに好ましい。1重量部未満であると、得られるセルロースアセテート粒子に十分な孔が形成されず、吸油量が不十分になる恐れがある。
- [0082] セルロースアセテート及び可塑剤の混合、又はセルロースアセテート、可塑剤、第一熱可塑性高分子及び第二の熱可塑性高分子の混合は、ヘンシェルミキサー等の混合機を用いて乾式又は湿式で行うことができる。ヘンシェルミキサー等の混合機を用いる場合、混合機内の温度は、セルロースアセテートが溶融しない温度、例えば、20℃以上200℃未満の範囲としてよい。
- [0083] また、セルロースアセテート及び可塑剤の混合、又はセルロースアセテート、可塑剤、第一熱可塑性高分子及び第二の熱可塑性高分子の混合は、溶融混練によって行ってもよい。そして、溶融混練は、ヘンシェルミキサー等の混合機を用いた混合と組み合わせて行ってもよく、その場合、ヘンシェルミキサー等の混合機を用いて、温度条件20℃以上200℃未満の範囲で混合した後に、溶融混練を行うことが好ましい。可塑剤及びセルロースアセテート、又は可塑剤、第一熱可塑性高分子、第二の熱可塑性高分子及びセルロースアセテートがより均一に、また短時間で馴染むことで、最終的に調製できるセルロースアセテート粒子の真球度が高くなり、触感、触り心地が良くなる。
- [0084] 溶融混練は、押出機で加熱混合することにより行うことが好ましい。押出機の混練温度（シリンダー温度）は、200℃から230℃の範囲であってよい。この範囲の温度でも可塑化して均一な混練物を得ることができる。温度が低すぎると、得られる粒子の真球度が低下するため、触感、触り心地が低下し、温度が高すぎると、混練物の熱による変質や着色が起こることがある。また、溶融物の粘度が低下して、二軸押出機内での樹脂の混練が不足する可能性がある。
- [0085] セルロースアセテートの融点は、置換度にもよるが、およそ230℃から

280℃であり、セルロースアセテートの分解温度に近いので、通常は、この温度範囲では溶融混練は難しいが、可塑剤が含浸したセルロースアセテート（フレーク）は可塑化温度を低くできるためである。混練温度（シリンダー温度）としては、例えば二軸押出機を用いる場合200℃であってもよい。混練物はストランド状に押し出し、ホットカット等でペレット状の形状にすればよい。この場合のダイス温度としては220℃程度であってもよい。

[0086] （セルロースアセテートの混合物を溶融混練する工程）

本工程においては、前記混合物を200℃以上280℃以下で溶融混練する。

[0087] 前記混合物の混練は、二軸押出機等の押出機で行うことができる。また、混練の温度は、シリンダー温度をいう。

[0088] 二軸押出機等の押出機の先端に取り付けたダイスからセルロースアセテートの混合物をひも状に押し出した後、カットしてペレットにしてもよい。このときダイス温度は、220℃以上300℃以下であってもよい。

[0089] （第一の熱可塑性高分子、及び第二の熱可塑性高分子を除去する工程）

前記溶融混練した混合物から第一の熱可塑性高分子、及び第二の熱可塑性高分子を除去する工程について述べる。

[0090] 第一の熱可塑性高分子、及び第二の熱可塑性高分子を除去する方法としては、第一の熱可塑性高分子、及び第二の熱可塑性高分子を、溶解等により前記溶融混練した混合物から除去することができれば、特に限定されるものではないが、例えば、水；メタノール、エタノール、イソプロパノール等のアルコール；又は、それらの混合溶液等の溶媒を用いて前記混合物における第一の熱可塑性高分子、及び第二の熱可塑性高分子を溶解して除去する方法が挙げられる。具体的には、例えば、前記混合物と前記溶媒とを混合し、ろ過してろ物を取り出すこと等によって、前記混合物から第一の熱可塑性高分子、及び第二の熱可塑性高分子を除去する方法が挙げられる。

[0091] 前記混合物から第一の熱可塑性高分子、及び第二の熱可塑性高分子を除去する工程において、可塑剤は、第一の熱可塑性高分子、及び第二の熱可塑性

高分子と共に前記混合物から除去してよく、除去しなくてもよい。したがって、得られるセルロースアセテート粒子は可塑剤を含有してよく、含有しなくてもよい。

[0092] 前記混合物と前記溶媒との混合比率について、前記混合物及び前記溶媒の合計重量に対し、前記混合物が0.01重量%以上20重量%以下であることが好ましく、2重量%以上15重量%以下であることがより好ましく、4重量%以上13重量%以下であることがさらに好ましい。前記混合物が20重量%よりも高い場合には、第一の熱可塑性高分子、及び第二の熱可塑性高分子の溶解が不十分となり洗浄除去できなくなる場合がある、又は、溶媒に溶解していないセルロースアセテート粒子と溶媒に溶解している第一の熱可塑性高分子、及び第二の熱可塑性高分子とをろ過や遠心分離等の操作で分離するのが困難となる場合がある。

[0093] 前記混合物と溶媒との混合温度は、0℃以上200℃以下が好ましく、200℃以上110℃以下がより好ましく、40℃以上80℃以下がさらに好ましい。0℃より低温では、第一の熱可塑性高分子、及び第二の熱可塑性高分子の溶解が不十分となり洗浄除去が困難となる場合があり、200℃を超える温度では、粒子の変形や凝集等が発生し、所望の粒子の形状を維持したまま、粒子を取り出すことが困難となる場合がある。

[0094] 前記混合物と溶媒との混合時間は、特に限定されるものではなく適宜調整すればよいが、例えば0.5時間以上、1時間以上、3時間以上、5時間以上であってよく、6時間以下であってよい。

[0095] また、当該混合の方法として、第一の熱可塑性高分子、及び第二の熱可塑性高分子を溶解できれば限定されないが、例えば、超音波ホモジナイザー及びスリーワンモータ等の攪拌装置を用いることで、室温でも効率よく、前記混合物から第一の熱可塑性高分子、及び第二の熱可塑性高分子を除去することができる。

[0096] 例えば、攪拌装置としてスリーワンモータを用いる場合、前記混合物と溶媒との混合時の回転数は、例えば、5rpm以上3000rpm以下であつ

てよい。これにより、より効率よく、前記混合物から第一の熱可塑性高分子、及び第二の熱可塑性高分子を除去することができる。また、前記混合物から可塑剤を効率よく除去することにもなる。

[0097] 本明細書に開示された各々の態様は、本明細書に開示された他のいかなる特徴とも組み合わせることができる。

実施例

[0098] 以下、実施例により本開示を具体的に説明するが、本開示は、これらの実施例によりその技術的範囲が限定されるものではない。各実施形態における各構成及びそれらの組み合わせ等は、一例であって、本開示の主旨から逸脱しない範囲内で、適宜、構成の付加、省略、置換、及びその他の変更が可能である。

[0099] (実施例 A-1)

セルロースジアセテート（株式会社ダイセル製、アセチル総置換度 $DS = 2.4$ 、 SP 値： 24 ($MPa^{1/2}$)） 100 重量部、可塑剤としてトリアセチン 25 重量部とを乾燥状態でブレンドし、 $80^{\circ}C$ で 12 時間以上乾燥させ、さらに、ヘンシェルミキサーを用いて攪拌混合し、セルロースアセテートと可塑剤との混合物を得た。得られた混合物を、二軸押出機（株式会社池貝製 $PCM30$ 、シリンダー温度： $200^{\circ}C$ 、ダイス温度： $220^{\circ}C$ ）に供給し、熔融混練し、押し出してペレット化し、混練物とした。

[0100] 得られた混練物のペレット 100 重量部と、第一の熱可塑性高分子としてポリビニルアルコール（ PVA 、日本合成化学製：融点 $190^{\circ}C$ 、けん化度 99.1% 、 SP 値： 34 ($MPa^{1/2}$)） 271 重量部、及び第二の熱可塑性高分子としてポリエチレングリコール（ PEG 、 SP 値： 20 ($MPa^{1/2}$)） 21 重量部とを乾燥状態でブレンドした後、二軸押出機（株式会社池貝製 $PCM30$ 、シリンダー温度 $220^{\circ}C$ 、ダイス温度 $220^{\circ}C$ ）に供給し、押し出してセルロースアセテートの混合物を形成した。

[0101] 得られたセルロースアセテートの混合物が 5 重量%（混合物の重量 / (混合物の重量 + 純水の重量) $\times 100$ ）以下となるように純水（溶媒）と合せ

、スリーワンモータ（新東科学社製BL-3000）を用いて、温度80℃、回転数100rpmで3時間攪拌した。攪拌後の溶液をろ紙（ADVANTEC製No. 5A）でろ別し、ろ物を取り出した。取り出したろ物を再び純水を用いて混合物が5重量%以下となるように調製し、さらに温度80℃、回転数100rpmで3時間攪拌、ろ別し、ろ物を取り出す作業を3回以上繰り返し、セルロースアセテート粒子を得た。

[0102] 得られたセルロースアセテート粒子の平均粒子径、粒子径変動係数、真球度、吸油量、表面平滑度、嵩比重、及びRSSAをそれぞれ求め、生分解性、触感を評価した。結果は表1に示す。なお、平均粒子径、粒子径変動係数、真球度、吸油量、表面平滑度、嵩比重、RSSA、生分解性及び触感の測定又は評価は下記の方法で行った。また、走査型電子顕微鏡（SEM）画像は図1-3に示すとおりである。図1-3中のスケールバーの各長さは、SEM画像3000倍の場合は30μm、5000倍の場合は20μm及び6000倍の場合は5.00μmである。

[0103] <平均粒子径及び粒子径変動係数>

平均粒子径は、動的光散乱法を用いて測定した。まず、純水を用いサンプルを100ppm程度の濃度に調整し、超音波振動装置を用いて純水懸濁液とした。その後、レーザー回折法（株式会社堀場製作所「レーザー回折／散乱式粒子径分布測定装置LA-960」超音波処理15分、屈折率（1.500）、媒体（水；1.333））により、体積頻度粒度分布を求め、平均粒子径を測定した。ここでいう平均粒子径（nm及びμm等）は、体積頻度粒度分布における散乱強度の積算50%に対応する粒子径の値とした。また、粒子径変動係数（%）は、粒子径の標準偏差／平均粒子径×100によって算出した。

[0104] <真球度>

走査型電子顕微鏡（SEM）で観察した粒子の画像を用いて、ランダムに選択した30個の粒子の長径と短径を測定し、各粒子の短径／長径比を求め、その短径／長径比の平均値を真球度とした。

[0105] <吸油量>

吸油量は、JIS K5101-13-1:2004 (ISO 787-5:1980) 顔料試験方法-第13部:吸油量-第1節:精製あまに油法に従い測定した。

[0106] <表面平滑度>

粒子の2500~6000倍の走査型電子顕微鏡写真を撮り(例えば、株式会社日立ハイテクノロジー社製の商品名「SU5000」で撮影した実施例A-1のセルロースアセテート粒子の顕微鏡写真である図3を参照)、画像処理装置Winroof(三谷商事社製)を用いて、画像を二値化した(図3の顕微鏡写真を二値化した画像は図4を参照)。二値化した画像から、粒子1個の中心及び/又は中心付近を含む領域を無作為に選択して、当該領域における凹凸の凹に当たる部分(陰の部分)の面積率を算出し、以下の式によりその粒子1個の表面平滑度(%)を算出した。

$$\text{粒子1個の表面平滑度}(\%) = (1 - \text{凹の面積率}) \times 100$$

凹の面積率=前記任意の領域における凹部の面積/前記任意の領域
表面平滑度(%)はランダムに選択した10個の粒子サンプル、つまりn1~10までの表面平滑度の平均値とした。この数値が高いほど表面平滑度は高くなる。なお、面積率の算出に用いる領域は、粒子1個の中心及び/又は中心付近を含む、粒子よりも小さい任意の領域であってよい。また、その領域の大きさは、粒子径が15μmのとき5μm四方であってよい。

[0107] <高比重>

高比重は、JIS K 1201-1に従い測定した。

[0108] <相対的比表面積:RSSA>

粒子が真球で表面が平滑な微粒子であるとして、粒子径分布の測定結果から算出される比表面積を「理論比表面積」とし、BET法で測定した比表面積を、「比表面積測定値」とするとき、相対的比表面積(relative specific surface area:RSSA)=比表面積測定値/理論比表面積とした。

[0109] BET法による比表面積の測定方法は以下のとおりである。窒素法BET

比表面積測定法を用いた比表面積は、予め試料を、カンタクローム・インスツルメンツ社製Master Prep脱気装置を用いて、温度100℃下にて約1時間の間、加熱真空排気した後、比表面積測定装置（カンタクローム・インスツルメンツ社製「Autosorb iQ Station 2」）を用いて、窒素ガス吸着法により相対圧0.05～0.28の範囲において7点程度、窒素吸着を測定し、BET法を適用して比表面積を算出することにより求めることができる。

[0110] <生分解性>

生分解性は、生分解速度により評価した。生分解速度は、JIS K6950に準じた活性汚泥を使用する方法により測定した。活性汚泥は、都市下水処理場から入手した。その活性汚泥を1時間程度放置して得られる上澄み液（活性汚泥濃度：約360ppm）を1培養瓶あたり約300mL使用した。サンプル30mgを当該上澄み液中で攪拌した時点を測定開始とし、その後24時間おきに、720時間後つまり30日後まで合計31回測定した。測定の詳細は以下のとおりである。大倉電気（株）製クーロメータ OM3001を用いて、各培養瓶中の生物化学的酸素要求量（BOD）を測定した。各試料の化学組成に基づく完全分解における理論上の生物化学的酸素要求量（BOD）に対する、生物化学的酸素要求量（BOD）のパーセンテージを生分解速度（重量%）とし、次のとおり生分解性を評価した。

◎：60重量%を超える、○：40重量%以上60重量%以下、

△：10重量%以上40重量%未満、×：10重量%未満

[0111] <触感>

粒子の触感について、20人のパネルテストにより官能評価を行なった。粒子に触れさせ、柔らかさ、なめらかさ及びしっとり感を総合的に、5点満点として、以下の基準により評価した。20人の平均点を算出した。
良い：5、やや良い：4、普通：3、やや悪い：2、悪い：1

[0112] <走査型電子顕微鏡（SEM）の画像>

3000倍、5000倍及び6000倍の各倍率で走査型電子顕微鏡（S

EM) の画像を得た。3000倍及び5000倍の画像撮影には、株式会社日立ハイテクノロジー社製の走査型電子顕微鏡(商品名「TM3000」)を使用し、6000倍の画像撮影には、同社製の走査型電子顕微鏡(商品名「SU5000」)を使用した。

[0113] (実施例A-2~A-3、A-5、及びA-7~12)

可塑剤、第一の熱可塑性樹脂、及び第二の熱可塑性樹脂について、それぞれ種類及び配合量を表1に記載のとおりに変更した以外は、実施例A-1と同様にしてセルロースアセテート粒子を得た。上記の測定方法により、得られたセルロースアセテート粒子の各物性を評価した。結果は表1に示す。また、実施例A-1の走査型電子顕微鏡(SEM)画像は図1(3000倍)、図2(5000倍)及び図3(6000倍)、実施例A-12のSEM画像は図5(3000倍)及び図6(5000倍)に示すとおりである。

[0114] (実施例A-4及び実施例A-6)

実施例A-4は、セルロースアセテートを、セルロースジアセテート(株式会社ダイセル製、アセチル総置換度 $DS=2.8$ 、 SP 値: 22.6 ($MPa^{1/2}$))に変更し、実施例A-6は、セルロースアセテートを、セルロースジアセテート(株式会社ダイセル製、アセチル総置換度 $DS=1.8$ 、 SP 値: 26 ($MPa^{1/2}$))に変更した。また、可塑剤、第一の熱可塑性樹脂、第二の熱可塑性樹脂について、それぞれ種類及び配合量を表1に記載のとおりに変更した以外は、実施例A-1と同様にしてセルロースアセテート粒子を得た。上記の測定方法により、得られたセルロースアセテート粒子の各物性を評価した。結果は表1に示す。

[0115] (比較例A-1~3、5、7~11)

可塑剤及び第一の熱可塑性樹脂について、それぞれ種類及び配合量を表2に記載のとおりに変更し、第二の熱可塑性樹脂を配合しなかった以外は、実施例A-1と同様にしてセルロースアセテート粒子を得た。上記の測定方法により、得られたセルロースアセテート粒子の各物性を評価した。結果は表2に示す。また、比較例A-1の走査型電子顕微鏡(SEM)画像は図7(

3000倍)及び図8(5000倍)に示すとおりである。

[0116] (比較例A-4及び比較例A-6)

比較例A-4は、セルロースアセテートを、セルロースジアセテート(株式会社ダイセル製、アセチル総置換度 $DS=2.8$ 、 SP 値: 22.6 ($MPa^{1/2}$))に変更し、比較例A-6は、セルロースアセテートを、セルロースジアセテート(株式会社ダイセル製、アセチル総置換度 $DS=1.8$ 、 SP 値: 26 ($MPa^{1/2}$))に変更し、可塑剤及び第一の熱可塑性樹脂について、それぞれ種類及び配合量を表2に記載のとおりに変更し、また、第二の熱可塑性樹脂を配合しなかった以外は、実施例A-1と同様にしてセルロースアセテート粒子を得た。上記の測定方法により、得られたセルロースアセテート粒子の各物性を評価した。結果は表2に示す。

[0117] (比較例A-12~15)

第一の熱可塑性樹脂及び第二の熱可塑性樹脂について、それぞれ種類及び配合量を表3に記載のとおりに変更した以外は、実施例A-1と同様にしてセルロースアセテート粒子を得た。上記の測定方法により、得られたセルロースアセテート粒子の各物性を評価した。結果は表3に示す。

[0118]

[表1]

アセチルサッカロースル酸塩 (DS)		実施例 A-1	実施例 A-2	実施例 A-3	実施例 A-4	実施例 A-5	実施例 A-6	実施例 A-7	実施例 A-8	実施例 A-9	実施例 A-10	実施例 A-11	実施例 A-12
可溶性	種類	トリアセチン	クニン酸アセチルトリエチル	トリアセチン	フタル酸ジエチル	クニン酸アセチルトリエチル	ジアセチン	トリアセチン	トリアセチン	トリアセチン	トリアセチン	トリアセチン	トリアセチン
	配合量(重量部)	25	25	25	25	25	25	20	25	25	25	25	25
第一の熱可塑性樹脂	種類	PVA	PVA	PVA	PVA	PVA	PVA	PVA	PVA	PVA	PVA	熱可塑性アセチン	PVA
	配合量(重量部)	271	271	271	271	271	271	261	271	271	271	271	283
第二の熱可塑性樹脂	種類	PEG	PEG	PEG	PEG	PEG	PEG	PEG	PEG	PEG	PEG	PEG	PEG
	配合量(重量部)	21	21	21	21	21	21	20	21	21	21	21	8
セルロースアセテート粒子	平均粒子径	13.3μm	210nm	20μm	27μm	42μm	10.1μm	40μm	13.9μm	11.2μm	14.1μm	13.9μm	10.9μm
	粒子径変動係数	36%	40%	38%	40%	37%	39%	38%	44%	36%	37%	39%	34%
	真密度	0.95	0.94	0.96	0.95	0.96	0.96	0.96	0.96	0.83	0.98	0.97	0.95
	吸油量 (ml/100g)	72	86	70	68	77	75	66	71	71	73	71	72
	表面平滑度	80%	75%	85%	83%	85%	87%	78%	80%	80%	82%	85%	83%
	高比重	0.50	0.43	0.46	0.43	0.47	0.49	0.50	0.50	0.48	0.51	0.46	0.48
	面積比表面積 (m ² /g)	0.35	0.03	0.24	0.18	0.64	0.46	0.12	0.12	0.34	0.42	0.33	0.34
	BH-1比表面積 (m ² /g)	3.53	0.80	1.89	2.23	7.26	5.47	1.24	1.24	2.66	3.82	3.10	3.03
	RSSA	10	112	7.9	12.4	11.4	11.9	10	7.8	8.7	8.7	9.3	8.9
	水分解生	◎	◎	◎	△	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎
触感	4.4	4	4.2	3.9	4.2	4.4	4.4	4	3.9	4.2	4.4	4.1	
													4.5

[表2]

アセチル総量換算 (DS)		比較例 A-1	比較例 A-2	比較例 A-3	比較例 A-4	比較例 A-5	比較例 A-6	比較例 A-7	比較例 A-8	比較例 A-9	比較例 A-10	比較例 A-11
可溶性	種類	トリアセチン	クエン酸アセチルトリエチル	トリアセチン	アタル酸ジエチル	クエン酸アセチルトリエチル	ジアセチン	トリアセチン	トリアセチン	トリアセチン	トリアセチン	トリアセチン
第一の熱可塑性樹脂	配合量(重量部)	25	25	25	25	25	25	20	25	25	25	25
第二の熱可塑性樹脂	種類	PVA	PVA	PVA	PVA	PVA	PVA	PVA	PVA	PVA	PVA	熱可塑性アミン
	配合量(重量部)	292	292	292	292	292	292	281	292	292	292	292
	種類	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	配合量(重量部)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	平均粒子径	4.2 μ m	100nm	14 μ m	20 μ m	1.1 μ m	2.5 μ m	32 μ m	4.8 μ m	5.2 μ m	7.7 μ m	6.8 μ m
	粒子径変動係数	38%	42%	41%	40%	37%	39%	38%	44%	36%	37%	39%
	充填度	0.98	0.94	0.97	0.95	0.97	0.97	0.96	0.83	0.98	0.97	0.95
	吸油量 (ml/100g)	51	56	45	43	55	53	43	51	51	49	49
	表面平滑度	100%	99%	100%	100%	99%	99%	100%	100%	100%	100%	100%
	黒比重	0.63	0.62	0.61	0.62	0.62	0.61	0.63	0.6	0.6	0.58	0.58
	理論比表面積 (m ² /g)	109	4810	0.35	0.25	3.96	1.73	0.17	0.96	0.89	0.66	0.69
	BET比表面積 (m ² /g)	2.84	91.89	0.84	0.51	5.79	2.77	0.35	2.78	2.40	0.99	1.24
	RSSA	2.6	1.9	2.4	2	1.5	1.6	2.1	2.9	2.7	1.5	1.8
	生分解性	◎	◎	◎	△	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎
	粘厚	3.2	2.7	3	2.8	2.6	3	2.6	2.7	3.1	3	3.1

[0120]

[表3]

		比較例 A-12	比較例 A-13	比較例 A-14	比較例 A-15
アセチル総置換度 (DS)		2.4	2.4	2.4	2.4
可塑剤	種類	トリアセチン	トリアセチン	トリアセチン	トリアセチン
	配合量(重量部)	25	25	25	25
第一の熱可塑性樹脂	種類	PVA	PVA	PVA	PVA
	配合量(重量部)	125	125	125	188
第二の熱可塑性樹脂	種類	エチレングリコール	プロピレングリコール	1,3-ブチレングリコール	グリセリン
	配合量(重量部)	25	25	25	21
セルロースアセテート粒子	平均粒子径	10.9 μm	8.5 μm	6.9 μm	6.2 μm
	粒子径変動係数	44%	135%	41%	35%
	真球度	0.93	0.84	0.93	0.95
	吸油量 (ml/100g)	47	48	49	50
	表面平滑度	99%	99%	100%	100%
	嵩比重	0.61	0.61	0.62	0.62
	理論比表面積(m^2/g)	0.45	0.63	0.71	0.75
	BET比表面積(m^2/g)	0.90	1.13	1.63	1.05
	RSSA	2	1.8	2.3	1.4
	生分解性	◎	◎	◎	◎
	触感	2.9	3	3.2	3.1

[0121] 表1-3に示すとおり、実施例のセルロースアセテート粒子は、いずれも優れた生分解性優れた触感、特に柔らかな触感、及び優れた吸油性を有する。

[0122] (実施例B-1)

リキッドファンデーションの調製

表4に示す各成分を混合後、良く攪拌し、容器に充填してリキッドファンデーションを調製した。得られたリキッドファンデーションの触感を下記の方法で評価した。結果は表12に示す。

[表4]

成分	製品名等	重量%
シクロペンタシロキサン	KF-995(信越化学工業)	15.2
ミネラルオイル	ハイコールK-230(カナダ)	5.0
メキシケイヒ酸エチルヘキシル	Uvinul MC80(BASF)	4.0
イソノナン酸イソノニル	KAK-99(高級アルコール工業)	3.0
ジステアルジモニウムヘクトライト、シクロペンタシロキサン、他	Bentone Gel VS-5 PC V HV(Elementis)	3.0
マカデミアナッツ脂肪酸フィトステリル	Plandool-MAS(日本精化)	0.3
トリメチルシロキシケイ酸、ポリプロピルシルセスキオキサン	MQ-1640 Flake Resin(東レ・ダウコーニング)	0.3
PEG-10ジメチコン	KF-6017P(信越化学工業)	1.5
オレイン酸ポリグリセリル-2、ポリヒドロキシステアリン酸、ステアリン酸ポリグリセリル-2	PolyAqual OS2(innovacos)	1.0
酸化チタン、シクロペンタシロキサン、他	SDL-Ti70(大東化成工業)	12.3
酸化鉄、シクロペンタシロキサン、他	SDL-IOY50(大東化成工業)	3.0
	SDL-IOR50(大東化成工業)	
	SDL-IOB50(大東化成工業)	
実施例A-1:セルロースアセテート粒子		3.0
BG	1,3-BG(UK)(ダイセル)	6.0
フェノキシエタノール	フェノキシエタノール-SP(四日市合成)	0.3
塩化ナトリウム		1.0
EDTA-2Na		0.03
精製水		残量
合計		100.0

[0123] <触感>

粒子を配合して調製した組成物について、20人のパネルテストにより官能評価を行なった。各組成物を使用させ、なめらかさ及びしっとり感の両方を総合的に、5点満点として、以下の基準により評価した。20人の平均点を算出した。

良い：5、やや良い：4、普通：3、やや悪い：2、悪い：1

[0124] (実施例B-2)

日焼け止めの調製

表5に示す各成分を混合後、良く攪拌し、容器に充填して日焼け止めを調製した。得られた日焼け止めの触感を上記の方法で評価した。結果は表12

に示す。

[表5]

成分	製品名等	重量%
ジエチルアミノヒドロキシベンゾイル安息香酸ヘキシル	Uvinul A Plus Granular(BASF)	2.00
ビスエチルヘキシルオキシフェノールメキシフェニルトリアジン	Tnosorb S(BASF)	0.50
メキシケイヒ酸エチルヘキシル、BHT	Uvinul MC80(BASF)	7.00
セバシン酸ジイソプロピル	IPSE(日本精化)	10.00
ジメチコン	KF-96A-10CS(信越化学工業)	2.00
イソドデカン	マルカゾールR(丸善石油)	26.47
トリメチルシロキシケイ酸	MQ-1640 Flake Resin(東レ・ダウコーニング)	1.00
PEG-9ポリジメチルシロキエチルジメチコン	KF-6028(信越化学工業)	2.00
酸化チタン、他	DIS-OP-10A(堺化学工業)	4.00
酸化亜鉛、他	DIF-OP-3W(堺化学工業)	10.00
実施例A-1:セルロースアセテート粒子		5.00
精製水		19.30
BG	1,3-BG(UK)(ダイセル)	3.00
フェノキシエタノール	フェノキシエタノール-SP(四日市合成)	0.20
エタノール		7.00
塩化ナトリウム		0.50
EDTA-2Na		0.03
合計		100.0

[0125] (実施例B-3)

パウダーファンデーションの調製

表6に示す成分Aを粗混合した後、均一に溶解した成分Bを加えて良く攪拌した後に、容器に充填してパウダーファンデーションを調製した。得られたパウダーファンデーションの触感を上記の方法で評価した。結果は表12に示す。

[表6]

成分	重量%
(成分A)	
実施例A-1:セルロースアセテート粒子	7.50
SI01-2 タルク JA-46R	29.67
マイカ Y-2300	20.00
SI01-2 セリサイト FSE	33.00
SI01-2 酸化チタン CR-50	6.50
SI-2黄酸化鉄LLXLO	2.30
SI-2赤酸化鉄RED R-516L	0.59
SI-2黒酸化鉄 BL-100	0.44
成分A 合計	100.00
(成分B)	
ジメチコン(20)	20.00
ジメチコン(350)	20.00
グリセリルイソステアレート	7.20
トリエチルヘキサノイン	17.00
オクチルドデシルオレアート	31.55
ソルビタンステアレート	1.00
ポリグリセリル-2オレアート	3.10
プロピルパラベン	0.10
トコフェノール	0.05
成分B 合計	100.0
(最終配合)	
成分A	90.00
成分B	100.00

[0126] (実施例 B - 4)

化粧下地の調製

表 7 に示す成分 C を成分 A に分散し、よく攪拌した。成分 B を添加し、攪拌し、容器に充填し、化粧下地を調製した。得られた化粧下地の触感を上記の方法で評価した。結果は表 1 2 に示す。

[表7]

成分	重量%
(成分A)	
(ジメチコン/(PEG-10/15)) クロスポリマー、ジメチコン	3.50
PEG-9ポリジメチルシロキシエチルジメチコン	2.00
ジメチコン	5.00
イソノナン酸イソノニル	4.50
メトキシケイヒ酸オクチル	10.00
クオタニウム-18 ヘクトライト	1.20
(ジメチコン/ビニルジメチコン)クロスポリマー、ジメチコン	5.00
シクロメチコン	25.00
(成分B)	
精製水	残部
1,3-ブチレングリコール	5.00
クエン酸ナトリウム	0.20
防腐剤	0.30
(成分C)	
実施例A-1:セルロースアセテート粒子	10.00
合計	100.0

[0127] (実施例B-5)

口紅用下地料の調製

表8に示す成分Bを60℃に加熱し、良く混合した。ここに成分Cを加えて良く分散させた。さらに、成分Aを加え、電子レンジを用いて溶解させた後、良く混合した。そして、再度電子レンジを用いて加熱溶解させ、金型に流し込み、冷却固化させた。これを口紅容器にセットして口紅用下地料を調製した。得られた口紅用下地料の触感を上記の方法で評価した。結果は表12に示す。

[表8]

成分	重量%
(成分A)	
セレスシン	4.27
マイクロクリスタリンワックス	1.55
脱樹脂キャンデリラロウ	5.03
高沸点パラフィン	3.07
(成分B)	
リンゴ酸ジイソステアリル	1.95
ジペンタエリトリット脂肪酸エステル	6.22
吸着精製ラノリン	2.52
酢酸液状ラノリン	13.34
トリ2-エチルヘキサン酸グリセリル	19.02
流動パラフィン	7.28
イソノナン酸イソトリデシル	3.21
トリーイソステアリン酸ジグリセリル	4.01
メチルフェニルポリシロキサン	2.41
パラオキシ安息香酸エステル	0.07
リンゴ酸ジイソステアリル	残部
天然型ビタミンE	0.05
(成分C)	
実施例A-1:セルロースアセテート粒子	10.00
合計	100.00

[0128] (実施例B-6)

ボディーパウダーの調製

表9に示す成分Aをミキサーを用いて良く混合した。得られた粉体を容器に充填し、ボディーパウダーを調製した。得られたボディーパウダーの触感を上記の方法で評価した。結果は表12に示す。

[表9]

成分	重量%
(成分A)	
タルク	残量
実施例A-1:セルロースアセテート粒子	10.00
香料	適量
合計	100.00

[0129] (実施例B-7)

固形白粉の調製

固形白粉の調製は、通常の化粧料の製造方法に準ずる。すなわち、表10に示す、タルク、着色顔料をブレンダーで混合した。また、セルロースアセテート粒子、及び先にブレンダーで混合した着色顔料とタルクを含む全ての粉体部分について、ヘンシェルミキサーを用いて攪拌した。その後、油分（結合剤）を添加し70℃に加温し、さらに攪拌を行ったのち、必要に応じて粉碎工程を行った。これを金皿の容器中に圧縮成形して固形白粉を調製した。得られた固形白粉の触感を上記の方法で評価した。結果は表12に示す。

[表10]

成分	重量%
(粉体)	
タルク	30.00
セリサイト	20.00
カオリン	15.00
二酸化チタン	5.00
ミスチン酸亜鉛	5.00
炭酸マグネシウム	5.00
着色顔料	適量
実施例A-1:セルロースアセテート粒子	15.00
(結合剤)	
トラガントゴム	3.00
流動パラフィン	2.00
その他:必要に応じて、防腐剤、酸化防止剤、香料をそれぞれ適量配合する	
合計	100.00

[0130] (実施例B-8)

固形粉末アイシャドーの調製

表11に示す粉体をよく混合した後、結合剤を均一に溶解して、粉末部に加えてさらに混合後、圧縮成形し、固形粉末アイシャドーを調製した。得られた固形粉末アイシャドーの触感を上記の方法で評価した。結果は表12に示す。

[表11]

成分	重量%
(粉体)	
マイカ	15.00
セリサイト	5.00
顔料	15.00
パール顔料	10.00
実施例A-1:セルロースアセテート粒子	51.00
(結合剤)	
メチルポリシロキサン	2.00
(その他)	
セスキオレイン酸ソルビタン	2.00
その他:必要に応じ、酸化防止剤、香料、防腐剤を適量配合する	
合計	100.00

[0131] (実施例B-9)

表4における実施例A-1:セルロースアセテート粒子を、実施例A-12:セルロースアセテート粒子に変更した以外は、実施例B-1と同様にして、リキッドファンデーションを調製した。得られたリキッドファンデーションの触感を上記の方法で評価した。結果は表12に示す。

[0132] (実施例B-10)

表5における実施例A-1:セルロースアセテート粒子を、実施例A-12:セルロースアセテート粒子に変更した以外は、実施例B-2と同様にして、日焼け止めを調製した。得られた日焼け止めの触感を上記の方法で評価した。結果は表12に示す。

[0133] (実施例B-11)

表6における実施例A-1:セルロースアセテート粒子を、実施例A-12:セルロースアセテート粒子に変更した以外は、実施例B-3と同様にして、パウダーファンデーションを調製した。得られたパウダーファンデーションの触感を上記の方法で評価した。結果は表12に示す。

[0134] (実施例B-12)

表7における実施例A-1:セルロースアセテート粒子を、実施例A-1

2 : : セルロースアセテート粒子に変更した以外は、実施例 B - 4 と同様に
して、化粧下地を調製した。得られた化粧下地の触感を上記の方法で評価し
た。結果は表 1 2 に示す。

[0135] (実施例 B - 1 3)

表 4 における実施例 A - 1 : セルロースアセテート粒子を、実施例 A - 1
2 : セルロースアセテート粒子に変更した以外は、実施例 B - 1 と同様にし
て、リキッドファンデーションを調製した。得られたリキッドファンデーシ
ョンの触感を上記の方法で評価した。結果は表 1 2 に示す。

[0136] (実施例 B - 1 4)

表 5 における実施例 A - 1 : セルロースアセテート粒子を、実施例 A - 1
2 : セルロースアセテート粒子に変更した以外は、実施例 B - 2 と同様にし
て、日焼け止めを調製した。得られた日焼け止めの触感を上記の方法で評価
した。結果は表 1 2 に示す。

[0137] (実施例 B - 1 5)

表 4 における実施例 A - 1 : セルロースアセテート粒子を、実施例 A - 1
2 : セルロースアセテート粒子に変更した以外は、実施例 B - 1 と同様にし
て、リキッドファンデーションを調製した。得られたリキッドファンデーシ
ョンの触感を上記の方法で評価した。結果は表 1 2 に示す。

[0138] (実施例 B - 1 6)

表 5 における実施例 A - 1 : セルロースアセテート粒子を、実施例 A - 1
2 : セルロースアセテート粒子に変更した以外は、実施例 B - 2 と同様にし
て、日焼け止めを調製した。得られた日焼け止めの触感を上記の方法で評価
した。結果は表 1 2 に示す。

[0139] (実施例 B - 1 7)

表 4 におけるシクロペンタシロキサンをドデカン (P A R A F O L 1 2
- 9 7 (S a s o l)) 、 及び Cetiol Ultimate (ウンデカン : トリデカン =
6 5 重量% : 3 5 重量%、 B A S F 社製) をそれぞれ同じ重量混合した混合
物に変更し、イソノナン酸イソノニルをカプリル酸ヤシ油アルキル (セチオ

ール C5 (BASF))、(カプリル/カプリン酸)ヤシアルキル(セチオール C5C (BASF))、及び炭酸ジカプリリル(セチオール CC (BASF))をそれぞれ同じ重量混合した混合物に変更し、さらにマカデミアナッツ脂肪酸フィトステリルをツバキ油(純椿油(日興リカ))に変更した以外は、実施例B-1と同様にして、リキッドファンデーションを調製した。得られたリキッドファンデーションの触感を上記の方法で評価した。結果は表12に示す。

[0140] (実施例B-18)

表5におけるイソドデカンをドデカン(PARAFOL 12-97 (Sasol))、及びCetiol Ultimate(ウンデカン:トリデカン=65重量%:35重量%、BASF社製)をそれぞれ同じ重量混合した混合物に変更し、セバシン酸ジイソプロピルをカプリル酸ヤシ油アルキル(セチオール C5 (BASF))、(カプリル/カプリン酸)ヤシアルキル(セチオール C5C (BASF))、及び炭酸ジカプリリル(セチオール CC (BASF))をそれぞれ同じ重量混合した混合物に変更した以外は、実施例B-2と同様にして、日焼け止めを調製した。得られた日焼け止めの触感を上記の方法で評価した。結果は表12に示す。

[0141] (実施例B-19)

表6におけるジメチコンをドデカン(PARAFOL 12-97 (Sasol))、及びCetiol Ultimate(ウンデカン:トリデカン=65重量%:35重量%、BASF社製)をそれぞれ同じ重量混合した混合物に変更し、オクチルドデシルオレートをカプリル酸ヤシ油アルキル(セチオール C5 (BASF))、(カプリル/カプリン酸)ヤシアルキル(セチオール C5C (BASF))、及び炭酸ジカプリリル(セチオール CC (BASF))をそれぞれ同じ重量混合した混合物に変更した以外は、実施例B-3と同様にして、パウダーファンデーションを調製した。得られたパウダーファンデーションの触感を上記の方法で評価した。結果は表12に示す。

[0142] (実施例B-20)

表7におけるシクロメチコンをドデカン（PARAFOL 12-97（Sasol））、及びCetiol Ultimate（ウンデカン：トリデカン＝65重量％：35重量％、BASF社製）をそれぞれ同じ重量混合した混合物に変更し、イソノナン酸イソノニルをカプリル酸ヤシ油アルキル（セチオール C5（BASF））、（カプリル／カプリン酸）ヤシアルキル（セチオール C5C（BASF））、及び炭酸ジカプリル（セチオール CC（BASF））をそれぞれ同じ重量混合した混合物に変更した以外は、実施例B-4と同様にして、化粧下地を調製した。得られた化粧下地の触感を上記の方法で評価した。結果は表12に示す。

[0143] （実施例B-21）

表6におけるマイカY-2300Xをマイカ（マイカ Y-2300X（ヤマグチマイカ））、合成マイカ（PDM-10L（トピー工業））及び（フッ化／水酸化／酸化）／（Mg／K／ケイ素）（マイクロマイカ MK-200K（片倉コープアグリ））をそれぞれ同じ重量混合した混合物に変更し、セリサイトを硫酸バリウム（板状硫酸バリウムH（堺化学工業社製））及び窒化ホウ素（SHP-6（水島合金鉄））をそれぞれ同じ重量混合した混合物に変更し、さらにタルクをセルロース（NPファイバー W-06MG（日本製紙））及びシリカ（ゴッドボール E-16C（鈴木油脂工業））をそれぞれ同じ重量混合した混合物に変更した以外は、実施例B-3と同様にして、パウダーファンデーションを調製した。得られたパウダーファンデーションの触感を上記の方法で評価した。結果は表12に示す。

[0144] （実施例B-22）

表9におけるタルクをセルロース（NPファイバー W-06MG（日本製紙））及びシリカ（ゴッドボール E-16C（鈴木油脂工業））をそれぞれ同じ重量混合した混合物に変更した以外は、実施例B-6と同様にして、ボディーパウダーを調製した。得られたボディーパウダーの触感を上記の方法で評価した。結果は表12に示す。

[0145] （実施例B-23）

表11におけるマイカY-2300Xをマイカ（マイカ Y-2300X（ヤマグチマイカ））、合成マイカ（PDM-10L（トピー工業））及び（フッ化／水酸化／酸化）／（Mg／K／ケイ素）（マイクロマイカ MK-200K（片倉コープアグリ））をそれぞれ同じ重量混合した混合物に変更し、セリサイトを硫酸バリウム（板状硫酸バリウムH（堺化学工業社製））及び窒化ホウ素（SHP-6（水島合金鉄））をそれぞれ同じ重量混合した混合物に変更した以外は、実施例B-8と同様にして、固形粉末アイシャドーを調製した。得られた固形粉末アイシャドーの触感を上記の方法で評価した。結果は表12に示す。

[0146] （実施例B-24）

表4におけるBGをグリセリン及びペンチレングリコール（ジオール PD（高級アルコール工業））をそれぞれ同じ重量混合した混合物に変更した以外は、実施例B-1と同様にして、リキッドファンデーションを調製した。得られたリキッドファンデーションの触感を上記の方法で評価した。結果は表12に示す。

[0147] （実施例B-25）

表5におけるBGをグリセリン及びペンチレングリコール（ジオール PD（高級アルコール工業））をそれぞれ同じ重量混合した混合物に変更した以外は、実施例B-2と同様にして、日焼け止めを調製した。得られた日焼け止めの触感を上記の方法で評価した。結果は表12に示す。

[0148] （実施例B-26）

表7における1,3-ブチレングリコールをグリセリン及びペンチレングリコール（ジオール PD（高級アルコール工業））をそれぞれ同じ重量混合した混合物に変更した以外は、実施例B-4と同様にして、化粧下地を調製した。得られた化粧下地の触感を上記の方法で評価した。結果は表12に示す。

[0149] （比較例B-1～8）

比較例B-1～8は、表4～11における実施例A-1：セルロースアセ

テート粒子を、比較例 A-1 : セルロースアセテート粒子に変更した以外は、それぞれ実施例 B-1 ~ 8 と同様にして、リキッドファンデーション、日焼け止め、パウダーファンデーション、化粧下地、口紅用下地、ボディーパウダー、固形白粉、及び固形粉末アイシャドーを調製した。それぞれについて、触感を上記の方法で評価した。結果は表 13 に示す。

[0150]

[表12]

	実施例B-1	実施例B-2	実施例B-3	実施例B-4	実施例B-5	実施例B-6	実施例B-7	実施例B-8
組成物	リキッドフアン デーション	日焼け止め	パウダーフアン デーション	化粧下地	口紅用下地	ポディーパーウ ダー	固形白粉	固形粉末アイ シャドー
粒子	実施例A-1	実施例A-1	実施例A-1	実施例A-1	実施例A-1	実施例A-1	実施例A-1	実施例A-1
触感	4.5	4.6	4.3	4.2	4.1	4.5	4.7	4.6
	実施例B-9	実施例B-10	実施例B-11	実施例B-12	実施例B-13	実施例B-14	実施例B-15	実施例B-16
組成物	リキッドフアン デーション	日焼け止め	パウダーフアン デーション	化粧下地	リキッドフアン デーション	日焼け止め	リキッドフアン デーション	日焼け止め
粒子	実施例A-12	実施例A-12	実施例A-12	実施例A-12	実施例A-12	実施例A-12	実施例A-12	実施例A-12
触感	4.1	4.2	4.1	4.3	4.3	4.4	4.1	4.1
	実施例B-17	実施例B-18	実施例B-19	実施例B-20	実施例B-21	実施例B-22	実施例B-23	実施例B-24
組成物	リキッドフアン デーション	日焼け止め	パウダーフアン デーション	化粧下地	パウダーフアン デーション	ポディーパーウ ダー	固形粉末アイ シャドー	リキッドフアン デーション
粒子	実施例A-1	実施例A-1	実施例A-1	実施例A-1	実施例A-1	実施例A-1	実施例A-1	実施例A-1
触感	4.2	4.3	4.2	4.1	4.2	4.4	4.2	4.3
	実施例B-25	実施例B-26						
組成物	日焼け止め	化粧下地						
粒子	実施例A-1	実施例A-1						
触感	4.3	4.3						

[表13]

比較例B-1	比較例B-2	比較例B-3	比較例B-4	比較例B-5	比較例B-6	比較例B-7	比較例B-8
リキッドファン テーション	日焼け止め	パウダーファン テーション	化粧下地	口紅用下地	ボディパウ ダー	固形白粉	固形粉末アイ シャドー
比較例A-1	比較例A-1	比較例A-1	比較例A-1	比較例A-1	比較例A-1	比較例A-1	比較例A-1
3.1	2.9	3.2	3.1	3.3	3.2	3.2	3.1
組成物	粒子	触感					

[0152] 表12及び13に示すように、実施例B-1～26のセルロースアセテート粒子を含有する化粧品組成物の触感は、いずれも4.0以上と特に柔らかな触感であり優れたものである。また、いずれもセルロースアセテート粒子

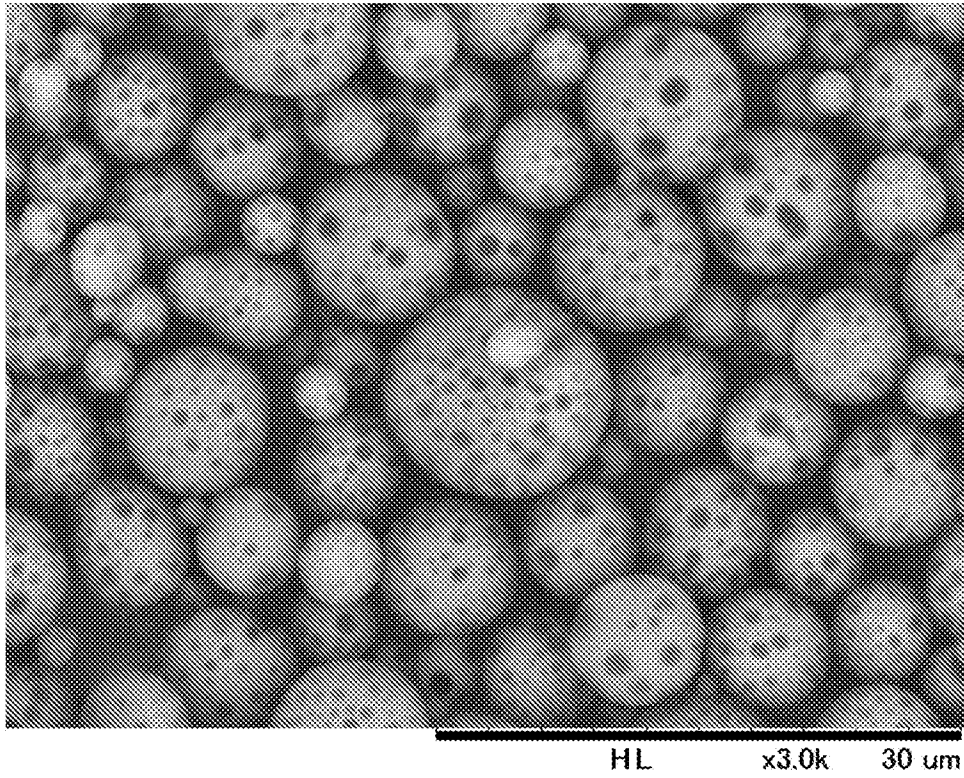
を含有するものであるため、優れた生分解性を有する。

請求の範囲

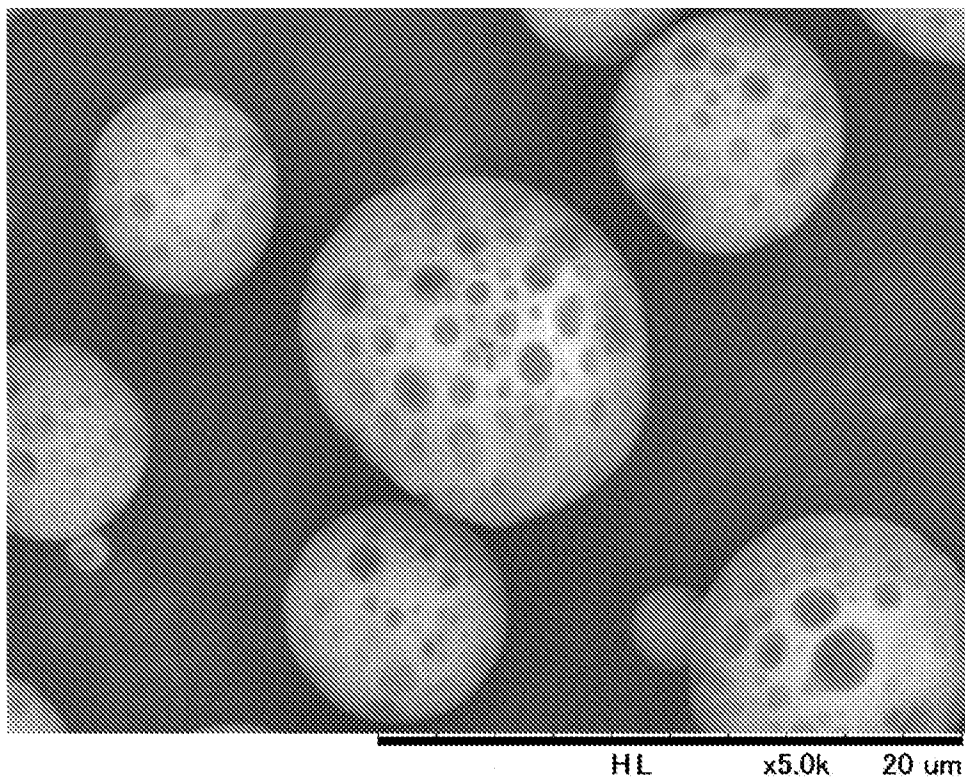
- [請求項1] セルロースアセテート粒子であって、
前記セルロースアセテート粒子は、平均粒子径が80nm以上100 μ m以下、真球度が0.7以上1.0以下、及び相対的比表面積が3.0以上20以下であり、
前記セルロースアセテートのアセチル総置換度が0.7以上3.0以下である、セルロースアセテート粒子。
- [請求項2] 表面平滑度が10%以上95%以下である、請求項1に記載のセルロースアセテート粒子。
- [請求項3] 嵩比重が0.2以上0.7以下である、請求項1又は2に記載のセルロースアセテート粒子。
- [請求項4] 亜麻仁油を用いた吸油量が前記セルロースアセテート粒子100gあたり60ml以上である、請求項1～3のいずれか1項に記載のセルロースアセテート粒子。
- [請求項5] 前記セルロースアセテートのアセチル総置換度が1.6以上2.9未満である、請求項1～4のいずれか1項に記載のセルロースアセテート粒子。
- [請求項6] 前記相対的比表面積が10以上20以下である、請求項1～5のいずれか1項に記載のセルロースアセテート粒子。
- [請求項7] 前記セルロースアセテート粒子が可塑剤を含有し、
前記可塑剤の含有量が、前記セルロースアセテート100重量部に対し、2重量部以上67重量部以下である、請求項1～6のいずれか1項に記載のセルロースアセテート粒子。
- [請求項8] 前記可塑剤が、クエン酸系可塑剤、グリセリンエステル系可塑剤、及びフタル酸系可塑剤からなる群より選択される少なくとも1種を含む、請求項7に記載のセルロースアセテート粒子。
- [請求項9] 請求項1～8のいずれか1項に記載のセルロースアセテート粒子を含有する、化粧品組成物。

- [請求項10] アセチル総置換度が0.7以上3.0以下のセルロースアセテート、可塑剤、第一の熱可塑性高分子、及び第二の熱可塑性高分子を混合して、前記可塑剤、前記第一の熱可塑性高分子、及び前記第二の熱可塑性高分子を含むセルロースアセテートの混合物を得る工程、
前記混合物を200℃以上280℃以下で熔融混練する工程、並びに
前記熔融混練した混合物から前記第一の熱可塑性高分子、及び前記第二の熱可塑性高分子を除去する工程からなり、
前記セルロースアセテートのSP値をSPa、前記第一の熱可塑性高分子のSP値をSPbとし、前記第二の熱可塑性高分子のSP値をSPcとしたとき、SPa、SPb、SPcが以下の関係式を満たす、セルロースアセテート粒子の製造方法。
$$0.1 \leq |SPc - SPa| / |SPb - SPa| \leq 0.9$$
- [請求項11] 前記可塑剤が、クエン酸アセチルトリエチル及びトリアセチンからなる群より選択される少なくとも1種を含む、請求項10に記載のセルロースアセテート粒子の製造方法。
- [請求項12] 前記第一の熱可塑性高分子が、ポリビニルアルコール及び熱可塑性デンプンからなる群より選択される少なくとも1種を含む、請求項10又は11に記載のセルロースアセテート粒子の製造方法。
- [請求項13] 前記第二の熱可塑性高分子が、ポリエチレングリコールである、請求項10～12のいずれか1項に記載のセルロースアセテート粒子の製造方法。

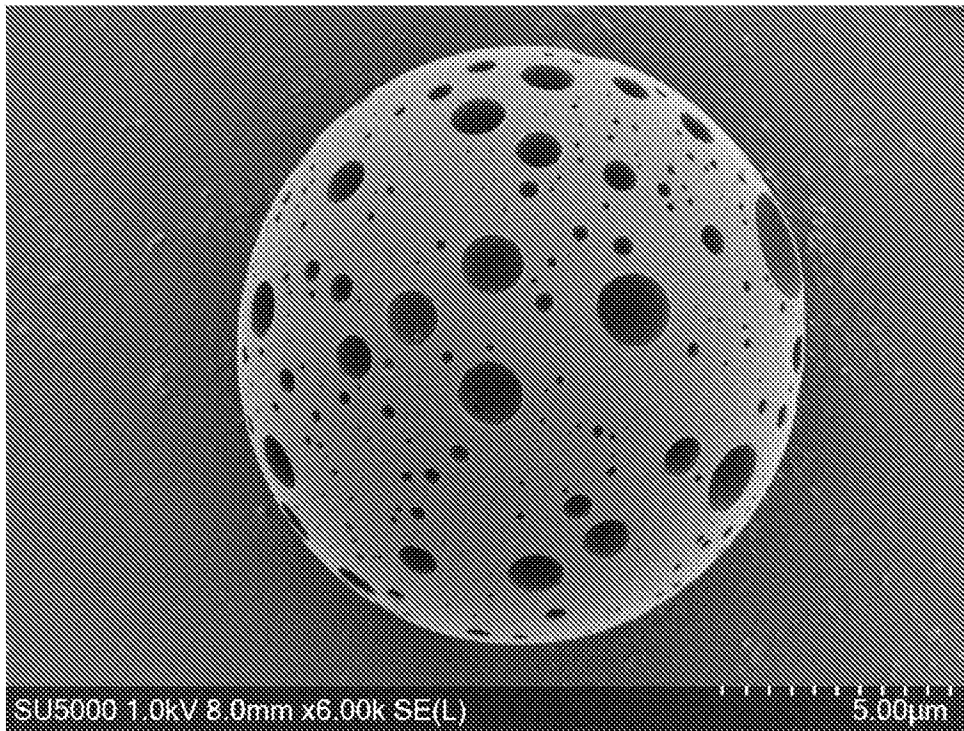
[図1]



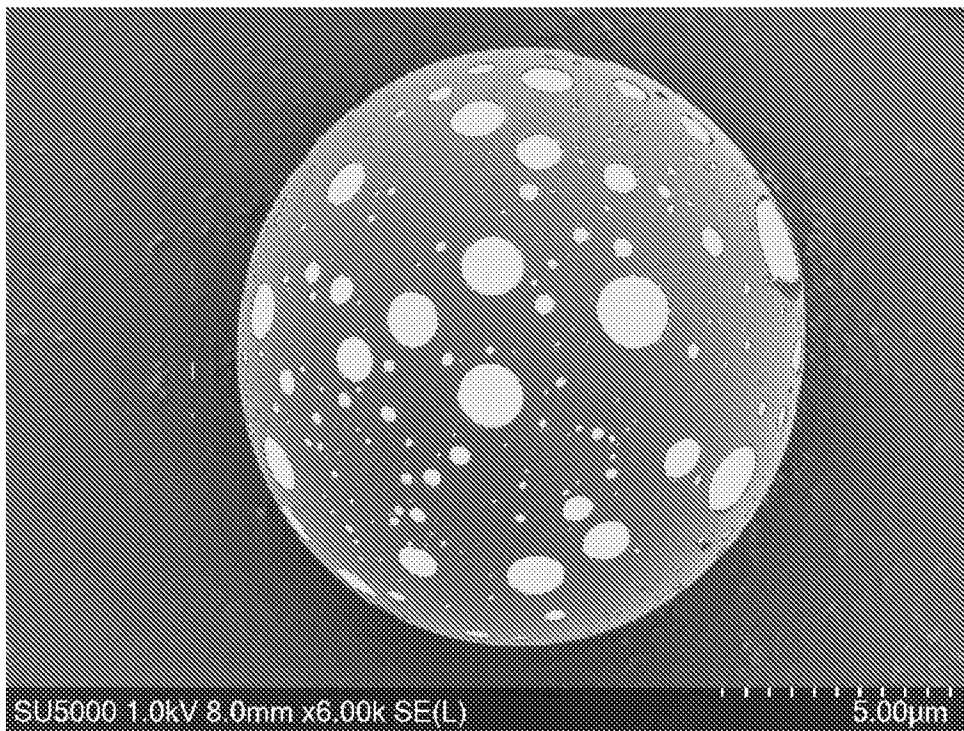
[図2]



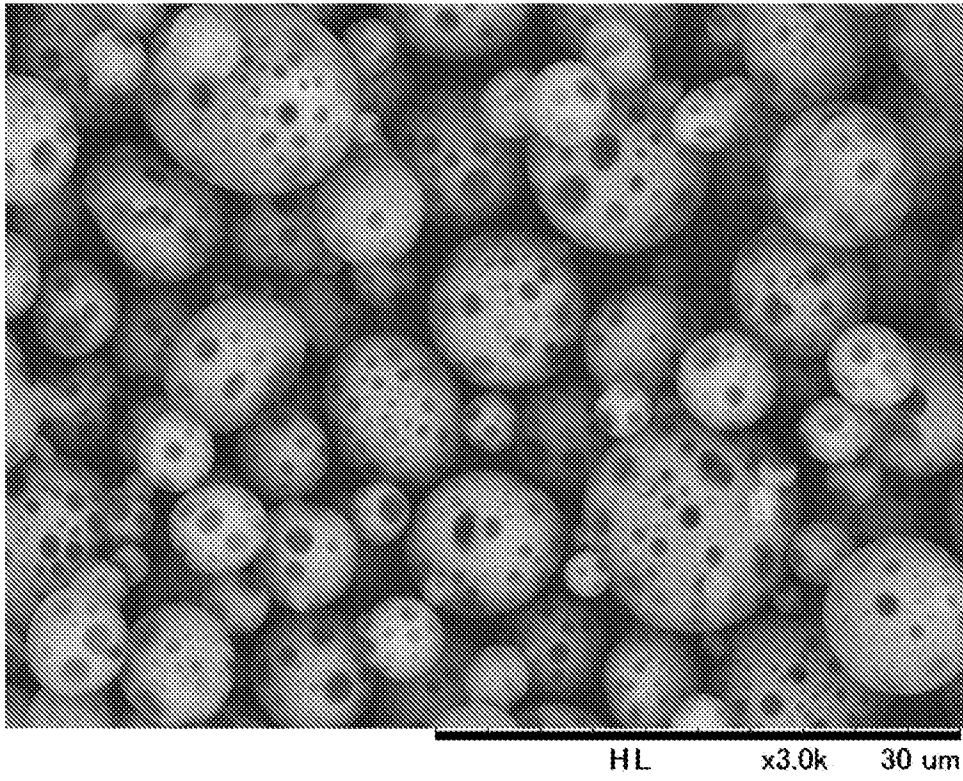
[図3]



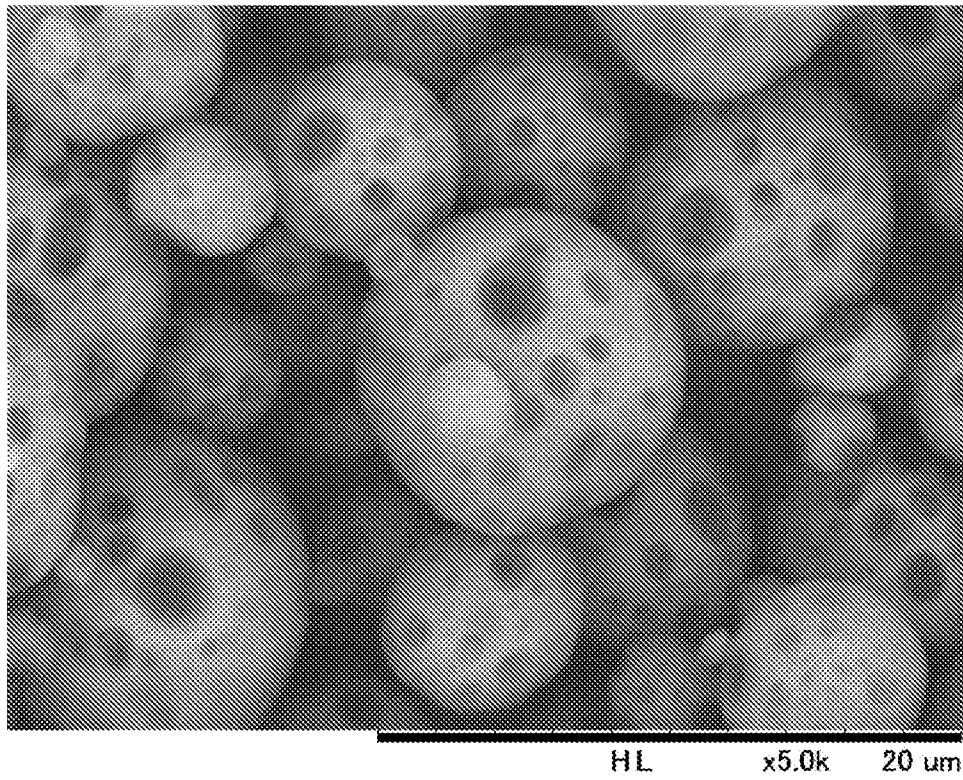
[図4]



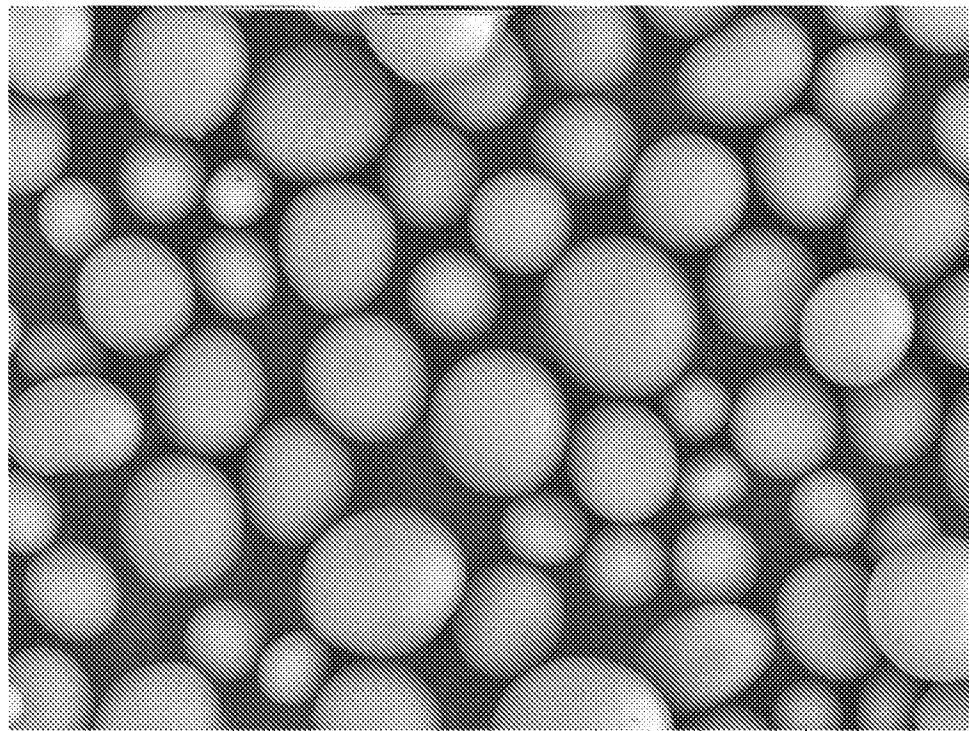
[図5]



[図6]

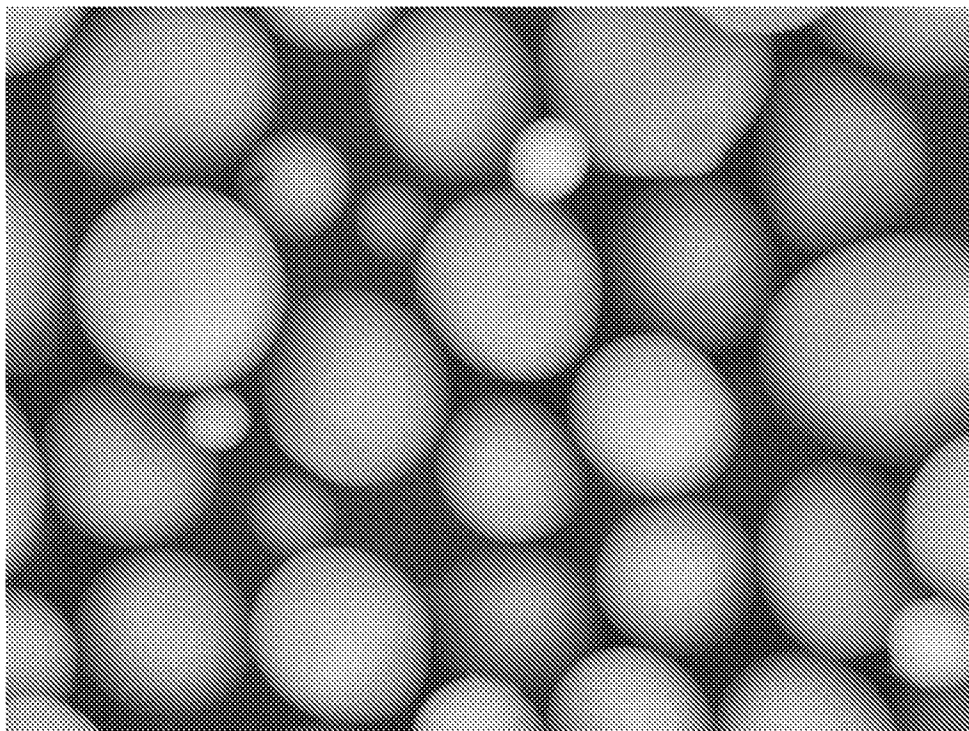


[図7]



HL x3.0k 30 um

[図8]



HL x5.0k 20 um

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2021/025809

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

A61Q 1/02 (2006.01) i; A61Q 1/04 (2006.01) i; A61Q 1/10 (2006.01) i; A61Q 17/04 (2006.01) i; A61Q 19/00 (2006.01) i; A61K 8/37 (2006.01) i; A61K 8/73 (2006.01) i

FI: A61K8/73; A61K8/37; A61Q1/02; A61Q1/04; A61Q1/10; A61Q17/04; A61Q19/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

A61K8/00-99, A61Q1/00-90/00, C08B3/06-10, C08L1/12, C08J3/12

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

Published examined utility model applications of Japan	1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan	1971-2021
Registered utility model specifications of Japan	1996-2021
Published registered utility model applications of Japan	1994-2021

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2019/156116 A1 (DAICEL CORPORATION) 15 August 2019 (2019-08-15) paragraphs [0067]-[0148], fig. 1	1-13
A	JP 11-255959 A (DICEL CHEMICAL INDUSTRIES, LTD.) 21 September 1999 (1999-09-21) paragraph [0014]	1-13

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

* Special categories of cited documents:	"I" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search 11 August 2021 (11.08.2021)	Date of mailing of the international search report 31 August 2021 (31.08.2021)
--	---

Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Authorized officer Telephone No.
--	---

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2021/025809

Patent Documents referred in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
WO 2019/156116 A1	15 Aug. 2019	US 2020/0179261 A1 paragraphs [0071]- [0149], fig. 1 EP 3613794 A1 CN 110650994 A KR 10-2019-0135537 A (Family: none)	
JP 11-255959 A	21 Sep. 1999		

<p>A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））</p> <p>A61Q 1/02(2006.01)i; A61Q 1/04(2006.01)i; A61Q 1/10(2006.01)i; A61Q 17/04(2006.01)i; A61Q 19/00(2006.01)i; A61K 8/37(2006.01)i; A61K 8/73(2006.01)i FI: A61K8/73; A61K8/37; A61Q1/02; A61Q1/04; A61Q1/10; A61Q17/04; A61Q19/00</p>														
<p>B. 調査を行った分野</p> <p>調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））</p> <p>A61K8/00-99, A61Q1/00-90/00, C08B3/06-10, C08L1/12, C08J3/12</p> <p>最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの</p> <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922 - 1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971 - 2021年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996 - 2021年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994 - 2021年</td> </tr> </table> <p>国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）</p>			日本国実用新案公報	1922 - 1996年	日本国公開実用新案公報	1971 - 2021年	日本国実用新案登録公報	1996 - 2021年	日本国登録実用新案公報	1994 - 2021年				
日本国実用新案公報	1922 - 1996年													
日本国公開実用新案公報	1971 - 2021年													
日本国実用新案登録公報	1996 - 2021年													
日本国登録実用新案公報	1994 - 2021年													
<p>C. 関連すると認められる文献</p> <table border="1"> <thead> <tr> <th>引用文献の カテゴリー*</th> <th>引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示</th> <th>関連する 請求項の番号</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>X</td> <td>WO 2019/156116 A1 (株式会社ダイセル) 15.08.2019 (2019 - 08 - 15) [0067] - [0148]、図1</td> <td>1-13</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>JP 11-255959 A (ダイセル化学工業株式会社) 21.09.1999 (1999 - 09 - 21) [0014]</td> <td>1-13</td> </tr> </tbody> </table>			引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号	X	WO 2019/156116 A1 (株式会社ダイセル) 15.08.2019 (2019 - 08 - 15) [0067] - [0148]、図1	1-13	A	JP 11-255959 A (ダイセル化学工業株式会社) 21.09.1999 (1999 - 09 - 21) [0014]	1-13			
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号												
X	WO 2019/156116 A1 (株式会社ダイセル) 15.08.2019 (2019 - 08 - 15) [0067] - [0148]、図1	1-13												
A	JP 11-255959 A (ダイセル化学工業株式会社) 21.09.1999 (1999 - 09 - 21) [0014]	1-13												
<p><input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。</p>														
<table border="0"> <tr> <td>* 引用文献のカテゴリー</td> <td>“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの</td> </tr> <tr> <td>“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの</td> <td>“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの</td> </tr> <tr> <td>“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの</td> <td>“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの</td> </tr> <tr> <td>“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）</td> <td>“&” 同一パテントファミリー文献</td> </tr> <tr> <td>“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</td> <td></td> </tr> <tr> <td>“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献</td> <td></td> </tr> </table>			* 引用文献のカテゴリー	“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの	“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの	“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの	“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの	“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの	“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）	“&” 同一パテントファミリー文献	“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献		“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献	
* 引用文献のカテゴリー	“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの													
“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの	“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの													
“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの	“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの													
“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）	“&” 同一パテントファミリー文献													
“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献														
“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献														
<p>国際調査を完了した日</p> <p>11.08.2021</p>	<p>国際調査報告の発送日</p> <p>31.08.2021</p>													
<p>名称及びあて先</p> <p>日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号</p>	<p>権限のある職員（特許庁審査官）</p> <p>片山 真紀 4D 4505</p> <p>電話番号 03-3581-1101 内線 3421</p>													

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2021/025809

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
WO	2019/156116	A1	15.08.2019	US	2020/0179261	A1	
					[0071] - [0149]		
					9]、図1		
				EP	3613794	A1	
				CN	110650994	A	
				KR	10-2019-0135537	A	
<hr/>							
JP	11-255959	A	21.09.1999	(ファミリーなし)			
<hr/>							