

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2009-513661

(P2009-513661A)

(43) 公表日 平成21年4月2日(2009.4.2)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
<b>A 6 1 K 8/893 (2006.01)</b>	A 6 1 K 8/893	4 C 0 8 3
<b>A 6 1 K 8/34 (2006.01)</b>	A 6 1 K 8/34	
<b>A 6 1 K 8/891 (2006.01)</b>	A 6 1 K 8/891	
<b>A 6 1 K 8/67 (2006.01)</b>	A 6 1 K 8/67	
<b>A 6 1 Q 19/00 (2006.01)</b>	A 6 1 Q 19/00	

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 47 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2008-537950 (P2008-537950)	(71) 出願人	596012272
(86) (22) 出願日	平成18年10月25日 (2006.10.25)		ダウ・コーニング・コーポレーション
(85) 翻訳文提出日	平成20年6月18日 (2008.6.18)		アメリカ合衆国48686ミシガン州ミド
(86) 国際出願番号	PCT/US2006/041831		ランド、ウェスト・サルツバーグ・ロード
(87) 国際公開番号	W02007/053424		2200
(87) 国際公開日	平成19年5月10日 (2007.5.10)	(74) 代理人	100064908
(31) 優先権主張番号	60/732, 392		弁理士 志賀 正武
(32) 優先日	平成17年11月1日 (2005.11.1)	(74) 代理人	100089037
(33) 優先権主張国	米国 (US)		弁理士 渡邊 隆
(31) 優先権主張番号	60/732, 841	(74) 代理人	100108453
(32) 優先日	平成17年11月2日 (2005.11.2)		弁理士 村山 靖彦
(33) 優先権主張国	米国 (US)	(74) 代理人	100110364
			弁理士 実広 信哉

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 活性剤を含むシリコーンベシクル

## (57) 【要約】

シリコーンベシクル組成物およびシリコーンベシクル含有エマルジョンの調製方法、これらにより調製される組成物、ならびにシリコーンベシクルおよびエマルジョン組成物を含む、配合されたパーソナルケアおよびヘルスケア製品が開示される。

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

I) 親水性活性剤の分散体を生成させるために、

A) 少なくとも1つの親水性置換基を有するオルガノポリシロキサン、

B) 水混和性溶媒、

D') 親水性活性剤

を一緒にするステップ；

II) 疎水性活性剤の分散体を生成させるために、

A) 少なくとも1つの親水性置換基を有するオルガノポリシロキサン、

C) 任意選択で、シリコンまたは有機オイル、

D") 疎水性活性剤

を一緒にするステップ；

III) 前記親水性活性剤の分散体と、前記疎水性活性剤の分散体とを一緒にし、ベシクルを生成させるために水を混合するステップ

を含むベシクル組成物の調製方法。

10

## 【請求項 2】

ステップIまたはステップIIが、B') 水混和性揮発性溶媒の添加をさらに含む、請求項1に記載の方法。

## 【請求項 3】

IV) 水混和性揮発性溶媒の除去

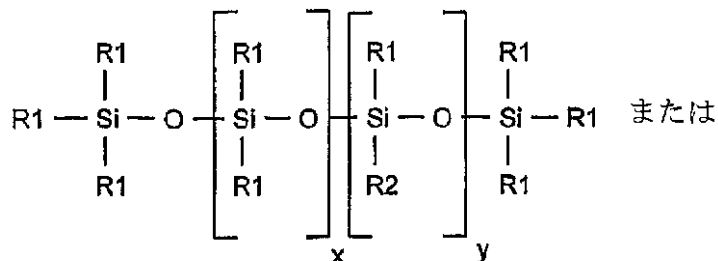
をさらに含む、請求項2に記載の方法。

20

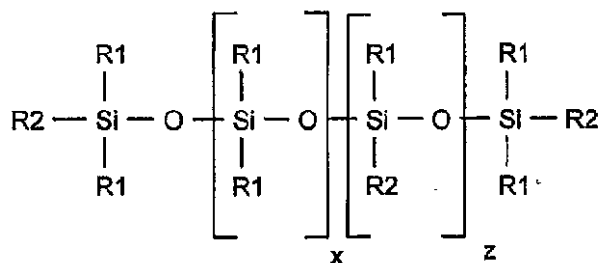
## 【請求項 4】

オルガノポリシロキサンが、式：

## 【化 1】



30



40

[R1は、1～6個の炭素原子を含むアルキル基を表し；

R2は、基-(CH<sub>2</sub>)<sub>a</sub>O(C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>O)<sub>b</sub>(C<sub>3</sub>H<sub>6</sub>O)<sub>c</sub>R3を表し；

xは1～1,000であり；yは1～500であり；zは1～500であり；aは3～6であり；bは4～20であり；cは0～5であり；

R3は、水素、メチル基、またはアシル基である]

を有するシリコンポリエーテルである、請求項1から3のいずれか一項に記載の方法。

## 【請求項 5】

オルガノポリシロキサンが、式：



[x'およびy'は4より大きく、mは2から4であり、nは2より大きく、

50

Rは独立に、1から20個の炭素を含む1価の有機基であり、  
 $R^1$ は、2から30個の炭素を含む2価の炭化水素である]  
 を有する $(AB)_n$ ブロックシリコーンポリエーテルである、請求項1から3のいずれか一項に  
 記載の方法。

【請求項6】

水混和性溶媒B)がグリコールである、請求項1に記載の方法。

【請求項7】

グリコールがプロピレングリコールである、請求項6に記載の方法。

【請求項8】

水混和性揮発性溶媒B')がアルコールである、請求項1に記載の方法。

10

【請求項9】

アルコールがエタノールまたはイソプロパノールである、請求項8に記載の方法。

【請求項10】

成分C)が存在し、揮発性メチルシロキサンである、請求項1に記載の方法。

【請求項11】

D')またはD'')が、ビタミン、サンスクリーン剤、芳香剤、天然植物エキス、または酸化防止剤である、請求項1に記載の方法。

【請求項12】

D''がビタミンAパルミテートである、請求項11に記載の方法。

【請求項13】

20

D'がビタミンCである、請求項12に記載の方法。

【請求項14】

請求項1から14のいずれか一項に記載の方法により調製されるベシクル組成物。

【請求項15】

請求項14に記載のベシクル組成物を含むパーソナルケア製品。

【請求項16】

発汗抑制剤、脱臭剤、スキนครリーム、スキンケアローション、モイスチャライザー、  
 フェイシャルトリートメント、シワのリムーバー、フェイシャルクレンザー、バスオイル、  
 サンスクリーン、プレシェイプローション、アフターシェイプローション、リキッドソ  
 ープ、シェービングソープ、シェービングフォーム、ヘアシャンプー、ヘアコンディショ  
 ナー、ヘアスプレー、ムース、パーマネット、ヘアキューティクルコート、メイクアップ  
 化粧品、カラー化粧品、ファンデーション、ほお紅、リップスティック、リップバーム、  
 アイライナー、マスカラ、マニキュア、およびパウダーから選択される、請求項13に記載  
 のパーソナルケア製品。

30

【請求項17】

I)水性分散体を生成させるために、

A)少なくとも1つの親水性置換基を有するオルガノポリシロキサン、

B)水混和性揮発性溶媒、

C)任意選択で、シリコーンまたは有機オイル、

D)パーソナルケアまたはヘルスケア活性剤

40

を、水と一緒にするステップ；

II)ベシクルを生成させるために、前記水性分散体を混合するステップ；

III)任意選択で、前記ベシクルから前記水混和性揮発性溶媒を除去するステップ；

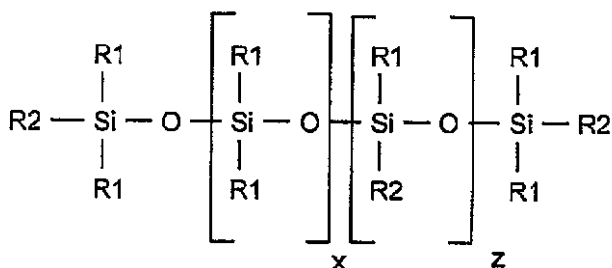
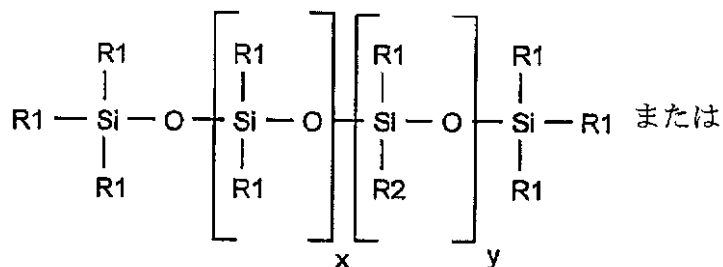
IV)エマルジョンに前記ベシクルを加えるステップ

を含む、ベシクル含有エマルジョンの調製方法。

【請求項18】

オルガノポリシロキサンが、式：

## 【化 2】



10

[R1は、1～6個の炭素原子を含むアルキル基を表し；

R2は、基-(CH<sub>2</sub>)<sub>a</sub>O(C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>O)<sub>b</sub>(C<sub>3</sub>H<sub>6</sub>O)<sub>c</sub>R3を表し；

xは1～1,000であり；yは1～500であり；zは1～500であり；aは3～6であり；bは4～20であり；c

20

は0～5であり；

R3は、水素、メチル基、またはアシル基である]

を有するシリコーンポリエーテルである、請求項17に記載の方法。

## 【請求項 19】

オルガノポリシロキサンが、式：



[x'およびy'は4より大きく、mは、2から4であり、nは2より大きく、

Rは独立に、1から20個の炭素を含む1価の有機基であり、

R<sup>1</sup>は、2から30個の炭素を含む2価の炭化水素である]

を有する(AB)<sub>n</sub>ブロックシリコーンポリエーテルである、請求項17に記載の方法。

30

## 【請求項 20】

水混和性揮発性溶媒がアルコールである、請求項17に記載の方法。

## 【請求項 21】

アルコールがエタノールまたはイソプロパノールである、請求項20に記載の方法。

## 【請求項 22】

成分C)が存在し、揮発性メチルシロキサンである、請求項17に記載の方法。

## 【請求項 23】

パーソナルケア活性剤がビタミンである、請求項17に記載の方法。

## 【請求項 24】

ビタミンがビタミンAパルミテートである、請求項23に記載の方法。

40

## 【請求項 25】

パーソナルケア活性剤がサンスクリーン剤である、請求項17に記載の方法。

## 【請求項 26】

パーソナルケア活性剤が芳香剤または香料である、請求項17に記載の方法。

## 【請求項 27】

ヘルスケア活性剤が医薬である、請求項17に記載の方法。

## 【請求項 28】

前記エマルジョンが、水/油のエマルジョン、水/シリコーンのエマルジョン、水中油のエマルジョン、または水中シリコーンのエマルジョンである、請求項17に記載の方法。

## 【請求項 29】

50

エマルジョンが多重相エマルジョンである、請求項17に記載の方法。

【請求項30】

請求項17から29のいずれか一項に記載の方法により調製されるエマルジョン組成物。

【請求項31】

請求項30に記載のエマルジョン組成物を含むパーソナルケア製品。

【請求項32】

発汗抑制剤、脱臭剤、スキンクリーム、スキンケアローション、モイスチャライザー、フェイシャルトリートメント、シワのリムーバー、フェイシャルクレンザー、バスオイル、サンスクリーン、プレシェイブローション、アフターシェイブローション、リキッドソープ、シェービングソープ、シェービングフォーム、ヘアシャンプー、ヘアコンディショナー、ヘアスプレー、ムース、パーマメント、ヘアキューティクルコート、メイクアップ化粧品、カラー化粧品、ファンデーション、ほお紅、リップスティック、リップバーム、アイライナー、マスカラ、マニキュア、およびパウダーから選択される、請求項31に記載のパーソナルケア製品。

10

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本出願は、2005年11月1日に出願された米国特許仮出願第60/732392号、および2006年11月2日に提出された米国特許仮出願第60/732841号に対する優先権を主張する。

【0002】

本発明は、シリコーンベシクル組成物およびシリコーンベシクルを含むエマルジョンの調製方法、これらにより調製される組成物、ならびにシリコーンベシクルおよびエマルジョン組成物を含む、配合されたパーソナルケアおよびヘルスケア製品に関する。

20

【背景技術】

【0003】

化粧品の分野および医薬の配合物/デリバリーの分野において長年求められているのは、容易に生成し活性剤を取り込み、様々な化学的および機械的変形作用の下で安定でありながら、所望の条件の下で制御された仕方で活性剤をデリバリーできるベシクル組成物を同定することである。シリコーン界面活性剤、より特定するとシリコーンポリエーテル界面活性剤から誘導されるベシクルは、この種類の界面活性剤が他のタイプに対して有する特有の付加的な利点のために、興味深い。例えば、シリコーンポリエーテル界面活性剤は、しばしば、パーソナルケア配合物において、美しさを向上させる。

30

【0004】

ベシクルの分野において長く求められているのは、疎水性および親水性の活性剤の同時取り込みである。しばしば、ベシクル構造は、疎水性または親水性の活性剤のいずれかをとり込むように最適化される。疎水性および親水性の活性剤を、時間が経っても安定なままである同じベシクル組成物に、効率的に、同時に取り込むのは困難であることが確認されている。

【特許文献1】米国特許仮出願第60/732392号

【特許文献2】米国特許仮出願第60/732841号

40

【特許文献3】米国特許第4122029号

【特許文献4】米国特許第5387417号

【特許文献5】米国特許第5811487号

【特許文献6】WO03/101412

【特許文献7】WO99/06473

【非特許文献1】連邦規則集(Code of Federal Regulations)のTitle 21、Chapter I、Parts 200~299およびParts 300~499

【非特許文献2】S. Arctander「Perfume and Flavour Chemicals」(1969年、Montclair、ニュージャージー州)

【発明の開示】

50

## 【発明が解決しようとする課題】

## 【0005】

本発明者等は、シリコーンに基づくベシクルを用いて、疎水性および親水性の活性剤の両方を、同時に取り込む効率的な方法を見出した。

## 【課題を解決するための手段】

## 【0006】

本発明は、

I) 親水性活性剤の分散体を生成させるために、

A) 少なくとも1つの親水性置換基を有するオルガノポリシロキサン、

B) 水混和性溶媒、

D') 親水性活性剤

を一緒にするステップ;

II) 疎水性活性剤の分散体を生成させるために、

A) 少なくとも1つの親水性置換基を有するオルガノポリシロキサン、

C) 任意選択で、シリコーンまたは有機オイル、

D") 疎水性活性剤

を一緒にするステップ;

III) 前記親水性活性剤の分散体と、前記疎水性活性剤の分散体とを一緒にし、ベシクルを生成させるために水を混合するステップ

を含むベシクル組成物の調製方法に関する。

## 【発明を実施するための最良の形態】

## 【0007】

本発明はまた、

I) 水性分散体を生成させるために、

A) 少なくとも1つの親水性置換基を有するオルガノポリシロキサン、

B) 水混和性揮発性溶媒、

C) 任意選択で、シリコーンまたは有機オイル、

D) パーソナルケアまたはヘルスケア活性剤

を、水と一緒にするステップ;

II) ベシクルを生成させるために、前記水性分散体を混合するステップ;

III) 任意選択で、前記ベシクルから前記水混和性揮発性溶媒を除去するステップ;

IV) エマルジョンに前記ベシクルを加えるステップ

を含む、ベシクル含有エマルジョンの調製方法にも関する。

## 【0008】

本発明は、さらに、本発明の方法によって調製されたベシクルおよびエマルジョン組成物、ならびにベシクル組成物を含む、パーソナルケア、家庭のケア、ヘルスケア製品組成物に関する。

## 【0009】

## [A) オルガノポリシロキサン成分]

成分A)は、少なくとも1つの親水性置換基を有するオルガノポリシロキサンである。オルガノポリシロキサンは当技術分野においてよく知られており、いくつかの数の、「M」シロキシ単位( $R_3SiO_{0.5}$ )、「D」シロキシ単位( $R_2SiO$ )、「T」シロキシ単位( $RSiO_{1.5}$ )、または「Q」シロキシ単位( $SiO_2$ )(ここで、Rは独立に、任意の炭化水素基である)を含むとしてしばしば示される。本発明において、オルガノポリシロキサンは少なくとも親水性置換基を有する。すなわち、オルガノポリシロキサンに存在する炭化水素基Rの少なくとも1つは、親水性基である。本発明の目的では、「親水性基」は当技術分野において受け入れられている意味である、すなわち、水を好む化学構造部分(chemical moiety)を意味する。したがって、親水性基は、界面活性剤構造、または表面活性挙動を有する分子を生み出すために、様々な疎水性化学構造部分と組み合わせて広く用いられる、様々な陽イオン性、陰イオン性、双性イオン性、ポリオキシアルキレン、オキサゾリンの化学構造部分から選

10

20

30

40

50

択される。

【 0 0 1 0 】

オルガノポリシロキサンの親水性置換基の量は、オルガノポリシロキサンに存在する少なくとも1つの親水性基があるという条件で、特定の化学成分に応じて様々であり得る。しかし、オルガノポリシロキサンに存在する親水性基の量は、その重量パーセントによって、すなわち、より詳細には、オルガノポリシロキサンの重量パーセント、および1分子に存在する親水性基の全体の重量パーセントによって記述できる。通常、オルガノポリシロキサンのシロキサン単位の重量パーセントは、20から85まで、代わりに、30から85まで、または代わりに、35から80まで様々であり得るが、オルガノポリシロキサンの残りの重量部分が親水性基である。

10

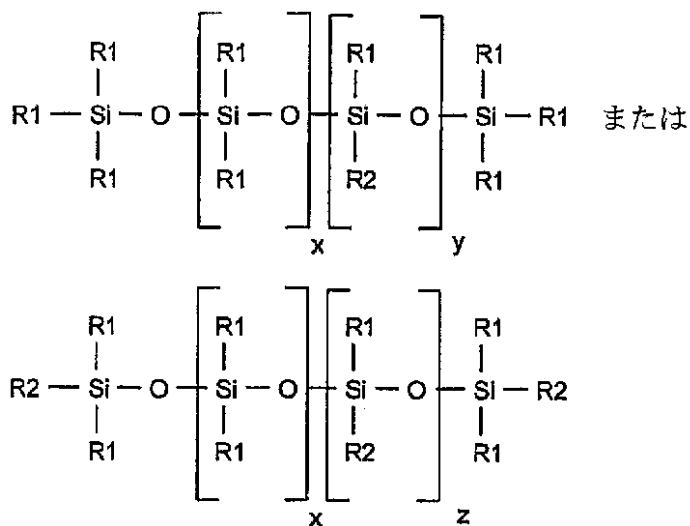
【 0 0 1 1 】

本発明の一実施形態において、少なくとも1つの親水性置換基を有するオルガノポリシロキサンは、シリコーンポリエーテルから選択される。シリコーンポリエーテル(SPE)は、一般的に、ポリエーテルまたはポリオキシアルキレン基を含むシリコーンを表し、これらのシリコーンは多くの異なる構造形態にあり得る。このような形態の1つは熊手型(rake-type)SPEであり、これらは、最も一般的には、Pt触媒の存在の下でのアシルオキシ官能性ポリエーテルによる、SiH官能性オルガノシロキサンのヒドロシリル化により誘導される。この実施形態では、成分(A)はシリコーンポリエーテルであり、次の式により表される構造を有する。

20

【 0 0 1 2 】

【 化 1 】



30

【 0 0 1 3 】

これらの構造において、R1は、1~6個の炭素原子を含むアルキル基、例えば、メチル、エチル、プロピル、ブチル、ペンチル、およびヘキシルを表し；R2は、基-(CH<sub>2</sub>)<sub>a</sub>O(C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>O)<sub>b</sub>(C<sub>3</sub>H<sub>6</sub>O)<sub>c</sub>R3を表し；xは、1~1,000、代わりに1~500、または代わりに10~300の値を有し；yは、1~500、代わりに1~100、または代わりに2~50の値を有し；zは、1~500、代わりに1~100の値を有し；aは3~6の値を有し；bは4~20の値を有し；cは0~5の値を有し；R3は、水素、メチル基、またはアシル基(例えば、アセチル)である。通常、R1はメチルであり、bは6~12であり、cはゼロであり、またR3は水素である。

40

【 0 0 1 4 】

好ましくは、熊手型SPE(シリコーンポリエーテル)は、5/1から50/1、代わりに、15/1から50/1、または代わりに、20/1から50/1の範囲のD/D'(すなわち、x/yの比)を有する。

【 0 0 1 5 】

第2の実施形態において、成分(A)は、(AB)<sub>n</sub>ブロックシリコーンポリエーテル(ポリオル

50

ガノシロキサン-ポリオキシアルキレンのブロックコポリマー)であり、次の平均式を有する。

$$[\text{式I}] \quad -[\text{R}^1(\text{R}_2\text{SiO})_{x'}(\text{R}_2\text{SiR}^1\text{O})(\text{C}_m\text{H}_{2m}\text{O})_{y'}]_n-$$

ここで、 $x'$  および  $y'$  は4より大きく、 $m$  は、2から4(両端の数を含む)であり、 $n$  は2より大きく、 $\text{R}$  は独立に、1から20個の炭素を含む1価の有機基であり、 $\text{R}^1$  は、2から30個の炭素を含む2価の炭化水素である。

#### 【0016】

式Iにおけるシロキサンプロックは、主として、式 $(\text{R}_2\text{SiO})_{x'}$ を有する線状シロキサンプリマーであり、式中、 $\text{R}$  は独立に、1価の有機基から選択され、 $x'$  は、4より大きい整数であり、代わりに、 $x'$  は、20から100、または30から75の範囲にある。

10

#### 【0017】

シロキサンプリマーにおいて $\text{R}$ により表される有機基は、脂肪族不飽和を含まない。これらの有機基は、独立に、脂肪族不飽和を含まない1価の炭化水素基および1価のハロゲン化炭化水素基から選択され得る。これらの1価の基は、1から20個の炭素原子、代わりに、1から10個の炭素原子を有することができ、これらに限らないが、アルキル基、例えば、メチル、エチル、プロピル、ブチル、ペンチル、ヘキシル、ペプチル、オクチル、ウンデシル、およびオクタデシル;シクロアルキル、例えば、シクロヘキシル;アリール、例えば、フェニル、トリル、キシリル、ベンジル、および2-フェニルエチル;ならびに、ハロゲン化炭化水素基、例えば、3,3,3-トリフルオロプロピル、3-クロロプロピル、およびジクロロフェニルにより例示される。オルガノポリシロキサンにおける有機基の少なくとも50パーセント、代わりに、少なくとも80%が、メチル( $\text{Me}$ と記される)であり得る。通常、シリコーンブロックは、主として、式 $(\text{Me}_2\text{SiO})_{x'}$ ( $x'$ は上で定義された通りである)を有する線状ポリジメチルシロキサンである。

20

#### 【0018】

シリコーンポリエーテルのポリオキシアルキレンブロックは、式 $(\text{C}_m\text{H}_{2m}\text{O})_{y'}$ により表され、式中、 $m$  は2から4(両端の数を含む)であり、 $y'$  は4より大きく、代わりに、 $y'$  は5から30、または代わりに5から22の範囲であり得る。このポリオキシアルキレンブロックは、通常、オキシエチレン単位 $(\text{C}_2\text{H}_4\text{O})_{y'}$ 、オキシプロピレン単位 $(\text{C}_3\text{H}_6\text{O})_{y'}$ 、オキシブチレン単位 $(\text{C}_4\text{H}_8\text{O})_{y'}$ 、またはこれらの混合を含み得る。通常、ポリオキシアルキレンブロックは、オキシエチレン単位 $(\text{C}_2\text{H}_4\text{O})_{y'}$ を含む。

30

#### 【0019】

式Iにおける各ポリオキシアルキレンブロックの少なくとも1つの末端は、2価の有機基( $\text{R}^1$ で示される)によりシリコーンブロックに連結している。この連結は、 $(\text{AB})_n$ ブロックシリコーンポリエーテルコポリマーを調製するために用いられる反応によって決められる。2価有機基の $\text{R}^1$ は、独立に、2から30個の炭素を含む2価の炭化水素、および2から30個の炭素を含む2価の有機官能性炭化水素から選択され得る。このような2価の炭化水素基の非限定的で代表的な例には、エチレン、プロピレン、ブチレン、ペンチレン、ヘキシレン、ヘプチレン、オクチレンなどが含まれる。このような2価の有機官能性炭化水素基の非限定的で代表的な例には、アクリレートおよびメタクリレートが含まれる。通常、 $\text{R}^1$ はプロピレン $(-\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2-)$ である。

40

#### 【0020】

前記 $(\text{AB})_n$ ブロックのシリコーンポリエーテルは末端封鎖(endblock)される。末端封鎖単位もまた、 $(\text{AB})_n$ ブロックのシリコーンポリエーテルコポリマーを調製するために用いられる反応によって決められ、それは、通常、用いられた反応物の残留反応基である。例えば、 $(\text{AB})_n$ ブロックのシリコーンポリエーテルコポリマーは、ジアリルポリエーテル(すなわち、アリル基が各分子の末端に存在する)と $\text{SiH}$ 末端ポリオルガノシロキサンとの、金属触媒によるヒドロシリル化反応によって調製され得る。得られる $(\text{AB})_n$ ブロックのシリコーンポリエーテルコポリマーは、プロピレンオキシ基 $(-\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{O}-)$ を通してシリコーンブロックに連結したポリオキシアルキレンブロックを有するであろうし、アリルポリエーテルを僅かに過剰なモル数で用いると、アリル末端封鎖単位 $(-\text{CH}_2\text{CHCH}_2)$ を生じるであ

50



ろう。代替りの末端封鎖単位は、 $(AB)_n$ ブロックのシリコンポリエーテルコポリマーを調製するために用いられる反応に、シロキサブロックまたはポリエーテルブロックの中間体と反応できる他の分子を添加することにより生じ得る。例えば、モノ末端脂肪族不飽和を有する有機化合物(例えば、モノアリル末端ポリエーテル)の添加は、 $(AB)_n$ ブロックシリコンポリエーテルコポリマーに、その有機化合物による末端キャップを生じるであろう。好ましくは、 $(AB)_n$ ブロックシリコンポリエーテルの末端封鎖単位は、アリルエーテル( $CH_2=CHCH_2O-$ )、アリルポリエーテル、メチルアリルエーテル、またはメチルアリルポリエーテルである。

【0021】

$(AB)_n$ ブロックシリコンポリエーテルコポリマーの分子量は、式Iにおける下付き文字  $n$  により示される、繰返しシロキサブロックおよびポリオキシエチレンブロックの数によって決まる。通常、 $n$ の値は、重量平均分子量(Mw)を、1,500から150,000、代わりに、10,000から100,000の範囲にするようなものである。

【0022】

本発明のベシクル組成物の $(AB)_n$ SPEは、 $(AB)_n$ ブロックシリコンポリエーテルにおける全シロキサ単位とポリオキシエチレン単位とが、あるモル比を有する。この分子パラメータは、式Iにおける $x'/(x'+y')$ の値によって表される。 $x'/(x'+y')$ の値は、0.4から0.9まで、または代わりに、0.55から0.9まで変わり得る。

【0023】

本発明のベシクル組成物の調製に有用である $(AB)_n$ SPEは、このようなブロックコポリマーを調製するための、当技術分野において知られているどのような方法によって調製されてもよい。しかし、通常、本発明のベシクル組成物の調製に有用である $(AB)_n$ SPEは、SiH末端オルガノポリシロキサンと、分子末端の各々に不飽和炭化水素基を有するポリオキシエチレンとを、ヒドロシリル化反応で反応させるステップを含み、この場合、反応における不飽和炭化水素基とSiHとのモル比は、少なくとも1:1である方法から得られる。

【0024】

[B]水-混和性溶媒]

成分B)は、水-混和性揮発溶媒である。本明細書では、「水-混和性」は、その溶媒が水と室温で少なくとも数時間、分散体を生成することを意味する。成分B')は、水-混和性の揮発性溶媒である。「揮発性」は、その溶媒が様々な温度で水より大きな蒸気圧を有することを意味する。このため、オルガノポリシロキサンおよび溶媒の水性分散体が、溶媒を除去しようとする条件(例えば、減圧下に分散体を加熱すること)に置かれた時に、最初に揮発性溶媒が主として除去されるので、水の全てまたはほとんどが組成物に留まる。

【0025】

ベシクル分散体調製に適する水-混和性の揮発性溶媒には、アルコール、エーテル、グリコール、エステル、酸、ハロゲン化炭化水素、ジオールのような有機溶媒が含まれる。これらの有機溶媒は、効果的にシリコンを分散させ、経時的に安定で均一な分散体を保てる比率、およびより少ない比率で、水と混和性であるべきである。例示として、水-混和性アルコールには、メタノール、エタノール、プロパノール、イソプロパノール、ブタノール、および高級炭化水素アルコールが含まれ;エーテルには、グリコールエーテル、メチルエチルエーテル、メチルイソブチルエーテル(MIBE)などが含まれ;グリコールには、プロピレングリコールが含まれ;エステルには、トリグルセロールのエステル、酸とアルコールのエステル化生成物が含まれ;ハロゲン化炭化水素にはクロロホルムが含まれる。通常、水-混和性有機溶媒は、沸点が比較的低い( $<100^\circ\text{C}$ )か、または蒸発速度が大きい溶媒であるため、それらは、真空下に容易に除去され得る。本発明にとって最も好ましい水-混和性有機溶媒は、メタノール、エタノール、イソプロパノール、およびプロパノールを含めて、揮発性アルコールである。これらのアルコールは、雰囲気温度での真空ストリッピングにより、シリコンベシクル分散体を含む水性混合物から除去できる。

【0026】

[C]任意選択のシリコンまたは有機オイル成分]

10

20

30

40

50

任意選択の成分C)はシリコーンまたは有機オイルである。このシリコーンは、一般式 $R_i\text{SiO}_{(4-i)/2}$ (式中、 $i$ は1から3の平均値を有し、 $R$ は1価の有機基である)を有するどのようなオルガノポリシロキサンであってもよい。このオルガノポリシロキサンは、環状、線状、分岐状、およびこれらの混合物であってもよい。

#### 【0027】

一実施形態において、成分C)は、低分子量の線状および環状揮発性メチルシロキサンを含む揮発性メチルシロキサン(VMS)である。シクロメチコンのCTFAの定義に合致する揮発性メチルシロキサンは、低分子量シロキサンの定義の範囲内であると見なされている。

#### 【0028】

線状VMSは、式、 $(\text{CH}_3)_3\text{SiO}\{(\text{CH}_3)_2\text{SiO}\}_f\text{Si}(\text{CH}_3)_3$ を有する。 $f$ の値は0~7である、環状VSMは、式、 $\{(\text{CH}_3)_2\text{SiO}\}_g$ を有する。 $g$ の値は3~6である。好ましくは、これらの揮発性メチルシロキサンは、1,000未満の分子量;250 未満の沸点;および、0.65から5.0センチストークス( $\text{mm}^2/\text{s}$ )で、通常、5.0センチストークス( $\text{mm}^2/\text{s}$ )を超えない粘度;を有する。

#### 【0029】

代表的な揮発性線状メチルシロキサンは、ヘキサメチルジシロキサン(MM)(100 の沸点、 $0.65\text{mm}^2/\text{s}$ の粘度、および、式 $\text{Me}_3\text{SiOSiMe}_3$ を有する);オクタメチルトリシロキサン(MDM)(152 の沸点、 $1.04\text{mm}^2/\text{s}$ の粘度、および、式 $\text{Me}_3\text{SiOMe}_2\text{SiOSiMe}_3$ を有する);デカメチルトetraシロキサン( $\text{MD}_2\text{M}$ )(194 の沸点、 $1.53\text{mm}^2/\text{s}$ の粘度、および、式 $\text{Me}_3\text{SiO}(\text{Me}_2\text{SiO})_2\text{SiMe}_3$ を有する);ドデカメチルペンタシロキサン( $\text{MD}_3\text{M}$ )(229 の沸点、 $2.06\text{mm}^2/\text{s}$ の粘度、および、式 $\text{Me}_3\text{SiO}(\text{Me}_2\text{SiO})_3\text{SiMe}_3$ を有する);テトラデカメチルヘキサシロキサン( $\text{MD}_4\text{M}$ )(245 の沸点、 $2.63\text{mm}^2/\text{s}$ の粘度、および、式 $\text{Me}_3\text{SiO}(\text{Me}_2\text{SiO})_4\text{SiMe}_3$ を有する);ならびに、ヘキサデカメチルヘプタシロキサン( $\text{MD}_5\text{M}$ )(270 の沸点、 $3.24\text{mm}^2/\text{s}$ の粘度、および、式 $\text{Me}_3\text{SiO}(\text{Me}_2\text{SiO})_5\text{SiMe}_3$ を有する)である。

#### 【0030】

代表的な揮発性環状メチルシロキサンは、ヘキサメチルシクロトリシロキサン( $\text{D}_3$ )(固体で、134 の沸点、223の分子量、および、式 $\{(\text{Me}_2)\text{SiO}\}_3$ を有する);オクタメチルシクロテトラシロキサン( $\text{D}_4$ )(176 の沸点、 $2.3\text{mm}^2/\text{s}$ の粘度、297の分子量、および、式 $\{(\text{Me}_2)\text{SiO}\}_4$ を有する);デカメチルシクロペンタシロキサン( $\text{D}_5$ )(210 の沸点、 $3.87\text{mm}^2/\text{s}$ の粘度、371の分子量、および、式 $\{(\text{Me}_2)\text{SiO}\}_5$ を有する);ならびに、ドデカメチルシクロヘキサシロキサン( $\text{D}_6$ )(245 の沸点、 $6.62\text{mm}^2/\text{s}$ の粘度、445の分子量、および、式 $\{(\text{Me}_2)\text{SiO}\}_6$ を有する)である。

#### 【0031】

成分C)として選択されるシリコーンは、どのようなポリジオルガノシロキサン流体、ゴム、またはこれらの混合物であってもよい。ポリジオルガノシロキサンが1000以上の分子量を有する場合、それは、前記の揮発性メチルシロキサンとブレンドされ得る。本発明に適するポリジオルガノシロキサングムは、本質的に、ジメチルシロキサン単位と、モノメチルシロキサン、トリメチルシロキサン、メチルビニルシロキサン、メチルエチルシロキサン、ジエチルシロキサン、メチルフェニルシロキサン、ジフェニルシロキサン、エチルフェニルシロキサン、ビニルエチルシロキサン、フェニルビニルシロキサン、3,3,3-トリフルオロプロピルメチルシロキサン、ジメチルフェニルシロキサン、メチルフェニルビニルシロキサン、ジメチルエチルシロキサン、3,3,3-トリフルオロプロピルジメチルシロキサン、モノ-3,3,3-トリフルオロプロピルシロキサン、アミノアルキルシロキサン、モノフェニルシロキサン、モノビニルシロキサンなどにより表される別の単位とからなる。

#### 【0032】

成分C)が有機オイルである場合、それは、パーソナルケア、家庭のケア、またはヘルスケア配合物の調製に使用されるのに適する、当技術分野において知られているどのような有機オイルから選択されてもよい。適切な有機オイルには、これらに限らないが、天然オイル、例えば、ココナッツオイル;炭化水素、例えば、ミネラルオイルおよび水素添加ポリブタジエン;脂肪アルコール、例えば、オクチルドデカノール;エステル、例えば、C12~C15アルキル安息香酸エステル;ジエステル、例えば、ジペラルゴン酸プロピレングリコ

10

20

30

40

50

ール;ならびに、トリエステル、例えば、トリオクタン酸グリセリル;が含まれる。有機オイル成分はまた、低粘度および高粘度のオイルの混合物であってもよい。適切な低粘度オイルは、25℃で5から100mPa・sの粘度を有し、通常、構造RCO-OR'(式中、RCOは、カルボン酸基を表し、OR'は、アルコール残基を表す)を有するエステルである。これらの低粘度オイルの例には、イソノナン酸イソトリデシル、ジヘプタン酸PEG-4、ネオペンタン酸イソステアリル、ネオペンタン酸トリデシル、オクタン酸セチル、パルミチン酸セチル、リシノール酸セチル、ステアリン酸セチル、ミリスチン酸セチル、ココ-ジカプリラート/カプラート、イソステアリン酸デシル、オレイン酸イソデシル、ネオペンタン酸イソデシル、ネオペンタン酸イソヘキシル、パルミチン酸オクチル、リンゴ酸ジオクチル、オクタン酸トリデシル、ミリスチン酸ミリスチル、オクトドデカノール(octododecanol)、またはオクチルドデカノールの混合物、アセチル化ラノリンアルコール、酢酸セチル、イソドデカノール、ジイソステアリン酸ポリグリセリル-3、あるいはこれらの混合物が含まれる。高粘度表面オイル(surface oil)は、一般的に、25℃で200~1,000,000mPa・sの粘度、好ましくは、100,000~250,000mPa・sの粘度を有する。表面オイルには、ヒマシ油、ラノリンおよびラノリン誘導体、クエン酸トリイソセチル、セスキオレイン酸ソルビタン、C10~18トリグリセリド、カプリル酸/カプリン酸/トリグルセリド、ココナッツオイル、トウモロコシ油、綿実油、トリアセチルヒドロキシステアリン酸グリセリル、トリアセチルリシノール酸グリセリル、トリオクタン酸グリセリル、水素添加ヒマシ油、亜麻仁油、ミンクオイル、オリーブオイル、パーム油、イリッペ(ilipe)バター、菜種油、大豆油、ヒマワリ油、牛脂(tallow)、トリカプリン、トリヒドロキシステアリン、トリイソステアリン、トリラウリン、トリリノレイン、トリミリスチン、トリオレイン、トリパルミチン、トリステアリン、クルミ油、小麦胚芽油、コレステロール、またはこれらの混合物が含まれる。他の任意選択の非シリコーン脂肪物質の中で、特に挙げることができるのは、ミネラルオイル(例えば、液体パラフィンまたは液状ワセリン(liquid petrolatum))、動物油(例えば、ペルヒドロスクワレンまたはアララ油(arara oil))、あるいは代わりに、植物油(例えば、スイートアーモンドオイル、パーム油、ヒマシ油、アボガドオイル、ホホバオイル、オリーブオイルまたは穀物胚芽油)である。例えば、ラノリン酸(lanolic acid)、オレイン酸、ラウリン酸、ステアリン酸またはミリスチン酸のエステル;アルコール、例えば、オレイルアルコール、リノリルアルコールまたはリノレニルアルコール、イソステアリルアルコールまたはオクチルドデカノール;あるいは、アセチルグリセリド、アルコールまたは多価アルコールのオクタン酸エステル、デカン酸エステルまたはリシノール酸エステルを用いることもまた可能である。代わりに、25℃で固体の水素添加オイル、例えば、水素添加されたヒマシ油、パーム油またはココナッツオイル、あるいは水素添加された牛脂;モノ-、ジ-、またはトリ-スクログリセリド;ラノリン;あるいは、25℃で固体の脂肪エステル;を用いることが可能である。

10

20

30

40

50

#### 【0033】

これらの有機オイルは、ベシクル系におけるパーソナルケアまたはヘルスケア活性物質であるD)成分の溶解性を向上させ、これらの活性物質の経皮吸収を賦活(stimulate)、より良好な耐水性および触感を製品に付与するいくつかの効果を有する。いくつかのエステルは、D)成分の経皮吸収を賦活する注目すべき効果を有する。いくつかのワックスは、製品のベシクル系におけるパーソナルケアおよびヘルスケア活性物質の安定性、耐腐朽性(decay resistance)、耐水性および保持を向上させるという利点を有する。さらに、これらの有機オイルを、天然植物または海草のエキスによるもの(例えば、オリーブオイルまたはスイートアーモンドオイル)に限定することによって、製品は、肌に優しく、また消費者にとって好ましいイメージを有するであろう。

#### 【0034】

##### [D)疎水性または親水性の活性剤]

成分D)は、親水性(D')または疎水性(D'')のいずれかの活性剤である。活性剤は、どのようなパーソナルケアまたはヘルスケア活性剤から選択されてもよい。本明細書では、「パーソナルケア活性剤」は、化粧上の利点および/または美的利点をもたらすために、毛髪

または皮膚をトリートメントする目的で通常添加される、パーソナルケア配合物における添加剤として当技術分野において知られている任意の化合物または化合物の混合物を意味する。「ヘルスケア活性剤」は、医薬としての利点または医療上の利点をもたらすと、当技術分野において知られている任意の化合物または化合物の混合物を意味する。したがって、「ヘルスケア活性剤」には、一般的に使用され、米国保険福祉省(Department of Health & Human Services)の食品医薬品局(Food and Drug Administration)により定められる(連邦規則集(Code of Federal Regulations)のTitle 21、Chapter 1、Parts 200 ~ 299 およびParts 300 ~ 499に含まれる)活性成分または活性薬剤成分と考えられる物質が含まれる。

#### 【0035】

このように、活性成分には、疾患の診断、治療、軽減、治療、または防止において薬理活性または別の直接的効果をもたらすこと、あるいは、ヒトまたは他の動物の身体の構造または何らかの機能に影響を及ぼすことを意図した任意の成分が含まれ得る。この語句は、薬剤製品の製造中に化学的变化を受け、特定の活性または作用をもたらすことを意図して修飾された形において薬剤製品に存在する成分を含み得る。

#### 【0036】

活性成分のいくつかの代表例には、薬剤、ビタミン、ミネラル;ホルモン;局所抗菌剤、例えば、抗生作用活性成分、運動選手の足、いんきんたむし、または輪癬の治療のための抗真菌活性成分、およびアクネ(acne)に対する活性成分;アストリンゼント活性成分;デオドラント活性成分;イボ取り活性成分;魚の目およびたこ(callus)除去活性成分;アタマジラミ、ケジラミ(pubic louse、crab)、およびキモノジラミの処理のためのシラミ駆除活性成分;ふけ、脂漏性皮膚炎または乾癬の抑制のための活性成分;ならびに、日焼けの防止剤および治療剤が含まれる。

#### 【0037】

シリコーンベシクルに形作ることにより、これらの活性成分は効率よく皮膚に保たれ、製品の効果は一層長く続くようになる。さらに、いくつかの添加剤を配合することにより、活性成分の経皮吸収の賦活または抑制を制御できる。例えば、いくつかの活性成分は、揮発性含有物としてエタノールを、エステルまたはメントールを経皮吸収の賦活剤として配合することによって、皮膚を通して効率的に吸収される。特に、水性活性成分と、油性活性成分を含むシリコーンベシクルとの組合せは、これらの成分の経皮吸収を賦活する利点を有する。

#### 【0038】

本発明による方法において使用して有用な活性成分には、「プロ-ビタミン」を含めて、ビタミンおよびその誘導体が含まれる。ここで有用なビタミンには、これらに限らないが、ビタミンA<sub>1</sub>、レチノール、レチノールのC<sub>2</sub> ~ C<sub>18</sub>エステル、ビタミンE、トコフェロール、ビタミンEのエステル、およびこれらの混合物が含まれる。レチノールには、トランス-レチノール、1,3-シス-レチノール、11-シス-レチノール、9-シス-レチノール、および3,4-ジデヒドロ-レチノール、ビタミンCおよびその誘導体、ビタミンB<sub>1</sub>、ビタミンB<sub>2</sub>、プロビタミンB<sub>5</sub>、パンテノール、ビタミンB<sub>6</sub>、ビタミンB<sub>12</sub>、ナイアシン、葉酸、ピオチン、およびパントテン酸が含まれる。ここに含められると考えられる他の適切なビタミンおよびビタミンのINCI名は、ジパルミチン酸アスコルビル、アスコルビルメチルシラノールペクチン(ascorbyl methylsilanol pectinate)、パルミチン酸アスコルビル、ステアリン酸アスコルビル、アスコルビルグルコシド、アスコルビルリン酸ナトリウム、アスコルビン酸ナトリウム、アスコルビル硫酸二ナトリウム、(アスコルビル/トコフェリル)リン酸カリウムである。

#### 【0039】

「レチノール」は、米国化粧品工業会(The Cosmetic, Toiletry, and Fragrance Association、CTFA、ワシントンDC)により示された、ビタミンAに対する国際命名法化粧品成分名(International Nomenclature Cosmetic Ingredient Name、INCI)である。ここに含められると考えられる他の適切なビタミンおよびINCI名は、酢酸レチノール(RETINYL ACETA

10

20

30

40

50

TE)、パルミチン酸レチノール、プロピオン酸レチノール、 $\alpha$ -トコフェロール、トコフェルソラン、酢酸トコフェロール(TOCOPHERYL ACETATE)、リノール酸トコフェロール、ニコチン酸トコフェロール、およびコハク酸トコフェロールである。

【0040】

本発明における使用に適する市販製品のいくつかの例は、ビタミンAアセテートおよびビタミンC、どちらもFluka Chemie AG(Buchs、スイス)の製品;COVI-OX T-50、Henkel Corporation(La Grange、イリノイ州)のビタミンE製品;COVI-OX T-70、Henkel Corporation(La Grange、イリノイ州)の別のビタミンE製品;ならびに、ビタミンEアセテート、Roche Vitamins & Fine Chemicals(Nutley、ニュージャージー州)の製品;である。

【0041】

本発明による方法において使用される活性成分は、活性薬剤成分であり得る。使用され得る適切ないくつかの活性薬剤成分の代表例は、ヒドロコルチゾン、ケトプロフェン、チモロール、ピロカルピン、アドリアマイシン、マイトマイシンC、モルヒネ、ヒドロモルフォン、ジルチアゼム、テオフィリン、ドキシソルピシン、ダウノルピシン、ヘパリン、ペニシリンG、カルベニシリン、セファロチン、セフォキシチン、セフォタキシム、5-フルオロウラシル、シタラピン、6-アザウリジン、6-チオグアニン、ピンブラスチン、ピンクリスチン、硫酸ブレオマイシン、アウロチオグルコース、スラミン、メベンダゾール、クロニジン、スコポラミン、プロプラノロール、フェニルプロパノールアミン塩酸塩、ウアバイン、アトロピン、ハロペリドール、イソソルビド、ニトログリセリン、イブプロフェン、ユビキノン、インドメタシン、プロスタグランジン、ナプロキセン、サルブタモール、グアナベンズ、ラベタロール、フェニラミン、メトリホネート、およびステロイドである。

【0042】

本発明の目的のための活性薬剤としてここに含められると考えられるのは、抗アクネ剤、例えば、過酸化ベンゾイルおよびトレチノイン;抗菌剤、例えば、クロロヘキサジエングルコネート;抗真菌剤、例えば、硝酸ミコナゾール;抗炎症剤;コルチコステロイド剤;非ステロイド抗炎症剤、例えば、ジクロフェナク;抗乾癬剤、例えば、プロピオン酸クロベタゾール;麻酔剤、例えば、リドカイン;抗掻痒剤;抗皮膚炎剤;ならびに、バリアフィルム(barrier film)と一般的に見なされる作用剤;である。

【0043】

本発明での活性成分D)は、タンパク質、例えば酵素であり得る。シリコーンベシクルの内部に酵素を含有させることは、酵素が失活することを防ぎ、また酵素の生物活性を一層長い期間保つのに有利である。酵素には、これらに限らないが、市販されているタイプ、改良タイプ、リコンビナントタイプ、野生型、自然には見出されないバリエーション、およびこれらの混合物が含まれる。例えば、適切な酵素には、加水分解酵素、クチナーゼ、酸化酵素、転移酵素、還元酵素、ヘミセルロース分解酵素、エステラーゼ、異性化酵素、ペクチナーゼ、ラクターゼ、ペルオキシダーゼ、ラッカーゼ、カタラーゼ、およびこれらの混合物が含まれる。加水分解酵素には、これらに限らないが、プロテアーゼ(細菌、真菌、酸性、中性またはアルカリ性)、アミラーゼ(または)、リパーゼ、マンナーゼ、セルラーゼ、コラゲナーゼ、リゾチーム、スーパーオキシドジスムターゼ、カタラーゼ、およびこれらの混合物が含まれる。前記プロテアーゼには、これらに限らないが、トリプシン、キモトリプシン、ペプシン、パンクレアチンおよび他の哺乳動物の酵素;パパイン、プロメラインおよび他の植物酵素;サブチリシン、エビデルミン、ナイシン、ナリンギナーゼ(L-ラムノシダーゼ)、ウロキナーゼおよび他の細菌酵素が含まれる。前記リパーゼには、これらに限らないが、トリアシル-グリセロールリパーゼ、モノアシル-グリセロールリパーゼ、リポタンパク質リパーゼ、例えば、ステアプシン、エレプシン、ペプシン、他の哺乳動物、植物、細菌のリパーゼ、および精製されたものが含まれる。天然のパパインは前記酵素として好ましい。さらに、賦活ホルモン(例えば、インスリン)は、これらの酵素と一緒に、それらの効果を高めるために使用され得る。

【0044】

成分D)はまたサンスクリーン剤でもあり得る。サンスクリーン剤は、日光への暴露の有害な作用から皮膚を保護すると、当技術分野において知られている任意のサンスクリーン剤から選択できる。サンスクリーン化合物は通常、紫外(UV)線を吸収する、有機化合物、無機化合物、またはこれらの混合物から選ばれる。サンスクリーン剤として使用できる非限定的な代表的例には、アミノ安息香酸、シノキサート、ジエタノールアミンメトキシシンナメート、トリオレイン酸ジガライル(Digalloyl Trioleate)、ジオキシベンゾン、4-[ビス(ヒドロキシプロピル)]アミノ安息香酸エチル、アミノ安息香酸グリセリル、ホモサレート、ジヒドロキシアセトンを含むローソン、アントラニル酸メンチル、オクトクリレン、メトキシケイ皮酸オクチル、サルチル酸オクチル、オキシベンゾン、パディメートO、フェニルベンゾイミダゾールスルホン酸、赤色ワセリン、スリソベンゾン、二酸化チタン、および、トロラミンサリシレート、セタミノサロール(cetaminosalol)、アラントインPABA、ベンザルフタリド、ベンゾフェノン、ベンゾフェノン1-12、3-ベンジリデンカンフル(camphor)、ベンジリデンカンフル加水分解コラーゲンスルホンアミド(Benzylidenecamphor Hydrolyzed Collagen Sulfonamide)、ベンジリデンカンフルスルホン酸、サリチル酸ベンジル、ボルネロン、ブメトリオゾール(Bumetriazole)、ブチルメトキシジベンゾイルメタン、ブチルPABA、セリア/シリカ、セリア/シリカ-タルク、DEA-メトキシシンナメート、ジベンゾオキサゾールナフタレン、ジ-t-ブチルヒドロキシベンジリデンカンフル、ジイソプロピルケイヒ酸メチル、ジメチルPABAエチルセテアリルジモニウムトシレート、ジオクチルブタミドトリアゾン、ジフェニルカルボメトキシアセトキシナフトピラン、ビスエチルフェニルトリアミノトリアジンスチルベンジスルホン酸二ナトリウム、ジスチリルピフェニルトリアミノトリアジンスチルベンジスルホン酸二ナトリウム、ジスチリルピフェニルジスルホン酸二ナトリウム、ドロメトリゾール、ドロメトリゾールトリシロキサン、エチルジヒドロキシプロピルPABA、ジイソプロピルケイ皮酸エチル、メトキシケイ皮酸エチル、エチルPABA、ウロカニン酸エチル、エトロクリレン(Etrocrylene)フェルラ酸、グリセリルオクタノエートジメトキシシンナメート、グリセリルPABA、サリチル酸グリコール、p-メトキシケイ皮酸イソアミル、サリチル酸イソプロピルベンジル、イソプロピルジベンゾイルメタン、メトキシケイ皮酸イソプロピル、サリチル酸メンチル、4-メチルベンジリデン、カンフル、オクトリゾール、オクチルジメチルPABA、サリチル酸オクチル、オクチルトリアゾン、PABA、PEG-25 PABA、ペンチルジメチルPABA、ポリアクリルアミドメチルベンジリデンカンフル、メトキシケイ皮酸カリウム、フェニルベンゾイミダゾールスルホン酸カリウム、フェニルベンゾイミダゾールスルホン酸ナトリウム、ウルカニン酸ナトリウム、TEA-フェニルベンゾイミダゾールスルホネート、TEA-サリシレート、テレフタリリデンジカンフルスルホン酸、二酸化亜鉛、二酸化セリウム、トリPABAバンテノール、ウロカニン酸、およびVA/クロトン酸/メタクリロキシベンゾフェノン-1のコポリマーが含まれる。

10

20

30

40

50

#### 【0045】

これらのサンスクリーン剤は1種に、または2種以上の組合せとして選択され得る。さらに、本発明のシリコーンベシクルは、内側相に1種のサンスクリーン剤を、外側相に別のものを含む(例えば、油溶性サンスクリーン剤を内側相に、また水分散性のものを、このシリコーンベシクルの外側相に含む)ことができる。いくつかの有機サンスクリーン剤は二酸化チタンと直接接触することにより着色するので、この使用方法では、シリコーンベシクルは異なるサンスクリーン剤の組合せを安定化させるのに有用である。

#### 【0046】

代わりに、サンスクリーン剤は、シンナメート系有機化合物、または、代わりに、サンスクリーン剤は、パラ-メトキシケイ皮酸と2-エチルヘキサノールのエステルであるUvinul(登録商標)MC 80のようなメトキシケイ皮酸オクチルである。

#### 【0047】

成分D)はまた、芳香剤または香料でもあり得る。香料は、香料産業において一般に用いられているどのような香料または芳香活性成分であってもよい。これらの組成物は、通常、様々な化学物質類に属し、アルコール、アルデヒド、ケトン、エステル、エーテル、酢

酸エステル、亜硝酸エステル、テルペン系炭化水素、複素環式の窒素または硫黄含有化合物、さらには、天然または合成由来のエッセンシャルオイルのように様々である。これらの香料成分の多くは、S. Arctander「Perfume and Flavour Chemicals」(1969年、Montclair、ニュージャージー州)のような標準的教科書参考文献に詳細に記載されている。

#### 【 0 0 4 8 】

芳香剤は、これらに限らないが、香料ケトンおよび香料アルデヒドにより例示され得る。香料ケトンの例は、ブッコキシム(buccoxime);イソジャスモン;メチル- $\alpha$ -ナフチルケトン;ムスクインダノン;トナリド/ムスクプラス;  $\alpha$ -ダマスコン、  $\beta$ -ダマスコン、  $\gamma$ -ダマスコン、イソ-ダマスコン、ダマセノン、ダマローズ(Damarose)、ジヒドロジャスモン酸メチル、メントン、カルボン、カンフル、フェンコン、  $\alpha$ -ロノン、  $\beta$ -ロノン、  $\gamma$ -メチル所謂ロノン(Gamma Methyl so-called Ionone)、フルールアモン(Fleuramone)、ジヒドロジャスモン、シス-ジャスモン、Iso-E-Super、メチル-セドレニル-ケトン(Cedrenyl-ketone)またはメチル-セドリロン(Cedrylone)、アセトフェノン、メチル-アセトフェノン、パラ-メトキシ-アセトフェノン、メチル- $\alpha$ -ナフチル-ケトン、ベンジル-アセトン、ベンゾフェノン、パラ-ヒドロキシ-フェニル-ブタノン、セロリーケトンまたはリベスコン(Livescone)、6-イソプロピルデカヒドロ-2-ナフトン、ジメチル-オクテノン、フレスコメンテ(Freskomenthe)、4-(1-エトキシビニル)-3,3,5,5,-テトラメチル-シクロヘキサノン、メチル-ヘプテノン、2-(2-(4-メチル-3-シクロヘキセン-1-イル)プロピル)-シクロペンタノン、1-(p-メンテン-6(2)-イル)-1-プロパノン、4-(4-ヒドロキシ-3-メトキシフェニル)-2-ブタノン、2-アセチル-3,3-ジメチル-ノルボルナン、6,7-ジヒドロ-1,1,2,3,3-ペンタメチル-4(5H)-インダノン、4-ダマスコール(Damascol)、ダルシニル(Dulcinyll)またはカッシオーネ(Cassione)、ゲルソン(Gelsone)、ヘキサロン、イソシクレモンE、メチルシクロシトロン、メチル-ラベンダー-ケトン、オリボン(Orivon)、パラ-tert-ブチル-シクロヘキサノン、ベルドン(Verdone)、デルフォン(Delphone)、ムスコン、ネオブテノン、プリカトン(Plicatone)、ベルトン(Veloutone)、2,4,4,7-テトラメチル-オクタ-6-エン-3-オン、およびテトラメラン(Tetrameran)である。

#### 【 0 0 4 9 】

より好ましくは、香料ケトンは、  $\alpha$ -ダマスコン、  $\beta$ -ダマスコン、イソダマスコン、カルボン、  $\gamma$ -メチル-ロノン、Iso-E-Super、2,4,4,7-テトラメチル-オクタ-6-エン-3-オン、ベンジルアセトン、  $\alpha$ -ダマスコン、ダマセノン、ジヒドロジャスモン酸メチル、メチルセドリロン、およびこれらの混合物から、その香りの特徴で選択される。

#### 【 0 0 5 0 】

好ましくは、香料アルデヒドは、アドキサール;アニスアルデヒド;シマール(cymal);エチルバニリン;フロルヒドラール(florhydra);ヘリオナール;ヘリオトロピン;ヒドロキシシトロネラル;コアボン(koavone);ラウリンアルデヒド;リラル(lyral);メチルノニルアセトアルデヒド;P. T. ブシナール(bucinal);フェニルアセトアルデヒド;ウンデシレンアルデヒド;バニリン;2,6,10-トリメチル-9-ウンデセナール、3-ドデセン-1-アール、  $n$ -アミルシンナムアルデヒド、4-メトキシベンズアルデヒド、ベンズアルデヒド、3-(4-tert-ブチルフェニル)-プロパナール、2-メチル-3-(パラ-メトキシフェニル)プロパナール、2-メチル-4-(2,6,6-トリメチル-2(1)-シクロヘキセン-1-イル)ブタナール、3-フェニル-2-プロパナール、シス-/トランス-3,7-ジメチル-2,6-オクタジエン-1-アール、3,7-ジメチル-6-オクテン-1-アール、[(3,7-ジメチル-6-オクテニル)オキシ]アセトアルデヒド、4-イソプロピルベンズアルデヒド、1,2,3,4,5,6,7,8-オクタヒドロ-8,8-ジメチル-2-ナフトアルデヒド、2,4-ジメチル-3-シクロヘキセン-1-カルボキシアリデヒド、2-メチル-3-(イソプロピルフェニル)プロパナール、1-デカナール;デシルアルデヒド、2,6-ジメチル-5-ヘプタナール、4-(トリシクロ[5.2.1.0(2,6)]-デシリデン-8)-ブタナール、オクタヒドロ-4,7-メタノ-1H-インデンカルボキシアリデヒド、3-エトキシ-4-ヒドロキシベンズアルデヒド、パラ-エチル- $\alpha$ - $\beta$ -ジメチルヒドロシンナムアルデヒド、  $\alpha$ -メチル-3,4-(メチレンジオキシ)-ヒドロシンナムアルデヒド、3,4-メチレンジオキシベンズアルデヒド、 $n$ -ヘキシルケイ皮アルデヒド、 $m$ -シメン-7-カルボキシアリデヒド、  $\alpha$ -メチルフェニル

アセトアルデヒド、7-ヒドロキシ-3,7-ジメチルオクタナール、ウンデセナール、2,4,6-トリメチル-3-シクロヘキセン-1-カルボキシアールデヒド、4-(3)-(4-メチル-3-ペンチル)-3-シクロヘキセン-カルボキシアールデヒド、1-ドデカナール、2,4-ジメチルシクロヘキセン-3-カルボキシアールデヒド、4-(4-ヒドロキシ-4-メチルペンチル)-3-シクロヘキセン-1-カルボキシアールデヒド、7-メトキシ-3,7-ジメチルオクタン-1-アール、2-メチルウンデカナール、2-メチルデカナール、1-ノナナール、1-オクタナール、2,6,10-トリメチル-5,9-ウンデカジエナール、2-メチル-3-(4-tert-ブチル)プロパナール、ジヒドロケイ皮アルデヒド、1-メチル-4-(4-メチル-3-ペンテニル)-3-シクロヘキセン-1-カルボキシアールデヒド、5-または6-メトキシヘキサヒドロ-4,7-メタノインダン(methanoindan)-1または2-カルボキシアールデヒド、3,7-ジメチルオクタン-1-アール、1-ウンデカナール、10-ウンデセン-1-アール、4-ヒドロキシ-3-メトキシベンズアルデヒド、1-メチル-3-(4-メチルペンチル)-3-シクロヘキセンカルボキシアールデヒド、7-ヒドロキシ-3,7-ジメチル-オクタナール、トランス-4-デセナール、2,6-ノナジエナール、パラトリルアセトアルデヒド;4-メチルフェニルアセトアルデヒド、2-メチル-4-(2,6,6-トリメチル-1-シクロヘキセン-1-イル)-2-ブタナール、オルト-メトキシケイ皮アルデヒド、3,5,6-トリメチル-3-シクロヘキセンカルボキシアールデヒド、3,7-ジメチル-2-メチレン-6-オクタナール、フェノキシアセトアルデヒド、5,9-ジメチル-4,8-デカジエナール、シャクヤク(peony)アルデヒド(6,10-ジメチル-3-オキサ-5,9-ウンデカジエン-1-アール)、ヘキサヒドロ-4,7-メタノインダン-1-カルボキシアールデヒド、2-メチルオクタナール、2-メチル-4-(1-メチルエチル)ベンゼンアセトアルデヒド、6,6-ジメチル-2-ノルピネン-2-プロピオンアルデヒド、パラメチルフェノキシアセトアルデヒド、2-メチル-3-フェニル-2-プロペン-1-アール、3,5,5-トリメチルヘキサナール、ヘキサヒドロ-8,8-ジメチル-2-ナフトアルデヒド、3-プロピル-ビスシクロ[2.2.1]-ヘプタ-5-エン-2-カルボアルデヒド、9-デセナール、3-メチル-5-フェニル-1-ペンタナール、メチルノニルアセトアルデヒド、ヘキサナール、トランス-2-ヘキサナール、1-p-メンテン-9-カルボキシアールデヒドおよびこれらの混合物から、その香りの特徴で選択される。

#### 【0051】

より好ましいアルデヒドは、1-デカナール、ベンズアルデヒド、フロルヒドラル、2,4-ジメチル-3-シクロヘキセン-1-カルボキシアールデヒド;シス/トランス-3,7-ジメチル-2,6-オクタジエン-1-アール;ヘリオトロピン;2,4,6-トリメチル-3-シクリヘキセン-1-カルボキシアールデヒド;2,6-ノナジエナール; -n-アミルケイ皮アルデヒド、 -n-ヘキシルケイ皮アルデヒド、P. T. ブシナール、リラル、シマール、メチルノニルアセトアルデヒド、ヘキサナール、トランス-2-ヘキサナール、およびこれらの混合物から、それらの香りの特徴で選択される。

#### 【0052】

香料成分の上の列挙において、いくつかは、慣習的に当業者に知られている商用名であり、また異性体も含む。このような異性体もまた、本発明における使用に適する。

#### 【0053】

成分D)はまた1種または複数の植物エキスでもあり得る。これらの成分の例は次の通りである:明日葉エキス、アボカドエキス、アマチャ(hydrangea)エキス、タチアオイ(Althea)エキス、アルニカエキス、アロエエキス、アプリコットエキス、アプリコットカーネル(kernel)エキス、イチヨウ葉エキス、ウイキョウエキス、ターメリック(ウコン)エキス、ウーロン茶エキス、営実(rose fruit)エキス、エキナセアエキス、オウゴンエキス、オウバクエキス、オウレンエキス、オオムギエキス、オトギリソウ(Hypericum)エキス、白イラクサエキス、ミズガラシエキス、オレンジエキス、乾燥海水(Dehydrated saltwater)、海藻エキス、加水分解エラスチン、加水分解コムギ粉末、加水分解シルク、カモミールエキス、ニンジンエキス、ヨモギ(Artemisia)エキス、カンゾウエキス、ハイビスカスティーエキス、カキョクエキス、キウイエキス、キナノキエキス、キュウリエキス、グアノシン、クチナシエキス、クマザサエキス、クジンエキス、クルミエキス、グレープフルーツエキス、クレマチスエキス、クロレラエキス、クワの実エキス、ゲンチアナエキス、紅茶(b



lack tea)エキス、酵母エキス、ゴボウエキス、コメヌカ発酵エキス、コメ胚芽オイル、ヒレハリソウエキス、コラーゲン、コケモモエキス、サイシンエキス、サイコ科植物(Family of Bupleurum)エキス、臍帯エキス、サルビアエキス、サボンソウエキス、タケエキス、サンザシ(Crataegus fruit)エキス、サンショウエキス、シイタケエキス、ジオウエキス、ムラサキ(gromwell)エキス、シソエキス、シナノキエキス、シモツケソウエキス、シャクヤクエキス、ショウブ根エキス、オウシュウシラカバエキス、トクサエキス、セイヨウキズタ(アイビー)エキス、サンザシ(hawthorn)エキス、セイヨウニワトコエキス、セイヨウノコギリソウエキス、セイヨウハッカエキス、セージエキス、ゼニアオイエキス、センキュウエキス、センブリエキス、ダイズエキス、ナツメエキス、タイムエキス、茶(tea)エキス、チョウジエキス、チガヤエキス、チンピエキス、トウキエキス、キンセンカエキス、トウニンエキス、トウヒエキス、ドクダミエキス、トマトエキス、納豆エキス、ヤクヨウニンジン(Ginseng)エキス、緑茶(チャノキ)エキス、ニンニクエキス、野バラエキス、ハイビスカスエキス、バクモンドウエキス、ハスエキス、パセリエキス、蜂蜜、ハマメリスエキス、パリエタリアエキス、エンメイソウエキス、ビスボロールエキス、ピウエキス、フキタンポポエキス、バターバーエキス、マツホドエキス、ナギイカダエキス、ブドウエキス、プロポリスエキス、ヘチマエキス、ベニバナエキス、ペパーミントエキス、シナノキエキス、ボタン(Paeonia)エキス、ホップエキス、マツエキス、マロニエ(horse chestnut)エキス、水芭蕉[Lysichiton camtschatcense]エキス、ムクロジエキス、メリツサエキス、モモエキス、ヤグルマギクエキス、ユーカリエキス、ユキノシタエキス、シトロンエキス、ヨクイニンエキス、ヨモギ(mugwort)エキス、ラベンダーエキス、リンゴエキス、レタスエキス、レモンエキス、レンゲエキス、バラエキス、ローズマリーエキス、ローマンカモミールエキス、およびロイヤルゼリーエキス。

10

20

30

40

50

#### 【0054】

成分A)、B)、C)、およびD)の量は、方法に応じて様々であり得るが、通常、  
 A)2から50wt%、代わりに、2から25wt%、または代わりに、1から15wt%、  
 B)1から50wt%、代わりに、2から25wt%、または代わりに、2から15wt%、  
 C)0から50wt%、代わりに、1から20wt%、または代わりに、2から10wt%、  
 D)0.05から20wt%、代わりに、0.1から15wt%、または代わりに、0.1から10wt%  
 の範囲であり、また、十分な量の水により、A)、B)、およびC)と水含量とのwt%の合計が100%になるようにする。

#### 【0055】

##### ベシクルの調製

本発明のベシクル組成物を調製する方法におけるステップIは、

I)親水性活性剤の分散体を生成させるために、

A)少なくとも1つの親水性置換基を有するオルガノポリシロキサン、

B)水混和性溶媒、

D')親水性活性剤

を一緒にするステップ;

を含む。前記の成分A)、B)、およびD')は、親水性活性剤の分散体を生成させるために、どのような順序でも混合できる。代わりに、成分B)およびD')が最初に一緒にされ、次いで、成分A)に加えられる。代わりに、成分B)、B')およびD')が最初に一緒にされ、次いで、成分A)に加えられる。通常、成分A)、B)または使用される場合B')、およびD')が、一般的な混合技術を用いて一緒にされる。混合、および親水性活性剤の分散体の生成を実施するのに必要とされる特別な要件または条件は存在しない。一般的な攪拌技術で、通常十分である。通常、分散体を均一にするのに十分な攪拌が加えられる。

#### 【0056】

本発明のベシクル組成物を調製する方法におけるステップIIは、

II)疎水性活性剤の分散体を生成させるために、

A)少なくとも1つの親水性置換基を有するオルガノポリシロキサン、

C)任意選択で、シリコーンまたは有機オイル、

## D")疎水性活性剤

と一緒にするステップ;

を含む。前記の成分A)、任意選択のC)、およびD')は、疎水性活性剤の分散体を生成させるために、どのような順序でも混合できる。代わりに、成分C)およびD")が最初に一緒にされ、次いで、成分A)に加えられる。代わりに、成分C)、B')およびD")が最初に一緒にされ、次いで、成分A)に加えられる。通常、成分A)、使用される場合C)またはB')、およびD")が、一般的な混合技術を用いて一緒にされる。混合、および疎水性活性剤の分散体の生成を実施するのに必要とされる特別な要件または条件は存在しない。一般的な攪拌技術で、通常十分である。通常、分散体を均一にするのに十分な攪拌が加えられる。

【0057】

10

ステップIおよびIIは、どのような順序で実施されてもよい、すなわち、それらが、順次、実施される必要はない。

【0058】

本発明のベシクル組成物を調製する方法におけるステップIIIは、

III)前記親水性活性剤の分散体と、前記疎水性活性剤の分散体と一緒にし、ベシクルを生成させるために水を混合するステップを含む。

【0059】

混合、およびベシクルの生成を実施するのに必要とされる特別な要件または条件は存在しない。混合技術は、単純な攪拌、ホモジナイザーによる混合、超音波による混合、および、水性分散体におけるベシクルの生成を実施するために当技術分野において知られている他の混合技術であり得る。この混合は、バッチ、半連続、または連続方式で実施され得る。

20

【0060】

ベシクルの生成は、現況技術において一般的な技術によって確認できる。通常、ベシクルは、交差偏光顕微鏡で調べた時に複屈折を示すラメラ相構造を有する。代わりに、ベシクルの生成は、クライオ-透過電子顕微鏡(Cryo-TEM)法によってはっきりと示すことができる。粒径測定もまた、オルガノポリシロキサンが、典型的なベシクルの大きさで水性媒体に十分に分散していることを示すのに使用できる。例えば、 $0.500\text{ }\mu\text{m}$ (マイクロメートル)未満の平均粒径が、分散しているベシクルにとって典型的である。 $0.200\text{ }\mu\text{m}$ または $0.100\text{ }\mu\text{m}$ 未満の平均粒径を有するベシクルが本発明の教示により可能である。

30

【0061】

本発明の方法におけるステップIVは任意選択であり、水混和性揮発性溶媒である成分B')を除去するステップを含む。通常、水混和性揮発性溶媒は、当技術分野において知られている技術(例えば、ベシクル組成物を減圧の下に置き、任意選択で同時に組成物を加熱すること)により除去される。このような技術の例示となる装置には、ロータリーエバポレーターおよび薄膜ストリッパが含まれる。

【0062】

本発明は、さらに、本明細書に記載の方法によって調製されるベシクル組成物を包含する。

40

【0063】

ベシクル含有エマルジョンの調製方法

本発明はまた、

I)水性分散体を生成させるために、

A)少なくとも1つの親水性置換基を有するオルガノポリシロキサン、

B)水混和性揮発性溶媒、

C)任意選択で、シリコンまたは有機オイル、

D)パーソナルケアまたはヘルスケア活性剤

を、水と一緒にするステップ;

II)ベシクルを生成させるために、前記水性分散体を混合するステップ;

50

III)任意選択で、前記ベシクルから前記水混和性揮発性溶媒を除去するステップ；

IV)エマルジョンに前記ベシクルを加えるステップ

を含む、ベシクル含有エマルジョンの調製方法にも関する。

【0064】

成分A)、B)、C)、およびD)は前記の通りである。ベシクル含有エマルジョンを調製する方法において用いられる成分A)、B)、C)、およびD)の量は、法に応じて様々であり得るが、通常、

A)2から50wt%、代わりに、2から25wt%、または代わりに、1から15wt%、

B)1から50wt%、代わりに、2から25wt%、または代わりに、2から15wt%、

C)0から50wt%、代わりに、1から20wt%、または代わりに、2から10wt%、

D)0.05から20wt%、代わりに、0.1から15wt%、または代わりに、0.1から10wt%

の範囲であり、また、十分な量の水により、A)、B)、およびC)と水含量とのwt%の合計が100%になるようにする。

【0065】

ベシクル含有エマルジョンを調製する方法において、成分A)、B)、C)、およびD)と水と一緒にする順序は重要ではないが、通常、A)、B)、C)、およびD)が最初に一緒にされ、次いで、成分A)～D)の水性分散体を生成させるために、水が加えられる。

【0066】

ベシクル含有エマルジョンを調製する方法におけるステップIIは、ベシクルを生成させるために、ステップIにおいて生成した水性分散体を混合するステップである。混合、およびベシクルの生成を実施するのに必要とされる特別な要件または条件は存在しない。混合技術は、単純な攪拌、ホモジナイザーによる混合、超音波による混合、および、水性分散体におけるベシクルの生成を実施するために当技術分野において知られている他の混合技術であり得る。この混合は、バッチ、半連続、または連続方式で実施され得る。

【0067】

ベシクルの生成は、現況技術において一般的な技術によって確認できる。通常、ベシクルは、交差偏光顕微鏡で調べた時に複屈折を示すラメラ相構造を有する。代わりに、ベシクルの生成は、クライオ-透過電子顕微鏡(Cryo-TEM)法によってはっきりと示すことができる。粒径測定もまた、オルガノポリシロキサンが、典型的なベシクルの大きさで水性媒体に十分に分散していることを示すのに使用できる。例えば、0.500  $\mu\text{m}$ (マイクロメートル)未満の平均粒径が、分散しているベシクルにとって典型的である。0.200  $\mu\text{m}$ または0.100  $\mu\text{m}$ 未満の平均粒径を有するベシクルが本発明の教示により可能である。

【0068】

ベシクル含有エマルジョンを調製する方法におけるステップIIIは任意選択であり、水混和性揮発性溶媒である成分B)を除去するステップを含む。通常、水混和性揮発性溶媒は、当技術分野において知られている技術(例えば、ベシクル組成物を減圧の下に置き、任意選択で同時に組成物を加熱すること)により除去される。このような技術の例示となる装置には、ロータリーエバポレーターおよび薄膜ストリッパーが含まれる。

【0069】

ベシクル含有エマルジョンを調製する方法におけるステップIVは、生成したベシクルをエマルジョンに加えるステップを含む。本明細書では、「エマルジョン」は、水を連続相とするエマルジョン(water continuous emulsion)(例えば、水中油型エマルジョン、または水中シリコン(silicone in water)のエマルジョン)、油またはシリコンを連続相とするエマルジョン(油中水エマルジョンまたはシリコン中水のエマルジョン)、あるいは多重エマルジョン(水/油/水、油/水/油のタイプ、水/シリコン/水、またはシリコン/水/シリコン)を包含するものとする。生成するベシクルは、一般的な混合技術によって、どのようなタイプのエマルジョンに添加されてもよい。ベシクルとエマルジョンの混合を実施するのに必要とされる特別な要件または条件は存在しない。混合技術は、単純な攪拌、ホモジナイザーによる混合、超音波による混合、および、水性分散体におけるベシクルの生成を実施するために当技術分野において知られている他の混合技術であり得る。この

混合は、バッチ、半連続、または連続方式で実施され得る。

【0070】

ステップIVにおいてエマルジョンに加えられる、ステップIIまたはステップIIIからのベシクルの量は、様々であってよく、限定されないが、その量は通常、0.1/99から99/0.1、代わりに、1/99から99/1のベシクル/エマルジョンの重量比の範囲にあり得る。

【0071】

用いられるエマルジョンは、w/o、w/s、またはシリコーン乳化剤を用いる多重相エマルジョンであり得る。通常、このような配合物におけるシリコーン中水の乳化剤は非イオン性であり、ポリオキシアルキレン置換シリコーン、シリコーンアルカノールアミド、シリコーンエステルおよびシリコーングリコシドから選択される。シリコーン系界面活性剤は、このようなエマルジョンを生成させるために使用でき、当技術分野においてよく知られており、例えば、米国特許第4122029号(Gee他)、米国特許第5387417号(Rentsch)、および米国特許第5811487号(Schulz他)に記載されている。

10

【0072】

エマルジョンが水中油のエマルジョンである場合、それは、エマルジョンの調製に通常用いられる一般的な成分(例えば、これらに限らないが、o/wエマルジョンを調製するための、当技術分野においてよく知られている非イオン界面活性剤)を含み得る。非イオン界面活性剤の例には、ポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルフェノールエーテル、ポリオキシエチレンラウリルエーテル、ポリオキシエチレンソルビタンモノオレート、ポリオキシエチレンアルキルエステル、ポリオキシエチレンソルビタンアルキルエステル、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、ジエチレングリコール、エトキシ化トリメチルノナノール、およびポリオキシアルキレングリコール変性ポリシロキサン界面活性剤が含まれる。

20

【0073】

本発明により調製されるベシクルおよびエマルジョン組成物は、様々な一般市販薬(over-the-counter、OTC)のパーソナルケア組成物、ヘルスケア組成物、および家庭のケア組成物に使用され得るが、特にパーソナルケアの分野において使用できる。本発明により調製されるベシクルおよびエマルジョン組成物は、配合された製品組成物において、様々なパーソナルケア、家庭のケア、またはヘルスケアの成分と一緒にすることができる。パーソナルケア、家庭のケア、またはヘルスケアのあり得る成分の一覧は、WO03/101412(参照を通じて本明細書に組み込まれる)に教示されている。このように、本発明により調製されるベシクルおよびエマルジョン組成物は、発汗抑制剤、脱臭剤、スキนครリーム、スキンケアローション、モイスチャライザー、アクネまたはシワのリムーバーのようなフェイシャルトリートメント、パーソナルおよびフェイシャルクレンザー、バスオイル、香料、コロン、サシェ(sachet)、サンスクリーン、プレ-シェイプおよびアフターシェイプローション、リキッド(liquid)ソープ、シェービングソープ、シェービングフォーム(lather)、ヘアシャンプー、ヘアコンディショナー、ヘアスプレー、ムース、パーマメント、脱毛剤、ヘアキューティクルコート、メイクアップ化粧品、カラー化粧品、ファンデーション、ほお紅、リップスティック、リップバーム(balm)、アイライナー、マスカラ、オイルリムーバー、カラー化粧品リムーバー、マニキュア(nail polish)、およびパウダーに使用

30

40

【0074】

本発明のベシクルおよびエマルジョン組成物は、様々な化粧製品の配合ベースを得るために、粉末と一緒にできる。本明細書では、粉末は、0.02~50ミクロンの粒径を有する乾燥した粒状物質と定義される。粒状物質は、着色されていても、無着色(例えば、白色)でもよい。適切な粉末には、オキシ塩化ビスマス、雲母チタン(titanated mica)、フュームドシリカ、球状シリカビーズ、ポリメチルメタクリレートビーズ、微粉状テフロン(登録商標)、窒化ホウ素、アクリレートポリマー、ケイ酸アルミニウム、オクテニルコハク酸デンプンアルミニウム、ベントナイト、ケイ酸カルシウム、セルロース、チョーク、トウモロコシデンプン、珪藻土、フラー土(fuller's earth)、グリセリンデンプン、ヘクトラ

50

イト、含水シリカ、カオリン、ケイ酸アルミニウムマグネシウム、炭酸マグネシウム、水酸化マグネシウム、酸化マグネシウム、ケイ酸マグネシウム、三ケイ酸マグネシウム、マルチデキストリン、モンモリロナイト、マイクロクリスタリンセルロース、コメデンプン、シリカ、タルク、マイカ、二酸化チタン、ラウリン酸亜鉛、ミリスチン酸亜鉛、ネオデカン酸亜鉛、ロジン酸亜鉛、ステアリン酸亜鉛、ポリエチレン、アルミナ、アタパルジャイト、炭酸カルシウム、ケイ酸カルシウム、デキストラン、ナイロン、シリル化シリカ、シルク粉末、セリサイト、キナコ(soy flour)、酸化スズ、水酸化チタン、リン酸三マグネシウム、クルミ殻粒、またはこれらの混合物、真珠顔料、例えば、酸化チタン被覆マイカ、酸化チタン被覆オキシ塩化ビスマス、酸化チタン被覆タルク、魚鱗(fish scale)、および酸化チタン被覆着色マイカ;金属粉末顔料、例えば、アルミニウム粉末、銅粉末およびステンレス粉末が含まれる。前記粉末は、レシチン、アミノ酸、ミネラルオイル、シリコーンオイル、または様々な他の機能剤の1種類または組合せにより表面処理されているもよく、これらの機能剤は粉末表面を被覆し、粒子を疎水性にする。

10

20

30

40

50

#### 【0075】

前記粉末にはまた、様々な有機および無機顔料も含まれ得る。有機顔料は、アゾ、インジゴ、トリフェニルメタン、アントラキノン、およびキサンチン染料を含めて、一般に、様々な芳香族タイプであり、これらの染料は、D&CおよびFD&Cブルー、ブラウン、グリーン、オレンジ、レッド、イエローなどと呼ばれる。無機顔料は、一般に、レーキと呼ばれる、認定された着色添加剤の不溶性金属塩、または鉄酸化物からなる。粉末の着色剤(例えば、カーボンブラック、クロムまたは鉄の酸化物、ウルトラマリン、ピロリン酸マンガ  
ン、アイアンブルー、および二酸化チタン)、真珠光沢剤(着色顔料との混合物として通常用いられる)、または、いくつかの有機染料(着色顔料との混合物として通常用いられ、化粧品業界において広く用いられる)が、本発明の組成物に添加され得る。タール色素(tar pigment)、例えば、Red No.3、Red No.104、Red No.106、Red No.201、Red No.202、Red No.204、Red No.205、Red No.220、Red No.226、Red No.227、Red No.228、Red No.230、Red No.401、Red No.505、Yellow No.4、Yellow No.5、Yellow No.202、Yellow No.203、Yellow No.204、Yellow No.401、Blue No.1、Blue No.2、Blue No.201、Blue No.404、Green No.3、Green No.201、Green No.204、Green No.205、Orange No.201、Orange No.203、Orange No.204、Orange No.206、およびOrange No.207;ならびに、天然顔料、例えば、カルミン酸、ラッカイン酸、カルタミン、ブラジリンおよびクロシンが使用され得る。粉末の有機または無機のフィラーもまた添加できる。これらの粉末フィラーは、タルク、マイカ、カオリン、亜鉛またはチタンの酸化物、カルシウムまたはマグネシウムの炭酸塩、シリカ、球状二酸化炭素、ガラスまたはセラミックのビーズ、8から22個の炭素原子を有するカルボン酸から誘導される金属石鹸、膨張してない合成ポリマー粉末、膨張した粉末、および天然有機化合物による粉末、例えば、穀物デンプン(これは、架橋されていることも架橋されていないこともある)から選択できる。特に、タルク、マイカ、シリカ、カオリン、ナイロン粉末(特に、ORGASOL)、ポリエチレン粉末、テフロン(登録商標)、デンプン、窒化ホウ素、コポリマーのマイクロスフィア(例えば、EXPANCEL(Nobel Industries))、POLYTRAP、およびシリコーン樹脂マイクロビーズ(例えば、ToshibaのTOSPEARL)を挙げることができる。

#### 【0076】

さらに、これらの粉末、顔料およびフィラーは、前記の本発明の効果が妨げられない限り、一般的なオイル剤(oil agent)、シリコーンオイル、フッ素含有化合物および界面活性剤とコンパウンド化されても、あるいはこれらにより処理されていてもよい。例えば、これらの粉末は、例えば、フッ素含有化合物による処理、シリコーン樹脂による処理、ペンダント処理、シランカップリング剤による処理、チタンカップリング剤、オイル剤による処理、N-アシル化リシンによる処理、ポリアクリル酸による処理、金属石鹸による処理、アミノ酸による処理、無機化合物による処理、プラズマ処理、およびメカノケミカル処理によって、前もって表面処理または変性されていることも、いないこともある。必要であれば、1種または複数の表面処理または変性が行なわれていてもよい。本発明では、1種ま

たは複数の粉末が一緒にされ得る。

【 0 0 7 7 】

これらの粉末、顔料またはフィラーをシリコーンベシクルにより覆うことにより、それらの触感および皮膚への吸収を向上させ、メイクアップをより長持ちさせることができる。

【 0 0 7 8 】

シリコーンベシクルおよびエマルジョン組成物は、優れた保湿、皮膚または毛髪での触感を得るために、保湿剤(humectant)と一緒にすることができる。保湿剤の保湿効果は、オルガノポリシロキサンにより生成したベシクルと保湿剤との相互作用によって増強される。適切な保湿剤には、トレハロース、ペンタエリスリトール、キシリトール、グリセリン、プロピレングリコール、ジプロピレングリコール、トリプロピレングリコール、ポリプロピレングリコール、1,3-ブチレングリコール、エチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ポリグリセリン、ヒアルロン酸およびその塩、コンドロイチン硫酸およびその塩、ピロリドンカルボン酸塩、ポリオキシエチレンメチルグルコシド、ポリオキシプロピレンメチルグルコシド、およびエチルグルコシド；糖アルコール、例えば、ソルビトール、マルトース、およびマルチトール；ステロール、例えば、コレステロール、シトステロール、フィトステロール、およびラノステロール；糖およびそれらのエステル；デキストリンおよびその誘導体；パンテノールとその誘導体およびその塩；蜂蜜、尿素、リン脂質、糖脂質、セラミドが含まれる。好ましくは、保湿剤は、グリセリン、ジグリセリン、プロピレングリコール、1,3-ブチレングリコール、ポリエチレングリコール、ヒアルロン酸およびその塩、糖脂質またはセラミドから選択できる。化粧品に添加される保湿剤の望ましい量は、全配合物に対して、0.001から10質量%、好ましくは、0.001から5質量%の範囲である。

【 0 0 7 9 】

シリコーンベシクルおよびエマルジョン組成物は、配合物全体への他の活性剤および成分の添加による、化粧品およびシリコーンベシクル自体の不安定化を防ぐために、増粘剤と一緒にできる。さらに、これらの増粘剤は、配合物に、「高価で」良好な触感を与える。好ましくは、ポリアクリル酸またはポリアクリルアミドの分子骨格を含む増粘剤が、この意図で使用され得る。以下の化合物が増粘剤として使用される：植物由来ポリマー、例えば、アラビアガム、トラガカントガム、アラビノガラクトン、ローカストビーンガム(イナゴマメガム)、グアーガム、カラヤガム、カラギーナン、ペクチン、寒天、マルメロの実、デンプン(コメ、トウモロコシ、ジャガイモまたはコムギ由来)、藻類コロイド(algae colloid)、およびトランツガム(trant gum)；細菌由来ポリマー、例えば、ザンサンガム、デキストラン、サクシノグルカン、およびブルラン；動物由来ポリマー、例えば、コラーゲン、カゼイン、アルブミン、およびゼラチン；デンプン由来ポリマー、例えば、カルボキシメチルデンプンおよびメチルヒドロキシプロピルデンプン；セルロースポリマー、例えば、メチルセルロース、エチルセルロース、メチルヒドロキシプロピルセルロース、カルボキシメチルセルロース、ヒドロキシメチルセルロース、ヒドロキシプロピルセルロース、ニトロセルロース、硫酸セルロースナトリウム、カルボキシメチルセルロースナトリウム、結晶セルロース、およびセルロース粉末；アルギン酸由来ポリマー、例えば、アルギン酸ナトリウムおよびアルギン酸プロピレングリコール；ビニルポリマー、例えば、ポリビニルメチルエーテル、ポリビニルピロリドン、およびカルボキシビニルポリマー；ポリオキシエチレンポリマー、例えば、ポリエチレングリコール；ポリオキシエチレン/ポリオキシプロピレンのコポリマー；アクリルポリマー、例えば、ポリアクリル酸ナトリウム、ポリエチルアクリレート、およびポリアクリルアミド；ポリエチレンイミン；カチオンポリマー；ならびに、無機増粘剤、例えば、ベントナイト、ケイ酸アルミニウムマグネシウム、ラポナイト(laponite)、スメクタイト、サポナイト、ヘクトライト、および無水ケイ酸。好ましい増粘剤は、シリコーン系ポリアミドである。このようなポリアミドは、W099/06473(Barr他)に開示されている。

10

20

30

40

50

## 【 0 0 8 0 】

オイル可溶性ゲル化剤もまた、増粘剤として使用され得る。例えば、少なくとも1種が以下の群から選択され得る：金属石鹸、例えば、ステアリン酸アルミニウム、ステアリン酸マグネシウム、およびミリスチン酸亜鉛；-アミノ酸誘導体、例えば、N-ラウロイル-L-グルタミン酸、-ジ-n-ブチルアミン；デキストリン脂肪酸エステル、例えば、パルミチン酸デキストリン、ステアリン酸デキストリン、および(2-エチルヘキサン酸/パルミチン酸)デキストリン；スクロース脂肪酸エステル、例えば、パルミチン酸スクロースおよびステアリン酸スクロース；ソルビトールのベンジリデン誘導体、例えば、モノベンジリデンソルビトールおよびジベンジリデンソルビトール；有機基により変性された粘度鉱物、例えば、ジメチルベンジルドデシルアンモニウムモンモリロナイトクレー、ジメチルジオクタデシルアンモニウムモンモリロナイト、およびオクタデシルジメチルベンジルアンモニウムモンモリロナイト。シリコーンベシクルにおける増粘剤の望ましい量は、全配合物に対して、0.01から95質量%、好ましくは、0.1から50質量%の範囲である。

10

## 【 0 0 8 1 】

染毛剤または他のメイクアップ製品の配合では、着色剤が、シリコーンベシクルと一緒に使用され得る。シリコーンベシクルは皮膚または毛髪上で着色剤を覆っていて、着色を安定なものとし、皮膚または毛髪に直接付着する着色剤を減らす。これらの効果は、長持ちし、また生理学的負荷の小さい配合に寄与する。本発明に使用される着色剤は、カチオンまたはアニオン染料から選択できる。さらに、これらの染料はまた、他の陰イオン性-または陽イオン性-荷電有機分子と一緒にできる。適切なカチオン染料(これらは陽イオン性荷電有機分子を含む)には、以下が含まれる：3-[(4-アミノ-6-ブromo-5,8-ジヒドロ-1-ヒドロキシ-8-イミノ-5-オキソ-2-ナフチル)アミノ]-N,N,N-トリメチルアニリニウムクロリド(CI 56059;Basic Blue No.99--商用名Arianor Steel BlueおよびJaracol Steel Blue);8-[(4-アミノ-3-ニトロフェニル)アゾ]-7-ヒドロキシ-N,N,N-トリメチル-2-ナフタレンアミニウムクロリド[Major]と、8-[(4-アミノ-2-ニトロフェニル)アゾ]-7-ヒドロキシ-N,N,N-トリメチル-2-ナフタレンアミニウムクロリド[Minor]の混合物(Basic Brown No.17--Arianor Sienna BrownおよびJaracol Sienna Brown);8-[(4-アミノフェニル)アゾ]-7-ヒドロキシ-N,N,N-トリメチル-2-ナフタレンアミニウムクロリド(CI 12250;Basic Brown No.16--Arianor MahoganyおよびJaracol Mahogany);3-[4,5-ジヒドロ-3-メチル-5-オキソ-1-フェニル-1H-ピラゾール-4-イル)アゾ]-N,N,N-トリメチルアニリニウムクロリド(CI 12719;Basic Yellow No.57 - Arianor Straw YellowおよびJaracol Straw Yellow);および、7-ヒドロキシ-8-[(2-メトキシフェニル)アゾ]-N,N,N-トリメチル-2-ナフタレンアミニウムクロリド(CI 12245;Basic Red No.76--Arianor Madder RedおよびJaracol Madder Red)。上に挙げた染料は、Warner Jenkinson Europe(Kings Lynn, Norfolk、英国)から入手可能である。Jaracol染料は、James Robinson Dyes(Huddersfield、英国)から入手可能である。本発明において使用されるのに適し、陽イオン性荷電有機分子を含む適切なカチオン染料の他の例には以下が含まれる：9-(ジメチルアミノ)ベンゾ[a]フェノキサジン-7-イウム(ium)クロリド(CI 51175;Basic Blue No.6);ジ[4-(ジエチルアミノ)フェニル]-[4-(エチルアミノ)ナフチル]カルベニウムクロリド(CI 42595;Basic Blue No.7);3,7-ジ-(ジメチルアミノ)フェノチアジン-5-イウムクロリド(CI 52015;Basic Blue No.9);ジ[4-(ジメチルアミノ)フェニル]-[4-(フェニルアミノ)ナフチル]カルベニウムクロリド(CI 44045;Basic Blue No.26);2[(4-(エチル(2-ヒドロキシエチル)アミノ)フェニル)アゾ]-6-メトキシ-3-メチルベンゾチアゾリウムメチルサルフェート(CI 11154;Basic Blue No.41);ビス[4-(ジメチルアミノ)フェニル][4-(メチルアミノ)フェニル]カルベニウムクロリド(CI 42535;Basic Violet No.1);トリス-[4-(ジメチルアミノ)フェニル]カルベニウムクロリド(CI 42555;Basic Violet No.3);2-[3,6-(ジエチルアミノ)ジベンゾピラニウム-9-イル]安息香酸クロリド(CI 45170;Basic Violet No.10);ジ(4-アミノフェニル)(4-アミノ-3-メチルフェニル)カルベニウムクロリド(CI 42510;Basic Violet No.14);1,3-ビス[(2,4-ジアミノ-5-メチルフェニル)アゾ]-3-メチルベンゼン(CI 21010;Basic Brown No.4);1-[(4-アミノ-2-ニトロフェニル)アゾ]-7-(トリメチルアミノ)-2-ナフトールクロリド(CI 12251;Basic Br

20

30

40

50

own No.17); 3,7-ジアミノ-2,8-ジメチル-5-フェニルフェナジニウムクロリド(CI 50240; Basic Red No.2); 1,4-ジメチル-5-[(4-(ジメチルアミノ)フェニル)アゾ]-1,2,4-トリアゾリウムクロリド(CI 11055; Basic Red No.22); 2-[2-((2,4-ジメトキシフェニル)アミノ)エテニル]-1,3,3-トリメチル-3H-インドール-1-イウムクロリド(CI 48055; Basic Yellow No.11); および、ビス[4-(ジエチルアミノ)フェニル]フェニルカルベニウムハイドロジェンサルフェート(1:1)(CI 42040; Basic Green No.1)。いわゆる塩基性染料における陽イオン化学種である荷電有機分子は特に適している。

適切なアニオン染料(これらは陰イオン性荷電有機分子を含む)には、アゾ染料、キサンテン染料、およびカルベニウム塩系の染料が含まれる。染料の具体例は以下である: 6-ヒドロキシ-5-[(4-スルホフェニル)アゾ]-2-ナフトレンスルホン酸二ナトリウム塩(CI 15985; Food Yellow No.3); 2,4-ジニトロ-1-ナフトール-7-スルホン酸二ナトリウム塩(CI 10316; Acid Yellow No.1; Food Yellow No.1); 2-(2-キノリニル)-1H-インデン-1,3(2H)-ジオン(モノ-およびジスルホン酸の混合物)(CI 47005; Food Yellow No.13; Acid Yellow No.3); 4,5-ジヒドロ-5-オキソ-1-(4-スルホフェニル)-4-[(4-スルホフェニル)アゾ]-1H-ピラゾール-3-カルボン酸三ナトリウム塩(CI 19140; Food Yellow No.4; Acid Yellow No.23); 3',6'-ジヒドロキシスピロ[イソベンゾフラン-1(3H), 9'-[9H]キサンテン]-3-オン二ナトリウム塩(CI 45350; Acid Yellow No.73; D & C Yellow No.8); 5-[(2,4-ジニトロフェニル)アミノ]-2-フェニルアミノベンゼンスルホン酸ナトリウム塩(CI 10385; Acid Orange No.3); 4-[(2,4-ジヒドロキシフェニル)アゾ]ベンゼンスルホン酸一ナトリウム塩(CI 14270; Acid Orange No.6); 4-[(2-ヒドロキシ-1-ナフトレニル)アゾ]ベンゼンスルホン酸一ナトリウム塩(CI 15510; Acid Orange No.7); 4-[[3-[(2,4-ジメチルフェニル)アゾ]-2,4-ジヒドロキシフェニル]アゾ]ベンゼンスルホン酸一ナトリウム塩(CI 20170; Acid Orange No.24); 4-ヒドロキシ-3-[(4-スルホ-1-ナフトレニル)アゾ]-1-ナフトレンスルホン酸二ナトリウム塩(CI 14720; Acid Red No.14); 7-ヒドロキシ-8-[(4-スルホ-1-ナフトレニル)アゾ]-1,3-ナフトレンジスルホン酸三ナトリウム塩(CI 16255; Ponceau 4R; Acid Red No.18); 3-ヒドロキシ-4-[(4-スルホ-1-ナフトレニル)アゾ]-2,7-ナフトレンジスルホン酸三ナトリウム塩(CI 16185; Acid Red No.27; Food Red 9); 5-アミノ-4-ヒドロキシ-3-(フェニルアゾ)-2,7-ナフトレンジスルホン酸二ナトリウム塩(CI 17200; Acid Red No.33); 5-(アセチルアミノ)-4-ヒドロキシ-3-[(2-メチルフェニル)アゾ]-2,7-ナフトレンジスルホン酸二ナトリウム塩(CI 18065; Acid Red No.35); 3',6'-ジヒドロキシ-2',4',5',7'-テトラヨードスピロ[イソベンジフラン-1(3H), 9'-[9H]キサンテン]-3-オン二ナトリウム塩(CI 45430; Acid Red No.51); N-[6-(ジエチルアミノ)-9-(2,4-ジスルホフェニル)-3H-キサンテン-3-イリデン]-N-エチルエタナミニウムヒドロキシド、内部塩、ナトリウム塩(CI 45100; Acid Red No.52); 7-ヒドロキシ-8-[[4-(フェニルアゾ)フェニル]アゾ]-1,3-ナフトレンジスルホン酸二ナトリウム塩(CI 27290; Acid Red No.73); 2',4',5',7'-テトラブromo-3',6'-ジヒドロキシスピロ[イソベンゾフラン-1(3H), 9'-[9H]-キサンテン]-3-オン二ナトリウム塩(CI 45380; Acid Red No.87); 2',4',5',7'-テトラブromo-4,5,6,7-テトラクロロ-3',6'-ジヒドロキシスピロ[イソベンゾフラン-1(3H), 9'-[9H]-キサンテン]-3-オン二ナトリウム塩(CI 45410; Acid Red. No.92); 3',6'-ジヒドロキシ-4'5'-ジヨードスピロ[イソベンゾフラン]-1(3H), 9'-(9H)-キサンテン]-3-オン二ナトリウム塩(CI 45425; Acid Red No.95); ベンゼンメタナミニウム、N-エチル-N-[4-[[4-[エチル[(3-スルホフェニル)メチル]アミノ]フェニル](2-スルホフェニル)メチレン]-2,5-シクロヘキサジエン-1-イリデン]-3-スルホ-、ヒドロキシド、内部塩、二ナトリウム塩(CI 42090; Acid Blue No.9); 2,2'-[(9,10-ジヒドロ-9,19-ジオキソ-1,4-アントラセンジイル)ジイミノ]ビス[5-メチル]ベンゼンスルホン酸二ナトリウム塩(CI 61570; Acid Green No.25); N-[4-[[4-(ジエチルアミノ)フェニル](2-ヒドロキシ-3,6-ジスルホ-1-ナフトレニル)メチレン]-2,5-シクロヘキサジエン-1-イリデン]-N-メチルメタナミニウムヒドロキシド内部塩、一ナトリウム塩(CI 44090; Food Green No.4; Acid Green No.50); N-[4-[[4-(ジエチルアミノ)フェニル](2,4-ジスルホフェニル)メチレン]-2,5-シクロヘキサジエン-1-イリデン]-N-エチルエタナミニウムヒドロキシド内部塩、ナトリウム塩(CI 42045; Food Blue No.3 Acid Blue No.1); N-[4-[[4-(ジ

10

20

30

40

50



エチルアミノ)フェニル](5-ヒドロキシ-2,4-ジスルホフェニル)メチレン]-2,5-シクロヘキサジエン-1-イリデン]-N-エチルエタナミニウムヒドロキシド内部塩、カルシウム塩(2:1)(CI 42051;Acid Blue No.3);1-アミノ-4-(シクロヘキシルアミノ)-9,10-ジヒドロ-9,10-ジオキソ-2-アントラセンスルホン酸ナトリウム塩(CI 62045;Acid Blue No.62);2-(1,3-ジヒドロ-3-オキソ-5-スルホ-2H-インドール-2-イリデン)-2,3-ジヒドロ-3-オキソ-1H-インドール-5-スルホン酸二ナトリウム塩(CI 73015、Acid Blue No.74);9-(2-カルボキシフェニル)-3-[(2-メチルフェニル)アミノ]-6-[(2-メチル-4-スルホフェニル)アミノ]キサントリウムヒドロキシド内部塩、ナトリウム塩(CI 45190;Acid Violet No.9);2-[(9,10-ジヒドロ-4-ヒドロキシ-9,10-ジオキソ-1-アントラセニル)アミノ]-5-メチルベンゼンフルホン酸ナトリウム塩(CI 60730;D & C Violet No.2;Acid Violet No.43);ビス[3-ニトロ-4-[(4-フェニルアミノ)-3-スルホフェニルアミノ]フェニル]スルホン(CI 10410;Acid Brown No.13);4-アミノ-5-ヒドロキシ-3-[(4-ニトロフェニル)アゾ]-6-(フェニルアゾ)-2,7-ナフタレンジスルホン酸二ナトリウム塩(CI 20470;Acid Black No.1);3-ヒドロキシ-4-[(2-ヒドロキシナフト-1-イル)アゾ]-7-ニトロ-1-ナフタレンスルホン酸クロム錯体(3:2)(CI 15711;Acid Black No.52);3-[(2,4-ジメチル-5-スルホフェニル)アゾ]-4-ヒドロキシ-1-ナフタレンスルホン酸二ナトリウム塩(CI 14700;Food Red No.1;Ponceau SX;FD&C Red No.4);4-(アセチルアミノ)-5-ヒドロキシ-6-[(7-スルホ-4-[(4-スルホフェニル)アゾ]-1-ナフタレニル)アゾ]-1,7-ナフタレンスルホン酸四ナトリウム塩(CI 28440、Food Black No.1);および、3-ヒドロキシ-4-(3-メチル-5-オキソ-1-フェニル-4,5-ジヒドロ-1H-ピラゾール-4-イルアゾ)ナフタレン-1-スルホン酸ナトリウム塩、クロム錯体(Acid Red No.195)。荷電陰イオン性有機分子は、いわゆる酸性染料における陰イオン化学種であり、特に好ましい。陽イオン性クレーが用いられる場合、荷電有機分子は、好ましくは、陰イオン界面活性剤、陰イオン性ポリマー、およびポリマー電解質の陰イオンから選択される。好ましい陰イオン性荷電有機分子は陰イオン界面活性剤の陰イオンである。適切な陰イオン界面活性剤の例は、アルキルサルフェート、アルキルエーテルサルフェート、アルカリール(alkaryl)スルホネート、アルカノイルイセチオネート、アルキルサクシネート、アルキルスルホサクシネート、アルキルホスフェート、アルキルエーテルホスフェート、アルキルカルボキシレート、アルキルエーテルカルボキシレート、アルキルエステルカルボキシレート、N-アルキルサルコシネート、および、-オレフィンスルホネート、特に、これらのナトリウム、マグネシウム、アンモニウム、およびモノ-、ジ-、およびトリアタノールアミン塩である。アルキルおよびアシル基は、通常、8から22個、好ましくは、12から22個の炭素原子を含み、飽和であっても不飽和であってもよく、炭素および水素の原子以外に、エーテル結合、および、アミノ基およびエステル基のような他の基を含み得る。アルキルエーテルサルフェート、アルキルエーテルホスフェートおよびアルキルエーテルカルボキシレートは、1分子当たり1から10個のエチレンオキシドまたはプロピレンオキシド単位を含み得る。本発明の組成物に用いられる典型的な陰イオン界面活性剤には、スルホコハク酸オレイルナトリウム、スルホコハク酸ラウリルアンモニウム、ラウリル硫酸アンモニウム、ココイルイセチオン酸ナトリウム、ラウリルイセチオン酸ナトリウムおよびN-ラウリルサルコシンナトリウム、ラウリル硫酸ナトリウム、ラウリルエーテル硫酸(n)EOナトリウム(nは1から3の範囲である)、ラウリル硫酸アンモニウム、ラウリルエーテル硫酸(n)EOアンモニウム(nは1から3の範囲である)、ヘプタデシル硫酸ナトリウム、およびテトラデシル硫酸ナトリウムが含まれる。

さらなる適切な陰イオン性荷電有機分子は陰イオン性ポリマーである。適切な陰イオン性ポリマーの例は、ポリアクリレート、架橋ポリアクリレート、疎水性に変性されたポリアクリレート、ポリアルキルアクリレート、ポリメタクリレート、ポリビニルメチルエーテル/無水マレイン酸(PVM/MA)コポリマー、PVM/MAコポリマーのアルキルエステル、PVM/MAコポリマーのモノエステル樹脂、ポリメチルカルボキシレート、ポリスルホネートおよびポリホスフェートである。

#### 【0082】

シリコーンベシクルは、乳化された配合物を生成させるために、または配合物に洗浄効

10

20

30

40

50

果をもたせるために、知られている界面活性剤と一緒にできる。知られている界面活性剤には、陰イオン性、陽イオン性、非イオン性および両性の界面活性剤が含まれるが、特にこれらに限定されない。化粧品に一般的に用いられるもののどれでも使用され得る。具体例は次の通りである：陰イオン界面活性剤、脂肪酸石鹸(例えば、ステアリン酸ナトリウム)、およびトリエタノールアミンパルミテート、アルキルエーテルカルボン酸およびこれらの塩、アミノ酸と脂肪酸とによる縮合物のカルボン酸塩、アルキルスルホン酸、アルケンスルホン酸塩、脂肪酸エステルスルホン酸塩、脂肪酸アミドスルホン酸塩、アルキルスルホン酸とホルマリンの縮合物のスルホン酸塩、硫酸エステル塩(例えば、アルキル硫酸エステル塩)、高級第2アルコール硫酸エステルの塩、アルキル/アリルエーテル硫酸エステルの塩、脂肪酸エステル硫酸エステルの塩、脂肪酸アルキロールアミド硫酸エステルの塩、およびロート油、アルキルホスフェート、エーテルホスフェート、アルキルアリルエーテルホスフェート、アミドホスフェート、およびN-アシルアミノ界面活性剤が含まれる；陽イオン界面活性剤、アミン塩(例えば、アルキルアミン塩)、ポリアミンおよびアミノアルコール脂肪酸誘導体、アルキル第4級アンモニウム塩、芳香族第4級アンモニウム塩、ピリジニウム塩およびイミダゾリウム塩が含まれる；非イオン界面活性剤、ソルビタン脂肪酸エステル、グリセリン脂肪酸エステル、ポリグリセリン脂肪酸エステル、プロピレングリコール脂肪酸エステル、ポリエチレングリコール脂肪酸エステル、スクロース脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシプロピレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテル、ポリオキシエチレン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンソルビトール脂肪酸エステル、ポリオキシエチレングリセリン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンプロピレングリコール脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンヒマシ油、ポリオキシエチレン硬化ヒマシ油、ポリオキシエチレンフィトスタノールエーテル、ポリオキシエチレンフィトステロールエーテル、ポリオキシエチレンコレスタノールエーテル、ポリオキシエチレンコレステリルエーテル、アルカノールアミド、糖エーテル、および糖アミドが含まれる；ならびに、両性界面活性剤、ベタイン、アミノカルボキシレート、およびイミダゾリン誘導体が含まれる。

10

20

30

40

#### 【0083】

添加される界面活性剤の望ましい量は、全配合物の量に対して、0.1から20質量%、好ましくは、0.5から10質量%の範囲である。1種または複数の界面活性剤が用いられてもよい。

#### 【0084】

本発明のシリコーンベシクル組成物は、皮膚または毛髪で、その殺菌効果を保つために、殺菌剤と一緒にすることができる。シリコーンベシクルと殺菌剤との組合せにより、その効果、耐水性および耐汗性が良好に保持される。さらに、シリコーン組成物にデオドラントとしてこれらの殺菌剤を加えると、長持ちし、保持力のある配合物が得られる。適切な殺菌剤には、塩化ベンザルコニウム、塩化ベンゼトニウム、塩化セチルピリジニウム、グルコン酸クロロヘキシジン、酢酸クロロヘキシジン、クロロヘキシジン塩酸塩、トリクロサン、トリクロカルバン、イソプロピルメチルフェノール、ヒノキチオール( - ツヤブリシン)、ジンクピリチオン、ピロクトンオラミン、レゾルシン、フェノール、ソルビン酸、ヘキサクロロフェノン、サリチル酸、銀担持ゼオライト、または銀担持シリカが含まれる。好ましくは、銀担持ゼオライトおよび銀担持シリカが使用され得る。1種または複数の殺菌剤を用いてもよい。防腐剤としては、パラオキシ安息香酸アルキルエステル、安息香酸、安息香酸ナトリウム、ソルビン酸、ソルビン酸カリウム、およびフェノキシエタノールが使用され得る。抗菌剤としては、安息香酸、サリチル酸、石炭酸、ソルビン酸、パラオキシ安息香酸アルキルエステル、パラクロロメタクレゾール、ヘキサクロロフェノン、塩化ベンザルコニウム、塩化クロロヘキシジン、トリクロロカルバニリド、トリクロサン、光増感剤およびフェノキシエタノールが使用され得る。

#### 【実施例】

#### 【0085】

50

これらの実施例は、当業者に本発明を例示しようとするものであり、特許請求の範囲に記載されている本発明の範囲を限定すると解釈されるべきでない。

# 【 0 0 8 6 】

## 材料

次のシリコーンポリエーテルを代表的実施例において用いた。これらのシリコーンポリエーテルは、よく知られた、白金触媒によるヒドロシリル化反応法によって調製した。

SPE 1 =  $\text{MD}_{94}\text{D}^{(\text{EO}^{12})}_6\text{M}$ の平均式を有する熊手型SPE、 $\text{MD}_{94}\text{D}^{\text{H}}_6\text{M}$ シロキサンと、12個のEO単位を有するAE501モノアリルオキシポリエーテルとから調製。

SPE 2 = (AB) $n$ ブロックコポリマー、 $\text{M}^{\text{H}}\text{D}_{50}\text{M}^{\text{H}}$ シロキサンと、ポリグリコールAA1200ポリエーテルとのヒドロシリル化反応により調製。

SPE 3 =  $\text{MD}_{70}\text{D}^{(\text{EO}^{12})}_3\text{M}$ の平均式を有する熊手型SPE。

# 【 0 0 8 7 】

(実施例1：熊手型SPEベシクル、ビタミンC分散体)

最初に、アスコルビン酸(ビタミンC)のプロピレングリコール溶液を調製し、次いで、SPE 1に組み入れて均質な分散体を生成させた。この混合物にエタノール(EtOH)を加えて、均質な混合物を生成させた。次いで、SPE 1/ビタミンC/プロピレングリコール/EtOHの混合物に、水を徐々に組み入れた。水の導入速度は、混合物が常に均質であるように制御した。SPE分子がベシクルへと自ら配列し、ベシクルの内部にビタミンC活性剤を包み込んだ。

# 【 0 0 8 8 】

## 【表 1】

表 1

実施例番号	1A	1B
工程履歴	混合	混合、ロータリーエバポレーターによりストリッピング
SPE 1	30.32	28.87
ビタミンC(アスコルビン酸)	6.031	5.74
プロピレングリコール	6.272	5.97
EtOH	90.54	86.21
水	181.1	172.44
揮発分除去量、g	0	77.6
バッチの大きさ、g	283.947	221.63
Wt. % SPE	9.65	13.03
Wt. % ビタミンC	1.92	2.59
Wt. % プロピレングリコール	2.00	2.69
Wt. % EtOH	28.81	3.89
Wt. % 水	57.63	77.80
Wt. % 担持	16.59	16.59
外観	わずかにヘーズあり	ヘーズあり、非常に流動性
mv平均の大きさ、 $\mu\text{m}$	0.077	0.082
$D(v, 0.5)$ 、 $\mu\text{m}$	0.074	0.078
$D(v, 0.9)$ 、 $\mu\text{m}$	0.108	0.114

# 【 0 0 8 9 】

この実施例では、親水性のビタミンC(アスコルビン酸)活性剤を、プロピレングリコールの溶液の形態でSPE 1に導入し、EtOH中にSPE/ビタミンC/プロピレングリコールの均質な分散体を生じるようにエタノール溶媒を導入した。次いで、水を導入して、EtOH/水の中にベシクル分散体を生成させた。このEtOHは、大部分、ロータリーエバポレーター除去

装置を用いるストリッピングにより除去した。分散体における最終のベシクルおよびビタミンC組成を表1に要約する。最終分散体は、ヘーズがあり、流動性のある、約82nmの平均のベシクルの大きさを有する混合体であった。

【0090】

(実施例2：熊手型SPEベシクル、ビタミンC分散体)

エタノール溶媒を含まない分散体としての、ビタミンCを包み込んだシリコンベシクルもまた調製した。この実施例は、本発明において用いられる揮発性エタノール溶媒が、主に、処理上の助けとしての役目を果たし、最終のベシクル分散体では必要でないことを例示しようとするものである。

【0091】

ビタミンCをポリプロピレン溶液として組み入れた。熊手型SPE、ビタミンC/プロピレングリコールの溶液、およびエタノール溶媒を混合して、均質な混合物を生成させた。次いで、水を導入し、その間、均質な状態を保つために、混合物を連続的に攪拌した。水の添加の間にシリコンベシクルが生成し、ビタミンCのある部分がベシクルの内側に包み込まれた。

【0092】

エタノールを、真空下に室温でロータリーエバポレーター除去装置を用いて除去した。最終のベシクル組成、およびベシクル分散体におけるビタミンCの量を表2に示す。

【0093】

【表2】

表2

実施例番号	2A	2B
混合方法	水以外の全ての成分を全部最初に加えた	試料を、EtOHが0 %となるまでストリッピング
工程履歴	混合	混合、ロータリーエバポレーターによりストリッピング
SPE 1 g	30.08	7.76
ビタミンC (アスコルビン酸)	6.005	1.55
プロピレングリコール、g	6.047	1.56
EtOH、g	90.235	23.29
水、g	180.412	46.57
揮発分除去量、g	0	30.95
バッチの大きさ、g	312.78	49.78
Wt. % SPE ポリマー	9.62	15.59
Wt. % ビタミンC	1.92	3.11
Wt. % プロピレングリコール	1.93	3.13
Wt. % EtOH	28.85	0.00
Wt. % 水	57.68	78.16
Wt. % 担持	16.64	16.63
mv平均の大きさ、 $\mu\text{m}$	0.060	0.067
D(v, 0.5)、 $\mu\text{m}$	0.057	0.065
D(v, 0.9)、 $\mu\text{m}$	0.094	0.093

【0094】

ビタミンCが包み込まれ、エタノールを含まないシリコンベシクルは優れた安定性を示した。室温に8カ月間置いた後、2Bのベシクル分散体は、薄い琥珀色で乳白の外観を有し、均質のままであった。

【0095】

(実施例3：熊手型SPEベシクル、ビタミンCおよびビタミンAパルミテート分散体)

疎水性活性剤(ビタミンAパルミテート、すなわちVAP)および親水性活性剤(ビタミンC)を、本発明において詳細に記した方法に従って、水を連続相とする分散体としてシリコーンベシクルに包み込んだ。最初に、VAP/BHT(ブチル化ヒドロキシトルエン)安定剤/Dow Corning 245 Fluid(D5)流体の混合物を、50/1.5/48.5(重量で)で調製した。ビタミンCの固体を、1,2-プロパンジオールに溶かして、透明な溶液とした。次いで、VAPおよびビタミンCの溶液を、選択した熊手型SPE 1およびエタノール溶媒に組み入れ、全てを一緒に混合して、均質な混合物を得た。次に、混合しながら水を導入して、両方の活性剤が同時に包み込まれたシリコーンベシクルを生成させた。次いで、ベシクル分散体を、MicroFluidizer(または、ホモジナイザーのような同等の高剪断装置)に通して、ベシクルの大きさおよび粒径の分散度をさらに低下させた。

10

【0096】

最後のステップとして、ロータリーエバポレーター除去装置により、真空下に室温で、エタノール溶媒を除去した。分散体におけるSPEベシクル、VAPおよびビタミンC活性剤の最終組成を表3に要約する。

【0097】

【表 3】

表 3

実施例番号	3A	3B	3C
混合方法	水以外の全ての成分を全部最初に加えた	同じ	同じ
工程履歴	混合	混合、MicroFluidizedに通した	混合、MicroFluidizedに通した；ロータリーエバポレーターによりストリッピング
SPE 1、g		30.169	27.046
VAP、g	5.070	5.070	4.558
DC 245 Fluid、g	4.922	4.922	4.406
BHT、g	0.152	0.152	0.152
ビタミンC (アスコルビン酸)		6.224	5.592
1,2-プロパンジオール、g	6.272	6.272	5.622
EtOH、g	90.190	90.190	80.896
水、g	185.700	185.700	166.532
揮発分除去量、g	0	0	79.20
バッチの大きさ、g	328.699	328.699	224.69
Wt. % ポリマー	8.90	8.90	12.54
Wt. % VAP	1.50	1.50	2.11
Wt. % ビタミンC	1.84	1.84	2.59
Wt. % BHT	0.05	0.05	0.07
Wt. % DC 245 Fluid	1.45	1.45	2.04
Wt. % 1,2-プロパンジオール	1.85	1.85	2.61
Wt. % EtOH	26.62	26.62	0.79
Wt. % 水	54.80	54.80	77.24
wt % 担持ビタミンC	17.13	17.13	17.12
wt % 担持VAP	14.42	14.42	14.40
外観			非常に流動性；非常に薄い黄色、ほとんど白色
mv平均の大きさ、 $\mu\text{m}$	3.380	0.057	0.064
D(v, 0.5)、 $\mu\text{m}$	5.610	0.042	0.055
D(v, 0.9)、 $\mu\text{m}$	6.290	0.094	0.109

## 【0098】

ビタミンAパルミテート(VAP)およびビタミンC(アスコルビン酸)を包み込んだシリコーンベシクルは、薄い黄色みを帯びた乳白の分散体であり、非常に流動性のあるコンシステンスを有する。VAPおよびビタミンCを包み込んだベシクルは、直径64nmの平均の大きさを有する。

## 【0099】

(実施例4および5：(AB)nSPEブロックコポリマーベシクル、ビタミンC分散体)

本発明の方法をまた、(AB)nSPEブロックコポリマー(SPE 2)により形成されるシリコーンベシクルに、親水性活性剤および他の極性物質を同時に包み込むためにも用いた。この方法および得られた配合物を表4および5に要約する。

## 【0100】

【表 4】

表 4

実施例番号	4A	4B	4C
混合方法	水以外の全ての成分を全部最初に加えた	同じ	同じ
工程履歴	混合	混合、MicroFluidizedに通した	混合、MicroFluidizedに通し、ロータリーエバポレーターによりストリップング
SPE 2、g	31.21	31.21	26.93
ビタミンC (アスコルビン酸)	6.342	6.342	5.47
プロピレングリコール、g	6.157	6.157	5.31
EtOH、g	90.940	90.940	78.46
水、g	181.0	181.0	156.15
揮発分除去量、g	0	0	73.8
パッチの大きさ、g	315.65	315.65	198.52
Wt. % SPE	9.89	9.89	13.56
Wt. % ビタミンC	2.01	2.01	2.76
Wt. % プロピレングリコール	1.95	1.95	2.68
Wt. % EtOH	28.81	28.81	2.35
Wt. % 水	57.34	57.34	78.66
Wt % 担持	16.89	16.89	16.89
mv平均の大きさ、 $\mu\text{m}$	0.628	0.077	0.090
D(v, 0.5)、 $\mu\text{m}$	0.191	0.057	0.075
D(v, 0.9)、 $\mu\text{m}$	2.025	0.150	0.150
6カ月後の外観			均質な分散体、薄い琥珀色の外観
Wt. % ビタミンC 2カ月後、HPLCによる			1.80

10

20

30

## 【0101】

(AB)nSPE 2ブロックコポリマーから誘導された、ビタミンCを包み込んだシリコーンベシクルは、優れた安定性を示した。2カ月のエージングの後、HPLCによって測定したビタミンCは、1.8重量%であり、理論量の約65%に相当した。

## 【0102】

【表 5】

表 5

実施例番号	5A	5B	5C
混合方法	水以外の全ての成分を全部最初に加えた	同じ	同じ
工程履歴	混合	混合、MicroFluidizedに通した	混合、MicroFluidizedに通し、ロータリーエバポレーターによりストリッピング
SPE 2 g	30.84	30.84	27.91
ビタミンC (アスコルビン酸)	6.389	6.389	5.78
プロピレングリコール、g	6.382	6.382	5.78
EtOH、g	90.953	90.953	82.31
水、g	181.1	181.1	163.88
揮発分除去量、g	0	0	84.4
バッチの大きさ、g	315.64	315.64	201.26
Wt. % SPE	9.77	9.77	13.87
Wt. % ビタミンC	2.02	2.02	2.87
Wt. % プロピレングリコール	2.02	2.02	2.87
Wt. % EtOH	28.82	28.82	0.00
Wt. % 水	57.37	57.37	80.39
Wt. % 担持	17.16	17.16	17.16
外観			均質な乳白の分散体
mv平均の大きさ、 $\mu\text{m}$	0.176	0.097	0.105
D(v, 0.5)、 $\mu\text{m}$	0.142	0.078	0.079
D(v, 0.9)、 $\mu\text{m}$	0.298	0.159	0.171
室温で6カ月後の外観			均質な分散体、ベージュ色の外観

## 【0103】

この実施例において調製した、ビタミンCを包み込んだシリコーンベシクルは、均質で乳白の分散体であり、 $0.105\mu\text{m}$ の平均直径を有していた。このベシクル分散体は、6カ月後に、均質なままであり、僅かに変色した。

## 【0104】

(実施例6：(AB)nブロックコポリマーベシクル、ビタミンCおよびビタミンA分散体)

ビタミンAパルミテート(親油性)およびビタミンC(親水性)活性剤を、(AB)nシリコーンポリエーテルブロックコポリマーから誘導されるシリコーンベシクルに両方とも包み込んだ。最初に、VAPを、BHTと245流体との混合物とし、ビタミンCをプロピレングリコールに溶かした。次いで、両方を、(AB)nSPEコポリマーおよびエタノールに組み入れて、均質な溶液とした。最終分散体の組成を表6に要約する。

## 【0105】



【表 6】

表 6

実施例番号	ビタミンA プレミックス	6A	6B	6C
混合方法		EtOHおよび 水以外の全 ての成分を 全部最初に 加えた	同じ	同じ
工程履歴	混合	混合	混合、 MicroFluidi zedに通した	混合、 MicroFluidizedに 通した； ロータリーエバポ レーターによりス トリッピング
SPE 2、g		32.820	32.820	28.360
ビタミンパルミテート プレミックス、g		11.100	11.100	
VAP、g	6.09			4.653
DC 245 Fluid、g	6.151			4.699
BHT、g	0.314			0.240
ビタミンC (アスコルビン酸)		6.230	6.230	5.383
プロピレングリコール、 g		6.080	6.080	5.254
EtOH、g		90.540	90.540	78.236
水、g		181.270	181.270	156.636
揮発分除去量、g		0	0	71.70
バッチの大きさ、g		284.120	284.120	211.76
Wt. % SPE ポリマー	0.00	10.00	10.00	13.39
Wt. % VAP	48.51	1.64	1.64	2.20
Wt. % ビタミンC	0.00	1.90	1.90	2.54
Wt. % BHT	2.50	0.08	0.08	0.11
Wt. % 245 Fluid	48.99	1.66	1.66	2.22
Wt. % プロピレングリコール		1.85	1.85	2.48
Wt. % EtOH	0.00	27.60	27.60	3.09
Wt. % 水	0.00	55.26	55.26	73.97
wt % 担持ビタミンC		15.95	15.95	15.95
wt % 担持VAP		14.09	14.09	14.09
mv平均の大きさ、 $\mu\text{m}$		1.467	0.089	0.216
D(v, 0.5)、 $\mu\text{m}$		1.587	0.080	0.095
D(v, 0.9)、 $\mu\text{m}$		2.125	0.147	0.692
Wt. % VAP 2カ月後、 HPLCによる				1.90
Wt. % ビタミンC 2カ月 後、HPLCによる				1.40

## 【0106】

VAPおよびビタミンCを包み込んだシリコーンベシクルは、水の中で、 $0.216\mu\text{m}$ の平均の大きさを有していた。HPLCアッセイにより検出した、VAPおよびビタミンC活性剤の量は、

10

20

30

40

50

それぞれ、1.90および1.40重量%であった。これらの値は、それぞれ、投入理論量の86%および55%である。

【0107】

(実施例7：均質化工程を用いた、非常に疎水性のSPEによる、熊手型SPEベシクル、ビタミンC分散体)

非常に疎水性のシリコーンポリエーテルによる、ビタミンCを包み込んだシリコーンベシクルの製造方法を示す。このSPEは、非常に僅か乃至無視できるほどの水への溶解性を有する。プロピレングリコール溶液の形態のビタミンCを、前記の方法に従って、シリコーンベシクルに組み入れた。混合、次いでロータリーエバポレーターによる真空でのストリップングによって調製したシリコーンベシクルの最終の組成を求めた。このベシクルの製造では、MicroFluidizerも高剪断ホモジナイザーも使用しなかった。

【0108】

【表7】

表7

実施例番号	7A	7B	7C
工程履歴	混合	混合、 MicroFluidized に通した	混合、 MicroFluidizedに 通し、 ロータリーエバポ レーターによりス トリッピング
SPE 3 g	30.07	30.07	11.76
ビタミンC (アスコルビン酸)	6.255	6.255	2.45
プロピレングリコール	6.051	6.051	2.37
EtOH	90.41	90.41	35.37
水	180.714	180.714	70.71
揮発分除去量、g	0	0	33.36
バッチの大きさ、g	313.49	313.49	89.3
Wt. % SPE ポリマー	9.59	9.59	13.17
Wt. % ビタミンC	2.00	2.00	2.74
Wt. % プロピレングリコール	1.93	1.93	2.65
Wt. % EtOH	28.84	28.84	2.25
Wt. % 水	57.65	57.65	79.18
Wt % 担持	17.22	17.22	17.22
外観	僅かに濁った流体	非常に濁り黄み を帯びる	曇って少し灰色乃 至黄みを帯びる
pH	3.17	3.19	2.69
mv平均の大きさ、 $\mu\text{m}$	0.094	0.033	0.039
D(v, 0.5)、 $\mu\text{m}$	0.085	0.030	0.037
D(v, 0.9)、 $\mu\text{m}$	0.149	0.051	0.059

【0109】

(実施例8：均質化工程を用いなかった、非常に疎水性のSPEによる、熊手型SPEベシクル、ビタミンC分散体)

表8に要約するように、ビタミンCを包み込んだシリコーンベシクルを、対応する成分を分散させることによって製造した。親水性活性剤は、分散段階の間にシリコーンベシクルが生成するにつれて、シリコーンベシクル内に包み込まれた。ロータリーエバポレーター真空除去装置を用いて、揮発性エタノール溶媒を除去した。このベシクルの製造では、MicroFluidizerも高剪断ホモジナイザーも使用しなかった。

【 0 1 1 0 】

【 表 8 】

表 8

実施例番号	8A	8B
混合方法	水以外の全ての成分を 全部最初に加えた	同じ
工程履歴	混合	混合、ロータリーエバポレー ターによりストリッピング
SH3775M	30.07	11.90
ビタミンC (アスコルビン酸)	6.255	2.48
プロピレングリコール	6.051	2.40
EtOH	90.41	35.79
水	180.714	71.55
揮発分除去量、g	0	36.16
バッチの大きさ、g	313.49	87.96
Wt. % ポリマー	9.59	13.53
Wt. % ビタミンC	2.00	2.82
Wt. % プロピレングリコール	1.93	2.72
Wt. % EtOH	28.84	0.00
Wt. % 水	57.65	80.92
Wt % 担持	17.22	17.22
外観	僅かに濁った流体	濁った流体
pH	3.17	2.84
mv平均の大きさ、 $\mu\text{m}$	0.094	0.095
D(v, 0.5)、 $\mu\text{m}$	0.085	0.089
D(v, 0.9)、 $\mu\text{m}$	0.149	0.142
外観 室温で9カ月後@ RT		均質な分散体、ベージュ色の 外観

10

20

30

【 0 1 1 1 】

この実施例の、SPE 3から誘導されビタミンCを包み込んだシリコーンベシクルは、約95 nmの平均の大きさを有していた。このビタミンCを包み込んだシリコーンベシクルは、室温に9カ月間置いた後、均質なままであり、ベージュ色の外観を有していた。

【 0 1 1 2 】

(実施例9：(参考)ベシクル組成物の調製)

ベシクル組成物(9Aと名づける)を、 $\text{MD}_{94}\text{D}^{(\text{EO}^{12})}_6\text{M}$ (ここで、Mは $(\text{CH}_3)_3\text{SiO}_{1/2}$ シロキシ単位を表し、Dは $(\text{CH}_3)_2\text{SiO}$ シロキシ単位、 $(\text{CH}_3)\text{R}^{\text{EO}^{12}}\text{SiO}$ シロキシ単位を表し、 $\text{R}^{\text{EO}^{12}}$ は、平均式、 $-\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{O}(\text{CH}_2\text{CH}_2\text{O})_{12}\text{H}$ を有するポリエチレンオキシド基を表す)という表示構造を有する熊手型シリコーンポリエーテルから調製した。また、ベシクル組成物(9Bと名づける)を、 $\text{M}'\text{D}_{50}\text{M}'$ シロキサン(ここで、M'は $(\text{CH}_3)_2\text{HSiO}_{1/2}$ シロキシ単位を表し、Dは $(\text{CH}_3)_2\text{SiO}$ シロキシ単位を表す)と、ポリグリコールAA1200ポリエーテル(、-ジアルルポリエチレンオキシド、平均分子量( $M_w$ )1200を有する)との(AB) $n$ SPEブロックコポリマーから調製した。2つのベシクル組成物は、活性物質の代表例としてのビタミンAパルミテートを取り込むように処理した。これらのベシクル組成物は、エタノール/水の媒体中での処理を通じて製造した。組成およびベシクルの初期の性質を表9に要約する。これらのベシクル組成物は、実施例10~15のパーソナルケア配合物を調製するために用いた。

40

【 0 1 1 3 】

【表 9】

表 9

ベシクル実施例ID	9A	9B
SPEタイプ	熊手型SPE	(AB) <sub>n</sub> SPE
Wt. % シリコーンポリエーテル	20.90	21.27
Wt. % ビタミンAパルミテート	4.50	4.59
Wt. % 担体流体 + 添加剤	1.81	1.84
Wt. % 水	72.80	72.30
Wt % 担持	17.71	17.77
初期の性質		
ベシクル分散体の外観	薄い黄色の流体	非常に薄い黄色の流体
平均の大きさ mv、 $\mu\text{m}$	0.0735	0.255
D(v, 0.5)、 $\mu\text{m}$	0.0592	0.2288
D(v, 0.9)、 $\mu\text{m}$	0.1361	0.447

10

## 【0114】

(実施例10：モイスチャリングゲル)

## 【0115】

## 【表10】

20

## Aの部分

- |   |       |
|---|-------|
| 1. 水  | 十分に   |
| 2. DMDMヒダントイン<br>(Nipaguard DMDMH、Clariant GmbH)                | 0.30% |
| 3. アクリレーツ/C10~30アルキルアクリレートクロスポリマー<br>(Carbopol EDT 2020、Noveon) | 1%    |
| 4. トリエタノールアミン(30%)  | 十分に   |

## Bの部分

- |                   |     |
|-------------------|-----|
| 5. 実施例9のシリコーンベシクル | 十分に |
|-------------------|-----|

30

## 【0116】

(実施例11：モイスチャリングゲル)

## 【0117】

## 【表11】

## Aの部分

- |  |       |
|--|-------|
| 1. 水   | 十分に   |
| 2. DMDMヒダントイン<br>(Nipaguard DMDMH、Clariant GmbH)           | 0.30% |
| 3. ポリアクリルアミド、C13~14のイソパラフィン、ラウレス-7<br>(Sepigel 305、Seppic) | 1%    |

40

## Bの部分

- |                   |     |
|-------------------|-----|
| 4. 実施例9のシリコーンベシクル | 十分に |
|-------------------|-----|

## 【0118】

## 手順

- ・ Aの部分のゲルを調製する
- ・ Bの部分を加える
- ・ 均質になるまで混合する

## 【0119】

(実施例12：O/Wのボディローション)

50

水中油型のボディローションを、次の手順に従って調製する。シリコーンベシクルはまた、他の水注油型化粧品配合物にも配合できる。

【 0 1 2 0 】

【表 1 2】

Aの部分

1. セテアリアルアルコール(Lanette 0、Cognis)	3%
2. アジピン酸ジイソプロピル(Crodamol DA、Croda)	5%
3. ジメチコン(Dow Corning(登録商標)200 Fluid、100 cSt)	0.5%
4. セチルリン酸カリウム(Amphisol K、Roche Vitamins)	1.5%
5. ブチル化ヒドロキシトルエン(BHT)	0.05%
6. EDTA四ナトリウム	0.1%
7. フェノキシエタノール、メチルパラベン、エチルパラベン、 プロピルパラベン、ブチルパラベン(Phenonip、Clariant)	0.6%

10

Bの部分

8. 水	十分に
9. カルボマー(1%)(Carbopol 980、Noveon)	30%
10. 水酸化カリウム(10%)	1.5%

Cの部分

11. 実施例9のシリコーンベシクル	十分に
--------------------	-----

20

【 0 1 2 1 】

手順

- ・ Aの部分を攪拌しながら85℃まで加熱する
- ・ 均質になったら、Bの部分を40℃で加える
- ・ 室温まで冷まし、失った水を補う
- ・ Cの部分をABに加える
- ・ 均質になるまで混合する

【 0 1 2 2 】

(実施例13：W/Oのラディアントビューティ配合物)

30

シリコーンベシクルを、下に列挙する手順に従って、油中水型のラディアントビューティ配合物に配合した。他の油中水型パーソナルケア配合物もまた、これらに類似のステップに従って調製できる。

【 0 1 2 3 】

## 【表 1 3】

## Aの部分

1. メトキシケイ皮酸エチルヘキシル (Parsol MCX、Roche Vitamins)	3%	
2. ブチルメトキシジベンゾイルメタン (Parsol 1789、Roche Vitamins)	1.5%	
3. ステアリン酸グリセリル、ステアリン酸PEG-100 (Arlacel 165、Uniqema)	4%	
4. Butyrospermum Parkiiからのシアバター (Cetiol SB 45、Cognis)	1%	10
5. ステアリルジメチコン (Dow Corning(登録商標)2503化粧品ワックス)	3%	
6. セチルアルコール	1%	
7. Simmondsia Chinensis(ホホバ)種オイル	4%	
8. ラノリンオイル(Fluilan、Croda)	3%	
9. シクロメチコン(Dow Corning(登録商標)245 Fluid)	8%	
10. フェノキシエタノール、メチルパラベン、エチルパラベン、 プロピルパラベン、ブチルパラベン(Phenonip、Clariant)	0.5%	
11. シクロメチコン(および)ジメチコンクロスポリマー (Dow Corning(登録商標)9045シリコーンエラストマーブレンド)	5%	20

## Bの部分

12. グリセリン	2%	
13. 水	十分に	

## Cの部分

14. ポリアクリルアミド、C13~14のイソパラフィン、ラウレス-7 (Sepigel 305、Seppic)	4%	
---	----	--

## Dの部分

15. 実施例9ノシリコーンベシクル	十分に	
--------------------	-----	--

30

## 【0 1 2 4】

## 手順

- ・成分1および2を60 で溶融させる
- ・成分3、4、5、6を順に、各成分が、次を入れる前に溶融したことを確認しながら、60で加える
- ・7、8、9および10を加える
- ・成分11を加えてAの部分とする
- ・1500rpmでAの部分にBの部分を加える
- ・室温まで冷ます
- ・最大速度で攪拌しながら、Cの部分をABに、「一度に」加える
- ・粘度が一旦増加したら直ちに攪拌を止める
- ・Dの部分をABCに加える
- ・均質になるまで混合する

40

## 【0 1 2 5】

## (実施例14：マイルドファンデーション)

カラー化粧品を、シリコーンベシクルと他の化粧品用顔料および着色剤とから調製する。この実施例において例示されるのは、シリコーンベシクルを含むマイルドファンデーションであり、下に示す手順に従う。

## 【0 1 2 6】

## 【表 1 4】

## Aの部分

1. カプリン酸ポリグリセリル-4(および)ステアリン酸スクロース(および)ジステアリン酸スクロース(および)PEG-8(および)ポリアクリル酸アンモニウム(および)マイカ(および)酢酸トコフェロール(および)マカデミアナッツエクス(Covacream、Sensient Cosmetic Technology - LCW) 5.00%

## Bの部分

## 2. 水素添加ポリイソブテン

(Squatol S、Sensient Cosmetic Technology - LCW) 10.00%

## 3. シクロメチコン(Dow Corning(登録商標)245 Fluid) 5.00%

10

## Cの部分

## 4. グリセリン 2.50%

5. DMDMヒダントイン(Nipaguard DMDMH、Clariant GmbH) 0.30%

## 6. ポリアクリル酸ナトリウム

(Covacryl J22、Sensient Cosmetic Technology - LCW) 0.30%

## 7. 水 十分に

## Dの部分

8. 赤酸化鉄(AQ 70401、Sensient Cosmetic Technology - LCW) 0.50%

9. 黄酸化鉄(AQ 70402、Sensient Cosmetic Technology - LCW) 0.90%

10. 黒酸化鉄(AQ 70403、Sensient Cosmetic Technology - LCW) 0.10%

20

11. 二酸化チタン(AQ 70409、Sensient Cosmetic Technology - LCW) 8.50%

## Eの部分

12. 実施例9のシリコーンベシクル 十分に

## 【0 1 2 7】

## 手順

- ・ Bの部分の成分を一緒に混合する
- ・ 攪拌しながらB部分をAの部分に加える - ABの部分は均質に見えるようになる
- ・ Cの部分の成分を一緒に混合する
- ・ C部分をABの部分に加え、均質になるまで攪拌する
- ・ Dの部分の成分を一緒に混合する
- ・ D部分をパッチに加え、高剪断の下で30分間攪拌する
- ・ これを終えたら、Eの部分を加える
- ・ 均質になるまで混合する

30

## 【0 1 2 8】

## (実施例15：エマルジョンリップスティック)

この実施例は、リップスティックを含めて、カラー化粧品を配合するのにシリコーンベシクルがどのように使用され得るかを例示する。

## 【0 1 2 9】

40

## 【表 15】

## Aの部分

1. ラウリルPEG/PPG-18/18メチコン (Dow Coming 5200 Formulation Aid)	3.70%	
2. フェニルトリメチコン (Dow Coming 556 Cosmetic Grade Fluid)	1.00%	
3. ラウリル酸ヘキシル (Cetiol A, Cognis Corporation, Care Chemicals)	3.50%	
4. ジステアルジモニウムヘクトライト (Bentone 38, Elementis Specialties)	0.30%	10
5. イソノナン酸イソノニル(および)ポリブテン(および)テトライソステアリン酸ペンタエリスリチル(および)イソステアリアルアルコール (Covaclear, Sensient Cosmetic Technology - LCW)	2.40%	
6. 酸化鉄(Unipure Red LC 381 AS-EM, Sensient Cosmetic Technology - LCW)	3.00%	

## Bの部分

7. 純水	十分に	
8. 藻類エキス(および)ソルビトール (Fucosorb, Sensient Cosmetic Technology - LCW)	0.60%	
9. プロピレングリコール	1.20%	20

## Cの部分

10. オゾケライト(および)ロウヤシ(Copernicia Cerifera, カルナバ)ワックス(および)Euphorbia Cerifera(キャンデリラ)ワックス(および)パラフィン(および)ステアリン酸ブチル(および)パルミチン酸イソプロピル(および)ミネラルオイル(および)エチレン/V Aのコポリマー(Covalip 94, Sensient Cosmetic Technology - LCW)	20.00%	
11. ヒドロキシステアリン酸エチルヘキシル(および)トリメリト酸トリエチルヘキシル(および)C30~45のオレフィン (Clearwax, Sensient Cosmetic Technology - LCW)	1.50%	
12. オクチルドデカノール (Eutanol G, Cognis Corporation, Care Chemicals)	18.50%	30
13. イソノナン酸イソノニル(および)ポリブテン(および)テトライソステアリン酸ペンタエリスリチル(および)イソステアリアルアルコール (Covaclear, Sensient Cosmetic Technology - LCW)	18.00%	

## Dの部分

14. 赤酸化鉄 (AS 70421, Sensient Cosmetic Technology - LCW)	5.00%	
15. 黄酸化鉄 (AS 70422, Sensient Cosmetic Technology - LCW)	0.30%	
16. 黒酸化鉄 (AS 70423, Sensient Cosmetic Technology - LCW)	0.30%	40
17. 二酸化チタン(Unipure White LC 981 AS, Sensient Cosmetic Technology - LCW)	6.30%	

## Eの部分

18. 実施例9のシリコーンベシクル	十分に	
--------------------	-----	--

## 【0130】

## 手順

- a. 撹拌しながら酸化鉄(Unipure Red LC381)を相Aの残りの部分によく分散させる
- b. 相Bを調製し、撹拌しながら相Bを相Aに注ぐ
- c. 相Dを調製する



- d. ワックスが融けるまで相Cを60℃まで加熱する
- e. 相Dを相Cに加える
- f. ABを50℃まで加熱する
- g. ABをCDに(通常、泡を完全に除去した後で)50℃で加える
- h. 次に、40～45℃まで冷まし、Eの部分を加える
- i. 均質になるまで混合する

## 【 国際調査報告 】

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No  
PCT/US2006/041831

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> INV. A61K8/894 A61K8/14 A61K9/127				
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC				
<b>B. FIELDS SEARCHED</b> Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) A61K				
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched				
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used) EPO-Internal, WPI Data				
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>				
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.		
X	US 5 364 633 A (HILL ET AL.) 15 November 1994 (1994-11-15) the whole document	1,4, 11-15 2,3, 6-10, 16-18, 20-32		
Y	WO 2004/050045 A (DOW CORNING CORPORATION ET AL.) 17 June 2004 (2004-06-17)  claims 1,2,7-9 page 3, line 1 - page 4, line 16	2,3, 6-10, 16-18, 20-32		
Y	EP 0 523 418 A (MERZ & CO. GMBH & CO.) 20 January 1993 (1993-01-20) claims 1,9; examples 1-4  -/-	17,18, 20-32		
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.				
* Special categories of cited documents : <table border="0"> <tr> <td>           "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance            "E" earlier document but published on or after the international filing date            "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)            "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means            "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed         </td> <td>           "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention            "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone            "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.            "&amp;" document member of the same patent family         </td> </tr> </table>			"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art. "&" document member of the same patent family
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art. "&" document member of the same patent family			
Date of the actual completion of the international search  16 February 2007		Date of mailing of the international search report  02/05/2007		
Name and mailing address of the ISA/ European Patent Office, P.B. 5618 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax (+31-70) 340-3016		Authorized officer  ALVAREZ ALVAREZ, C		

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No  
PCT/US2006/041831

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X,P	WO 2005/103157 A (DOW CORNING CORPORATION ET AL.) 3 November 2005 (2005-11-03) the whole document -----	1-4,6-16

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.  
PCT/US2006/041831**Box II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of Item 2 of first sheet)**

This International Search Report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
  
2. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to parts of the International Application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful International Search can be carried out, specifically:
  
3. ☐ Claims Nos.:  
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

**Box III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of Item 3 of first sheet)**

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

see additional sheet

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this International Search Report covers all searchable claims.
  
2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
  
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this International Search Report covers only those claims for which fees were paid, specifically Claims Nos.:
  
4. ☒ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this International Search Report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:  
1-3 (part.), 4 (total.), 6-17 (part.), 18 (total.), 20-32 (part.)

**Remark on Protest**

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.
- ☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

International Application No. PCT/US2006 /041831

## FURTHER INFORMATION CONTINUED FROM PCT/ISA/ 210

This International Searching Authority found multiple (groups of) inventions in this international application, as follows:

1. claims: 1-3 (part.), 4 (total.), 6-17 (part.), 18 (total.),  
20-32 (part.)

Process for preparing a vesicle composition comprising the steps I-III as mentioned in claim 1, where the organopolysiloxane is a silicone polyether of formula as in claim 4.

Vesicle composition comprising the vesicles formed by the process.

Emulsion comprising the vesicles formed by the process.

Personal care products comprising the vesicles formed by the process.

---

2. claims: 1-3 (part.), 5 (total.), 6-17 (part.), 19 (total.),  
20-32 (part.)

Process for preparing a vesicle composition comprising the steps I-III as mentioned in claim 1, where the organopolysiloxane is a block silicone polyether of formula as in claim 5.

Vesicle composition comprising the vesicles formed by the process.

Emulsion comprising the vesicles formed by the process.

Personal care products comprising the vesicles formed by the process.

---

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

Information on patent family members

International application No

PCT/US2006/041831

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 5364633	A	15-11-1994	DE 69509574 D1	17-06-1999
			DE 69509574 T2	07-10-1999
			EP 0672410 A1	20-09-1995
			JP 3810825 B2	16-08-2006
			JP 7323222 A	12-12-1995
			US 5411744 A	02-05-1995
WO 2004050045	A	17-06-2004	AU 2003293350 A1	23-06-2004
			CN 1720021 A	11-01-2006
			EP 1567116 A1	31-08-2005
			JP 2006513280 T	20-04-2006
			KR 20050085379 A	29-08-2005
EP 0523418	A	20-01-1993	AT 143590 T	15-10-1996
			DE 4121945 A1	14-01-1993
			DK 523418 T3	18-11-1996
			ES 2091981 T3	16-11-1996
			GR 3021231 T3	31-01-1997
WO 2005103157	A	03-11-2005	EP 1756226 A1	28-02-2007
			KR 20070004868 A	09-01-2007

## フロントページの続き

(51) Int.Cl.		F I	テーマコード ( 参考 )
A 6 1 Q 1/00 (2006.01)		A 6 1 Q 1/00	
A 6 1 Q 1/04 (2006.01)		A 6 1 Q 1/04	

(81) 指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), EP(AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW

(72) 発明者 シャオ・バーン・リン  
アメリカ合衆国・ミシガン・ 4 8 6 4 2 ・ミッドランド・キャンドルスティック・レーン・ 2 0 0 8

(72) 発明者 ジョアンナ・ニュートン  
ベルギー・ B - 1 4 2 0 ・プレーヌ - ラヌー・アヴニユ・デュ・デルニエル・カレ・ 8

(72) 発明者 ステファニー・ポスティオーク  
ベルギー・ B - 7 0 7 0 ・ル・ルール・リュ・トリュ・ア・ラ・ベルジョール・ 1 7 ベー

(72) 発明者 ジェイムズ・トンプソン  
アメリカ合衆国・ミシガン・ 4 8 6 5 7 ・サンフォード・ノース・ナイン・マイル・ロード・ 1 5 5 5

F ターム ( 参考 ) 4C083 AA082 AA122 AB232 AB242 AC012 AC072 AC092 AC101 AC102 AC111  
AC121 AC122 AC132 AC172 AC182 AC342 AC352 AC372 AC402 AC422  
AC472 AC482 AC532 AC542 AC852 AC902 AD092 AD151 AD152 AD161  
AD162 AD171 AD172 AD512 AD611 AD621 AD622 AD641 AD642 CC02  
CC04 CC12 CC13 DD31 DD32 DD33 DD34 DD41 EE12