

(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12月22日(22.12.2022)



(10) 国際公開番号

WO 2022/264693 A1

(51) 国際特許分類:

C08L 1/02 (2006.01)

A61K 8/73 (2006.01)

A61Q 1/00 (2006.01)

C08K 3/22 (2006.01)

C08K 3/38 (2006.01)

C08K 5/098 (2006.01)

C08L 1/12 (2006.01)

(21) 国際出願番号:

PCT/JP2022/018738

(22) 国際出願日:

2022年4月25日(25.04.2022)

(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 2021-099569 2021年6月15日(15.06.2021) 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).

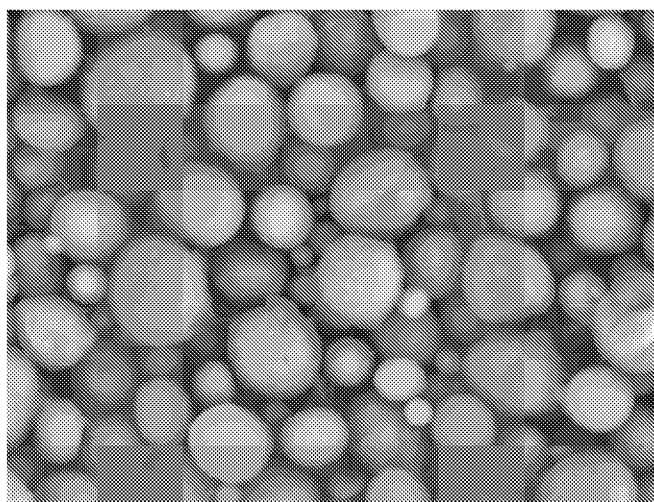
(72) 発明者: 小林 慧子 (KOBAYASHI, Keiko); 〒1088230 東京都港区港南2丁目18番1号 株式会社ダイセル内 Tokyo (JP). 高田 定樹 (TAKATA, Sadaki); 〒5778550 大阪府東大阪市菱屋西4-2-26 大阪樟蔭女子大学内 Osaka (JP). 大村 雅也 (OMURA, Masaya); 〒1088230 東京都港区港南2丁目18番1号 株式会社ダイセル内 Tokyo (JP).

(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: COMPOSITION AND METHOD FOR PRODUCING SAME

(54) 発明の名称: 組成物及びその製造方法

[図1]



2020/09/29 HL x3.0k 30 μm

(57) Abstract: The composition includes cellulose derivative particles and a surface treatment compound. The average particle size of the cellulose derivative particles is 0.08-100 μm (inclusive). The surface treatment compound is an organic compound having a long-chain alkyl group and/or an inorganic powder. The average particle size of this inorganic powder is 1/3 or less the average particle size of the cellulose derivative particles. A cosmetic composition contains this composition. The method for producing this composition has a mixing step for dry mixing the cellulose derivative particles and

[続葉有]



WO 2022/264693 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, JM, 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))

the surface treatment compound.

(57) 要約: 組成物は、セルロース誘導体粒子及び表面処理化合物を含んでいる。セルロース誘導体粒子の平均粒子径は $0.08\mu\text{m}$ 以上 $100\mu\text{m}$ 以下である。表面処理化合物は、長鎖アルキル基を有する有機化合物及び／又は無機粉体である。この無機粉体の平均粒子径は、セルロース誘導体粒子の平均粒子径の $1/3$ 以下である。化粧品組成物は、この組成物を含有する。この組成物の製造方法は、セルロース誘導体粒子と、表面処理化合物と、を乾式混合する混合工程を有している。

明 細 書

発明の名称：組成物及びその製造方法

技術分野

[0001] 本開示は、組成物及びその製造方法に関する。詳細には、本開示は、セルロース誘導体粒子を含む組成物及びその製造方法に関する。

背景技術

[0002] 従来、化粧品には、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、また、ファンデーション等の滑り性を向上するとの目的で、種々の高分子微粒子が配合されている。このような化粧品に配合する微粒子として、ポリアミド、ポリメチルメタクリレート（PMMA）、ポリスチレン、ポリプロピレン、ポリエチレン等の合成ポリマーからなる微粒子が用いられてきた。しかしながら、近年、マイクロプラスチックによる海洋汚染問題に起因して、これら合成ポリマーに代えて、必要な特性を有し、かつ、環境に優しい非合成系ポリマー材料からなる微粒子が求められている。

[0003] 非合成系ポリマーとして、天然物であるセルロースから誘導されるセルロース誘導体からなる微粒子の適用が検討されている。例えば、特許文献1には、平均粒子径が80nm以上100μm以下、真球度が0.7以上1.0以下及び表面平滑度が80%以上100%以下であり、アセチル総置換度が0.7以上2.9以下であるセルロースアセテート粒子が開示されている。

[0004] 特許文献2には、炭素数2以上のアルコキシ基、又は炭素数3以上のアシル基を有するセルロース誘導体粒子であって、平均粒子径が80nm以上100μm以下、及び真球度が70%以上100%以下、表面平滑度が80%以上100%以下であり、総置換度が0.7以上3以下である、セルロース誘導体粒子が開示されている。

[0005] 特許文献3には、平均粒子径が80nm以上100μm以下、真球度が0.7以上1.0以下、表面平滑度が80%以上100%以下、及び水に対す

る表面接触角が 100° 以上であり、アセチル総置換度が 0.7 以上 2.9 以下である、セルロースアセテートを含む粒子が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：特許第6609726号

特許文献2：特開2020-152851号公報

特許文献3：特許第6694559号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] 特許文献1-3に開示された微粒子によれば、化粧品組成物に適した良好な触感や、光散乱（ソフトフォーカス）効果が得られるとされている。しかし、それらの効果は、真球度、表面平滑度等の粒子形状に依拠するところが大きかった。また、化粧品組成物では、用途に応じて種々の溶剤が使用され、製剤の配合が変更されうる。化粧品組成物に配合する高分子微粒子には、特に疎水性溶剤や製剤中における高い分散性が求められている。従来提案された微粒子による粒子分散性には、未だ改善の余地がある。

[0008] 本開示の目的は、粒子形状によらず、良好な触感を有し、かつ、粒子分散性に優れた組成物及びその製造方法の提供にある。

課題を解決するための手段

[0009] 本開示に係る組成物は、セルロース誘導体粒子及び表面処理化合物を含んでいる。セルロース誘導体粒子の平均粒子径は $0.08\mu\text{m}$ 以上 $100\mu\text{m}$ 以下である。表面処理化合物は、長鎖アルキル基を有する有機化合物及び／又は無機粉体である。この無機粉体の平均粒子径は、セルロース誘導体粒子の平均粒子径の $1/3$ 以下である。

[0010] 好ましくは、有機化合物は、炭素数8以上22以下の長鎖アルキル基を有している。好ましくは、有機化合物は、カチオン性界面活性剤及び金属石鹼から選択される化合物、又はNε-ラウロイル-L-リジンである。

- [0011] 好ましくは、表面処理化合物は、ステアリン酸亜鉛、N-ε-ラウロイル-
L-リジン、窒化ホウ素及び酸化亜鉛からなる群から選択される1種又は2
種以上である。この表面処理化合物の含有率は3.0重量%以上10.0重
量%以下であってよい。
- [0012] 好ましくは、セルロース誘導体は、炭素数2~20のアルコキシル基又は
炭素数2~40のアシル基を有している。好ましくは、セルロース誘導体は
セルロースアシレートである。好ましくは、セルロース誘導体はセルロース
アセテートである。セルロース誘導体の総置換度は2.0以上3.2以下で
あってよい。
- [0013] セルロース誘導体粒子は、真球度が0.7以上1.0以下であってよく、
表面平滑度が80%以上100%以下であってよい。
- [0014] 本開示の化粧品組成物は、前述したいずれかの組成物を含む。
- [0015] 本開示の組成物の製造方法は、平均粒子径0.08 μm以上100 μm以
下であるセルロース誘導体粒子と、表面処理化合物と、を乾式混合する混合
工程を有している。この表面処理化合物は、長鎖アルキル基を有する有機化
合物及び／又は無機粉体である。この無機粉体の平均粒子径は、セルロース
誘導体粒子の平均粒子径の1/3以下である。
- [0016] この製造方法が、混合工程前に、表面処理化合物を粉砕する粉砕工程をさ
らに有してもよい。

発明の効果

- [0017] 本開示に係る組成物によれば、表面処理化合物として、長鎖アルキル基を
有する有機化合物、及び／又は、平均粒子径がセルロース誘導体粒子の1/
3以下である無機粉体を含むことにより、良好な触感が得られ、かつ、化粧
品組成物に用いられる種々の溶剤及び製剤中において高い粒子分散性が達成
される。

図面の簡単な説明

- [0018] [図1]図1は、本開示の一実施形態に係る組成物のSEM画像である。
[図2]図2は、本開示の他の実施形態に係る組成物のSEM画像である。

[図3]表面平滑度（％）の評価方法を説明する図面である。

[図4]表面平滑度（％）の評価方法を説明する図面である。

発明を実施するための形態

[0019] 以下、好ましい実施形態の一例を具体的に説明する。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。本開示は、実施形態によって限定されることはなく、クレームの範囲によってのみ限定される。また、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。

[0020] なお、本願明細書において範囲を示す「X～Y」は「X以上Y以下」の意味である。特に注釈のない限り、試験温度は全て室温（20℃±5℃）である。

[0021] [組成物]

本開示の組成物は、セルロース誘導体粒子及び表面処理化合物を含んでいる。セルロース誘導体粒子の平均粒子径は0.08μm以上100μm以下である。表面処理化合物は、長鎖アルキル基を有する有機化合物及び／又は無機粉体である。この無機粉体の平均粒子径は、セルロース誘導体粒子の平均粒子径の1/3以下である。この組成物では、表面処理化合物が、特定の平均粒子径を有するセルロース誘導体粒子の表面及び／又は粒子間に存在する。

[0022] 粒子表面に存在する表面処理化合物により、セルロース誘導体粒子が、化粧品組成物に用いられる溶剤及び製剤に適した表面物性を得ることができる。この組成物によれば、種々の溶剤及び製剤中で高い粒子分散性が達成されるとともに、良好な触感が得られうる。また、粒子間に存在する表面処理化合物により、セルロース誘導体粒子の触感がさらに向上する。

[0023] ここで、「組成物」とは、2以上の化合物を含んでなる混合物を意味する。特に、セルロース誘導体粒子及び表面処理化合物を含む組成物を「本開示の組成物」と称する。本開示の組成物は、実質的に、固体組成物であり、好

ましくは粉体である。本開示の効果が得られる限り、表面処理化合物とセルロース誘導体粒子とは、物理的に付着した状態であってよく、化学的に結合した状態であってよい。また、本開示の効果が阻害されない範囲で、本開示の組成物が、セルロース誘導体粒子及び表面処理化合物以外に、本願明細書に明記されていない物質を含んでもよい。

[0024] 〔表面処理化合物〕

本開示の組成物における表面処理化合物は、長鎖アルキル基を有する有機化合物及び／又は無機粉体である。この無機粉体の平均粒子径は、セルロース誘導体粒子の平均粒子径の1／3以下である。本開示に適した表面処理化合物は、水系溶媒及び非水系溶媒に対し、実質的に不溶の物質であってよい。ここで「不溶」とは、25℃における溶媒中での溶解度が0.1%未満であることを意味する。

[0025] 長鎖アルキル基を有する有機化合物の種類は特に限定されないが、化粧品組成物に使用される溶剤及び製剤中での分散性向上の観点から、長鎖アルキル基の炭素数は5以上が好ましく、7以上がより好ましく、8以上がさらに好ましい。セルロース誘導体粒子と混和しやすいとの観点から、長鎖アルキル基の炭素数は22以下が好ましい。長鎖アルキル基の炭素数は、5以上22以下であってよく、7以上22以下であってよく、8以上22以下であってよい。異なるアルキル基を有する2種以上の有機化合物を併用してもよい。

[0026] 後述する製造方法での使用が容易であるとの観点から、長鎖アルキル基を有する有機化合物は、粉体であることが好ましい。この粉体をなす粒子の形状は特に限定されず、球状、板状、針状又は不定形状のいずれであってもよい。

[0027] 本開示において、長鎖アルキル基を有する有機化合物は、アミノ酸誘導体であってよい。アミノ酸誘導体としては、N-ε-ラウロイル-L-リジンが好ましい。

[0028] また、本開示において、長鎖アルキル基を有する有機化合物は、カチオン

性界面活性剤であってよい。カチオン性界面活性剤として、例えば第4級アンモニウム塩及び／又はアミン塩が挙げられる。触感及び粒子分散性向上の観点から、下記一般式(1)で示される第4級アンモニウム塩が好ましい。



(式中、 X^- はハロゲンイオンであり、 R^1 、 R^2 、 R^3 及び R^4 は、それぞれ独立して、置換基を有してもよい炭素数1～25のアルキル基であり、 R^1 、 R^2 、 R^3 及び R^4 の少なくとも一つが炭素数12以上のアルキル基である。)

式(1)で示されるカチオン界面活性剤の具体例として、塩化ステアリルトリメチルアンモニウム、塩化ジステアリルジメチルアンモニウム、塩化ベヘニルトリメチルアンモニウム、塩化ジステアリルジエチルアンモニウム、塩化デシルトリエチルアンモニウム、塩化デシルジメチルヒドロキシエチルアンモニウム、塩化ヤシ油トリメチルアンモニウム、塩化ヤシ油メチルジヒドロキシエチルアンモニウム、塩化ミリスチルトリメチルアンモニウム、塩化ラウリルトリメチルアンモニウム、臭化ジステアリルジメチルアンモニウム、臭化ステアリルトリメチルアンモニウム等が挙げられる。

[0029] さらに、本開示において、長鎖アルキル基を有する有機化合物は、金属石鹼であってよい。金属石鹼とは、高級脂肪酸の非アルカリ金属塩として定義される。高級脂肪酸としては、炭素数12～25の脂肪酸が好ましく、飽和脂肪酸であっても、不飽和脂肪酸であってもよい。このような脂肪酸石鹼としては、ラウリン酸、ミリスチン酸、パルミチン酸、ステアリン酸、ベヘン酸、オレイン酸、リノール酸、 α -リノレン酸、エルカ酸等の、亜鉛塩、カルシウム塩、マグネシウム塩又はアルミニウム塩が例示される。炭素数12～25の脂肪酸のアルカリ土類金属塩が好ましく、亜鉛塩がより好ましく、ステアリン酸亜鉛が特に好ましい。

[0030] 長鎖アルキル基を有する有機化合物を表面処理化合物として含む組成物が撮影された走査型電子顕微鏡写真(3000倍)が、図1に示されている。図1から、この組成物では、長鎖アルキル基を有する有機化合物が、セルロース誘導体粒子の表面に付着していると推測される。

[0031] 本開示の組成物において、無機粉体の平均粒子径は、セルロース誘導体粒子の平均粒子径の $1/3$ 以下であるところ、良好な触感及び高い粒子分散性が得られるとの観点から、無機粉体の平均粒子径は、セルロース誘導体粒子の $1/10$ 以下がより好ましい。無機粉体の平均粒子径は、体積基準のメジアン径であり、後述するセルロース誘導体粒子の平均粒子径と同様にして測定される。

[0032] 無機粉体の平均粒子径は、セルロース誘導体粒子に対し $1/3$ 以下であればよく、特に限定されないが、触感に優れるとの観点から $5\ \mu\text{m}$ 以下が好ましく、 $2\ \mu\text{m}$ 以下がより好ましい。凝集しにくく、セルロース誘導体粒子と混和しやすいとの観点から、無機粉体の平均粒子径は $0.01\ \mu\text{m}$ 以上が好ましく、 $0.08\ \mu\text{m}$ 以上がより好ましく、 $0.1\ \mu\text{m}$ 以上がさらに好ましい。

[0033] 本開示の効果が得られる限り、無機粉体の粒子形状は特に限定されず、例えば、球状、板状、針状、粒状及び不定形状のいずれであってもよい。好ましい無機粉体として、例えば、酸化亜鉛、酸化チタン、酸化マグネシウム、窒化ホウ素、窒化ケイ素、硫酸バリウム、硫酸カルシウム、硫酸マグネシウム、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、タルク、マイカ、カオリン、セリサイト、雲母、バーミキュライト、ハイジライト、ベントナイト、モンモリロナイト、ヘクトライト、カオリナイト、ゼオライト、セラミックスパウダー、ヒドロキシアパタイト、リン酸カルシウム、ケイ酸、ケイ酸アルミニウム、ケイ酸マグネシウム、ケイ酸アルミニウムマグネシウム、ケイ酸カルシウム等が挙げられる。セルロース誘導体粒子と混和しやすく、良好な触感が得られるとの観点から、窒化ホウ素及び酸化亜鉛が好ましく、比表面積の大きい酸化亜鉛がより好ましい。

[0034] 平均粒子径が、セルロース誘導体粒子の $1/3$ 以下である無機粉体を表面処理化合物として含む組成物が撮影された走査型電子顕微鏡写真（ 3000 倍）が、図 2 に示されている。図 2 中、白色部分が無機粉体である。図示される通り、この組成物では、無機粉体の一部がセルロース誘導体粒子の表面

に存在し、一部が凝集体として粒子間に存在している。

[0035] 本開示の組成物に含まれる表面処理化合物は、1種類であってもよく、2種以上であってもよい。良好な触感と高い粒子分散性が得られやすいとの観点から、カチオン性界面活性剤及び金属石鹼から選択される化合物、又はNε-ラウロイル-レーリジンである表面処理化合物が好ましく、ステアリン酸亜鉛、Nε-ラウロイル-レーリジン、窒化ホウ素及び酸化亜鉛からなる群から選択される1種又は2種以上がより好ましく、ステアリン酸亜鉛、Nε-ラウロイル-レーリジン、窒化ホウ素及び微粒子状の酸化亜鉛からなる群から選択される1種又は2種以上がさらに好ましい。

[0036] 化粧品組成物への配合に適した表面物性が得られるとの観点から、本開示の組成物における表面処理化合物の含有率は1.0重量%以上が好ましく、3.0重量%以上がより好ましく、5.0重量%以上が特に好ましい。セルロース誘導体粒子の物性が阻害されないとの観点から、表面処理化合物の含有率は50.0重量%以下が好ましく、30.0質量%以下がより好ましく、10.0重量%以下が特に好ましい。表面処理化合物の含有率は、1.0重量%以上50.0重量%以下であってよく、1.0重量%以上30.0重量%以下であってよく、1.0重量%以上10.0重量%以下であってよく、3.0重量%以上50.0重量%以下であってよく、3.0重量%以上30.0重量%以下であってよく、3.0重量%以上10.0重量%以下であってよく、5.0重量%以上50.0重量%以下であってよく、5.0重量%以上30.0重量%以下であってよく、5.0重量%以上10.0重量%以下であってよい。2種以上の表面処理化合物が併用される場合、その合計含有率が上記範囲を満たすことが好ましい。

[0037] [セルロース誘導体粒子]

セルロース誘導体粒子の平均粒子径は、0.08 μm以上100 μm以下であってよく、0.1 μm以上であってよく、1 μm以上であってよく、2 μm以上であってよく、4 μm以上であってよい。また、80 μm以下であってよく、40 μm以下であってよく、20 μm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 $100\mu\text{m}$ 以下であれば、触感及び光散乱（ソフトフォーカス）効果がより向上する。平均粒子径が $0.08\mu\text{m}$ 以上のセルロース誘導体粒子は、製造容易である。なお、触感としては、セルロース誘導体粒子に直接触れる場合の他、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。

[0038] 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。具体的には、以下の通りである。まず、 100ppm 濃度となるようにセルロース誘導体粒子を純水に添加し、超音波振動装置を用いて純水懸濁液とすることにより、試料を調製する。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測定する。この体積頻度粒度分布において、散乱強度の積算50%に対応する粒子径を、平均粒子径として求める。即ち、本願明細書における平均粒子径（ μm ）は、体積基準のメジアン径である。

[0039] セルロース誘導体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。粒子径変動係数（%）は、粒子径の標準偏差／平均粒子径 $\times 100$ によって算出できる。

[0040] セルロース誘導体粒子の真球度は、0.7以上1.0以下が好ましく、0.8以上1.0以下がより好ましく、0.9以上1.0以下がさらに好ましい。真球度が0.7以上であれば、より良好な触感が得られ、例えば、化粧品組成物に配合した場合の肌触り及びソフトフォーカス効果がさらに向上する。

[0041] 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、ランダムに選択した30個の粒子の長径及び短径を測定し、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。

[0042] セルロース誘導体粒子の表面平滑度は、80%以上100%以下が好ましく、85%以上100%以下がより好ましく、90%以上100%以下がさ

らに好ましい。表面平滑度が80%以上であれば、より良好な触感が得られる。100%に近いほど、好ましい触感が得られる。

[0043] 以下、表面平滑度の低いサンプル粒子を用いた図3及び図4を例示して、表面平滑度の測定方法を説明する。表面平滑度は、粒子の走査型電子顕微鏡写真を撮影し、粒子表面の凹凸を観察して、凹部の面積に基づいて求めることができる。詳細には、粒子の2500～5000倍の走査型電子顕微鏡写真を撮り（粒子の顕微鏡写真の一例は、図3参照）、画像処理装置Winroo of（三谷商事社製）を用いて、画像を二値化する（図3の顕微鏡写真を二値化した画像は図4参照）。そして、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（例えば、図3を参照すれば、n1及びn2で示す領域）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（%）を算出する。当該領域の大きさは、粒子径が15 μmのとき5 μm四方であってよい。

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

$$\text{凹の面積率} = \text{前記任意の領域における凹部の面積} / \text{前記任意の領域}$$

なお、本開示における表面平滑度（%）はランダムに選択した10個の粒子サンプル、つまりn1～n10の表面平滑度の平均値である。この数値が高いほど表面平滑度が高いことを意味する。

[0044] 本開示のセルロース誘導体粒子をなすセルロース誘導体は、好ましくは、炭素数2～20のアルコキシ基又は炭素数2～40のアシル基を有している。セルロース誘導体が、炭素数2～20のアルコキシ基と、炭素数2～40のアシル基と、の両方を有していてもよい。

[0045] セルロース誘導体が有するアルコキシ基の炭素数は、3以上であってよく、5以上であってよい。また、アルコキシ基の炭素数は、18以下であってよく、8以下が好ましい。セルロース誘導体が、炭素数の異なる2種以上のアルコキシ基を有してもよい。また、セルロース誘導体が、炭素数2～20のアルコキシ基と炭素数が1であるアルコキシ基（メトキシ基）の両方を有してもよい。

- [0046] 炭素数2～20のアルコキシ基として、例えば、エトキシ基、プロトキシ基、ブトキシ基、ペントキシ基、ヘキソキシ基、ヘプトキシ基、及びオクトキシ基等が挙げられる。本開示の効果が得られる限り、これらアルコキシ基が、置換基を有していてもよい。
- [0047] セルロース誘導体が有するアシル基の炭素数は3以上であってよく、4以上であってよい。また、アシル基の炭素数は、30以下であってよく、20以下であってよい。セルロース誘導体が、炭素数の異なる2種以上のアシル基を有してもよい。
- [0048] 炭素数2～40のアシル基としては、例えば、アセチル基、プロピオニル基、ブチリル基、ペンタノイル（バレリル）基、ヘキサノイル基、ヘプタノイル基、オクタノイル基、ノナノイル基、ウンデカノイル基、ドデカノイル基、トリデカノイル基、テトラデカノイル（ミリストイル）基、ペンタデカノイル基、ヘキサデカノイル基、ヘプタデカノイル基及びオクタデカノイル（ステアロイル）基等が挙げられる。本開示の効果が得られる限り、これらアシル基が、置換基を有していてもよい。
- [0049] 良好な触感と、化粧品組成物に適した粒子分散性が得られるとの観点から、炭素数2～40のアシル基を有するセルロース誘導体（即ち、セルロースアシレート）が好ましい。好ましいアシル基は、アセチル基、プロピオニル基及びブチリル基から選択される1種又は2種以上であり、より好ましくは、アセチル基である。本開示のセルロース誘導体が、セルロースアセテートであってよい。
- [0050] セルロース誘導体粒子をなすセルロース誘導体は、総置換度が0.7以上3.2以下であってよく、1.0以上3.2以下であってよく、1.4以上3.1以下であってよく、2.0以上3.0以下であってよい。成形性に優れ、触感の良好な粒子の製造が容易なためである。
- [0051] セルロース誘導体の総置換度は、以下の方法により測定できる。まず、セルロース誘導体の総置換度とは、セルロース誘導体のグルコース環の2, 3, 6位の各置換度の和であり、セルロース誘導体のグルコース環の2, 3,

6位の各置換度は、手塚（Tezuka, Carbonydr. Res. 273, 83（1995））の方法に従いNMR法で測定できる。すなわち、セルロース誘導体の遊離水酸基をピリジン中でカルボン酸無水物によりアシル化する。ここで使用するカルボン酸無水物の種類は分析目的に応じて選択すべきであり、例えば、セルロースアセテートプロピオネートのプロピオニル置換度を分析する場合は無水酢酸が良く、アセチル置換度を分析する場合は無水プロピオン酸がよい。アシル化反応の溶媒及び酸無水物は分析対象のセルロース誘導体に応じて適宜選択すればよい。

[0052] アシル化して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。置換基がアセチル基、プロピオニル基又はブチリル基である場合を例に挙げれば、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、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、ブチリル基の炭素シグナルは、171 ppmから173 ppmの領域に同様に高磁場側から2位、3位、6位の順序で現れる。他の例を挙げれば、プロピオニル基を有するセルロース誘導体を分析する場合、又は、プロピオニル基を有しないセルロース誘導体を無水プロピオン酸で処理した後でプロピオニル置換度を分析する場合、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。

[0053] 手塚の方法やそれに準じる方法により、無水カルボン酸で処理したセルロース誘導体の総置換度は3.0なので、セルロース誘導体がもともと有するアシル基のカルボニル炭素シグナルと、無水カルボン酸処理で導入したアシル基のカルボニルシグナルの面積の総和を3.0と規格化し、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（各シグナルの面積比）を求めれば、元のセルロース誘導体におけるグルコース環の2, 3, 6位の各アシル置換度を求めることができる。なお、言うまでもなく、この方法で分析できるアシル基を含む置換基は、分析目的の処理に用いる無水カルボン酸に対応しない置換基のみである。

[0054] ただし、試料であるセルロース誘導体のグルコース環の2位、3位及び6位の総置換度が3.0であり、かつその置換基が全てアセチル基及びプロピオニル基等の限定的な置換基であることが予め把握される場合には、アシル化の工程を除き、試料を直接重クロロホルムに溶解してNMRスペクトルを測定することもできる。置換基が全てアセチル基及びプロピオニル基であれば、アシル化の工程を含む場合と同様に、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、プロピオニル基の炭素のシグナルは、172 ppmから174 ppmの領域に同じ順序で現れるので、それぞれ対応する位置でのアセチル基及びプロピオニル基の存在比（言い換えれば、各シグナルの面積比）から、セルロース誘導体におけるグルコース環の2位、3位、6位の各アセチル及びプロピオニル置換度等の置換度を求めることができる。

[0055] セルロース誘導体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、セルロース誘導体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、アジピン酸系可塑剤、クエン酸系可塑剤、グルタル酸系可塑剤、ハク酸系可塑剤、セバシン酸系可塑剤、グリセリンエステル系可塑剤、ネオペンチルグリコール、リン酸系可塑剤等が例示される。セルロース誘導体粒子が、2種以上の可塑剤を含んでもよい。クエン酸アセチルトリエチル、トリアセチン及びジアセチンからなる群より選択される1種又は2種以上が好ましい。

[0056] セルロース誘導体粒子が可塑剤を含有する場合、セルロース誘導体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、セルロース誘導体粒子の重量に対し、0重量%を超え40重量%以下であってよく、2重量%以上40重量%以下であってよく、10重量%以上30重量%以下であってよく、15重量%以上20重量%以下であってよい。

[0057] セルロース誘導体粒子における可塑剤の含有量は、セルロース誘導体粒子を溶解できる溶媒にセルロース誘導体粒子を溶解して、その溶液を¹H-NMRで測定することにより求められる。

[0058] [化粧品組成物]

本開示の組成物は、触感に優れ、かつ、種々の溶剤又は製剤中に良好に分散することから、化粧品組成物に好適に用いることができる。本開示の組成物を含む化粧品組成物によれば、肌の凹凸を埋めて滑らかにし、光を様々な方向に散乱させることでしわなどを目立ちにくくする（ソフトフォーカス）効果が得られる。

[0059] 化粧品組成物としては、リキッドファンデーション、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ル剤型等であってもよい。

[0060] [組成物の製造方法]

本開示の組成物の製造方法は、平均粒子径 $0.08\ \mu\text{m}$ 以上 $100\ \mu\text{m}$ 以下であるセルロース誘導体粒子と、表面処理化合物と、を乾式混合する混合工程を有している。この表面処理化合物は、長鎖アルキル基を有する有機化合物及び／又は無機粉体である。無機粉体の平均粒子径は、セルロース誘導体粒子の平均粒子径の $1/3$ 以下である。この製造方法によれば、水、有機溶媒等を用いることなく、効率的に、セルロース誘導体粒子に、所望の表面物性を付与することができる。この製造方法により得られる組成物は、良好な触感を有し、かつ、化粧品組成物に用いられる溶剤及び製剤への分散性に優れている。この製造方法が、必要に応じて、混合工程で得られるセルロース誘導体粒子と表面処理化合物との混合物を乾燥させる、乾燥工程を有してもよい。

[0061] なお、本開示において「乾式混合」とは、混合工程に供される被混合物が含む液状成分以外に、液状成分を添加せずに混合することを意味する。本開示の製造方法において、セルロース誘導体粒子及び表面処理化合物を含む被混合物の固形分濃度は90重量%以上であってよく、95重量%以上であってよく、98重量%以上であってよい。

[0062] 本開示の効果が得られる限り、乾式混合の方法は特に限定されず、既知の混合手段が適宜選択されて用いられる。例えば、ボールミル、サンドミル、ビーズミル、ホモジナイザー、プラネタリーミキサー、フィルミックス等の混合装置が挙げられる。また、セルロース誘導体粒子と表面処理化合物とを混合する順序も特に限定されない。所定の比率で秤量したセルロース誘導体粒子と表面処理化合物とを同時に混合装置に投入してもよく、所定量の表面処理化合物を混合装置に投入して攪拌した後、セルロース誘導体粒子を投入して混合してもよい。

[0063] 混合条件は、各成分の種類及び量並びに混合機の種類に応じて適宜調整される。混合温度としては、表面処理化合物及びセルロース誘導体が熱劣化しない温度であればよい。例えば、混合温度は50℃以下であってよく、40℃以下であってよく、30℃以下であってよい。省エネルギー及びコスト低減の観点から、室温での混合が好ましい。混合時間は、製造スケール、混合温度等により適宜調整されてよい。

[0064] 表面処理化合物である長鎖アルキル基を有する有機化合物、及び、平均粒子径がセルロース誘導体粒子の平均粒子径の1/3以下である無機粉体の具体例は、前述した通りである。ステアリン酸亜鉛、Nε-ラウロイル-レリジン、窒化ホウ素及び酸化亜鉛からなる群から選択される1種又は2種以上である表面処理化合物が好ましく、ステアリン酸亜鉛、Nε-ラウロイル-レリジン、窒化ホウ素及び微粒子酸化亜鉛からなる群から選択される1種又は2種以上である表面処理化合物がより好ましい。

[0065] 本開示の製造方法において、表面処理化合物の添加量は特に限定されず、セルロース誘導体粒子の物性、表面処理化合物の種類等に応じて、適宜調整

される。

粒子分散性向上の観点から、表面処理化合物の添加量は、セルロース誘導体粒子に対して、1.0重量%以上が好ましく、3.0重量%以上がより好ましく、5.0重量%以上が特に好ましい。凝集抑制の観点から、表面処理化合物の添加量は50.0重量%以下が好ましく、30.0質量%以下がより好ましく、10.0重量%以下が特に好ましい。表面処理化合物の添加量は、1.0重量%以上50.0重量%以下であってよく、1.0重量%以上30.0重量%以下であってよく、1.0重量%以上10.0重量%以下であってよく、3.0重量%以上50.0重量%以下であってよく、3.0重量%以上30.0重量%以下であってよく、3.0重量%以上10.0重量%以下であってよく、5.0重量%以上50.0重量%以下であってよく、5.0重量%以上30.0重量%以下であってよく、5.0重量%以上10.0重量%以下であってよい。2種以上の表面処理化合物が併用される場合、その合計添加量が上記範囲を満たすことが好ましい。

[0066] 必要に応じて、本開示の製造方法が、混合工程前に、表面処理化合物を粉砕する粉砕工程をさらに有してもよい。この粉砕工程では、表面処理化合物を、セルロース誘導体粒子の平均粒子径よりも小さくなるように、粉砕することが好ましい。この粉砕工程を経ることにより、表面処理化合物とセルロース誘導体粒子とがより均一に混合され、得られる組成物の粒子分散性が向上する。また、塊状の表面処理化合物の混入による触感の低下が回避される。

[0067] 表面処理化合物を粉砕する手段は特に限定されず、既知の粉砕手段が用いられうる。混合工程で使用する混合装置を用いて、表面処理化合物を粉砕してもよい。粉砕条件は、得られる粉砕物の平均粒子径が、添加するセルロース誘導体粒子の平均粒子径の $1/3$ 以下、好ましくは $1/10$ 以下となるように調整される。

[0068] 必要に応じて、本開示の製造方法が、混合工程後に、表面処理化合物及びセルロース誘導体粒子を含む混合物を乾燥する乾燥工程を有してもよい。こ

の乾燥方法は特に限定されず、加熱乾燥、減圧乾燥、真空乾燥等既知の方法が用いられうる。乾燥効率が低いとの観点から、乾燥温度は室温以上が好ましく、50℃以上であってよく、60℃以上であってよい。表面処理化合物の熱劣化抑制の観点から、好ましい乾燥温度は120℃以下である。

[0069] [セルロース誘導体粒子の製造方法]

セルロース誘導体粒子の製造方法は、特に限定されず、既知の方法を用いることができる。例えば、所望のセルロース誘導体と可塑剤とを混合して、可塑剤が含浸したセルロース誘導体を得る第一の工程、この可塑剤が含浸したセルロース誘導体と水溶性高分子とを混練して、可塑剤が含浸したセルロース誘導体を分散質とする分散体を得る第二の工程、及びこの分散体から水溶性高分子を除去してセルロース誘導体粒子を得る第三の工程を含む製造方法により、セルロース誘導体粒子が得られてもよい。この製造方法によれば、表面平滑度及び真球度が高い略球状の粒子が得られることから、本開示の組成物の触感がさらに向上する。

[0070] 第一の工程で使用する可塑剤としては、セルロース誘導体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はない。具体的には、セルロース誘導体粒子に含有される可塑剤として前述した可塑剤を、単独又は2種以上を組み合わせることができる。クエン酸アセチルトリエチル、トリアセチン及びジアセチンからなる群より選択される1種又は2種以上が好ましい。

[0071] 可塑剤の配合量は、セルロース誘導体及び可塑剤の合計量100重量部に対して、0重量部を超え40重量部以下であってよく、2重量部以上40重量部以下であってよく、10重量部以上30重量部以下であってよく、15重量部以上20重量部以下であってよい。可塑剤の配合量がこの範囲であることにより、より高い真球度の粒子が得られうる。

[0072] セルロース誘導体と可塑剤との混合は、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、セルロース誘導体が溶融しない温度、例え

ば、20℃以上200℃未満の範囲としてよい。

[0073] セルロース誘導体と可塑剤との混合は、溶融混練によっておこなってもよい。溶融混練は、セルロース誘導体と可塑剤とを押出機で加熱混合することによりおこなうことができる。押出機の混練温度（シリンダー温度）は、200℃～230℃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。混練物はストランド状に押出し、ホットカットなど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℃程度であってよい。

[0074] 第二の工程で使用する水溶性高分子とは、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%未満の高分子をいう。水溶性高分子としては、ポリビニルアルコール、ポリエチレングリコール及び熱可塑性デンプンが好ましく、ポリビニルアルコール及び熱可塑性デンプンがより好ましい。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。具体的には、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を利用することができる。

[0075] 水溶性高分子の配合量は、可塑剤が含浸したセルロース誘導体及び水溶性高分子の合計量100重量部に対し、55重量部以上99重量部以下であってよい。好ましくは60重量部以上90重量部以下であり、さらに好ましくは65重量部以上85重量部以下である。

[0076] 第二の工程において、可塑剤が含浸したセルロース誘導体と水溶性高分子との混練は、二軸押出機等の押出機でおこなうことができる。好ましい混練温度（シリンダー温度）は、200℃以上280℃以下である。二軸押出機等の押出機の先端に取り付けたダイスから分散体をひも状に押出した後、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℃以下であってよい。

[0077] 第二の工程で得られる分散体は、水溶性高分子を分散媒、可塑剤を含浸したセルロース誘導体を分散質とする分散体である。換言すれば、水溶性高分子を海成分、可塑剤を含浸したセルロース誘導体を島成分とする構成である。

。この分散体において、島成分を構成する混練物は、セルロース誘導体及び可塑剤を含有し、主に球状である。

[0078] 第三の工程において、前述の分散体から水溶性高分子を除去することにより、セルロース誘導体粒子が得られる。分散体から水溶性高分子を除去する方法としては、水溶性高分子を溶解し当該粒子から除去することができれば、特に限定されない。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、分散体中の水溶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、分散体と溶媒とを混合した後、ろ過等の固液分離等で、水溶性高分子が溶解した溶媒を分離することにより、分散体から水溶性高分子を除去する方法が挙げられる。分散体と溶媒との攪拌混合後にろ過する方法により、水溶性高分子を除去する場合、除去効率を高める目的で、攪拌混合とろ過とを、複数回繰り返してもよい。

[0079] 第三の工程において、可塑剤を、水溶性高分子とともに分散体から除去してもよく、除去しなくてもよい。従って、得られるセルロース誘導体粒子は可塑剤を含有してもよく、含有しなくてもよい。

[0080] 分散体と溶媒との混合比率は、分散体及び溶媒の合計重量に対して、分散体が0.01重量%以上20重量%以下であってよく、2重量%以上15重量%以下であってよく、4重量%以上13重量%以下であってよい。分散体と溶媒との混合比率がこの範囲であることにより、効率的な洗浄が可能になり、洗浄後の固液分離が容易になる。

[0081] 分散体と溶媒との混合温度は、0℃以上200℃以下が好ましく、20℃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。混合温度がこの範囲であることにより、水溶性高分子が効率的に除去されるとともに、加熱による粒子の変形や凝集が抑制される。分散体と溶媒との混合時間は、混合温度等に応じて適宜調整される。

[0082] [セルロース誘導体の製造方法]

セルロース誘導体をなすセルロース誘導体の製造方法は特に限定されず、

既知の製造方法により製造できる。

[0083] セルロース誘導体がセルロースエステルの場合、例えば、原料パルプ（セルロース）を活性化する工程；活性化されたセルロースをエステル化剤（アシル化剤）でアシル化する工程；アシル化反応の終了後、アシル化剤を失活させる工程；生成したセルロースアシレートを経成（ケン化、加水分解）する工程を経て製造できる。また、活性化する工程の前に、原料パルプを、離解・解砕後、酢酸を散布混合する前処理工程を有してよい。経成（ケン化、加水分解）する工程の後、沈澱分離、精製、安定化、乾燥する後処理工程を有してよい。

[0084] セルロース誘導体がセルロースエーテルの場合、イソプロピルアルコール（IPA）や第3級ブタノール（TBA）等の低級脂肪族アルコール、水及び水酸化ナトリウム等のアルカリ金属水酸化物の混合液に、原料パルプ（セルロース）を浸漬して、セルロースエーテルの前駆体となるアルカリセルロースを得る工程；さらにエーテル化剤を添加して、スラリー化（沈澱化）する工程を経て製造できる。また、アルカリセルロースを得る工程の前に、原料パルプを、離解・解砕後、酢酸を散布混合する前処理工程を有してよい。スラリー化（沈澱化）する工程の後、沈澱分離、精製、安定化、乾燥する後処理工程を有してよい。

実施例

[0085] 以下、実施例によって本開示の効果が明らかにされるが、この実施例の記載に基づいて本開示が限定的に解釈されるべきではない。

[0086] [実施例1]

400gのセラミックボール（直径5mm）を含むセラミックポット（容量300ml）に、表面処理化合物としてステアリン酸亜鉛（日油社製）を投入し、続いて、セルロース誘導体粒子としてセルロースアセテート粒子（株式会社ダイセル製、総置換度＝2.4、平均粒子径7.1 μ m）を投入した後、卓上ポットミル架台（アズワン社）を用いて、回転数200rpmで1時間回転させることにより、実施例1の組成物を得た。組成物中、ステア

リン酸亜鉛の含有率が5重量%となるように、セラミックポットへの投入量を調整した。

[0087] [実施例2-26]

セルロース誘導体粒子及び表面処理化合物の種類及び量を、下表1-4に示されるものとした以外は、実施例1と同様にして、実施例2-26の組成物を得た。唯、実施例4-7、11、12、16、17、21及び22では、表面処理化合物を投入した後、セルロース誘導体粒子を投入する前に、回転数200rpmで1~3時間回転させて、平均粒子径が、セルロース誘導体粒子の1/3以下になるまで粉碎した。実施例3、10、15及び20では、予め乾燥処理した表面処理化合物をセラミックポットに投入した。得られた組成物の走査型電子顕微鏡写真（3000倍）が、図1及び2に示されている。図1は、表面処理化合物として有機化合物（Nε-ラウロイル-L-リジン）を使用した実施例2のSEM画像であり、図2は、表面処理化合物として無機粉体（酸化亜鉛）を使用した実施例5のSEM画像である。図2中、白色の微小粒子が無機粉体である。

[0088] [比較例1-4]

表面処理化合物を投入せず、セルロース誘導体粒子を下表4に示されるものとした以外は、実施例1と同様にして、比較例1-4の組成物を得た。

[0089] [触感（なめらかさ）]

実施例及び比較例の触感について、専門パネル5名による官能評価をおこなった。各組成物に触れさせて、なめらかさ及びしっとり感の両方を総合的に5点満点として評価させた。5人の平均点を算出して、以下の基準により評価した。評価結果が、触感（なめらかさ）として下表1-4に示されている。

良い：5、やや良い：4、普通：3、やや悪い：2、悪い：1

[0090] [触感（さらさら感）]

実施例及び比較例の触感について、専門パネル5名による官能評価をおこなった。各組成物に触れさせて、さらさら感を総合的に5点満点として評価

させた。5人の平均点を算出して、以下の基準により評価した。評価結果が、触感（さらさら感）として下表1－4に示されている。

良い：5、やや良い：4、普通：3、やや悪い：2、悪い：1

[0091] [水中浮遊度]

実施例及び比較例の組成物について、水中浮遊度を測定した。具体的には、試料1gを精秤し、水50mLに添加して、回転速度100rpm以上及び時間30秒以上の条件にて混合攪拌した。その後、30秒以上静置して、水に浮いた粒子を採取して乾燥した後、その重量を測定した。水と混合攪拌する前の粒子の重量を100として、水に浮いた粒子の乾燥後の重量の比率が水中浮遊度（％）として下表1－4に示されている。数値が大きいほど評価が高い。

[0092] [イソドデカン中浮遊度]

実施例及び比較例の組成物について、イソドデカン中浮遊度を測定した。具体的には、試料1gを精秤し、イソドデカン50mLに添加して、回転速度100rpm以上及び時間30秒以上の条件にて混合攪拌した。その後、30秒以上静置して、イソドデカンに浮いた粒子を採取して乾燥した後、その重量を測定した。イソドデカンと混合攪拌する前の粒子の重量を100として、イソドデカンに浮いた粒子の乾燥後の重量の比率がイソドデカン中浮遊度（％）として下表1－4に示されている。数値が小さいほど評価が高い。

[0093]

[表1]

		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8
セルロース誘導体	セルロースアセテート	セルロースアセテート	セルロースアセテート	セルロースアセテート	セルロースアセテート	セルロースアセテート	セルロースアセテート	セルロースアセテート	セルロースアセテート ロビオネート
	総置換度	[-]	2.4	2.4	2.4	2.4	2.4	2.4	2.58
	各置換度	[-]	アセチル置換度:2.4	アセチル置換度:2.4	アセチル置換度:2.4	アセチル置換度:2.4	アセチル置換度:2.4	アセチル置換度:2.4	アセチル置換度:0.18 フロビニル置換度: 2.40
	平均粒子径	[μm]	7.1	7.1	7.1	7.1	7.1	7.1	9.5
	粒子径変動係数	[%]	37	37	37	37	37	37	34
	真球度	[-]	0.97	0.97	0.97	0.97	0.97	0.97	0.95
表面処理 剤	表面平滑度	[%]	100	100	100	100	100	100	100
	表面処理化合物		ステアリン酸亜鉛	Nε-ラウロイル-L-リジ ン	塩化ステアリルトリメチ ルアンモニウム	窒化ホウ素	酸化亜鉛	窒化ホウ素	ステアリン酸亜鉛
	含有率	[wt.%]	5	5	5	5	3	10	5
評価	触感(おめらかさ)	[-]	4.5	4.8	4.5	4.8	4.5	4.4	4.5
	触感(さらさら感)	[-]	4.8	5	4.8	4.9	4.7	4.9	4.6
	水中浮遊度	[%]	100	100	95	100	100	100	100
	インパクトカン中浮遊度	[%]	0	0	5	0	0	0	0

[表2]

		実施例9	実施例10	実施例11	実施例12	実施例13	実施例14	実施例15	実施例16
セルロース誘導体	セルロースアセテート ロビオネート	セルロースアセテート ロビオネート	セルロースアセテート ロビオネート	セルロースアセテート ロビオネート	セルロースアセテート ロビオネート	セルロースアセテート ロビオネート	セルロースアセテート ロビオネート	セルロースアセテート ロビオネート	セルロースアセテート ロビオネート
	総置換度	2.58	2.58	2.58	2.58	2.84	2.84	2.84	2.84
	各置換度	アセチル置換度:0.18 フビロニル置換度: 2.40	アセチル置換度:0.18 フビロニル置換度: 2.40	アセチル置換度:0.18 フビロニル置換度: 2.40	アセチル置換度:0.18 フビロニル置換度: 2.40	アセチル置換度:2.13 フビロニル置換度:0.71	アセチル置換度:2.13 フビロニル置換度:0.71	アセチル置換度:2.13 フビロニル置換度:0.71	アセチル置換度:2.13 フビロニル置換度:0.71
	平均粒子径	9.5	9.5	9.5	9.5	8.2	8.2	8.2	8.2
	粒子径変動係数	34	34	34	34	38	38	38	38
	真球度	0.95	0.95	0.95	0.95	0.96	0.96	0.96	0.96
表面処理剤	表面平滑度	100	100	100	100	100	100	100	100
	表面処理化合物	Nε-ラウロイル-L-リジ ン	塩化ステアリルトリメチ ルアンモニウム	窒化ホウ素	酸化亜鉛	ステアリン酸亜鉛	Nε-ラウロイル-L-リジ ン	塩化ステアリルトリメチ ルアンモニウム	窒化ホウ素
	含有率	5	5	5	5	5	5	5	5
	触感(なめらかさ)	4.7	4.5	4.5	4.7	4.4	4.8	4.4	4.8
評価	触感(さらさら感)	4.9	4.7	4.9	4.8	4.6	5	4.6	4.9
	水中浮遊度	100	95	100	100	100	100	95	100
	イントデカン中浮遊度	0	5	0	0	0	0	5	0

[表3]

		実施例17	実施例18	実施例19	実施例20	実施例21	実施例22
セルロース誘導体	セルロース誘導体	セルロースアセテートブチレート	エチルセルロース	エチルセルロース	エチルセルロース	エチルセルロース	エチルセルロース
	総置換度	2.84	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5
	各置換度	アセチル置換度:2.13 ブチリル置換度:0.71	-	-	-	-	-
	平均粒子径	8.2	7.7	7.7	7.7	7.7	7.7
	粒子径変動係数	38	38	38	38	38	38
	真球度	0.96	0.97	0.97	0.97	0.97	0.97
	表面平滑度	100	100	100	100	100	100
表面処理剤	表面処理化合物	酸化亜鉛	ステアリン酸亜鉛	Nε-ラウロイル-L-リジン	塩化ステアリルトリメチルアンモニウム	窒化ホウ素	酸化亜鉛
	含有率	5	5	5	5	5	5
評価	触感(なめらかさ)	4.6	4.4	4.5	4.3	4.6	4.5
	触感(さらさら感)	4.8	4.6	5	4.6	4.9	4.8
	水中浮遊度	100	100	100	100	100	100
	インドデカン中浮遊度	0	0	0	0	0	0

[表4]

		比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	実施例23	実施例24	実施例25	実施例26
セルロース誘導体粒子	セルロース誘導体	セルロースアセテート	セルロースアセテート ロビオネート	セルロースアセテート チレート	エチルセルロース	セルロースアセテート	セルロースアセテート	セルロースアセテート	セルロースアセテート
	総置換度	2.4	2.58	2.84	2.5	2.4	2.4	2.4	2.4
	各置換度	アセチル置換度:2.4	アセチル置換度:0.18 フピル置換度: 2.40	アセチル置換度:2.13 フピル置換度:0.71	-	アセチル置換度:2.4	アセチル置換度:2.4	アセチル置換度:2.4	アセチル置換度:2.4
	平均粒子径	7.1	9.5	8.2	7.7	7.1	7.1	7.1	7.1
	粒子径変動係数	37	34	38	38	37	37	37	37
	真球度	0.97	0.95	0.96	0.97	0.97	0.97	0.97	0.97
表面処理剤	表面平滑度	100	100	100	100	100	100	100	100
	表面処理化合物	-	-	-	-	窒化ホウ素	窒化ホウ素	窒化ホウ素	窒化ホウ素
	含有率	-	-	-	-	1.5	20	30	50
評価	触感(なめらかさ)	4.1	3.8	4	4.1	4.1	3.6	2.4	2
	触感(さらさら感)	3.5	3.6	3.7	3.6	3.8	5	5	5
	水中浮遊度	0	5	10	5	100	100	100	100
	インドデカン中浮遊度	100	95	90	95	0	0	0	0

[0097] 表1-4に示された化合物の詳細は、以下の通りである。

セルロースアセテート粒子：ダイセル社製、総置換度 2.4、平均粒子径 7.1 μm 、真球度 0.97、表面平滑度 100%、重量平均分子量 173,000

セルロースアセテートプロピオネート粒子：ダイセル社製、アセチル置換度 0.18、プロピオニル置換度 2.40、平均粒子径 9.5 μm 、真球度 0.95、表面平滑度 100%、重量平均分子量 152,000

セルロースアセテートブチレート粒子：ダイセル社製、アセチル置換度 2.13、ブチリル置換度 0.71、平均粒子径 8.2 μm 、真球度 0.96、表面平滑度 100%、重量平均分子量 139,000

エチルセルロース粒子：ダイセル社製、総置換度 2.5、平均粒子径 7.7 μm 、真球度 0.97、表面平滑度 100%、重量平均分子量 182,000

ステアリン酸亜鉛：日油社製

Nε-ラウロイル-L-リジン：味の素社製の商品名「アミホープLL」

塩化ステアリルトリメチルアンモニウム：日光ケミカル社製の商品名「CA-2450」

窒化ホウ素：水島合金鉄社製の商品名「SHP-3」

酸化亜鉛：堺化学社製の商品名「FINEX-50」

[0098] [皮脂固化作用評価]

実施例 12 及び比較例 2 の組成物のそれぞれに、重量比 1 : 1 となるように、人工皮脂を添加して攪拌混合した。40℃にて静置し、所定時間経過後の状態を、目視にて観察した。なお、人工皮脂の処方は、オリーブオイル 35 重量%、オレイン酸 13 重量%、ホホバオイル 25 重量%、スクワレン 15 重量%、商品名「エルデュウPS-203」7 重量%、トリ-2-エチルヘキサン酸グリセリル 5 重量%とした。

[0099] 経過観察の結果、実施例 12 の組成物によれば、0.5 時間後に固化し始め、1 時間後には完全に固化することを確認した。これに対し、比較例 2 では、2 時間経過後も、試験開始時と同様の流動性を有していた。

[0100] 表 1－4 に示されるように、実施例の組成物では、比較例の組成物に比べて触感の評価が高い。また、実施例の組成物は、全てが水に浮き、かつ、イソドデカン中で沈降したことから、疎水性溶剤との親和性に優れることが分かる。さらに、表面処理化合物として酸化亜鉛を含む組成物では、良好な皮脂固化作用が得られることがわかる。この評価結果から、本開示の優位性は明らかである。

産業上の利用可能性

[0101] 以上説明された組成物は、種々の化粧品組成物の製造に適用されうる。

請求の範囲

- [請求項1] セルロース誘導体粒子及び表面処理化合物を含んでおり、
上記セルロース誘導体粒子の平均粒子径が $0.08\mu\text{m}$ 以上 $100\mu\text{m}$ 以下であり、
上記表面処理化合物が、長鎖アルキル基を有する有機化合物及び／
又は無機粉体であり、
上記無機粉体の平均粒子径が、上記セルロース誘導体粒子の平均粒子径の $1/3$ 以下である、組成物。
- [請求項2] 上記長鎖アルキル基の炭素数が8以上22以下である、請求項1に記載の組成物。
- [請求項3] 上記有機化合物が、カチオン性界面活性剤及び金属石鹼から選択される化合物、又はNε-ラウロイル-Ｌ-リジンである、請求項1又は2に記載の組成物。
- [請求項4] 上記表面処理化合物が、ステアリン酸亜鉛、Nε-ラウロイル-Ｌ-リジン、窒化ホウ素及び酸化亜鉛からなる群から選択される1種又は2種以上である、請求項1から3のいずれかに記載の組成物。
- [請求項5] 上記表面処理化合物の含有率が3.0重量%以上10.0重量%以下である、請求項1から4のいずれかに記載の組成物。
- [請求項6] 上記セルロース誘導体が、炭素数2～20のアルコキシル基又は炭素数2～40のアシル基を有している、請求項1から5のいずれかに記載の組成物。
- [請求項7] 上記セルロース誘導体がセルロースアシレートである、請求項1から6のいずれかに記載の組成物。
- [請求項8] 上記セルロース誘導体がセルロースアセレートである、請求項1から7のいずれかに記載の組成物。
- [請求項9] 上記セルロース誘導体の総置換度が2.0以上3.2以下である、請求項1から8のいずれかに記載の組成物。
- [請求項10] 上記セルロース誘導体粒子は、真球度が0.7以上1.0以下、及

び、表面平滑度が80%以上100%以下である、請求項1から9のいずれかに記載の組成物。

[請求項11] 請求項1から10のいずれかに記載の組成物を含む、化粧品組成物。

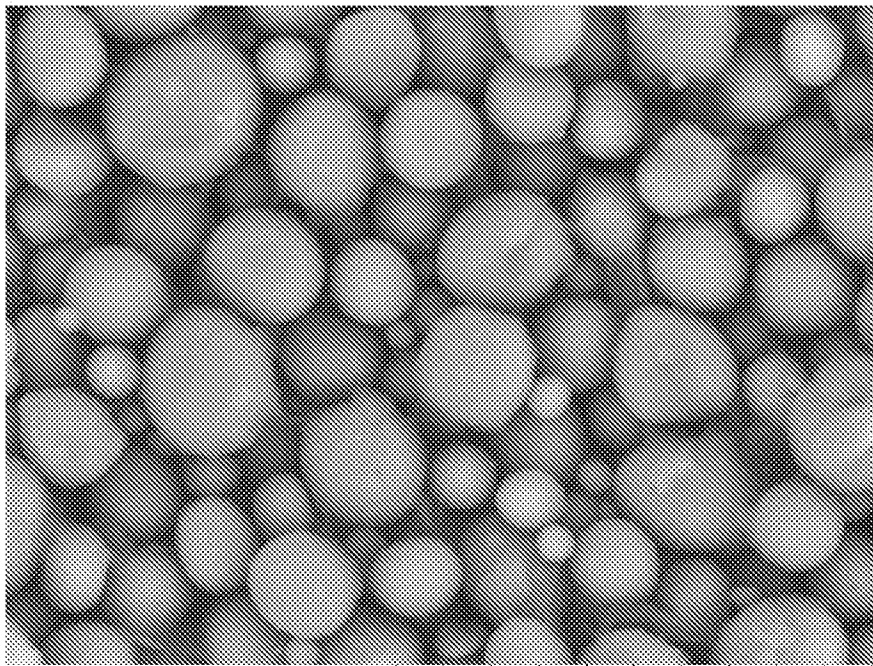
[請求項12] 平均粒子径0.08 μm 以上100 μm 以下であるセルロース誘導体粒子と、表面処理化合物と、を乾式混合する混合工程を有しており、

上記表面処理化合物が、長鎖アルキル基を有する有機化合物及び／又は無機粉体であり、

上記無機粉体の平均粒子径が、上記セルロース誘導体粒子の1／3以下である、請求項1から10のいずれかに記載の組成物の製造方法。

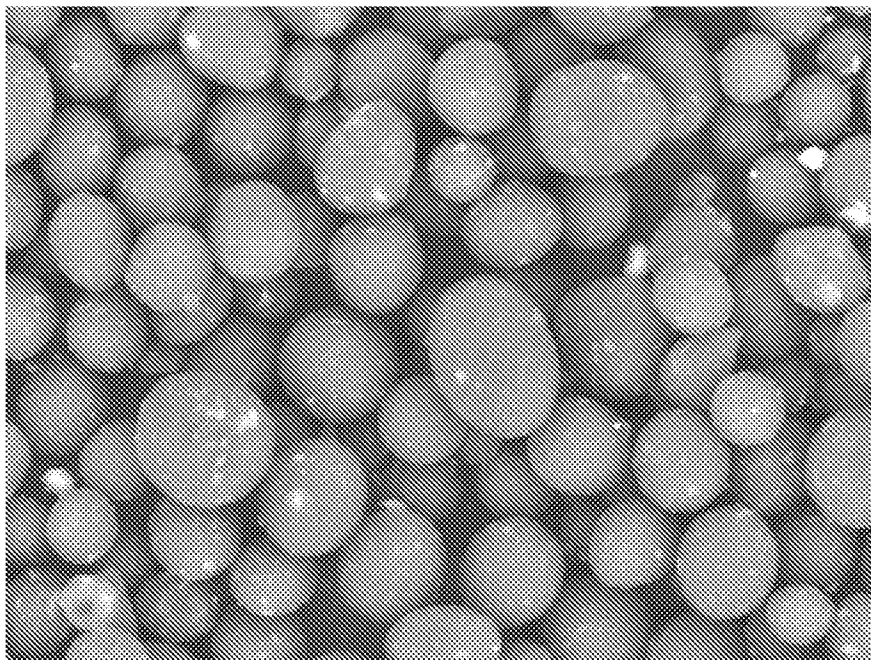
[請求項13] 上記混合工程前に、上記表面処理化合物を粉砕する粉砕工程をさらに有している、請求項12に記載の製造方法。

[図1]



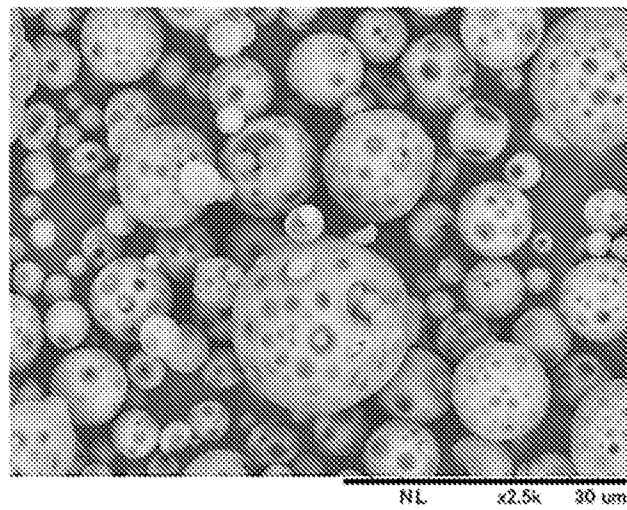
2020/09/29 HL x3.0k 30 μm

[図2]

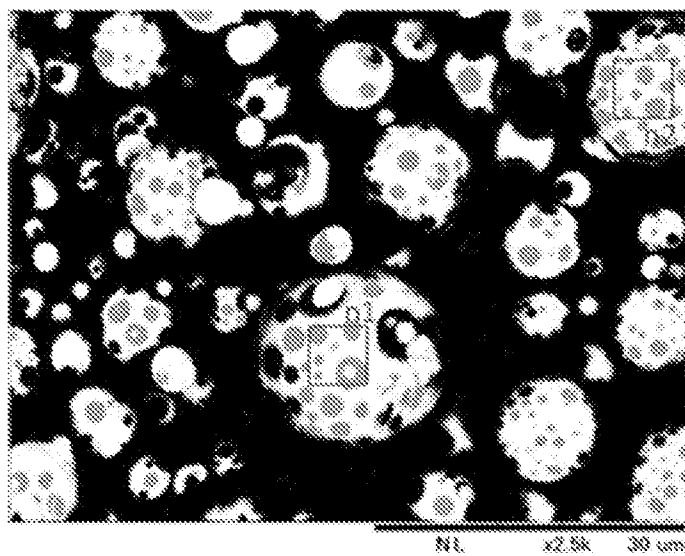


2020/09/29 HL x3.0k 30 μm

[図3]



[図4]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2022/018738

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08L 1/02(2006.01)i; **A61K 8/73**(2006.01)i; **A61Q 1/00**(2006.01)i; **C08K 3/22**(2006.01)i; **C08K 3/38**(2006.01)i;
C08K 5/098(2006.01)i; **C08L 1/12**(2006.01)i
 FI: C08L1/02; A61Q1/00; C08L1/12; C08K3/22; A61K8/73; C08K3/38; C08K5/098

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)

C08L1/02; A61K8/73; A61Q1/00; C08K3/22; C08K3/38; C08K5/098; C08L1/12

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 1971-2022
 Registered utility model specifications of Japan 1996-2022
 Published registered utility model applications of Japan 1994-2022

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 2020/188698 A1 (DAICEL CORPORATION) 24 September 2020 (2020-09-24) claims, paragraphs [0019], [0055], [0072], [0086], [0092], [0101]-[0103], [0125], each example	1-13
Y		6-9
X	JP 2020-075878 A (MATSUMOTO YUSHI SEIYAKU KK) 21 May 2020 (2020-05-21) claims, paragraphs [0004], [0023], [0031], [0041], examples 1-2	1-5, 10-13
Y		6-9
X	JP 2021-066704 A (MATSUMOTO YUSHI SEIYAKU KK) 30 April 2021 (2021-04-30) claims, paragraphs [0004], [0012], [0018], [0020], [0031], [0038]	1-5, 10-11
Y		6-9
A		12-13
A	JP 2018-118956 A (AJINOMOTO KK) 02 August 2018 (2018-08-02)	1-13
A	WO 2019/156116 A1 (DAICEL CORPORATION) 15 August 2019 (2019-08-15)	1-13

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☒ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
 “E” earlier application or patent but published on or after the international filing date
 “L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
 “O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
 “P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

“T” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
 “X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
 “Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
 “&” document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

01 July 2022

Date of mailing of the international search report

12 July 2022

Name and mailing address of the ISA/JP

**Japan Patent Office (ISA/JP)
 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915
 Japan**

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2022/018738**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2020-152851 A (DAICEL CORPORATION) 24 September 2020 (2020-09-24)	1-13

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2022/018738

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)			Publication date (day/month/year)
WO	2020/188698	A1	24 September 2020	JP	6694559	B1	
				KR	10-2021-0127741	A	
				CN	113710729	A	
				TW	202034896	A	
JP	2020-075878	A	21 May 2020	(Family: none)			
JP	2021-066704	A	30 April 2021	(Family: none)			
JP	2018-118956	A	02 August 2018	WO	2018/062315	A1	
WO	2019/156116	A1	15 August 2019	US	2020/0179261	A1	
				EP	3613794	A1	
				CN	110650994	A	
				KR	10-2019-0135537	A	
JP	2020-152851	A	24 September 2020	US	2020/0299488	A1	
				EP	3711747	A1	
				KR	10-2020-0112641	A	
				CN	111718426	A	
				TW	202100565	A	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C08L 1/02(2006.01)i; A61K 8/73(2006.01)i; A61Q 1/00(2006.01)i; C08K 3/22(2006.01)i; C08K 3/38(2006.01)i; C08K 5/098(2006.01)i; C08L 1/12(2006.01)i FI: C08L1/02; A61Q1/00; C08L1/12; C08K3/22; A61K8/73; C08K3/38; C08K5/098		
B. 調査を行った分野		
調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） C08L1/02; A61K8/73; A61Q1/00; C08K3/22; C08K3/38; C08K5/098; C08L1/12		
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 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2022年 日本国実用新案登録公報 1996-2022年 日本国登録実用新案公報 1994-2022年		
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）		
C. 関連すると認められる文献		
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 2020/188698 A1（株式会社ダイセル）24.09.2020（2020-09-24） [請求の範囲], [0019], [0055], [0072], [0086], [0092], [0101]-[0103], [0125], [各実施例]	1-13
Y		6-9
X	JP 2020-075878 A（松本油脂製薬株式会社）21.05.2020（2020-05-21） [特許請求の範囲], [0004], [0023], [0031], [0041], [実施例1-2]	1-5, 10-13
Y		6-9
X	JP 2021-066704 A（松本油脂製薬株式会社）30.04.2021（2021-04-30） [特許請求の範囲], [0004], [0012], [0018], [0020], [0031], [0038]	1-5, 10-11
Y		6-9
A		12-13
A	JP 2018-118956 A（味の素株式会社）02.08.2018（2018-08-02）	1-13
A	WO 2019/156116 A1（株式会社ダイセル）15.08.2019（2019-08-15）	1-13
☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。 ☒ パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー “A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの “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 “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） “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	“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 “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 “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 “&” 同一パテントファミリー文献	
国際調査を完了した日 01.07.2022	国際調査報告の発送日 12.07.2022	
名称及びあて先 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	権限のある職員（特許庁審査官） 横山 法緒 4J 6191 電話番号 03-3581-1101 内線 3457	

C. 関連すると認められる文献

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
A	JP 2020-152851 A (株式会社ダイセル) 24, 09, 2020 (2020 - 09 - 24)	1-13

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/JP2022/018738

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
WO	2020/188698	A1	24.09.2020	JP	6694559	B1	
				KR	10-2021-0127741	A	
				CN	113710729	A	
				TW	202034896	A	
JP	2020-075878	A	21.05.2020	(ファミリーなし)			
JP	2021-066704	A	30.04.2021	(ファミリーなし)			
JP	2018-118956	A	02.08.2018	WO	2018/062315	A1	
WO	2019/156116	A1	15.08.2019	US	2020/0179261	A1	
				EP	3613794	A1	
				CN	110650994	A	
				KR	10-2019-0135537	A	
JP	2020-152851	A	24.09.2020	US	2020/0299488	A1	
				EP	3711747	A1	
				KR	10-2020-0112641	A	
				CN	111718426	A	
				TW	202100565	A	