

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第5667332号
(P5667332)

(45) 発行日 平成27年2月12日(2015.2.12)

(24) 登録日 平成26年12月19日(2014.12.19)

(51) Int.Cl.

A61K 8/894 (2006.01)
A61Q 19/00 (2006.01)

F 1

A61K 8/894
A61Q 19/00

請求項の数 16 (全 45 頁)

(21) 出願番号 特願2006-250121 (P2006-250121)
 (22) 出願日 平成18年9月14日 (2006.9.14)
 (65) 公開番号 特開2008-69115 (P2008-69115A)
 (43) 公開日 平成20年3月27日 (2008.3.27)
 審査請求日 平成21年8月3日 (2009.8.3)

前置審査

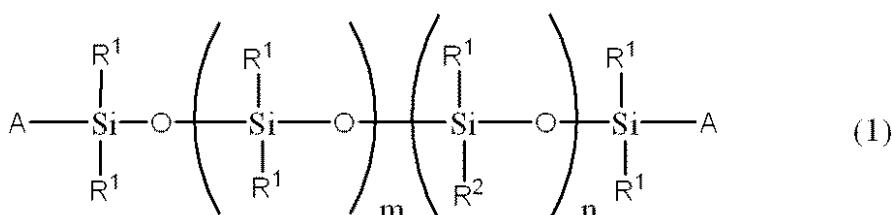
(73) 特許権者 000110077
 東レ・ダウコーニング株式会社
 東京都千代田区大手町一丁目5番1号
 (73) 特許権者 500154423
 株式会社マツモト交商
 東京都中央区日本橋室町一丁目13番7号
 (74) 代理人 100091579
 弁理士 久保田 芳聰
 (72) 発明者 水谷 康枝
 千葉県市原市千種海岸2番2 東レ・ダウ
 コーニング株式会社内
 (72) 発明者 近藤 秀俊
 千葉県市原市千種海岸2番2 東レ・ダウ
 コーニング株式会社内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】化粧料製造用組成物、化粧料および含水化粧料の製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

(a) 平均構造式(1)で表されるポリオキシアルキレン変性ジオルガノポリシロキサン
【化1】

10

(式中、R¹は一価炭化水素基または一価置換炭化水素基(ただし、R²に該当するものを除く)であり、R²は一般式(2) : -R³-O-(C₂H₄O)_a(C₃H₆O)_bR⁴で示されるポリオキシアルキレン基(式中、R³は炭素原子数2~30のアルキレン基であり、R⁴は水素原子、炭素原子数1~30のアルキル基または-(OC)-R⁵で表される有機基(R⁵は炭素原子数1~30のアルキル基)から選択される基であり、Aは水酸基、R¹およびR²から選択される同一または異種の基であり、

a、bはそれぞれ1~50、0~50であり、かつ30~a+b~50であり、m、nはそれぞれ1~100、m~500、0~n~40であり、かつ5~(m/n)~50である。)、

(b) 1種類以上の界面活性剤(ただし、成分(a)に該当するものを除く)、

20

(c) 1種類以上の油剤および

(d) 1種類以上の生理学的に許容できる親水性媒体であるカルビノール基含有脂肪族炭化水素系化合物の混合物であり、

成分(d) 100 質量部当り、成分(a) 0.9~90 質量部、成分(b) 0.6~120 質量部、成分(c) 1.1~150 質量部であり、成分(d) の含有量が、水中油型エマルジョン化粧料製造用組成物全量の 40.0~98.4 質量%であることを特徴とする水中油型エマルジョン化粧料製造用組成物。

【請求項 2】

成分(c) 100 質量部当り、成分(a) 4.0 ~ 300 質量部、成分(b) 5 ~ 480 質量部であることを特徴とする請求項 1 記載の化粧料製造用組成物。

【請求項3】

成分(a)のジプロピレングリコールによる50質量%希釈溶液の25における粘度が1,000mPa·s~60,000mPa·sの範囲であることを特徴とする請求項1または請求項2に記載の水中油型エマルジョン化粧料製造用組成物。

【請求項 4】

成分(b)が(b 1) 1種類以上のイオン性界面活性剤と(b 2) 1種類以上のノニオン性界面活性剤とからなることを特徴とする請求項1または請求項2に記載の水中油型エマルジョン化粧料製造用組成物。

【請求項 5】

成分（b1）がアニオン性界面活性剤またはリン脂質であることを特徴とする請求項4に記載の水中油型エマルジョン化粧料製造用組成物。

【請求項 6】

アニオン性界面活性剤が、ポリオキシアルキレンアルキルエーテルリン酸、そのアルカリ金属塩、N-油脂脂肪酸アシルアミノ酸、ポリオキシアルキレンスルホコハク酸アルカリ金属塩およびポリオキシアルキレン変性ジメチルポリシロキサンのスルホコハク酸エステルアルカリ金属塩からなる群から選択されることを特徴とする請求項5に記載の水中油型エマルジョン化粧料製造用組成物。

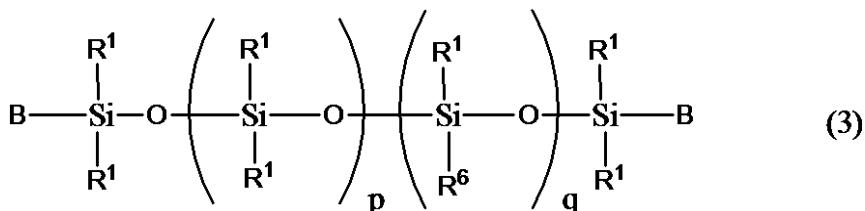
【請求項 7】

成分(b 2)がポリオキシアルキレン変性ジオルガノポリシロキサン(ただし、成分(a)よりジオルガノポリシロキサン部分の重合度が小さく、H L B が3~10である)、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル、ソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシアルキレンソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレン硬化ヒマシ油およびポリオキシアルキレン脂肪酸エステルからなる群から選択される1種類以上のノニオン性界面活性剤であることを特徴とする請求項4に記載の水中油型エマルジョン化粧料製造用組成物。

【請求項 8】

成分（b2）であるポリオキシアルキレン変性ジオルガノポリシロキサンが、平均構造式（3）

【化 2】



(式中、R¹は一価炭化水素基または一価置換炭化水素基(ただし、R⁶に該当するものを除く)であり、R⁶は一般式(4)：-R⁷-O-(C₂H₄O)_d(C₃H₆O)_eR⁸で示されるポリオキシアルキレン基(式中、R⁷は炭素原子数2～8のアルキレン基であり、R⁸は水素原子、炭素原子数1～12のアルキル基または-O-C-)R⁹で表される有機基(R⁹は炭素原子数1～12のアルキル基)から選択される基であり、d、eはそれぞれ1～d～20、0～e～20であり、かつ5～d+e～40の整数であり。

Bは水酸基、R¹およびR⁶から選択される同一または異種の基であり、p, qはそれぞれ0, p = 90, 0, q = 10である。q = 0の場合、Bの少なくとも一方はR⁶である。)で表されることを特徴とする請求項7に記載の水中油型エマルジョン化粧料製造用組成物。

【請求項9】

成分(c)が、25における粘度が0.65 mPa・s ~ 100, 000 mPa・sの疎水性シリコーンオイル、炭化水素油または高級脂肪酸アルキルエステルであることを特徴とする請求項1または請求項2に記載の水中油型エマルジョン化粧料製造用組成物。

【請求項10】

成分(d)が、分子中に少なくとも1個の水酸基を有し、室温で液状である親水性アルコール類であることを特徴とする請求項1に記載の水中油型エマルジョン化粧料製造用組成物。

【請求項11】

親水性アルコール類が、炭素原子数2~10の1価アルコールであることを特徴とする請求項10に記載の水中油型エマルジョン化粧料製造用組成物。

【請求項12】

親水性アルコール類が、エタノール単独、または、エタノールとエタノール以外の生理学的に許容できる親水性媒体であるカルビノール基含有脂肪族炭化水素系化合物との5/5~9.9/0.1の質量比での混合物であることを特徴とする請求項10に記載の水中油型エマルジョン化粧料製造用組成物。

【請求項13】

エマルジョン粒子のレーザー回折・散乱法を用いて測定した平均粒子径が0.20 μm(200 nm)未満であることを特徴とする請求項1または請求項2に記載の水中油型エマルジョン化粧料製造用組成物。

【請求項14】

成分(d)の含有量が化粧料製造用組成物全量の55.0~98.4質量%であり、成分(d)100質量部当り、成分(a)0.9~30質量部、成分(b)0.6~40質量部、成分(c)1.1~50質量部であり、

成分(d)がエタノール単独、または、エタノールとエタノール以外の生理学的に許容できる親水性媒体であるカルビノール基含有脂肪族炭化水素系化合物の混合物(ただし、両者の質量比が6/4以上である)であり、

成分(b)が(b1)1種類以上のイオン性界面活性剤および(b2)1種類以上のノニオニン性界面活性剤からなり、

成分(c)が25における粘度が0.65 mPa・s ~ 100, 000 mPa・sの疎水性シリコーンオイルであり、

エマルジョン粒子のレーザー回折・散乱法を用いて測定した平均粒子径が0.10 μm(100 nm)未満であることを特徴とする請求項1に記載の水中油型エマルジョン化粧料製造用組成物。

【請求項15】

皮膚化粧料製造用であることを特徴とする請求項1~請求項14のいずれか1項に記載の水中油型エマルジョン化粧料製造用組成物。

【請求項16】

請求項1~請求項14のいずれか1項に記載の水中油型エマルジョン化粧料製造用組成物を、水中油型エマルジョン化粧料製造用組成物と水の質量比が0.05/0.95~0.50/0.50で水と混合することを特徴とする水中油型エマルジョン化粧料の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、特定の構造を有するポリオキシアルキレン変性ジオルガノポリシロキサン、界

10

20

30

40

50

面活性剤および油剤からなる化粧料製造用組成物、さらには生理学的に許容できる親水性媒体からなる化粧料製造用組成物、さらには水からなる化粧料製造用組成物；該化粧料製造用組成物を含有する経日安定性、感触、保湿性、製品の外観等の特性に優れた化粧料、特に水中油型エマルジョン化粧料；および、該化粧料製造用組成物を水と混合することにより経日安定性、感触、保湿性、製品の外観等の特性に優れた含水化粧料を簡便に製造する方法に関する。

【背景技術】

【0002】

シリコーンオイル、特に低粘度のシリコーンオイルは、優れた進展性、さっぱり感、潤滑性、撥水性、安全性等を有するので多くの化粧品に配合されている。しかしながら、シリコーンオイルはその性質が他の油剤と非常に異なり、シリコーンオイルが水中やエタノール水溶液中に良好に可溶化あるいは分散した化粧料を調製するためには、組成の最適化や、特殊で大規模な乳化機を用いて乳化条件を最適化しなければならなかつた。さらに、最適化した乳化条件を与える組成は、必ずしも、好適な化粧料の特性を発揮できる組成であるとは限らず、特に、シリコーンオイルを配合した化粧料であつて、経日安定性、感触、保湿性、製品の外観等の特性に優れた組成・乳化条件を最適化するには、多大な労力とコストを要していた。

10

【0003】

例えば、特許文献1では、シリコーンオイル、高分子ポリオキシアルキレン変性ジオルガノポリシロキサン、エタノールおよび水からなる可溶化組成物が提案されている。しかしながら、かかる可溶化組成物は、該高分子ポリエーテル変性シリコーンを用いて大量の水にシリコーンオイルや炭化水素油などの油剤を乳化するものであるが、経日安定性に優れ、外観が均一で透明性に優れるエマルジョン、特に粒子径が1μm(1,000nm)以下の小粒径のエマルジョンを調製するためには、製造時の乳化条件を最適化せねばならず、容易に調製することは困難であった。

20

【0004】

同様に、特許文献2では、シリコーンオイル、シリコーンオイルを溶解する油剤、ポリエーテル変性シリコーン、界面活性剤および水からなる水中油型化粧料が提案されている。しかしながら、この水中油型化粧料にはシリコーンオイルを溶解するための油剤を多量に用いる必要があり、製造時に最適な乳化条件を決定することが困難であるという問題があつた。

30

【0005】

特許文献3では、ポリエーテル変性シリコーン、シリコーンオイルおよびイオン性の両親媒性脂質からなる粒径100nm未満の透明エマルジョンが提案されている。しかしながら、この透明エマルジョンを得るために高圧ホモジナイザーに代表される高圧乳化装置のような特殊な乳化装置が必須であり、簡便に調製できるものではなかつた。

【0006】

【特許文献1】特開2000-313808号公報

【特許文献2】特開平7-291825号公報

【特許文献3】特開平9-175933号公報

40

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

本発明は、特殊な乳化装置を用いることなく簡便な搅拌装置、混合装置により水に乳化可能であり、安定な水中油型エマルジョンを形成でき、乳化条件の最適化検討がほぼ不要である化粧料製造用組成物を提供すること、特殊な乳化装置を用いることなく簡便な搅拌装置、混合装置により水に乳化可能であり、安定かつ小粒径の水中油型エマルジョンを形成でき、乳化条件の最適化検討がほぼ不要である化粧料製造用組成物を提供すること、および、特殊な乳化装置を用いることなく簡便な搅拌装置、混合装置により水に乳化可能であり、経日安定性が優れ微小粒径の水中油型エマルジョンを形成でき、乳化条件の最適化検

50

討がほぼ不要である化粧料製造用組成物を提供することを目的とする。

また、経日安定性、感触、保湿性、製品の外観等に優れた含水化粧料、特に微小粒径の水中油型エマルジョン化粧料を提供することを目的とする。さらに、経日安定性、感触、保湿性、製品の外観等に優れた含水化粧料の簡便な製造方法を提供することを目的とする。

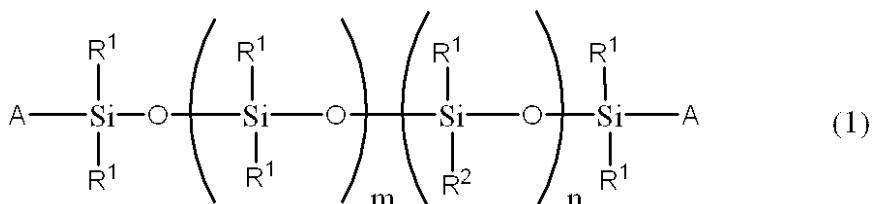
【課題を解決するための手段】

【0008】

本発明者らは鋭意検討した結果、(a) 平均構造式(1)で表されるポリオキシアルキレン変性ジオルガノポリシロキサン

【化1】

10



(式中、 R^1 は一価炭化水素基または一価置換炭化水素基(ただし、 R^2 に該当するものを除く)であり、 R^2 は一般式(2) : $-\text{R}^3-\text{O}- (\text{C}_2\text{H}_4\text{O})_a (\text{C}_3\text{H}_6\text{O})_b \text{R}^4$ で示されるポリオキシアルキレン基(式中、 R^3 は炭素原子数 2 ~ 30 のアルキレン基であり、 R^4 は水素原子、炭素原子数 1 ~ 30 のアルキル基または $\text{R}^5 - (\text{CO}) -$ で表される有機基(R^5 は炭素原子数 1 ~ 30 のアルキル基)から選択される基であり、A は水酸基、 R^1 および R^2 から選択される同一または異種の基であり、

a、b はそれぞれ 1 ~ 50、0 ~ 50 であり、かつ $10 \leq a+b \leq 100$ である整数であり、

m、n はそれぞれ 100 ~ m 500、0 ~ n 400 である。 $n = 0$ の場合、A の少なくとも一方は R^2 である。)

(b) 1種類以上の界面活性剤および

(c) 1種類以上の油剤の混合物である化粧料製造用組成物；

上記成分(a)、成分(b)、成分(c)と(d)1種類以上の生理学的に許容できる親水性媒体の混合物である化粧料製造用組成物；および、上記成分(a)、成分(b)、成分(c)と(d)1種類以上の生理学的に許容できる親水性媒体と(e)水の混合物である化粧料製造用組成物により前記課題を解決できることを見出し、本発明に到達した。

【0009】

30

また、本発明者らは、

前記の成分(a)、成分(b)、成分(c)の好ましい配合比、成分(a)、成分(b)、成分(c)、成分(d)の好ましい配合比と成分(d)の含有量、成分(a)、成分(b)、成分(c)、成分(d)の好ましい配合比と成分(d)の好ましい含有量と成分(e)の好ましい含有量を有する化粧料製造用組成物により前記課題を解決できることを見出し、本発明に到達した。

【0010】

40

さらには、本発明者らは、該化粧料製造用組成物を含有する経日安定性、感触、保湿性、製品の外観等に優れた化粧料により前記課題を解決できることを見出し、本発明に到達した。

【0011】

また、本発明者らは前記の化粧料製造用組成物を、水と混合することにより、経日安定性、感触、保湿性、製品の外観等に優れた含水化粧料を、簡便に製造できることを見出し、本発明に到達した。

【0012】

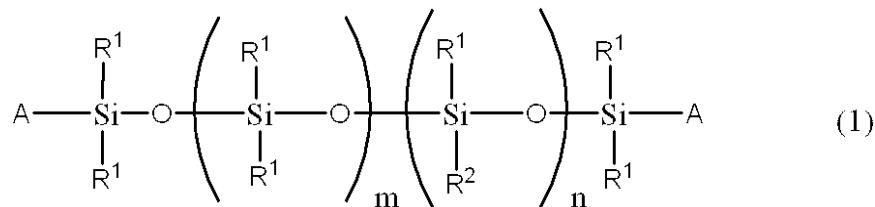
すなわち、本発明は、

「[1] (a) 平均構造式(1)で表されるポリオキシアルキレン変性ジオルガノポリシロ

50

キサン

【化2】



(式中、R¹は一価炭化水素基または一価置換炭化水素基(ただし、R²に該当するものを除く)であり、R²は一般式(2)：-R³-O-(C₂H₄O)_a(C₃H₆O)_bR⁴で示されるポリオキシアルキレン基(式中、R³は炭素原子数2～30のアルキレン基であり、R⁴は水素原子、炭素原子数1～30のアルキル基または-(OC)-R⁵で表される有機基(R⁵は炭素原子数1～30のアルキル基)から選択される基であり、Aは水酸基、R¹およびR²から選択される同一または異種の基であり、

a、bはそれぞれ1a50、0b50であり、かつ10a+b100であり、m、nはそれぞれ100m500、0n40である。n=0の場合、Aの少なくとも一方はR²である。)、

(b)1種類以上の界面活性剤(ただし、成分(a)に該当するものを除く)および(c)1種類以上の油剤の混合物であることを特徴とする化粧料製造用組成物。

[2] 成分(c)100質量部当り、成分(a)0.85～680質量部、成分(b)1.4～1120質量部であることを特徴とする[1]に記載の化粧料製造用組成物。

[3] 成分(c)100質量部当り、成分(a)1.0～340質量部であり、成分(b)1.5～560質量部であることを特徴とする[2]に記載の化粧料製造用組成物。

【0013】

[4] [1]記載の成分(a)、[1]記載の成分(b)、[1]記載の成分(c)および(d)1種類以上の生理学的に許容できる親水性媒体の混合物であることを特徴とする化粧料製造用組成物。

[5] 成分(d)の含有量が、化粧料製造用組成物全量の20.0～98.4質量%であることを特徴とする[4]に記載の化粧料製造用組成物。

[6] 成分(d)の含有量が、化粧料製造用組成物全量の40.0～98.4質量%であることを特徴とする[5]に記載の化粧料製造用組成物。

[7] 成分(d)100質量部当り、成分(a)0.9～90質量部、成分(b)0.6～120質量部、成分(c)1.1～150質量部であることを特徴とする[5]または[6]に記載の化粧料製造用組成物。

[8] 成分(c)100質量部当り、成分(a)4.0～300質量部、成分(b)5～480質量部であることを特徴とする[7]に記載の化粧料製造用組成物。

【0014】

[9] [1]記載の成分(a)、[1]記載の成分(b)、[1]記載の成分(c)、[4]記載の成分(d)および(e)水の混合物であることを特徴とする化粧料製造用組成物。

[10] 成分(d)100質量部当り、成分(a)0.9～90質量部、成分(b)0.6～120質量部、成分(c)1.1～150質量部であり、成分(d)の含有量は化粧料製造用組成物全量の20.0～98.4質量%であり、成分(e)の含有量は成分(d)の含有量以下であり、かつ化粧料製造用組成物全量の40.0質量%以下であることを特徴とする[9]に記載の化粧料製造用組成物。

【0015】

[11] 成分(a)が平均構造式(1)において5m/n50であることを特徴とする[1]～[10]のいずれかに記載の化粧料製造用組成物。

[12] 成分(a)のジプロピレングリコールによる50質量%希釈溶液の25における粘度が1,000mPa·s～60,000mPa·sの範囲であることを特徴とする[1]～[10]のいずれかに記載の化粧料製造用組成物。

10

20

30

40

50

[12-1] 成分(a)のジプロピレングリコールによる50質量%希釈溶液の25における粘度が1,000mPa·s~60,000mPa·sの範囲であることを特徴とする
[11]に記載の化粧料製造用組成物。

【0016】

[13] 成分(b)が(b1)1種類以上のイオン性界面活性剤と(b2)1種類以上のノニオン性界面活性剤とからなることを特徴とする[1]~[10]のいずれかに記載の化粧料製造用組成物。

[13-1] 成分(b)が(b1)1種類以上のイオン性界面活性剤と(b2)1種類以上のノニオン性界面活性剤とからなることを特徴とする[11]、[12]、[12-1]のいずれかに記載の化粧料製造用組成物。 10

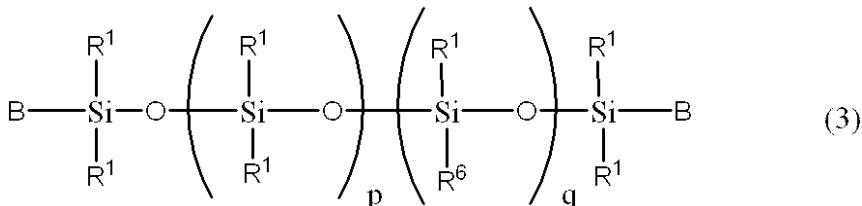
[14] 成分(b1)がアニオン性界面活性剤またはリン脂質である[13]または[13-1]に記載の化粧料製造用組成物。

[15] アニオン性界面活性剤が、ポリオキシアルキレンアルキルエーテルリン酸、そのアルカリ金属塩、N-油脂脂肪酸アシルアミノ酸、ポリオキシアルキレンスルホコハク酸アルカリ金属塩およびポリオキシアルキレン変性ジメチルポリシロキサンのスルホコハク酸エステルアルカリ金属塩からなる群から選択される[14]に記載の化粧料製造用組成物。

[16] 成分(b2)がポリオキシアルキレン変性ジオルガノポリシロキサン(ただし、成分(a)よりジオルガノポリシロキサン部分の重合度が小さく、HLBが3~10である)、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル、ソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシアルキレンソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレン硬化ヒマシ油およびポリオキシアルキレン脂肪酸エステルからなる群から選択される1種類以上のノニオン性界面活性剤である[13]または[13-1]に記載の化粧料製造用組成物。 20

[17] 成分(b2)であるポリオキシアルキレン変性ジオルガノポリシロキサンが、平均構造式(3)

【化3】



(式中、R¹は一価炭化水素基または一価置換炭化水素基(ただし、R⁶に該当するものを除く)であり、R⁶は一般式(4)：-R⁷-O-(C₂H₄O)_d(C₃H₆O)_eR⁸で示されるポリオキシアルキレン基(式中、R⁷は炭素原子数2~8のアルキレン基であり、R⁸は水素原子、炭素原子数1~12のアルキル基または-(OC)-R⁹で表される有機基(R⁹は炭素原子数1~12のアルキル基)から選択される基であり、d、eはそれぞれ1~20、0~20であり、かつ5d+e=40の整数であり、Bは水酸基、R¹およびR⁶から選択される同一または異種の基であり、p、qはそれぞれ0~90、0~10である。q=0の場合、Bの少なくとも一方はR⁶である。)で表されることを特徴とする[16]に記載の化粧料製造用組成物。 30

【0017】

[18] 成分(c)が、25における粘度が0.65mPa·s~100,000mPa·sの疎水性シリコーンオイル、炭化水素油または高級脂肪酸アルキルエステルである[1]~[10]のいずれかに記載の化粧料製造用組成物。

[18-1] 成分(c)が、25における粘度が0.65mPa·s~100,000mPa·sの疎水性シリコーンオイル、炭化水素油または高級脂肪酸アルキルエステルである[11]、[12]、[12-1]のいずれかに記載の化粧料製造用組成物。

[19] 成分(d)が、分子中に少なくとも1個の水酸基を有し、室温で液状である親水性アルコール類である[4]~[10]のいずれかに記載の化粧料製造用組成物。

[19-1] 成分(d)が、分子中に少なくとも1個の水酸基を有し、室温で液状である親水

10

20

30

40

50

性アルコール類である[11]、[12]、[12-1]のいずれかに記載の化粧料製造用組成物。

[20] 親水性アルコール類が、炭素原子数2～10の1価以上のアルコールである[19]または[19-1]に記載の化粧料製造用組成物。

[21] 炭素原子数2～10の1価以上のアルコールが、エタノール、イソプロピルアルコールおよびジプロピレングリコールからなる群から選択される1種類以上のアルコールである[20]に記載の化粧料製造用組成物。

【0018】

[22] 水中油型エマルジョン化粧料製造用である[1]～[21]のいずれかに記載の化粧料製造用組成物。

[23] エマルジョン粒子のレーザー回折・散乱法を用いて測定した平均粒子径が10.0 μm (10000nm)未満の水中油型エマルジョン化粧料製造用組成物であることを特徴とする[1]～[3]のいずれかに記載の化粧料製造用組成物。 10

[24] エマルジョン粒子のレーザー回折・散乱法を用いて測定した平均粒子径が0.20 μm (200nm)未満の水中油型エマルジョン化粧料製造用組成物である[4]～[10]のいずれかに記載の化粧料製造用組成物。

[24-1] エマルジョン粒子のレーザー回折・散乱法を用いて測定した平均粒子径が0.20 μm (200nm)未満の水中油型エマルジョン化粧料製造用組成物である[11]、[12]、[12-1]のいずれかに記載の化粧料製造用組成物。

【0019】

[25] 成分(d)の含有量が化粧料製造用組成物全量の55.0～98.4質量%であり 20

、成分(d)100質量部当り、成分(a)0.9～30質量部、成分(b)0.6～40質量部、成分(c)1.1～50質量部であり、

成分(d)がエタノール単独、または、エタノールと前記のエタノール以外の生理学的に許容できる親水性媒体の混合物(ただし、両者の質量比が6/4以上である)であり、成分(b)が(b1)1種類以上のイオン性界面活性剤および(b2)1種類以上のノニオニン性界面活性剤からなり、

成分(c)が25における粘度が0.65mPa·s～100,000mPa·sの疎水性シリコーンオイルであり、

エマルジョン粒子のレーザー回折・散乱法を用いて測定した平均粒子径が0.10 μm (100nm)未満の水中油型エマルジョン化粧料製造用組成物である[4]に記載の化粧料製造用組成物。 30

【0020】

[26] 皮膚化粧料製造用である[1]～[25]のいずれかに記載の化粧料製造用組成物。

【0021】

[27] [1]～[25]のいずれかに記載の化粧料製造用組成物を含有する化粧料。

[28] 化粧料が水中油型エマルジョン化粧料である[27]に記載の化粧料。

[29] 皮膚化粧料である[27]または[28]に記載の化粧料。

【0022】

[30] [1]～[25]のいずれかに記載の化粧料製造用組成物を水と混合することを特徴とする含水化粧料の製造方法。」に関する。 40

【発明の効果】

【0023】

本発明に係る成分(a)、成分(b)および成分(c)の混合物である化粧料製造用組成物は、特殊な乳化装置を用いることなく簡便な攪拌装置、混合装置により水に乳化可能であり、安定な水中油型エマルジョンを形成でき、乳化条件の最適化検討がほぼ不要である。

本発明に係る成分(a)、成分(b)、成分(c)および成分(d)の混合物である化粧料製造用組成物は、通常透明であり、特殊な乳化装置を用いることなく簡便な攪拌装置、混合装置により水に乳化可能であり、安定かつ微小粒径の水中油型エマルジョンを形成で 50

き、乳化条件の最適化検討がほぼ不要である。

本発明に係る成分(a)、成分(b)、成分(c)、成分(d)および成分(e)の混合物である化粧料製造用組成物は、特殊な乳化装置を用いることなく簡便な攪拌装置、混合装置により水に乳化可能であり、安定かつ微小粒径の水中油型エマルジョンを形成でき、乳化条件の最適化検討がほぼ不要である。しかも該化粧料製造用組成物を工業上利用する際の組成物の引火性が低減され、より安全に取り扱うことができるというメリットがある。本発明に係る化粧料は、経日安定性、感触、保湿性、製品の外観等に優れた含水化粧料、特に微小粒径の水中油型エマルジョン化粧料である。

本発明に係る含水化粧料の製造方法によれば、経日安定性、感触、保湿性、製品の外観等に優れた該含水化粧料を簡便に製造することができる。

10

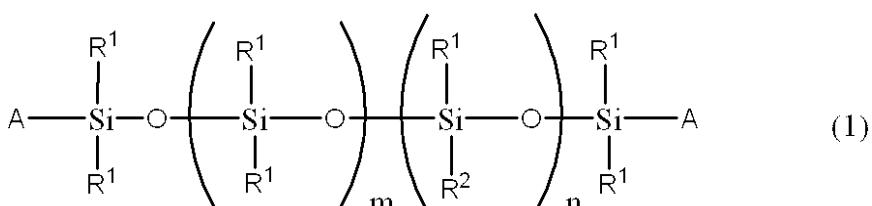
【発明を実施するための最良の形態】

【0024】

本発明に係る化粧料製造用組成物は、

(a) 平均構造式(1)で表されるポリオキシアルキレン変性ジオルガノポリシロキサン

【化4】



20

(式中、R¹は一価炭化水素基または一価置換炭化水素基(ただし、R²に該当するものを除く)であり、R²は一般式: -R³-O-(C₂H₄O)_a(C₃H₆O)_bR⁴(2)で示されるポリオキシアルキレン基(式中、R³は炭素原子数2~30のアルキレン基であり、R⁴は水素原子、炭素原子数1~30のアルキル基または-(OC)-R⁵で表される有機基(R⁵は炭素原子数1~30のアルキル基)から選択される基であり、Aは水酸基、R¹およびR²から選択される同一または異種の基であり、

a、bはそれぞれ1~50、0~50であり、かつa+b=100であり、m、nはそれぞれ100~500、0~n=40である。n=0の場合、Aの少なくとも一方はR²である。)、

30

(b) 1種類以上の界面活性剤および

(c) 1種類以上の油剤の混合物であることを特徴とする。

【0025】

成分(a)のポリオキシアルキレン変性ジオルガノポリシロキサンは、疎水性、親油性のジオルガノシロキサン単位である(R¹)₂SiO単位を100~500有し、かつ、親水性基であるR²を有するので、いわば界面活性剤である。そのHLBは特に限定されないが、通常5~13位である。

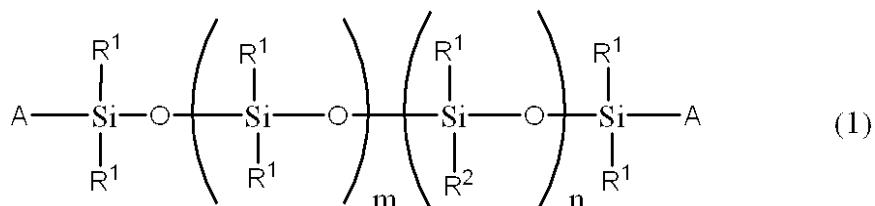
上記各化粧料製造用組成物において、成分(a)のポリオキシアルキレン変性ジオルガノポリシロキサンは、成分(b)である1種類以上の界面活性剤、成分(c)である1種類以上の油剤と相溶性が良好である。また、これら組成物を水と混合して成分(c)を水中に乳化することにより水中油型エマルジョン化粧料を調製する際に、成分(b)とともに成分(c)の水中への乳化を促進して、特殊な乳化機を用いなくても乳化しやすくし、乳化物に経日安定性を付与する作用がある。

40

【0026】

成分(a)であるポリオキシアルキレン変性ジオルガノポリシロキサンは、下記平均構造式(1)で示され、

【化5】



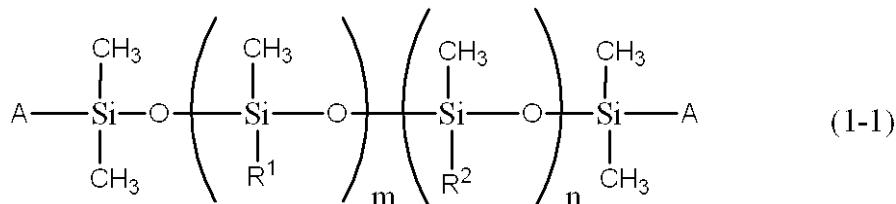
式中、 R^1 は非置換または置換一価炭化水素基（ただし、 R^2 に該当するものを除く）である。非置換の一価炭化水素基としては、メチル基、エチル基、プロピル基等のアルキル基；フェニル基、トリル基、キシリル基等のアリール基；アラルキル基が例示される。 R^2 に該当するものは、上記置換一価炭化水素基から除かれる。ケイ素原子結合 R^1 の一部、特に分子鎖末端の R^1 の一部がアルコキシ基で置換されていてもよく、アルコキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基が例示される。

R^1 は、これらの中でも非置換の一価炭化水素基が好ましく、そのうちでもアルキル基が好ましく、特にメチル基が好ましい。

【0027】

平均構造式(1)で示されるもののうちでも、下記平均構造式(1-1)で示されるものが、特性上と合成の容易性の点で好ましい。

【化6】



上記式中、 R^1 はメチル基がベストであるが、分子中の R^1 の一部が上記のメチル基以外の非置換一価炭化水素基（例えば、メチル基以外のアルキル基、フェニル基）あるいは置換一価炭化水素基（例えば、パーフルオロアルキル基、アルコキシカルボニルアルキル基、アルキルカルボニルオキシアルキル基、アルコキシアルキル基などの疎水性有機基）であるものも好ましい。

【0028】

平均構造式(1)と平均構造式(1-1)において、 R^2 は一般式(2)： $-\text{R}^3-\text{O}- (\text{C}_2\text{H}_4\text{O})_a(\text{C}_3\text{H}_6\text{O})_b\text{R}^4$ で示されるポリオキシアルキレン基（式中、 R^3 は炭素原子数2～30のアルキレン基であり、 R^4 は水素原子、炭素原子数1～30のアルキル基および式 $-\text{(OC)}-\text{R}^5$ で表される有機基（ R^5 は炭素原子数1～30のアルキル基）からなる群から選択される基である。特性の点で R^4 は水素原子が好ましい。 R^3 である該アルキレン基は炭素原子数2～6が好ましく、3または4が特に好ましい。 R^4 または R^5 である該アルキル基は、炭素原子数1～8が好ましい。

a、bはそれぞれ1 a 50、0 b 50、かつ、10 a+b 100であり、30～50が好ましい。Aは水酸基、 R^1 および R^2 から選択される同一または異種の基である。

m、nはそれぞれ100 m 500、0 n 40である。n=0の場合、Aの少なくとも一方は R^2 であるが、両方とも R^2 であることが好ましい。mは、100～400が

10

20

30

40

50

好ましく、nは0～20が好ましい。m/nは5 m/n 50が好ましい。

m+nの値が前記上限を超えると、粘度が増加しすぎてハンドリング性が低下する。a+bの値が前記下限値を下回ると乳化能が低下し、前記上限値を越えるものは製造が容易でない。また、mの値が前記下限未満であると、乳化物の経日安定性が低下し、化粧料にしたときの経日安定性が低下する。

【0029】

平均構造式(1)と平均構造式(1-1)において、各シロキサン単位の配列は制限されるものではなく、ランダム、ブロック、ランダムとブロックの混成があり得るが、コポリマーの場合は通常ランダムである。 $-(C_2H_4O)_a(C_3H_6O)_b-$ についても同様である。

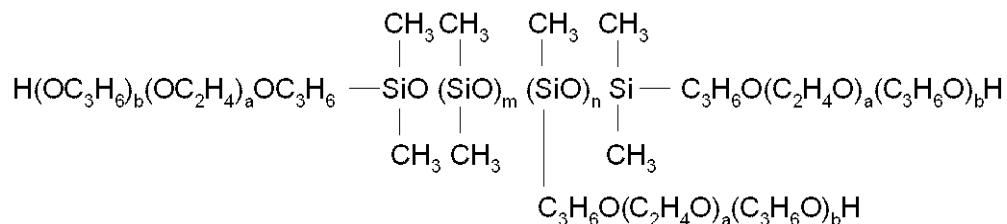
成分(a)の平均分子量は10,000～80,000、さらには20,000～60,000であることが好ましい。分子量が小さすぎる場合には、化粧料の経日安定性が低くなり、大きすぎると使用感が低下する傾向がある。

成分(a)の粘度は、特に制限されるものではないが、本発明の化粧料製造用組成物を用いて経時安定性とさらさら感に優れた化粧料を形成させる見地から、成分(a)をジプロピレングリコールの50重量%溶液とした時の25における粘度が500～100,000mPa·sの範囲にあることがより好ましい。

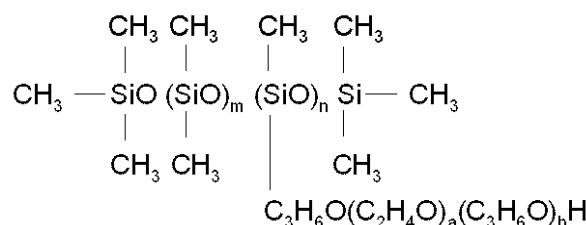
【0030】

平均構造式(1)、平均構造式(1-1)で表されるポリオキシアルキレン変性ジオルガノポリシロキサンは、具体的には、以下の平均構造式で表される一群のジオルガノポリシロキサンが例示される。なお、式中、m, n, aおよびbは前記の数値範囲を満たすものである。

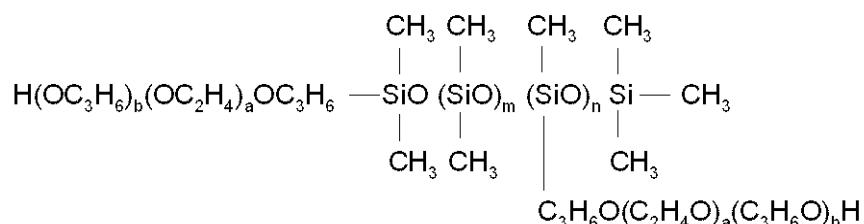
【化7】



【化8】



【化9】



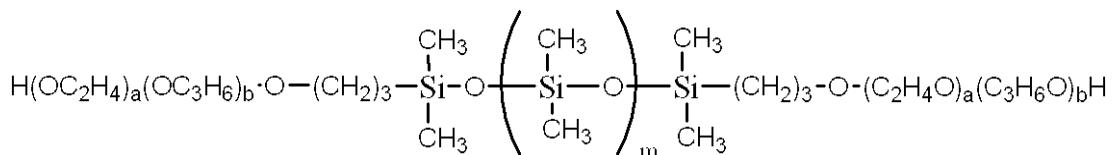
10

20

30

40

【化10】

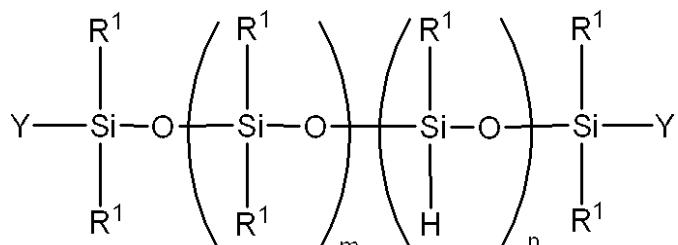


なお、成分(a)は、シロキサン単位、その重合度、ケイ素原子結合置換基、ポリオキシアルキレン基、その末端封鎖基等の異なる分子2種以上を併用してもよい。

【0031】

かかる平均構造式(1)で表される高分子ポリオキシアルキレン変性ジオルガノポリシロキサンを製造する方法は限定されず、例えば、(A)下記平均構造式(5)を有するケイ素原子結合水素原子を有する直鎖状オルガノポリシロキサン

【化11】



(式中、R¹は一価炭化水素基または一価置換炭化水素基(ただし、R²に該当するものを除く)であり、末端のYはR¹、水酸基およびアルコキシ基から選択される同一または異種の基であり、m, nはそれぞれ100 m 500, 0 n 40である。n=0の場合、分子鎖末端のYの少なくとも1個は水素原子である。)と

(B) 一般式(6) : R⁶ - O - (C₂H₄O)_a(C₃H₆O)_bR⁴

で示される末端アルケニル基を有するポリオキシアルキレン化合物(式中、R⁴は水素原子、炭素原子数1~30のアルキル基または式-O-C- R⁵で表される有機基(R⁵は炭素原子数1~30のアルキル基)から選択される基であり、R⁶は炭素原子数2~30のアルケニル基である。)を、(C)ヒドロシリル化反応用触媒の存在下、ヒドロシリル化反応する方法が挙げられる。

上記のケイ素原子結合水素原子を有する直鎖状オルガノポリシロキサンは、通常平衡化重合方法で製造される。

【0032】

ジオルガノポリシロキサン(A)中の水素原子以外のケイ素原子に結合している基であるR¹は平均構造式(1)中のR¹と同様であり、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘプチル基、オクチル基等のアルキル基；フェニル基、トリル基、キシリル基等のアリール基；ベンジル基、フェネチル基等のアラルキル基のような非置換の一価炭化水素基；3-クロロプロピル基、3,3,3-トリフロロプロピル基等のハロゲン化アルキル基；アルコキシカルボニルアルキル基；アルキルカルボニルオキシアルキル基、アルコキシアルキル基等の脂肪族不飽和結合を有さない置換炭化水素基が例示される。分子鎖末端には、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基等のアルコキシ基あるいは水酸基が結合していてもよい。非置換の一価炭化水素基が好ましく、アルキル基がより好ましく、特にはメチル基が好ましい。

【0033】

(B) 一般式(6) : R⁶ - O - (C₂H₄O)_a(C₃H₆O)_bR⁴

で示される末端アルケニル基を有するポリオキシアルキレン中のR⁴は水素原子、炭素原子数1~30のアルキル基または式-O-C- R⁵で表される有機基(R⁵は炭素原子数1~30のアルキル基)基であり、R⁶は炭素原子数2~30のアルケニル基であり、ビニル基、アリル基、ブチニル基、ペンテニル基、ヘキセニル基、ヘプテニル基、オクテニル基、ノネニル基、デセニル基が例示され、好ましくは、ビニル基、アリル基、ブチニ

10

20

30

40

50

ル基、ヘキセニル基である。

【0034】

(C) ヒドロシリル化反応用触媒は、オルガノポリシロキサン(A)中のケイ素原子結合水素原子とポリオキシアルキレン化合物(B)のアルケニル基とのヒドロシリル化反応を促進するための触媒であり、白金系触媒、ロジウム系触媒、パラジウム系触媒が例示され、好ましくは、白金系触媒である。この白金系触媒としては、塩化白金酸、アルコール変性塩化白金酸、白金オレフィン錯体、白金ケトン錯体、白金-ジビニルシロキサンテトラメチルジシロキサン錯体、四塩化白金、白金微粉末、アルミナまたはシリカの担体に固体状白金を持たせたもの、白金黒、白金のオレフィン錯体、塩化白金酸-ジビニルシロキサンテトラメチルジシロキサン錯体、白金カルボニル錯体、これらの白金系触媒を含むメチルメタクリレート樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリスチレン樹脂、シリコーン樹脂等の熱可塑性有機樹脂粉末が例示され、好ましくは、塩化白金酸である。(C) ヒドロシリル化反応用触媒は有効量であれば特に限定されないが、オルガノポリシロキサン(A)およびポリオキシアルキレン化合物(B)の合計重量に対して(C)中の白金金属が重量単位で0.1~1,000 ppmの範囲以内となるような量であることが好ましく、0.5~100 ppmの範囲以内となる量であることがより好ましい。10

【0035】

上記のヒドロシリル化反応では、有機溶媒を使用してもよい。有機溶剤を使用する場合には、イソプロピルアルコール等のアルコール系溶剤；トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素系溶剤；ジオキサン、THF等のエーテル系溶剤；脂肪族炭化水素系溶剤、カルボン酸エステル系溶剤、ケトン系溶剤、または塩素化炭化水素系溶剤を用いることが好ましい。20

なお、これらの有機溶剤を使用した場合には、ヒドロシリル化反応後にジプロピレングリコールのような難揮発性の希釈剤を添加して減圧下でストリッピングすることにより、該有機溶剤を留去しておくことが好ましい。化粧料、特に皮膚化粧料がアルコール系溶剤以外の有機溶剤を含有する事態を防止するためである。

上記のヒドロシリル化反応方法では、反応温度は限定されないが、通常、50~150の範囲以内であることが好ましい。

ヒドロシリル化反応後に、酸性物質によるアリルエーテル基の除去あるいは水素添加反応によるアルキル化によって無臭化を行ってもよい。30

得られたポリオキシアルキレン変性ジオルガノポリシロキサンに酸化防止剤としてトコフェロールやBHTを添加してもよい。

【0036】

化粧料製造用組成物において、成分(b)である1種類以上の界面活性剤は、成分(a)であるポリオキシアルキレン変性ジオルガノポリシロキサンと相溶性が良好であり、化粧料製造用組成物を水と混合して成分(c)を水中に乳化する際に成分(a)とともに成分(c)の水中への乳化を促進する。成分(b)を前記の成分(a)と併用することにより、成分(b)のみを用いた場合に比して、化粧料、特に水中油型エマルジョン化粧料の経日安定性が向上する。

【0037】

(b) 1種類以上の界面活性剤は、成分(a)に該当するものでなく、化粧料、特に水中油型エマルジョン化粧料に通常用いられるものであれば特に限定されない。これには、イオン性界面活性剤、ノニオン性界面活性剤、イオン性界面活性剤とノニオン性界面活性剤の併用がある。化粧料製造用組成物と水を混合することにより製造される水中油型エマルジョン化粧料の経日安定性の見地から、(b1) 1種類以上のイオン性界面活性剤と(b2) 1種類以上のノニオン性界面活性剤の併用が好ましい。40

【0038】

イオン性界面活性剤には、アニオン性界面活性剤、カチオン性界面活性剤および両性界面活性剤がある。アニオン性界面活性剤として、飽和もしくは不飽和高級脂肪酸塩(例えば、ラウリン酸ナトリウム、ステアリン酸ナトリウム、オレイン酸ナトリウム、リノレン酸

ナトリウム等），長鎖アルキル硫酸塩，アルキルベンゼンスルホン酸（例えば、ヘキシリベニズルホン酸，オクチルベンゼンスルホン酸，ドデシルベンゼンスルホン酸等）およびその塩，ポリオキシアルキレンアルキルエーテル硫酸塩，ポリオキシアルキレンアルケニルエーテル硫酸塩，ポリオキシエチレンアルキル硫酸エステル塩，スルホコハク酸アルキルエステル塩，ポリオキシアルキレンスルホコハク酸塩，ポリオキシアルキレンスルホコハク酸アルキルエステル塩，ポリオキシアルキレン変性ジメチルポリシロキサンのスルホコハク酸エステルアルカリ金属塩、ポリオキシアルキレンアルキルフェニルエーテル硫酸塩，長鎖アルカンスルホン酸塩，長鎖アルキルスルホネート，ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテル硫酸塩，長鎖アルキルリシン酸塩，ポリオキシアルキレンアルキルエーテルリシン酸塩，アシルグルタミン酸塩，-アシルスルホン酸塩、長鎖アルキルスルホン酸塩、アルキルアリルスルホン酸塩、長鎖-オレフィンスルホン酸塩、アルキルナフタレンスルホン酸塩、長鎖アルカンスルホン酸塩、長鎖アルキルまたはアルケニル硫酸塩、長鎖アルキルアミド硫酸塩、長鎖アルキルまたはアルケニルリシン酸塩、アルキルアミドリシン酸塩、アルキロイルアルキルタウリン塩、N-アシルアミノ酸塩、スルホコハク酸塩、アルキルアルキルエーテルカルボン酸塩、アミドエーテルカルボン酸塩、-スルホ脂肪酸エステル塩、アラニン誘導体、グリシン誘導体、アルギニン誘導体が例示される。上記の塩として、ナトリウム塩、カリウム塩等のアルカリ金属塩、トリエタノールアミン塩等のアルカノールアミン塩、アンモニウム塩が挙げられるが、ナトリウム塩が好ましい。

【0039】

10

カチオン性界面活性剤として、塩化アルキルトリメチルアンモニウム、塩化ステアリ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、塩化セチルトリメチルアンモニウム、塩化牛脂アルキルトリ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、オクチルトリメチルアンモニウムヒドロキシド，ドデシルトリメチルアンモニウムヒドロキシド，臭化ステアリルトリメチルアンモニウム、臭化ベヘニルトリメチルアンモニウム、塩化ジステアリジメチルアンモニウム、塩化ジココイルジメチルアンモニウム、塩化ジオクチルジメチルアンモニウム、塩化ジ(POE)オレイルメチルアンモニウム(2EO)、塩化ベンザルコニウム、塩化アルキルベンザルコニウム，塩化アルキルジメチルベンザルコニウム，塩化ベンゼトニウム，塩化ステアリルジメチルベンジルアンモニウム、ラノリン誘導四級アンモニウム塩、ステアリン酸ジエチルアミノエチルアミド、ステアリン酸ジメチルアミノプロピルアミド、塩化ベヘニン酸アミドプロピルジメチルヒドロキシプロピルアンモニウム、塩化ステアロイルコラミノホルミルメチルピリジニウム、塩化セチルピリジニウム、塩化トール油アルキルベンジルヒドロキシエチルイミダゾリニウム、ベンジルアンモニウム塩が例示される。

【0040】

30

両性界面活性剤として、リン脂質が例示され、好ましい。リン脂質として、レシチン、ホスファチジルエタノールアミン、ホスファチジン酸、ホスファチジルイノシトール、ホスファチジルセリン、ホスファチジルコリン、ホスファチジルグリセロール、スフィンゴミエリン、カルジオリピン、これらの水素添加物が例示される。特に大豆レシチン、卵黄レシチン、コーンレチシン、綿実油レシチン、ナタネレシチン等を水素添加した水素添加天然レシチンが好ましい。

【0041】

40

ノニオン性界面活性剤（成分(a)に該当するものを除く）として、ポリオキシアルキレンエーテル類，ポリオキシアルキレンアルキルエーテル類，ポリオキシアルキレン脂肪酸エステル類，ポリオキシアルキレン脂肪酸ジエステル類，ポリオキシアルキレン樹脂酸エステル類，ポリオキシアルキレン（硬化）ヒマシ油類，ポリオキシアルキレンアルキルフェノール類，ポリオキシアルキレンアルキルフェニルエーテル類，ポリオキシアルキレンフェニルフェニルエーテル類，ポリオキシアルキレンアルキルエステル類，ポリオキシアルキレンアルキルエステル類，ソルビタン脂肪酸エステル，ポリオキシアルキレンソルビタンアルキルエステル類，ポリオキシアルキレンソルビタン脂肪酸エステル類，ポリオキ

50

シアルキレンソルビット脂肪酸エステル類、ポリオキシアルキレングリセリン脂肪酸エステル類、ポリグリセリンアルキルエーテル類、ポリグリセリン脂肪酸エステル類、ショ糖脂肪酸エステル類、脂肪酸アルカノールアミド、アルキルグルコシド類、ポリオキシアルキレン脂肪酸ビスフェニルエーテル類、ポリプロピレングリコール、ポリエーテル変性シリコーン、すなわち、ポリオキシアルキレン変性ジオルガノポリシロキサン（成分（a）に該当するものを除く）、ポリグリセリル変性シリコーン、グリセリル変性シリコーン、糖変性シリコーン、パーカルオロポリエーテル系界面活性剤、ポリオキシエチレン・ポリオキシプロピレンブロックコポリマー、アルキルポリオキシエチレン・ポリオキシプロピレンブロックコポリマーが例示される。

【0042】

10

成分（b₁）は、これらの中でも、化粧料の安定性および使用感の見地から、アニオン性界面活性剤が好ましく、ポリオキシアルキレンアルキルエーテルリン酸、そのアルカリ金属塩（特には、ナトリウム塩、カリウム塩）、またはポリオキシアルキレンスルホコハク酸塩がより好ましい。特に、ポリオキシアルキレンスルホコハク酸のアルカリ金属塩（特には、ナトリウム塩、カリウム塩）、ポリオキシアルキレン変性ジメチルポリシロキサンのスルホコハク酸エステルアルカリ金属塩を用いると、低臭性および皮膚刺激性が少ない化粧料製造用組成物、ひいては化粧料を調製できるという利点がある。また、ノニオン系界面活性剤は、化粧料の安定性および使用感の見地から、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル類、ポリオキシアルキレン脂肪酸エステル類が好ましい。また、化粧料、特に水中油型エマルジョン化粧料の経日安定性の向上を目的とする場合、ポリエーテル変性シリコーン、すなわち、ポリオキシアルキレン変性ジオルガノポリシロキサン（成分（a）に該当するものを除く）、ポリグリセリル変性シリコーン、グリセリル変性シリコーンまたは糖変性シリコーンが好ましい。これらの変性シリコーンは、成分（a）と同じジオルガノポリシロキサン骨格を持つため、成分（a）と併用することにより、化粧料、特に水中油型エマルジョン化粧料の経日安定性を向上させる。

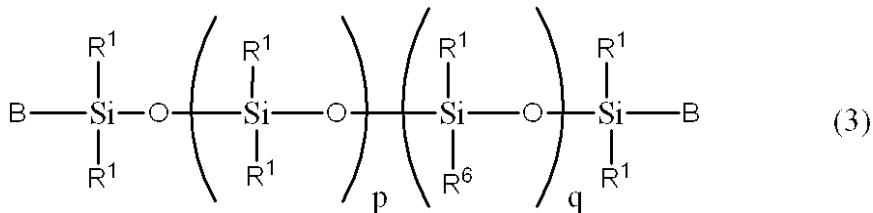
20

【0043】

成分（b₂）であるノニオン系界面活性剤は、化粧料、特に水中油型エマルジョン化粧料の経日安定性の見地から、下記の平均構造式（3）で表されるポリオキシアルキレン変性ジオルガノポリシロキサンが好ましい。

【化12】

30



（式中、R¹は一価炭化水素基または一価置換炭化水素基（ただし、R⁶に該当するものを除く）であり、R⁶は一般式：-R⁷-O- (C₂H₄O)_d (C₃H₆O)_eR⁸（4）で示されるポリオキシアルキレン基（式中、R⁷は炭素原子数2～8のアルキレン基であり、R⁸は水素原子、炭素原子数1～12のアルキル基または-(OC)-R⁹で表される有機基（R⁹は炭素原子数1～12のアルキル基）から選択される基であり、d、eはそれぞれ1～20、0～20であり、かつd+e=40の整数であり、Bは水酸基、R¹およびR⁶から選択される同一または異種の基であり、p、qはそれぞれ0～90、0～10である。q=0の場合、Bの少なくとも一方はR⁶である。）

40

【0044】

式中、R¹は置換または非置換の一価炭化水素基（ただし、R⁶に該当するものを除く）であり、非置換の一価炭化水素基として、メチル基、エチル基、プロピル基等のアルキル基；フェニル基、トリル基、キシリル基等のアリール基；アラルキル基が例示される。置換一価炭化水素基としては、3,3,3-トリフロロプロピル基、3,3,4,4,4-

50

ペンタフロロブチル基などのパーフルオロアルキル基；メトキシカルボニルプロピル基、エトキシカルボニルプロピル基等のアルコキシカルボニルアルキル基；アセトキシプロピル基、プロピオノキシプロピル基等のアルキルカルボニルオキシアルキル基；エトキシエチル基等のアルコキシアルキル基；3-アミノプロピル基、3-(アミノエチル)アミノプロピル基等のアミノアルキル基；アセチルアミノアルキル基等のアミドアルキル基が例示される。また、R¹の一部がアルコキシ基で置換されていてもよく、アルコキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基が例示される。

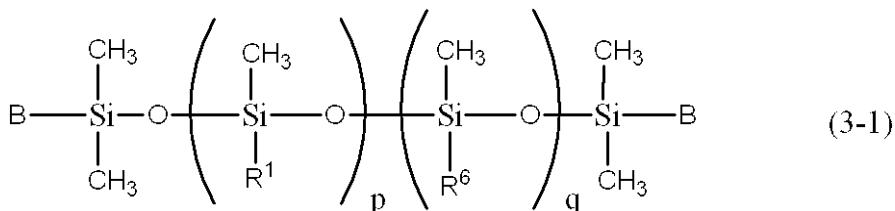
R¹は、これらの中でも非置換の一価炭化水素基が好ましく、アルキル基がより好ましく、特にメチル基が好ましい。

【0045】

10

平均構造式(3)のうち、下記平均構造式(3-1)で表されるポリオキシアルキレン変性ジオルガノポリシロキサンが好ましい。

【化13】



R¹は上記どおりである。

20

R⁶は一般式(6)：-R³-O-(C₂H₄O)_d(C₃H₆O)_eR⁴で示されるポリオキシアルキレン基(式中、R³は炭素原子数2~8のアルキレン基であり、R⁴は水素原子、炭素原子数1~12のアルキル基または-(OC)-R⁵で表される有機基(R⁵は炭素原子数1~12のアルキル基)から選択される基であるが、界面活性の点で水素原子が好ましい。該アルキレン基は炭素原子数2~6が好ましく、3または4が特に好ましい。R⁵であるアルキル基は、炭素原子数1~8が好ましい。

d, eはそれぞれ1~d=20, 0~e=20であり、かつ5≤d+e≤40の整数であり、8~20が好ましい。Bは水酸基、R¹およびR⁶から選択される同一または異種の基であり、p, qはそれぞれ0≤p≤90, 0≤q≤10である。pは50~80が好ましく、qは0~5が好ましい。ただし、q=0の場合、Bの少なくとも一方はR⁶であるが、両方ともR⁶であることが好ましい。

30

d, e, p, qの各値が前記上限を超えると、成分(a)と区別がつかないことがあり、本発明の化粧料製造用組成物を水と混合して乳化する際の、乳化力が低下し、得られるエマルジョン化粧料の経日安定性が低下する。

平均構造式(3)、平均構造式(3-1)において、各シロキサン単位の配列は制限されるものではなく、ランダム、ブロック、ランダムとブロックの混成があり得るが、コポリマーの場合は通常ランダムである。-(C₂H₄O)_d(C₃H₆O)_e-についても同様である。

【0046】

40

平均構造式(3)、平均構造式(3-1)で表されるポリオキシアルキレン変性ジオルガノポリシロキサンは、成分(a)に比してジオルガノポリシロキサン部分が低重合度であり、ポリオキシアルキレン基の最大重合度が成分(a)中のポリオキシアルキレン基の最大重合度より小さい。平均構造式(3)、平均構造式(3-1)で表されるポリオキシアルキレン変性ジオルガノポリシロキサンは、親水性親油性バランスであるHLBが3~10の範囲にあることが好ましく、3~8の範囲にあることがより好ましい。かかる低重合度かつHLBが3~8の範囲にあるポリオキシアルキレン変性ジオルガノポリシロキサンを成分(a)と併用することにより、化粧料製造用組成物を水と混合して得られる水中油型エマルジョン化粧料の経日安定性を向上させることができる。

【0047】

(c)1種類以上の油剤は、化粧品一般に使用される動物油、植物油、合成油等である。

50

疎水性であれば、起源を問わず、固形、半固体、液体のいずれでもよく、不揮発性、半揮発性、揮発性のいずれでよい。炭化水素類、油脂類、ロウ類、硬化油類、エステル油類、高級脂肪酸類、シリコーンオイル類、フッ素系油類、ラノリン誘導体類が例示される。肌や毛髪に潤滑性を付与し、肌を柔軟にし、後肌のしっとり感を付与するために用いられる。

【0048】

シリコーンオイル類は、油剤である以上疎水性であり、その分子構造は、環状、直鎖状、分岐状のいずれであってもよい。25における粘度は、通常、0.65～100,000 mm²/sの範囲であり、0.65～10,000 mm²/sの範囲が好ましい。当然、成分(a)および成分(b1)のようなポリオキシアルキレン変性ジオルガノポリシリコサンを含むものではない。具体的には、オクタメチルシクロテトラシリコサン、デカメチルシクロペンタシリコサン等の低重合度環状ジメチルポリシリコサン；ヘキサメチルジシリコサン、オクタメチルトリシリコサン、デカメチルテトラシリコサン、両末端トリメチルシリコシ基封鎖ジメチルポリシリコサン、両末端トリメチルシリコシ基封鎖メチルフェニルポリシリコサン、両末端トリメチルシリコシ基封鎖メチルアルキルポリシリコサン等の直鎖状ジオルガノポリシリコサン、メチルトリストリメチルシリコシシラン、エチルトリストリメチルシリコシシラン、プロピルトリストリメチルシリコシシラン、テトラキストリメチルシリコシシラン、フェニルトリストリメチルシリコシシラン等の分岐状オルガノポリシリコサンなどが挙げられ、これらの中でも、揮発性の直鎖状ジメチルポリシリコサン、分岐状メチルポリシリコサンおよび環状ジメチルポリシリコサンが好ましい。

【0049】

具体的には、環状オルガノポリシリコサンとして、ヘキサメチルシクロトリシリコサン(D3)、オクタメチルシクロテトラシリコサン(D4)、デカメチルシクロペンタシリコサン(D5)、ドデカメチルシクロヘキサシリコサン(D6)、1,1-ジエチルヘキサメチルシクロテトラシリコサン、フェニルヘプタメチルシクロテトラシリコサン、1,1-ジフェニルヘキサメチルシクロテトラシリコサン、1,3,5,7-テトラビニルテトラメチルシクロテトラシリコサン、1,3,5,7-テトラシクロヘキシルテトラメチルシリコテトラシリコサン、トリス(3,3,3-トリフルオロプロピル)トリメチルシリコトリシリコサン、1,3,5,7-テトラ(3-アミノプロピル)テトラメチルシリコテトラシリコサン、1,3,5,7-テトラ(N-(2-アミノエチル)3-アミノプロピル)テトラメチルシリコテトラシリコサン、1,3,5,7-テトラ(3-メルカプトプロピル)テトラメチルシリコテトラシリコサン、1,3,5,7-テトラ(3-グリシドキシプロピル)テトラメチルシリコテトラシリコサン、1,3,5,7-テトラ(3-メタクリロキシプロピル)テトラメチルシリコテトラシリコサン、1,3,5,7-テトラ(3-アクリロキシプロピル)テトラメチルシリコテトラシリコサン、1,3,5,7-テトラ(3-カルボキシプロピル)テトラメチルシリコテトラシリコサン、1,3,5,7-テトラ(3-ビニロキシプロピル)テトラメチルシリコテトラシリコサン、1,3,5,7-テトラ(p-ビニルフェニル)テトラメチルシリコテトラシリコサン、1,3,5,7-テトラ[3-(p-ビニルフェニル)プロピル]テトラメチルシリコテトラシリコサン、1,3,5,7-テトラ[3-(p-イソプロペニルベンゾイルアミノ)プロピル]テトラメチルシリコテトラシリコサン、1,3,5,7-テトラ(N-メタクリロイル-N-メチル-3-アミノプロピル)テトラメチルシリコテトラシリコサン、1,3,5,7-テトラ(N-ラウロイル-N-メチル-3-アミノプロピル)テトラメチルシリコテトラシリコサン、1,3,5,7-テトラ(N-アクリロイル-N-メチル-3-アミノプロピル)テトラメチルシリコテトラシリコサン、1,3,5,7-テトラ(N,N-ビス(メタクリロイル))-3-アミノプロピル)テトラメチルシリコテトラシリコサン、1,3,5,7-テトラ(N,N-ビス(ラウロイル))-3-アミノプロピル)テトラメチルシリコテトラシリコサンが例示される。直鎖状オルガノポリシリコサンとしては、分子鎖両末端トリメチルシリコシ基封鎖ジメチルポリシリコサン、分子鎖両末端トリメチルシリコシ基封鎖メチルフェニ

10

20

30

40

50

ルポリシロキサン、分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルフェニルシロキサン共重合体、分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチル(3,3,3-トリフルオロプロピル)シロキサン共重合体、-, -ジヒドロキシポリジメチルシロキサン、-, -ジメトキシポリジメチルシロキサン、テトラメチル-1,3-ジヒドロキシジシロキサン、オクタメチル-1,7-ジヒドロキシテトラシロキサン、ヘキサメチル-1,5-ジエトキシトリシロキサン、ヘキサメチルジシロキサン、オクタメチルトリシロキサンが例示される。

【0050】

成分(c)のうち、シリコーンオイル類以外の油剤は5~100で液状であることが好ましい。例えば炭化水素油として、オゾケライト、スクワラン、スクワレン、セレシン、パラフィン、パラフィンワックス、流動パラフィン、プリスタン、ポリイソブチレン、ポリブテン、マイクロクリスタリンワックス、ワセリン等；動植物油として、アボガド油、アマニ油、アーモンド油、イボタロウ、エノ油、オリーブ油、カカオ脂、カポックロウ、カヤ油、カルナウバロウ、肝油、キャンデリラロウ、牛脂、牛脚脂、牛骨脂、硬化牛脂、キョウニン油、鯨ロウ、硬化油、小麦胚芽油、ゴマ油、コメ胚芽油、コメヌカ油、サトウキビロウ、ザザンカ油、サフラワー油、シアバター、シナギリ油、シナモン油、ジョジョバロウ、セラックロウ、タートル油、大豆油、茶実油、ツバキ油、月見草油、トウモロコシ油、豚脂、ナタネ油、日本キリ油、ヌカラロウ、胚芽油、馬脂、パーシック油、パーム油、パーム核油、ヒマシ油、硬化ヒマシ油、ヒマシ油脂肪酸メチルエステル、ヒマワリ油、ブドウ油、ベイベリーロウ、ホホバ油、マカデミアナッツ油、ミツロウ、ミンク油、綿実油、綿ロウ、モクロウ、モクロウ核油、モンタンロウ、ヤシ油、硬化ヤシ油、トリヤシ油脂肪酸グリセライド、羊脂、落花生油、ラノリン、液状ラノリン、還元ラノリン、ラノリンアルコール、硬質ラノリン、酢酸ラノリン、ラノリン脂肪酸イソプロピル、ラウリン酸ヘキシル、POEラノリンアルコールエーテル、POEラノリンアルコールアセテート、ラノリン脂肪酸ポリエチレングリコール、POE水素添加ラノリンアルコールエーテル、卵黄油等；高級アルコールとして、ラウリルアルコール、ミリスチルアルコール、パルミチルアルコール、ステアリルアルコール、ベヘニルアルコール、ヘキサデシルアルコール、オレイルアルコール、イソステアリルアルコール、ヘキシルドデカノール、オクチルドデカノール、セトステアリルアルコール、2-デシルテトラデシノール、コレステロール、フィトステロール、POEコレステロールエーテル、モノステアリルグリセリンエーテル(バチルアルコール)、モノオレイルグリセリルエーテル(セラキルアルコール)等；エステル油として、アジピン酸ジイソブチル、アジピン酸2-ヘキシルデシル、アジピン酸ジ-2-ヘプチルウンデシル、モノイソステアリン酸N-アルキルグリコール、イソステアリン酸イソセチル、トリイソステアリン酸トリメチロールプロパン、ジ-2-エチルヘキサン酸エチレングリコール、2-エチルヘキサン酸セチル、トリ-2-エチルヘキサン酸トリメチロールプロパン、テトラ-2-エチルヘキサン酸ペンタエリスリトール、オクタン酸セチル、オクチルドデシルガムエステル、オレイン酸オレイル、オレイン酸オクチルドデシル、オレイン酸デシル、イソノナン酸イソノニル、ジカプリン酸ネオペンチルグリコール、クエン酸トリエチル、コハク酸2-エチルヘキシル、酢酸アミル、酢酸エチル、酢酸ブチル、ステアリン酸イソセチル、ステアリン酸ブチル、セバシン酸ジイソブチル、セバシン酸ジ-2-エチルヘキシル、乳酸セチル、乳酸ミリスチル、パルミチン酸イソプロピル、パルミチン酸2-エチルヘキシル、パルミチン酸2-ヘキシルデシル、パルミチン酸2-ヘプチルウンデシル、12-ヒドロキシステアリル酸コレステリル、ジペンタエリスリトール脂肪酸エステル、ミリスチン酸イソブチル、ミリスチン酸-2-エチルヘキシル、ミリスチン酸オクチルドデシル、ミリスチン酸2-ヘキシルデシル、ミリスチン酸ミリスチル、ジメチルオクタン酸ヘキシルデシル、ラウリン酸エチル、ラウリン酸ヘキシル、N-ラウロイル-L-グルタミン酸-2-オクチルドデシルエステル、リノゴ酸ジイソステアリル等；グリセライド油としては、アセトグリセリル、トリイソオクタン酸グリセリル、トリイソステアリン酸グリセリル、トリイソパルミチン酸グリセリル、トリ(カプリル・カプリン酸)グリセリル、モノステアリン酸グリセリル、ジ-2-ヘプチ

10

20

30

40

50

ルウンデカン酸グリセリル、トリミリスチン酸グリセリル、ミリスチン酸イソステアリン酸ジグリセリル等が例示される。

【0051】

成分(c)は、シリコーンオイル類が好ましく、そのうちでも揮発性の直鎖状ジメチルポリシロキサン、分岐状メチルポリシロキサンおよび環状ジメチルポリシロキサンが好ましく、25における動粘度が $0.65 \sim 10,000 \text{ mm}^2/\text{s}$ の範囲にある分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン、分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖メチルフェニルポリシロキサン、-ジヒドロキシポリジメチルシロキサン、-ジメトキシポリジメチルシロキサン、デカメチルシクロペニタシロキサン(D5)が特に好ましい。本発明に係る化粧料製造用組成物にこれらのシリコーンオイルを含有せしめると、かかる化粧料製造用組成物から得られる水中油型エマルジョン化粧料の経日安定性を改善でき、シリコーンオイル特有のさっぱりとした感触を実現することができる。

【0052】

シリコーンオイル類以外の成分(c)として、スクワラン、パラフィン等の炭化水素油、イソノナン酸イソノニル等の脂肪酸エステル油が好ましい。これらは単独でもよいが、前記シリコーンオイルとの併用が好ましい。これらの炭化水素油や脂肪酸エステル油を前記シリコーンオイルと併用することにより、シリコーンオイル特有のさっぱりとした感触に加えて、肌上の水分を保持し、化粧料に肌や毛髪が潤うような保湿感(「しっとりした感触」ともいう)や滑らかな感触を付与することができ、しかも、化粧料の経日安定性を損なわないという利点がある。さらに、これらの炭化水素油や脂肪酸エステル油と前記シリコーンオイルを含有する化粧料製造用組成物から製造された化粧料は、これらの保湿成分を肌上または毛髪上により安定かつ均一な状態で塗布することができ、保湿成分の肌上の保湿効果が向上している。これらの炭化水素油や脂肪酸エステル油のみを含有する化粧料製造用組成物から製造された化粧料に比してより滑らかでしっとりした感触を付与するという利点がある。

成分(c)である炭化水素類、油脂類、ロウ類、硬化油類、エステル油類、高級脂肪酸類、シリコーンオイル類、フッ素系油類、ラノリン誘導体類は、いずれもこれら2種類以上を併用してもよく、前記具体例の2種以上を併用してもよい。

【0053】

成分(a)、成分(b)、成分(c)の混合物である化粧料製造用組成物における各成分の配合比は、水と混合した際に水中油型エマルジョンが容易に生成し、そのエマルジョン粒子のレーザー回折・散乱法を用いて測定した平均粒子径が $10.0 \mu\text{m}$ ($10,000 \text{ nm}$)未満となるような配合比であればよい。そのためには成分(c)100質量部当たり、成分(a)0.85~680質量部であり、成分(b)1.4~1120質量部であることが好ましい。

成分(a)と成分(b)の配合量が上記下限値に近いと、化粧料製造用組成物を水と混合した際に成分(c)の乳化が不十分となりかねず、上記上限値に近いと油剤の含有量が少なくなりすぎて、得られる化粧料に所望の感触を付与できなくなる懸念があるので、成分(c)100質量部当たり、成分(a)1.0~340質量部であり、成分(b)1.5~560質量部であることがより好ましく、成分(a)1.2~68質量部であり、成分(b)1.9~112質量部であることが特に好ましい。

【0054】

本発明の前記成分(a)~成分(c)の混合物からなる化粧料製造用組成物は、水と混合すると乳化しやすいので、高圧乳化装置やコロイドミル、コロイドミキサーのような高せん断力による乳化装置は必ずしも必要ではなく、パドル翼付攪拌機、プロペラ攪拌器、ヘンシェル型攪拌機、TKホモミクサー(特殊機化工業(株))、TKホモディスパー(特殊機化工業(株))等の周知の簡便な攪拌装置、混合装置を用いて、所望の量の水と混合することにより、平均粒子径が $10 \mu\text{m}$ 未満である安定な水中油型エマルジョンを得ることができる。

10

20

30

40

50

ここで、高压乳化装置とは、装置内で一次エマルジョンを加圧することにより、高速の液流とし、この液流を分岐させて分岐した液流同士を衝突させたり、調節された微小間隙を通じてインパクトリングや回転体に衝突させたりすることにより発生する衝突力、剪断力、キャビテーション、乱流、超音波により一次エマルジョン中に含まれるオルガノポリシリコキサンの乳化粒子を粉碎し、均一かつ微細な乳化粒子を形成させることを目的とした装置である。具体的には、超高压ガウリン型ホモジナイザー（ゴーリン社）、高压ホモゲナイザー（株式会社イズミフードマシナリー製）、高压ホモジナイザー（Rannie 製）、マイクロフルイダイナー（Microfluidics 製）、ナノマイナー（ナノマイナー株式会社製）が例示される。

【0055】

10

本発明に係る成分（a）、成分（b）、成分（c）の混合物からなる化粧料製造用組成物は、さらに（d）1種類以上の生理学的に許容できる親水性媒体を含有することが好ましい。成分（d）に加えて、さらに（e）水を含有してもよい。成分（d）である1種類以上の生理学的に許容できる親水性媒体に成分（a）～成分（c）を溶解ないし分散させると、透明となりやすく、成分（a）～成分（d）からなる化粧料製造用組成物を水と混合した際に平均粒子径が微細な、すなわち、レーザー回折・散乱法を用いて測定した平均粒子径が0.5 μm未満の、経日安定性が高い水中油型エマルジョンを形成しやすくなる。したがって、より経日安定性が高い水中油型エマルジョン化粧料を簡便に製造することができるようになる。

【0056】

20

（d）1種類以上の生理学的に許容できる親水性媒体は、水との相溶性に優れる常温で液状であり、化粧品に配合した場合、生理学的に人体に及ぼす刺激が少ないと、ないもの、具体的には肌や毛髪の外観及び／または感触を損なう影響や特に大量に経口した時に健康を害するような影響が比較的少ないと、ないものが挙げられる。かかる成分（d）はカルビノール基含有脂肪族炭化水素系化合物が好ましく、具体的には、エタノール、n-プロパノール、イソプロパノール、n-ブタノール等の1価低級アルコール；1,3-ブチレングリコール、エチレングリコール、プロピレングリコール等の2価アルコール；ポリエチレングリコール、ジプロピレングリコール、ポリプロピレングリコール等のポリアルキレングリコール；グリセリン、ジグリセリン、トリメチロールプロパン、ペンタエリスリトール、ソルビトール等の多価アルコールが例示される。これら2種類以上を併用することができる。

30

【0057】

特に、化粧料製造用組成物が水中油型エマルジョン化粧料製造用組成物であり、レーザー回折・散乱法を用いて測定した、平均粒子径が0.2 μm(200 nm)未満の水中油型エマルジョン化粧料製造用組成物である場合には、成分（d）として、エタノール、イソプロパノールまたは1,3-ブチレングリコールを用いることが好ましい。これらの親水性媒体を用いることにより、混合物が透明な液体となり、本発明に係る化粧料製造用組成物は周知慣用の攪拌装置、混合装置により、きわめて容易に水に分散して平均粒子径が0.2 μm未満の水中油型エマルジョン化粧料を形成する。また、製造スケールが小さい場合には、へら等を用いた人力による攪拌・混合操作によっても平均粒子径が0.2 μm未満の水中油型エマルジョン化粧料を形成することができる。本発明に係る成分（a）、成分（b）、成分（c）および成分（d）の混合物からなる化粧料製造用組成物は、かかる優れた自己乳化特性を有するので、安定な水中油型エマルジョン化粧料を製造する場合に必須となる乳化の諸条件を詳細に検討することがほぼ不要であるという利点を有する。

40

【0058】

成分（d）として最も好ましくは、エタノールである。また、エタノールと前記のエタノール以外の生理学的に許容できる親水性媒体とを5/5～9.9/0.1の質量比で混合して併用することも、化粧料製造用組成物の自己乳化特性の点から好ましい。さらに、エタノールと前記のエタノール以外の生理学的に許容できる親水性媒体との質量比が6/4以上であることが化粧料製造用組成物の自己乳化特性の点から特に好ましい。

50

【0059】

成分(a)、成分(b)、成分(c)および成分(d)の混合物である化粧料製造用組成物における各成分の配合量は、混合物が透明な液体となり、自己乳化性が優れ、すなわち、水と混合した際にエマルジョン粒子の微細な水中油型エマルジョンが容易に生成し、そのエマルジョン粒子のレーザー回折・散乱法を用いて測定した平均粒子径が 0 . 5 μm (500 nm) 未満となるような配合比が好ましく、0 . 2 μm (200 nm) 未満となるような配合比がより好ましい。

こうした観点から、成分(d)の含有量は、化粧料製造用組成物全量の 20 . 0 ~ 98 . 4 質量% であることが好ましく、40 . 0 ~ 98 . 4 質量% であることがより好ましい。また、得られる水中油型エマルジョンの経日安定性の点から、成分(d)の含有量が 55 . 0 ~ 98 . 4 質量% であることが特に好ましい。

成分(d)の含有量が前記下限未満であっても、水中油型エマルジョン化粧料を容易に製造できることは前記のとおりであるが、平均粒子径が 0 . 5 μm 未満であるような小粒径の水中油型エマルジョン化粧料を製造するためには、高圧乳化装置やコロイドミル、コロイドミキサーのような高せん断力を有する乳化装置や最適乳化条件の検討が必要になる場合がある。

【0060】

成分(d)の上記含有量範囲において、エマルジョン粒子のレーザー回折・散乱法を用いて測定した平均粒子径が 0 . 2 μm (200 nm) 未満であり、水中油型エマルジョン化粧料の経日安定性が優れたものとなるには、成分(d) 100 質量部当り、成分(a) 0 . 9 ~ 90 質量部、成分(b) 0 . 6 ~ 120 質量部、成分(c) 1 . 1 ~ 150 質量部の配合比が好ましく、成分(a) 0 . 9 ~ 45 質量部、成分(b) 0 . 6 ~ 60 質量部、成分(c) 1 . 1 ~ 75 質量部の配合比がより好ましい。

【0061】

なお、上記の成分(d) 100 質量部当りの成分(a)、成分(b)、成分(c)の各配合比において、成分(a)、成分(b)、成分(c)間の配合比は、成分(c) 100 質量部当り、成分(a) 4 ~ 300 質量部、成分(b) 5 ~ 480 質量部が好ましく、成分(a) 4 ~ 200 質量部、成分(b) 5 ~ 320 質量部がより好ましい。

成分(a)と成分(b)の含有量が上記下限値を下回ると、化粧料製造用組成物を水と混合して生成する水中油型エマルジョン化粧料の経日安定性が不十分となりかねず、上記上限値を上回ると油剤の含有量が少なく、得られる水中油型エマルジョン化粧料に所望の感触を付与できない場合があるからである。

【0062】

なお、本発明に係る成分(a) ~ 成分(d)の混合物からなる化粧料製造用組成物における各成分の含有量は、請求項1記載の成分(a) 1 ~ 25 質量%、請求項1記載の成分(b) 0 . 5 ~ 25 質量%、請求項1記載の成分(c) 0 . 1 ~ 40 . 0 質量%、請求項2記載の成分(d) 20 . 0 ~ 98 . 4 質量% であり、成分(c)の含有量は成分(d)の含有量以下であることが好ましい。

【0063】

その際、エマルジョン粒子のレーザー回折・散乱法を用いて測定した平均粒子径が 0 . 1 μm (100 nm) 未満となるには、成分(d)の含有量が化粧料製造用組成物全量の 55 . 0 ~ 98 . 4 質量% であり、

成分(d) 100 質量部当り、成分(a) 0 . 9 ~ 30 質量部、成分(b) 0 . 6 ~ 40 質量部、成分(c) 1 . 1 ~ 50 質量部であり、

成分(d)がエタノール単独、または、エタノールと前記のエタノール以外の生理学的に許容できる親水性媒体の混合物（ただし、両者の質量比が 6 / 4 以上である）であり、成分(b)が(b 1) 1種類以上のイオン性界面活性剤および(b 2) 1種類以上のノニオニン性界面活性剤からなり、

成分(c)が 25 における粘度が 0 . 65 mPa · s ~ 100 , 000 mPa · s の疎水性シリコーンオイルであることが好ましい。

10

20

30

40

50

【0064】

本発明に係る成分(a)、成分(b)、成分(c)および成分(d)の混合物からなる化粧料製造用組成物は、さらに(e)水を含有してもよい。

(e)水は、人体に有害な成分を含有せず、清浄であればよく、水道水、精製水、ミネラルウォーターが例示される。成分(d)である1種類以上の生理学的に許容できる親水性媒体、特にはエタノールのような低級アルコールを高濃度に含有する化粧料製造用組成物は引火性が高いが、水を含有すると引火点が低下して、製造時、貯蔵時、運送時の安全性が高くなる。また、水溶性のイオン性界面活性剤等の水溶性成分を、予め水に分散させて化粧料製造用組成物に配合することが可能である。

なお、本発明に係る化粧料が、(e)水を含む化粧料製造用組成物を、追加の水と混合することにより製造されるような化粧料、特には水中油型エマルジョン化粧料である場合には、化粧料製造用組成物中に含まれる水と化粧料製造時に追加された水の両方を含むものである。これらの水は化粧料中において区別することができないことはいうまでもない。

【0065】

一方、(e)水を含有すると、化粧料製造用組成物は自己乳化性が低下し、エマルジョン粒子の平均粒子径が大きくなり、水中油型エマルジョン化粧料の経日安定性が低下するので、こうした観点から成分(e)の含有量は、成分(d)の含有量以下であることが必要であり、さらに、化粧料製造用組成物に対して40.0質量%以下であることが好ましく、30.0質量%以下であることがより好ましい。成分(e)の含有量が前記上限を超えると、化粧料製造用組成物自体が多量の水を含むこととなり、各成分が互いに相溶化された混合状態から不完全な乳化状態を形成して、本発明の効果の一つである自己乳化性が損なわれる場合がある。

【0066】

成分(a)、成分(b)、成分(c)および成分(d)の混合物である化粧料製造用組成物における各成分の配合量は、混合物が透明な液体となり、自己乳化性が優れ、すなわち、水と混合した際にエマルジョン粒子の微細な水中油型エマルジョンが容易に生成し、そのエマルジョン粒子のレーザー回折・散乱法を用いて測定した平均粒子径が0.5μm(500nm)未満となるような配合比が好ましく、0.2μm(200nm)未満となるような配合比が好ましい。

具体的には、成分(d)100質量部当り、成分(a)0.9~90質量部、成分(b)0.6~120質量部、成分(c)1.1~150質量部であり、成分(d)の含有量は化粧料製造用組成物全量の20.0~98.4質量%であり、成分(e)の含有量は成分(d)の含有量以下であり、かつ化粧料製造用組成物全量の40.0質量%以下であることが好ましい。

なお、成分(c)100質量部当りの成分(a)、成分(b)の好ましい配合量；成分(a)、成分(b)、成分(c)、成分(d)合計量中の成分(d)の好ましい含有量は、前記したとおりである。

【0067】

なお、本発明に係る成分(a)~成分(e)の混合物からなる化粧料製造用組成物全量に対する各成分の含有量は、成分(a)1~25質量%、成分(b)0.5~25質量%、成分(c)0.1~40.0質量%、成分(d)20.0~98.4質量%、成分(e)が成分(d)の含有量以下であり、かつ成分(e)の含有量が化粧料製造用組成物全量に対して40.0質量%以下となる量であり、成分(c)の含有量が成分(d)の含有量以下であることが好ましい。

【0068】

上記成分(a)~成分(c)の混合物からなる化粧料製造用組成物、および、成分(a)~成分(d)の混合物からなる化粧料製造用組成物は、上記各成分を容器に投入して攪拌機により攪拌することにより容易に製造することができる。もちろん、専用の攪拌装置、混合装置を使用して製造してもよい。

成分(a)~成分(d)の混合物からなる化粧料製造用組成物は、成分(a)~成分(c)

10

20

30

40

50

)を先に混合し、次いで成分(d)を加えて混合することにより容易に製造することができる。

成分(a)～成分(e)の混合物からなる化粧料製造用組成物は、成分(a)～成分(d)を先に混合し、次いで成分(e)を加えて混合することにより、あるいは、成分(a)～成分(c)を先に混合し、次いで成分(d)と成分(e)の混合物を加えて混合することにより容易に製造することができる。なお、投入する成分の順序、化粧料製造用組成物を製造するために用いる攪拌装置、混合装置の種類等は、本発明の化粧料製造用組成物と水を混合して得られる水中油型エマルジョン組成物の粒子径や経日安定性に大きな影響を与えるものではない。

【 0 0 6 9 】

10

本発明の成分(a)～成分(c)の混合物からなる化粧料製造用組成物、成分(a)～成分(d)の混合物からなる化粧料製造用組成物、および、成分(a)～成分(e)の混合物からなる化粧料製造用組成物は、その特性を阻害しない範囲内で、後述する(i)水溶性高分子、(j)防腐剤、(k)抗菌剤および(n)酸化防止剤のいずれか、または複数を含有してもよい。(i)水溶性高分子は、粘度増加のためや組成物の安定性向上のためであり、(j)防腐剤と(k)抗菌剤は腐敗防止のためであり、(n)酸化防止剤は非シリコーン系の油剤の酸化防止に有用である。

【 0 0 7 0 】

20

本発明に係る化粧料は、成分(a)～成分(c)の混合物からなる化粧料製造用組成物、成分(a)～成分(d)の混合物からなる化粧料製造用組成物、あるいは、成分(a)～成分(e)の混合物からなる化粧料製造用組成物を含有することを特徴とする。

特には、これら化粧料が水中油型エマルジョン化粧料であること、皮膚化粧料であることを特徴とする。

【 0 0 7 1 】

30

本発明に係る化粧料は、本発明に係る化粧料製造用組成物と通常化粧料に配合される成分とからなる。通常化粧料に配合される成分として、(f)保湿剤、(g)ガム状シリコーン、シリコーン樹脂およびシリコーンエラストマー粉末からなる群から選択される1種ないし3種のシリコーン類、(h)紫外線防御成分、(i)水溶性高分子および水膨潤性粘土鉱物、(j)防腐剤、(k)抗菌剤、(l)生理活性成分、(m)pH調整剤、(n)酸化防止剤(抗酸化剤)、(o)水、(p)溶媒、(q)キレート化剤、(r)香料、(s)色素が例示される。化粧料の種類、用途、特性、性状などに応じて1種ないし数種を適宜選択して配合すればよい。

本発明に係る化粧料中の前記化粧料製造用組成物と通常化粧料に配合される成分の含有量は、化粧料の種類、用途、特性、性状などに応じて種々さまざまであり、特に限定されない。例えば、本発明に係る化粧料製造用組成物と色素と香料とからなる化粧料の場合は、本発明に係る化粧料製造用組成物が99質量%を上回ることがあり得る。しかし、本発明に係る化粧料製造用組成物は、特殊な乳化装置を使用しなくても乳化容易であり、微細な粒径のエマルジョンを作りやすく、生成した水中油型エマルジョン化粧料は経日安定性が優れているので、化粧料としては水中油型エマルジョン化粧料が最も好ましい。その場合、本発明に係る化粧料製造用組成物は化粧料の5～50質量%が好ましい。

40

【 0 0 7 2 】

本発明に係る化粧料、特には水中油型エマルジョン化粧料中の成分(a)、成分(b)、成分(c)の好ましい含有量；成分(a)、成分(b)、成分(c)および成分(d)の好ましい含有量；あるいは、成分(a)、成分(b)、成分(c)、成分(d)および成分(e)の好ましい含有量は、各化粧料製造用組成物中の各成分の好ましい含有量に、化粧料、特には水中油型エマルジョン化粧料中の各化粧料製造用組成物の濃度を乗じた量である。

【 0 0 7 3 】

化粧料に通常配合される成分であり本発明に係る化粧料に配合することができる(f)保湿剤は、化粧品や医薬品に通常配合される保湿剤が好ましく、グルコース、キシリトール

50

、マルチトール、ヒアルロン酸、コンドロイチン硫酸、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等が挙げられる。これらの保湿剤は、化粧料の使用感を向上させる目的で、通常の化粧品に使用されるものであれば、本発明の効果が損なわれない範囲で任意に配合することができる。なお、成分(d)である1,3-ブチレングリコール、エチレングリコール、ポリエチレングリコール、プロピレングリコール、ジプロピレングリコール、ポリプロピレングリコール、グリセリン、ジグリセリン、トリメチロールプロパン、ペントエリスリトール、ソルビトル等も化粧料の保湿感の向上に寄与する場合がある。

【0074】

化粧料に通常配合される成分であり本発明に係る化粧料に配合することができる(g)シリコーン類には、ガム状シリコーン、シリコーン樹脂およびシリコーンエラストマー粉末からなる群から選択される1種ないし3種がある。10

ガム状シリコーンは、超高重合度の直鎖状ジオルガノポリシロキサンであり、シリコーン生ゴムやオルガノポリシロキサンガムとも称されている。

代表例として、一般式： $(CH_3)_3SiO\{(CH_3)_2SiO\}_a\{(CH_3)R^3SiO\}_bSi(CH_3)_3$ （式中、 R^3 はビニル基、フェニル基、炭素数が6～20のアルキル基、炭素数3～15のアミノアルキル基、炭素数3～15のパーフロロアルキル基、炭素数3～15の4級アンモニウム塩基含有アルキル基から選択され、 $a=3,000 \sim 6,000$ 、 $b=0 \sim 1,000$ 、 $a+b=3,000 \sim 6,000$ ）で示されるものがある。

【0075】

シリコーン樹脂は、高度の分岐状構造、網状構造または籠状構造を有するオルガノポリシロキサンであり、常温で液状または固形状であり、本発明の目的に反しない限り、通常化粧料に用いられるシリコーン樹脂であればいずれのものでもよい。

固形状のシリコーン樹脂には、例えば、トリオルガノシロキシ単位(M単位)（オルガノ基はメチル基のみ、メチル基とビニル基もしくはフェニル基である）、ジオルガノシロキシ単位(D単位)（オルガノ基はメチル基のみ、メチル基とビニル基もしくはフェニル基である）、モノオルガノシロキシ単位(T単位)（オルガノ基はメチル基、ビニル基、またはフェニル基である）およびシロキシ単位(Q単位)の任意の組み合わせからなるMQ樹脂、MDQ樹脂、MTQ樹脂、MDTQ樹脂、TD樹脂、TQ樹脂、TDQ樹脂がある。さらには、トリメチルシロキシケイ酸、ポリアルキルシロキシケイ酸、ジメチルシロキシ単位含有トリメチルシロキシケイ酸、アルキル(パーフロオロアルキル)シロキシケイ酸が例示される。これらのシリコーン樹脂は油溶性であることが好ましく、オクタメチルテトラシロキサン(D4)やデカメチルシクロペントシロキサン(D5)に溶解しうるもののが特に好ましい。30

【0076】

これらのガム状シリコーンやシリコーン樹脂は、単独で化粧料に配合しても構わないが、揮発性シリコーン油、不揮発性シリコーン油、揮発性炭化水素油または不揮発性炭化水素油へ溶解して配合することもできる。これらガム状シリコーンやシリコーン樹脂の配合量は、化粧料の総量の0.1～20質量%が好ましく、1～10質量%がより好ましい。皮膚への密着性のより高い化粧料を得るためにには、本発明の化粧品製造用組成物100重量部当たりシリコーン樹脂50～500重量部が好ましい。40

【0077】

シリコーンエラストマー粉末は、主として直鎖状ジオルガノポリシロキサンの架橋物であり、球状、扁平状、不定形状など種々の形状を取りうる。形状を持たずに油分散体の形態を持つものでもよい。本発明において、粒子形状を有するシリコーンエラストマーであり、電子顕微鏡を用いた観察による一次粒子径及び/またはレーザー回析/散乱法で測定された平均一次粒子径が0.1～50μmの範囲に入り、かつ一次粒子の形状が球状のシリコーンエラストマー粉末が好ましい。シリコーンエラストマー粉末を構成するシリコーンエラストマーは、JIS K 6253「加硫ゴム及び熱可塑性ゴムの硬さ試験方法」のタイプAデュロメータによる硬さが80以下が好ましく、65以下がより好ましい。50

【0078】

かかるシリコーンエラストマー粉末は、例えば、2つ以上のアルケニル基を含有するジオルガノポリシロキサンと2つ以上のケイ素原子結合水素原子を有するアルキルハイドロジエンポリシロキサンと塩化白金酸からなる組成物を、乳化状態または噴霧状態で硬化させることにより製造することができる。アルケニル基含有ジオルガノポリシロキサンとして両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサンが例示されるが、¹⁰ - アルケニルジエン、グリセリントリアリルエーテル、ポリオキシアルキニル化グリセリントリアリルエーテル、トリメチロールプロパントリアリルエーテル、ポリオキシアルキニル化トリメチロールプロパントリアリルエーテルなどのように、分子中に二つ以上のビニル基やアリル基を有する有機化合物でもよい。

【0079】

かかるシリコーンエラストマー粉末は、例えば、特開平2-243612号公報、特開平8-12545号公報、特開平8-12546号公報、特開平8-12524号公報、特開平9-241511号公報、特開平10-36219号公報、特開平11-193331号公報、特開2000-281523号公報等に記載されているものが挙げられる。市販品として東レ・ダウコーニング株式会社製トレフィルEシリーズのトレフィルE-505, E-506, E-507, E-508などがあり、「化粧品種別配合成分規格」収載の架橋型シリコーン末が該当する。これらのシリコーンエラストマー粉末は表面処理がされていてもよく、表面処理剤の例としては、メチルハイドロジエンポリシロキサン、シリコーンレジン、金属石鹼、シランカップリング剤、シリカ、酸化チタンなどの無機酸化物、パーフルオロアルキルシラン、パーフルオロアルキルリン酸エステル塩などのフッ素化合物が挙げられる。²⁰

【0080】

シリコーンエラストマー粉末は、油剤との混練物であるペースト状物や、水系分散体の形で化粧料に配合することが好ましい。より詳しくは、シリコーンエラストマー粉末と、エステル油、炭化水素油、高級アルコール、植物油および動物油からなる群から選ばれる常温で液体の油性成分とを混練して作られたペースト状物；シリコーンエラストマー粉末を機械力で乳化剤含有水中に分散したものが挙げられる。

【0081】

シリコーンエラストマー球状粉末は粒子径が10 μmを超えるものが多く、水性組成物に安定に配合することが難しかったが、本発明の化粧品製造用組成物に含有させることにより安定なエマルジョンを形成することができる。本発明の皮膚化粧料におけるオルガノポリシロキサンエラストマー球状粉体の配合量は、化粧料の全質量の0.1~30質量%が好ましい。前記下限未満では、滑水性が弱くなるという問題があり、前記上限を超えるべたつきが強くなるため好ましくない。³⁰

【0082】

本発明に係る化粧料には、化粧料に通常配合される成分ではないが、シリコーン変性有機重合体を配合してもよい。ポリジメチルシロキサングラフト型アクリル系共重合体、特開2000-063225に開示されているカルボキシシロキサンデンドリマーグラフト型アクリル系共重合体、および特開2003-226611に開示されているカルボキシシロキサンデンドリマー構造およびフッ化有機基を有するアクリル系共重合体が例示される。

【0083】

化粧料に通常配合される成分であり本発明に係る化粧料に配合することができる(h)紫外線防御成分には、無機系の紫外線防御成分と有機系の紫外線防御成分がある。

無機系の紫外線防御成分は、前記の無機系の粉体顔料、金属粉末顔料などを紫外線分散剤として配合するものであっても良く、酸化チタン、酸化亜鉛、酸化セリウム、低次酸化チタン、鉄ドーピング酸化チタンなどの金属酸化物、水酸化鉄などの金属水酸化物、板状酸化鉄、アルミニウムフレークなどの金属フレーク類、炭化珪素などのセラミック類が挙げられる。このうち、平均粒子径が1~100 nmの範囲にある微粒子金属酸化物もしくは

10

20

30

40

50

微粒子金属水酸化物から選ばれる少なくとも一種であることが特に好ましい。これらの粉末は、従来公知の表面処理、例えばフッ素化合物処理（パーフルオロアルキルリン酸エステル処理やパーフルオロアルキルシラン処理、パーフルオロポリエーテル処理、フルオロシリコーン処理、フッ素化シリコーン樹脂処理が好ましい）、シリコーン処理（メチルハイドロジエンポリシロキサン処理、ジメチルポリシロキサン処理、気相法テトラメチルテトラハイドロジエンシクロテトラシロキサン処理が好ましい）、シリコーン樹脂処理（トリメチルシロキシケイ酸処理が好ましい）、ペンドント処理（気相法シリコーン処理後にアルキル鎖などを付加する方法）、シランカップリング剤処理、チタンカップリング剤処理、シラン処理（アルキルシランやアルキルシラザン処理が好ましい）、油剤処理、N-アシル化リジン処理、ポリアクリル酸処理、金属石鹼処理（ステアリン酸やミリスチン酸塩が好ましい）、アクリル樹脂処理、金属酸化物処理などがされていることが好ましく、これらの処理の複数で処理されていることが好ましい。例えば、微粒子酸化チタン表面を酸化ケイ素やアルミナなどの金属酸化物で被覆した後、アルキルシランで表面処理することなどが挙げられる。表面処理量は、粉体に対して総計で0.1～50質量%の範囲にあることが好ましい。
10

【0084】

有機系の紫外線防御成分は、サリチル酸ホモメンチル、サリチル酸オクチル、サリチル酸トリエタノールアミン等のサリチル酸系；パラアミノ安息香酸、エチルジヒドロキシプロピルパラアミノ安息香酸、グリセリルパラアミノ安息香酸、オクチルジメチルパラアミノ安息香酸、パラジメチルアミノ安息香酸アミル、パラジメチルアミノ安息香酸2-エチルヘキシル等のPABA系；4-(2--グルコピラノシロキシ)プロポキシ-2-ヒドロキシベンゾフェノン、ジヒドロキシジメトキシベンゾフェノン、ジヒドロキシジメトキシベンゾフェノンジスルホン酸ナトリウム、2-ヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノン、ヒドロキシメトキシベンゾフェノンスルホン酸及びその三水塩、ヒドロキシメトキシベンゾフェノンスルホン酸ナトリウム、2-ヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノン-5-硫酸、2,2'-ジヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノン、2,4-ジヒドロキシベンゾフェノン、2,2',4,4'-テトラヒドロキシベンゾフェノン、2,2'-ジヒドロキシ-4,4'-ジメトキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-N-オクトキシベンゾフェノン等のベンゾフェノン系；パラメトキシケイ皮酸2-エチルヘキシル（別名；パラメトキシケイ皮酸オクチル）、ジパラメトキシケイ皮酸モノ-2-エチルヘキサン酸グリセリル、2,5-ジイソプロピルケイ皮酸メチル、2,4,6-トリス[4-(2-エチルヘキシルオキシカルボニル)アニリノ]-1,3,5-トリアジン、トリメトキシケイ皮酸メチルビス(トリメチルシロキシ)シリルイソペンチル、パラメトキシケイ皮酸イソプロピル・ジイソプロピルケイ皮酸エステル混合物、p-メトキシハイドロケイ皮酸ジエタノールアミン塩等のケイ皮酸系；2-フェニル-ベンズイミダゾール-5-硫酸、4-イソプロピルジベンゾイルメタン、4-tert-ブチル-4'-メトキシジベンゾイルメタン等のベンゾイルメタン系；2-シアノ-3,3-ジフェニルプロパ-2-エン酸2-エチルヘキシルエステル(別名；オクトクリレン)、ジメトキシベンジリデンジオキソイミダゾリジンプロピオン酸2-エチルヘキシル、1-(3,4-ジメトキシフェニル)-4,4-ジメチル-1,3-ペンタンジオン、シノキサート、メチル-O-アミノベンゾエート、2-エチルヘキシル-2-シアノ-3,3-ジフェニルアクリレート、3-(4-メチルベンジリデン)カンフル、オクチルトリアゾン、4-(3,4-ジメトキシフェニルメチレン)-2,5-ジオキソ-1-イミダゾリジンプロピオン酸2-エチルヘキシル、これらの高分子誘導体、及びシラン誘導体が例示される。
20
30
40

【0085】

前記の有機系紫外線防御成分をポリマー粉末中に含有するものを用いることも可能である。ポリマー粉末は中空であっても良く、平均一次粒子径は0.1～50μmの範囲にあれば良く、粒度分布はブロードであってもシャープであっても構わない。ポリマーの種類としてはアクリル樹脂、メタクリル樹脂、スチレン樹脂、ポリウレタン樹脂、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリエチレンテレフタレート、シリコーン樹脂、ナイロン、
50

アクリルアミド樹脂が例示される。有機系紫外線防御成分を0.1～30質量%の範囲で含有するポリマー粉末が好ましく、特にUV-A吸収剤である4-tert-ブチル-4'-メトキシジベンゾイルメタンを含有するポリマー粉末が好ましい。

【0086】

前記の紫外線防御成分のうち、微粒子酸化チタン、微粒子酸化亜鉛、パラメトキシケイ皮酸2-エチルヘキシル、4-tert-ブチル-4'-メトキシジベンゾイルメタン、ベンゾフェノン系紫外線吸収剤からなる群より選ばれる少なくとも1種が、汎用されており、入手が容易で、かつ紫外線防御効果が高いため好適に使用することができる。特に、無機系と有機系の紫外線防御成分を併用することが好ましく、UV-Aに対応した紫外線防御成分とUV-Bに対応した紫外線防御成分を併用することがさらに好ましい。

10

【0087】

本発明の化粧料における紫外線防御成分の配合量は、無機系及び/又は有機系の合計で、化粧料の0.1～60質量%の範囲にあることが好ましく、3～40質量%がより好ましい。さらに、無機系の紫外線防御成分の配合量は化粧料の0.1～30質量%の範囲が好ましく、有機系紫外線吸収剤は、化粧料の0.1～20質量%の範囲が好ましい。

【0088】

化粧料に通常配合される成分であり本発明に係る化粧料に配合することができる(i)水溶性高分子および水膨潤性粘土鉱物は、含水化粧料や水中油型エマルジョン化粧料の粘度を向上させて経日安定性を向上するためや、使用感を向上させるために配合されるものである。

20

水溶性高分子および水膨潤性粘土鉱物は、水に溶解または分散させて均一な水溶液または分散液にしてから、化粧品原料組成物や他の化粧料成分と混合することが好ましい。

水溶性高分子として、両性、カチオン性、アニオン性または非イオン性の水溶性高分子が例示される。水溶性高分子と水膨潤性粘土鉱物を併用してもよく、2種類以上の水溶性高分子を併用してもよい。

【0089】

両性水溶性高分子としては、両性化デンプン、塩化ジメチルジアリルアンモニウム誘導体(例えば、アクリルアミド・アクリル酸・塩化ジメチルジアリルアンモニウム共重合体、アクリル酸・塩化ジメチルジアリルアンモニウム共重合体)、メタクリル酸誘導体(例えば、ポリメタクリロイルエチルジメチルベタイン、N-メタクリロイルオキシエチルN,N-ジメチルアンモニウム- -メチルカルボキシベタイン・メタクリル酸アルキル共重合体等)が例示される。

30

【0090】

カチオン性水溶性高分子として、第4級窒素変性ポリサッカライド(例えば、カチオン変性セルロース、カチオン変性ヒドロキシエチルセルロース、カチオン変性グーガム、カチオン変性ローカストビーンガム、カチオン変性デンプン等)、塩化ジメチルジアリルアンモニウム誘導体(例えば、塩化ジメチルジアリルアンモニウム・アクリルアミド共重合体、ポリ塩化ジメチルメチレンピペリジニウム等)、ビニルピロリドン誘導体(例えば、ビニルピロリドン・ジメチルアミノエチルメタクリル酸共重合体塩、ビニルピロリドン・メタクリルアミドプロビルトリメチルアンモニウムクロライド共重合体、ビニルピロリドン・塩化メチルビニルイミダゾリウム共重合体等)、メタクリル酸誘導体(例えば、メタクリロイルエチルジメチルベタイン・塩化メタクリロイルエチルトリメチルアンモニウム・メタクリル酸2-ヒドロキシエチル共重合体、メタクリロイルエチルジメチルベタイン・塩化メタクリロイルエチルトリメチルアンモニウム・メタクリル酸メトキシポリエチレングリコール共重合体等)が例示される。

40

【0091】

アニオン性水溶性高分子として、ポリアクリル酸またはそのアルカリ金属塩、ポリメタアクリル酸またはそのアルカリ金属塩、ヒアルロン酸またはそのアルカリ金属塩、アセチル化ヒアルロン酸またはそのアルカリ金属塩、メチルビニルエーテル・無水マレイン酸共重合体の加水分解物などの脂肪族カルボン酸またはその金属塩の水溶性重合体、カルボキシ

50

メチルセルロース又はそのアルカリ金属塩、メチルビニルエーテル-マレイン酸ハーフエステル共重合体、アクリル樹脂アルカノールアミン液、カルボキシビニルポリマーが例示される。

【0092】

非イオン性水溶性高分子として、ポリビニルピロリドン、高重合ポリエチレングリコール、ビニルピロリドン／酢酸ビニル共重合体、ビニルピロリドン／ジメチルアミノエチルメタクリレート共重合体、ビニルカプロラクタム／ビニルピロリドン／ジメチルアミノエチルメタクリレート共重合体、セルロース又はその誘導体（例えば、メチルセルロース、エチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、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）、ケラチン及びコラーゲン又はその誘導体、アルギン酸カルシウム、フルラン、寒天、ゼラチン、タマリンド種子多糖類、キサンタンガム、カラギーナン、ハイメトキシルペクチン、ローメトキシルペクチン、グーガム、ペクチン、アラビアゴム、結晶セルロース、アラビノガラクタン、カラヤガム、トラガカントガム、アルギン酸、アルブミン、カゼイン、カードラン、ジュランガム、デキストラン、クインスシードガム、トラガントガム、キチン・キトサン誘導体、デンプン（コメ、トウモロコシ、バレイショ、コムギ等）、ケラチンおよびコラーゲンまたはその誘導体等の天然の高分子化合物が例示される。

【0093】

水膨潤性粘土鉱物は、三層構造を有するコロイド含有ケイ酸アルミニウムの一種であり、下記式で表されるものが例示される。



（ただし、Xは、Al、Fe（III）、Mn（III）、または、Cr（III）であり、Yは、Mg、Fe（II）、Ni、Zn、または、Liであり、Zは、K、Na、または、Caである）

このような水膨潤性粘土鉱物として、具体的には、ベントナイト、モンモリロナイト、パイデライト、ノントロナイト、サポナイト、ヘクトライト、ケイ酸アルミニウムマグネシウムが例示され、これらは天然物および合成物のいずれであってもよい。

【0094】

本発明に係る化粧料における成分（i）の配合量は、化粧料の0.001～5質量%の範囲にあることが好ましく、0.01～3質量%がより好ましい。0.001質量%未満の配合量の場合には十分な増粘効果が望めず、5質量%を超えて配合すると化粧料の粘度が高くなりすぎ、使用感が劣ることになりかねない。

【0095】

化粧料に通常配合される成分であり本発明に係る化粧料に配合することができる（j）防腐剤として、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、フェノキシエタノールが例示される。化粧料に通常配合される成分であり本発明に係る化粧料に配合することができる（k）抗菌剤として、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、パラクロルメタクレゾール、ヘキサクロロフェン、塩化ベンザルコニウム、塩化クロルヘキシジン、トリクロロカルバニド、トリクロサン、感光素、フェノキシエタノール、メチルイソチアゾリノンが例示される。これらは、化粧料の腐敗を防止するのに十分な配合量であればよい。

【0096】

化粧料に通常配合される成分であり本発明に係る化粧料に配合することができる（l）生理活性成分は、皮膚に塗布した場合に皮膚に何らかの生理活性を与える物質である。例えば、抗炎症剤、老化防止剤、ひきしめ剤、発毛剤、育毛剤、保湿剤、血行促進剤、乾燥剤、冷感剤、温感剤、ビタミン類、アミノ酸、創傷治癒促進剤、刺激緩和剤、鎮痛剤、細胞賦活剤、酵素成分等が挙げられる。その中でも、天然系の植物抽出成分、海藻抽出成分、生薬成分が特に好ましい。本発明に係る化粧料には、これらの生理活性成分を1種、または2種以上配合することが好ましい。

10

20

30

40

50

【0097】

これらの成分として、例えばアシタバエキス、アボガドエキス、アマチャエキス、アルテアエキス、アルニカエキス、アロエエキス、アンズエキス、アンズ核エキス、イチョウエキス、ウイキョウエキス、ウコンエキス、ウーロン茶エキス、エイジツエキス、エチナシ葉エキス、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、オトギリソウエキス、オドリコソウエキス、オランダカラシエキス、オレンジエキス、海水乾燥物、海藻エキス、加水分解エラスチン、加水分解コムギ末、加水分解シルク、カモミラエキス、カラットエキス、カワラヨモギエキス、甘草エキス、カルカデエキス、カキヨクエキス、キウイエキス、キナエキス、キューカンバーエキス、グアノシン、クチナシエキス、クマザサエキス、クララエキス、クルミエキス、グレープフルーツエキス、クレマティスエキス、クロレラエキス、クワエキス、ゲンチアナエキス、紅茶エキス、酵母エキス、ゴボウエキス、コメヌカ発酵エキス、コメ胚芽油、コンフリーエキス、コラーゲン、コケモモエキス、サイシンエキス、サイコエキス、サイタイ抽出液、ザクロエキス、サルビアエキス、サボンソウエキス、ササエキス、サンザシエキス、サンショウエキス、シイタケエキス、ジオウエキス、シコンエキス、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、シラカバエキス、スギナエキス、セイヨウキズタエキス、セイヨウサンザシエキス、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、タイソウエキス、タイムエキス、茶エキス、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、トウキンセンカエキス、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、ニンジンエキス、ニンニクエキス、ノバラエキス、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、ヒキオコシエキス、ビサボロール、ビワエキス、フキタンポポエキス、フキノトウエキス、ブクリョウエキス、ブッチャーブルームエキス、ブドウエキス、プロポリス、ヘチマエキス、ベニバナエキス、ペパーミントエキス、ボダイジュエキス、ボタンエキス、ホップエキス、マツエキス、マロニエエキス、ミズバショウエキス、ムクロジエキス、メリッサエキス、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、ユズエキス、ヨクイニンエキス、ヨモギエキス、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、レンゲソウエキス、ローズエキス、ローズマリーエキス、ローマカミツレエキス、ローヤルゼリーエキス等を挙げることができる。

【0098】

また、デオキシリボ核酸、ムコ多糖類、ヒアルロン酸ナトリウム、コンドロイチン硫酸ナトリウム、コラーゲン、エラスチン、キチン、キトサン、加水分解卵殻膜などの生体高分子；グリシン、ヴァリン、ロイシン、イソロイシン、セリン、トレオニン、フェニルアラニン、アルギニン、リジン、アスパラギン酸、グルタミン酸、シスチン、システイン、メチオニン、トリプトファン等のアミノ酸；エストラジオール、エテニルエストラジオールなどのホルモン；スフィンゴ脂質、セラミド、コレステロール、コレステロール誘導体、リン脂質などの油性成分； α -アミノカプロン酸、グリチルリチン酸、 β -グリチルレチン酸、塩化リゾチーム、グアイアズレン、ヒドロコルチゾン、アラントイン、トラネキサム酸、アズレン等の抗炎症剤；ビタミンA、B2、B6、C、D、E、パントテン酸カルシウム、ビオチン、ニコチン酸アミド、ビタミンCエステル等のビタミン類；アラントイン、ジイソプロピルアミンジクロロアセテート、4-アミノメチルシクロヘキサンカルボン酸等の活性成分； α -ヒドロキシ酸、 β -ヒドロキシ酸などの細胞賦活剤； γ -オリザノール、ビタミンE誘導体などの血行促進剤；レチノール、レチノール誘導体等の創傷治癒剤；セファランチン、カンゾウ抽出物、トウガラシチンキ、ヒノキチオール、ヨウ化ニンニクエキス、塩酸ピリドキシン、d1- β -トコフェロール、酢酸d1- β -トコフェロール、ニコチン酸、ニコチン酸誘導体、パントテン酸カルシウム、D-パントテニルアルコール、アセチルパントテニルエチルエーテル、ビオチン、アラントイン、イソプロピルメチルフェノール、エストラジオール、エチニルエステラジオール、塩化カプロニウム

10

20

30

40

50

、塩化ベンザルコニウム、塩酸ジフェンヒドラミン、タカナール、カンフル、サリチル酸、ノニル酸バニリルアミド、ノナン酸バニリルアミド、ピロクトンオラミン、ペントデカン酸グリセリル、1-メントール、カンフルなどの清涼剤；モノニトログアヤコール、レゾルシン、-アミノ酪酸、塩化ベンゼトニウム、塩酸メキシレチン、オーキシン、女性ホルモン、カンタリスチンキ、シクロスボリン、ジンクピリチオン、ヒドロコルチゾン、ミノキシジル、モノステアリン酸ポリオキシエチレンソルビタン、ハッカ油、ササニシキエキス等の育毛剤等が例示される。これらは、化粧料に生理活性を付与するのに十分な配合量であればよい。

【0099】

化粧料に通常配合される成分であり本発明に係る化粧料に配合することができる（m）pH調整剤として、乳酸、クエン酸、グリコール酸、コハク酸、酒石酸、d l - リンゴ酸、炭酸カリウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸水素アンモニウム等が例示される。

10

【0100】

化粧料に通常配合される成分であり本発明に係る化粧料に配合することができる（o）水は、前述したとおりである。

化粧料に通常配合される成分であり本発明に係る化粧料に配合することができる（p）溶媒は、成分（d）として例示した化合物以外にエーテル類があり、プロペラントとしてLPG、N - メチルピロリドン、次世代フロンが例示される。

【0101】

化粧料に通常配合される成分であり本発明に係る化粧料に配合することができる（n）酸化防止剤（抗酸化剤）として、トコフェロール、ブチルヒドロキシアニソール、ジブチルヒドロキシトルエン、フィチン酸、カロチノイド、フラボノイド、タンニン、リグナン、サポニンが例示される。これらは、化粧料の酸化劣化を防止するのに十分な配合量であればよい。

20

【0102】

化粧料に通常配合される成分であり本発明に係る化粧料に配合することができる（q）キレート化剤は、水中の鉱物イオンを不溶化する作用があり、EDTA、アラニン、エデト酸ナトリウム塩、ポリリン酸ナトリウム、メタリン酸ナトリウム、リン酸が例示される。

化粧料に通常配合される成分であり本発明に係る化粧料に配合することができる（r）香料は、化粧料に香気、香りを付与するため、あるいは不快臭をマスクするために配合される。化粧料に一般的に配合される香料であれば特に限定されるものではなく、前記の生理活性成分等に例示した各種抽出物を含め、種々の植物の花、種子、葉、根等から抽出した香料、海藻類から抽出した香料、動物の各部位または分泌物から抽出した香料（例、じゃこう、マッコウ）、人工的に合成した香料（例、メントール、ムスク、酢酸エステル、バニラ）が例示される。

30

化粧料に通常配合される成分であり本発明に係る化粧料に配合することができる（s）色素として、染料、顔料、蛍光増白剤があり、染料には水溶性染料、油溶性染料、天然系染料、合成染料などがあり、顔料には体质顔料、無機顔料、有機顔料などがある。

【0103】

本発明に係る化粧料は、前記の成分（a）～成分（c）の混合物からなる化粧料製造用組成物、成分（a）～成分（d）の混合物からなる化粧料製造用組成物または成分（a）～成分（e）の混合物からなる化粧料製造用組成物を含有することにより特性が向上すれば、その種類は特に限定されず、皮膚洗浄剤、スキンケア化粧料、マイクアッピ化粧料、制汗剤、紫外線防御剤などの皮膚用化粧料；毛髪洗浄剤、整髪料、毛髪着色料、養毛料、ヘアリングなどの頭髪用化粧料；浴用化粧品；香水、オーデコロンが例示される。皮膚用化粧料または頭髪用化粧料であることが好ましく、皮膚用化粧料であることが特に好ましい。

40

【0104】

前記の皮膚用化粧料は、頭皮、顔面（口唇、眉目、頬を含む）、手指、爪、全身のいずれの部位用でもよい。具体的には、クレンジングジェル、クレンジングクリーム、クレンジ

50

ングフォーム、クレンジングミルク、クレンジングローション、洗顔クリーム、アイメークアップリムーバー、洗顔フォーム、液体全身用石鹼、ハンドソープ、ゲル状石鹼、固体石鹼、フェイシャルリンス、ボディリンス、シェービングクリーム、除光液、アクネ対策化粧料等の皮膚洗浄剤；肌用クリーム、頭皮用トリートメント、スキンミルク、ミルクローション、乳液、化粧水、保湿液、美容液、フェイシャルパック、ボディパウダー、エッセンス、シェービングローション等のスキンケア化粧料；ファンデーション、メークアップベース、白粉、フェースパウダー、リップスティック、リップクリーム、練紅、リップグロス、アイシャドウ、アイライナー、アイクリーム、眉墨、まつげ化粧品、アイブロー、マスカラ、頬紅、頬化粧料（チークカラー、チークルージュ）、マニキュア、ペディキュア、ネイルカラー、ネイルラッカー、エナメルリムーバー、ネイルポリッシュ等のメイクアップ化粧料；デオドラント等の制汗剤；サンスクリーン剤、日焼け用薬剤（サンタン剤）等の紫外線防御剤が例示される。

【0105】

前記の頭髪用化粧料は、シャンプー、リンスインシャンプー等の毛髪用洗浄剤；ヘアオイル、髪用カール保持剤、セット剤、ヘアクリーム、ヘアスプレー、ヘアリキッド、ヘアワックス等の整髪料；染毛料、ヘアカラースプレー、ヘアカラーリンス、ヘアカラースティック等の毛髪用着色料；ヘアトニック、ヘアトリートメント、ヘアパック等の養毛料；オイルリンス、クリームリンス、トリートメントリンス等のヘアリンスが例示される。また、前記の浴用化粧品は、バスオイル、バスソルト、フォームバスが例示される。

【0106】

本発明に係る化粧料の形態、性状は、特に限定されるものではないが、本発明に係る化粧料製造用組成物が前記の成分（a）～成分（c）からなるものであり、該化粧料製造用組成物を水と混合することにより製造される含水化粧料である場合には、水中油型エマルジョン化粧料、特にレーザー回折・散乱法を用いて測定した平均粒子径が10.0 μm未満の水中油型エマルジョン化粧料であることが好ましい。さらに、本発明に係る化粧料製造用組成物が前記の成分（a）～成分（d）からなるもの、成分（a）～成分（e）からなるものであり、該化粧料製造用組成物を水と混合することにより製造される含水化粧料である場合には、レーザー回折・散乱法を用いて測定した平均粒子径が0.5 μm(500 nm)未満、特には0.2 μm(200 nm)未満の水中油型エマルジョン化粧料であることが特に好ましい。

【0107】

前記成分（a）～成分（c）の混合物からなる化粧料製造用組成物は、前記の各成分が互いにかなり相溶しており、成分（a）～成分（d）の混合物からなる化粧料製造用組成物および成分（a）～成分（e）の混合物からなる化粧料製造用組成物は、前記の各成分が互いによく相溶しており、水や水溶液に容易に乳化するため、パドル翼付攪拌機、プロペラ攪拌器、ヘンシェル型攪拌機、TKホモミクサー（特殊機化工業（株）），TKホモディスパー（特殊機化工業（株））等の公知の攪拌装置、混合装置あるいは乳化装置を用いて、所望の量の水と混合することにより安定な水中油型エマルジョンを得ることができる。高圧乳化装置やコロイドミル、コロイドミキサーのような高せん断力による乳化装置は必ずしも必要ではなく、簡便な攪拌装置、混合装置あるいは乳化装置を用いて、小粒径ないし微細な粒径の安定な水中油型エマルジョンを得ることができる。

ここで、高圧乳化装置とは、装置内で一次エマルジョンを加圧することにより、高速の液流とし、この液流を分岐させ、分岐した液流同士を衝突させたり、調節された微小間隙を通じてインパクトリングや回転体に衝突させたりすることにより発生する衝突力、剪断力、キャビテーション、乱流、超音波などにより一次エマルジョン中に含まれる油剤のエマルジョン粒子を粉碎し、均一かつ微細なエマルジョン粒子を形成させることを目的とした装置である。具体的には、超高压ガウリン型ホモジナイザー（ゴーリン社），高圧ホモゲナイザー（（株）イズミフードマシナリー），高圧ホモジナイザー（Rannie製），マイクロフルイダイザ（Microfluidics製），ナノマイザ（ナノマイザー（株））が例示される。

10

20

30

40

50

【0108】

本発明に係る化粧料製造用組成物を用いて化粧料、特には水中油型エマルジョン化粧料を製造するには、まず、成分(a)～成分(c)、成分(a)～成分(d)、または成分(a)～成分(e)を任意の攪拌機や混合機で均一に混合して化粧料製造用組成物を調製しておく。室温で水または任意成分を含有する水を任意の攪拌機や混合機を用いて500～5000rpm程度の回転速度で攪拌しつつ、前記化粧料製造用組成物を徐々に注入し、注入終了後さらに攪拌、混合するとよい。化粧料製造用組成物と混合する水の質量比は任意であるが、0.05/0.95～0.50/0.50であることが、得られる水中油型エマルジョン化粧料の経日安定性の点から有利である。

【0109】

本発明に係る化粧料製造用組成物を用いて、化粧料、特には平均粒子径が0.5μm未満の水中油型エマルジョン化粧料を製造する場合、前記の成分(a)～成分(c)、成分(a)～成分(d)、または成分(a)～成分(e)を任意の攪拌・混合機で混合して化粧料製造用組成物を調製し、室温で水相を任意の攪拌・混合機を用いて100～5,000rpm程度の回転速度で攪拌しておき、本発明に係る化粧料製造用組成物を徐注入することにより、容易に水中油型エマルジョン化粧料を調製することができる。かかる方法で調製される化粧料、特には平均粒子径が0.5μm未満の水中油型エマルジョン化粧料は半透明から白濁の外観を呈し、経日安定性にも優れるという利点を有する。該化粧料製造用組成物と混合する水の質量比は任意であるが、0.01/0.99～0.50/0.50であることが、得られる水中油型エマルジョン化粧料の経日安定性の点から有利である。
なお、製造スケールが少ない場合には、例えば化粧水や美容液のような水中油型エマルジョン化粧料を得るために、容器に水を注ぎ、へら等を用いて人力で攪拌・混合操作をしながら、該化粧料製造用組成物を徐注入することにより、所望の水中油型エマルジョン化粧料を得ることができる。これらの化粧料は、通常、安定な該水中油型エマルジョン化粧料を製造する場合に必須となる乳化の諸条件を詳細に検討することがほぼ不要でありながら、その経日安定性および使用感に優れるものである。

【0110】

本発明に係る化粧料および本発明に係る化粧料製造用組成物を用いて製造された含水化粧料は、その経日安定性および外観の均一性、使用感に優れるという利点がある。

本発明に係る含水化粧料は、本発明に係る化粧料製造用組成物と水(ただし、乳化しない程度の量の水)を混合することにより容易に製造することができる。そのための攪拌装置、混合装置として、パドル翼付攪拌機、プロペラ攪拌器、ヘンシェル型攪拌機、TKホモミクサー(特殊機化工業(株))、TKホモディスパー(特殊機化工業(株))が例示される。

【0111】

本発明に係る化粧料を収納する容器は、特に限定されるものではなく、ジャー、ポンプ、チューブ、ボトル、圧力缶吐出容器、耐圧エアゾール容器、遮光容器、コンパクト容器、金皿、スティック容器、繰り出し容器、噴霧容器、混合液吐出口を備えた仕切り付き容器が例示される。水中油型エマルジョン化粧料である場合は、ジャー、ポンプ、ボトル、噴霧容器が例示される。

特に、成分(c)が疎水性シリコーンオイルであるか、疎水性シリコーンオイルを含む場合、疎水性シリコーンオイルからなる油相の分離が起きやすい傾向にあるため、透明な容器に充填すると、分離が目立ち、外観に劣る製品になりやすいという問題がある。ところが、本発明に係る化粧料製造用組成物を用いて製造された水中油型エマルジョン化粧料、含水化粧料はその経日安定性に優れるため、かかる透明容器に充填されても安定に保管することができ、外観に優れた製品として店頭販売することが可能であるという利点がある。

【実施例】

【0112】

以下、実施例と比較例によって本発明を詳細に説明するが、本発明はこれらにより限定さ

10

20

30

40

50

れるものではない。合成例で使用したジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体およびジメチルポリシロキサンは平衡化重合方法により製造したものである。合成例、実施例および比較例で用いた試験方法は次のとおりである。

【0113】

[ポリオキシアルキレン変性ジメチルポリシロキサン溶液の粘度]

合成例1～合成例7により得られたポリオキシアルキレン変性ジメチルポリシロキサンのジプロピレングリコールによる50質量%希釈溶液の粘度は、回転粘度計（ローターNo.3）を用い、温度25℃で測定した。

【0114】

[化粧料製造用組成物の外観]

化粧料製造用組成物の外観を肉眼観察した。その際の評価基準は以下のとおりである。

【表1】

◎	完全に透明
○	透明であるが、僅かに濁っている
△	やや不均一であり、やや濁っている

10

【0115】

[水中油型エマルジョン化粧料の経日安定性試験]

水中油型エマルジョン化粧料を、室温および40℃の恒温槽中に静置し、調製直後および1ヶ月後の水中油型エマルジョン化粧料の外観を肉眼で観察した。その際の評価基準は以下のとおりである。

【表2】

◎	油相の分離は全く認められない。
○	油相の分離が僅かに認められる。
△	油相の分離が認められる。
×	乳化物を得ることができない。

20

30

【0116】

[水中油型エマルジョン化粧料のエマルジョン粒子の平均粒子径]

水中油型エマルジョン化粧料のエマルジョン粒子の平均粒子径を、レーザー散乱式サブミクロン粒子分析装置（コールターエレクトロニクス社製のCOULTER（R）N4型）により求めた。また、レーザー散乱式サブミクロン粒子分析装置でエマルジョン粒子の平均粒子径が1.0μmを超える大粒子径の水中油型エマルジョン化粧料のエマルジョン粒子の平均粒子径は、レーザー回折式粒度分布測定器（堀場製作所製のLA-500）により測定したメジアン径から平均粒子径を求めた。なお、均一な水中油型エマルジョンが調製できず、水中油型エマルジョン全体が濁った状態で粒子径自体が測定できない場合、「濁り」と評価した。

【0117】

[化粧品の使用感]

化粧料のなめらかさ、べたつき、嗜好等について、女性パネラー20名による官能試験を行った。

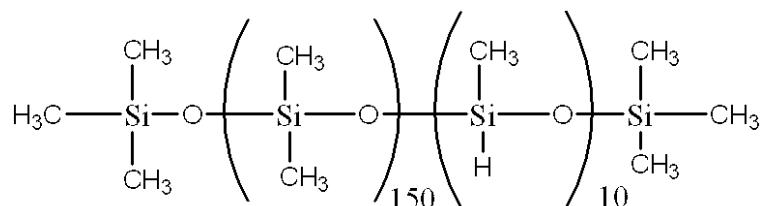
【0118】

[合成例1]

攪拌装置と温度計付きガラスフラスコ内で、平均構造式(7)：

40

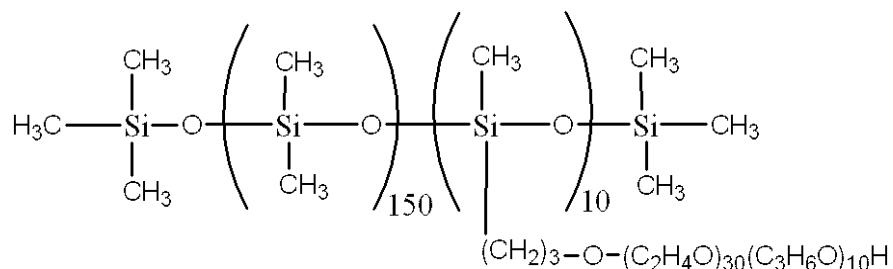
【化14】



で表されるジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体 15 . 9 重量部と平均構造式 (8) : $\text{CH}_2 = \text{CHCH}_2\text{O}(\text{C}_2\text{H}_4\text{O})_{30}(\text{C}_3\text{H}_6\text{O})_{10}\text{H}$

で表される片末端アリルエーテル化ポリオキシアルキレン(オキシエチレンとオキシプロピレンのランダムコポリマー) 34 . 1 重量部(上記共重合体中のケイ素原子結合水素原子と上記アリルエーテル化ポリオキシアルキレン中のアリル基のモル比は 1 : 1 . 3)とを混合し、溶媒としてイソプロピルアルコール 15 重量部を加えた。更に塩化白金酸(反応原料の合計重量に対して 15 ppm になる量)を加えて 86 で 2 時間攪拌した後、赤外分光分析(IR)にてケイ素原子結合水素原子を示すピークが消失していることを確認した。その後、ジプロピレングリコール 50 重量部を加えて 30 分間攪拌した後、減圧下でストリッピングすることにより、平均構造式 (9) :

【化15】



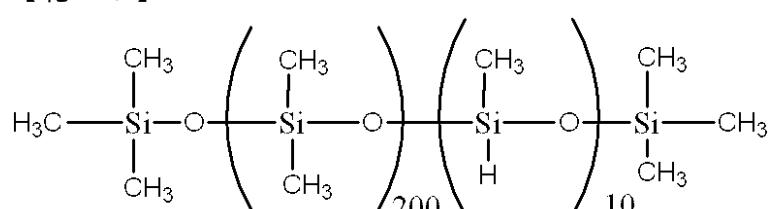
で表されるポリオキシアルキレン変性ジメチルポリシロキサンの 50 重量 % 溶液(粘度 4780 mPa · s。以下、シリコーン溶液 No. 1 と言う)を得た。

【0119】

[合成例2]

攪拌装置と温度計付きガラスフラスコ内で、平均構造式 (10) :

【化16】



で表されるジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体 19 重量部と合成例 1 で使用した片末端アリルエーテル化ポリオキシアルキレン 31 重量部(上記共重合体中のケイ素原子結合水素原子と上記アリルエーテル化ポリオキシアルキレン中のアリル基のモル比は 1 : 1 . 3)とを混合し、溶媒としてイソプロピルアルコール 15 重量部を加えた。更に塩化白金酸(反応原料の合計重量に対して 15 ppm になる量)を加えて 86 で 2 時間攪拌した後、赤外分光分析(IR)にてケイ素原子結合水素原子を示すピークが消失していることを確認した。その後、ジプロピレングリコール 50 重量部を加えて 30 分間攪拌した後、減圧下でストリッピングすることにより、平均構造式 (11) :

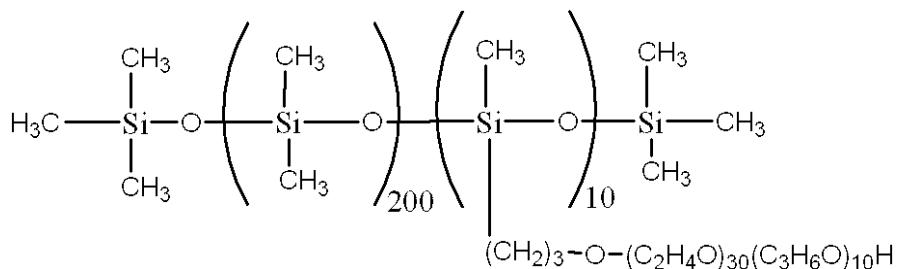
10

20

30

40

【化17】



で表されるポリオキシアルキレン変性ジメチルポリシロキサンの50重量%溶液（粘度24,000 mPa·s。以下、シリコーン溶液No.2と言う）を得た。

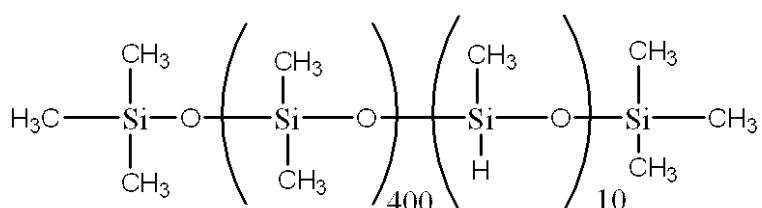
10

【0120】

[合成例3]

攪拌装置と温度計付きガラスフラスコ内で、平均構造式（12）：

【化18】



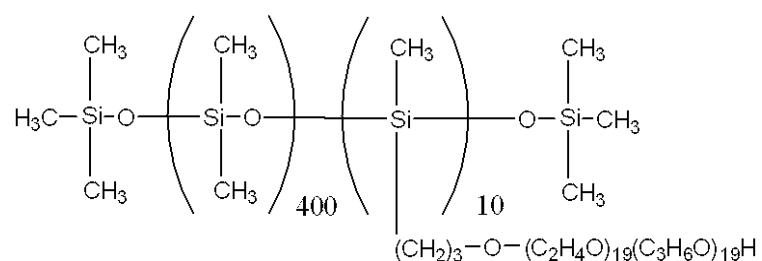
20

で表されるジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体27.2重量部と一般式（13）： $C H_{\underline{2}} = C H C H_2 O (C_2H_4O)_{19}(C_3H_6O)_{19}H$

で表される片末端アリルエーテル化ポリオキシアルキレン（オキシエチレンとオキシプロピレンのランダムコポリマー）22.8重量部（上記共重合体中のケイ素原子結合水素原子と上記アリルエーテル化ポリオキシアルキレン中のアリル基のモル比は1:1.3）とを混合し、溶媒としてイソプロピルアルコール15重量部を加えた。更に塩化白金酸（反応原料の合計重量に対して15 ppmになる量）を加えて反応温度86で2時間攪拌した後、赤外分光分析（IR）にてケイ素原子結合水素原子を示すピークが消失していることを確認した。その後、ジプロピレン glycole 50重量部を加えて30分間攪拌した後、減圧下でストリッピングすることにより、平均構造式（14）：

30

【化19】



で表されるポリオキシアルキレン変性ジメチルポリシロキサンの50重量%溶液（粘度30,000 mPa·s。以下、シリコーン溶液No.3と言う）を得た。

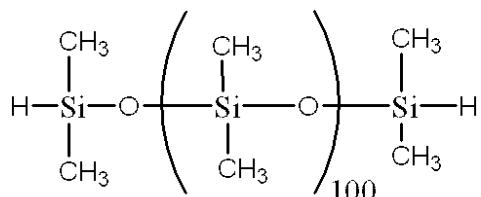
40

【0121】

[合成例4]

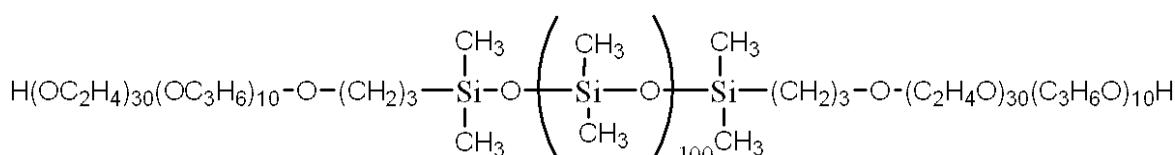
攪拌装置と温度計付きガラスフラスコ内で、平均構造式（15）：

【化20】



で表されるジメチルポリシロキサン 29.9 重量部と合成例 1 で使用した片末端アリルエーテル化ポリオキシアルキレン 20.1 重量部（上記共重合体中のケイ素原子結合水素原子と上記アリルエーテル化ポリオキシアルキレン中のアリル基のモル比は 1 : 1 . 3) を混合し、溶媒としてイソプロピルアルコール 15 重量部を加えた。更に塩化白金酸（反応原料の合計重量に対して 15 ppm になる量）を加えて 86° で 2 時間攪拌した後、赤外分光分析（IR）にてケイ素原子結合水素原子を示すピークが消失していることを確認した。その後、ジプロピレングリコール 50 重量部を加えて 30 分間攪拌した後、減圧下でストリッピングすることにより、平均構造式（16）：

【化21】



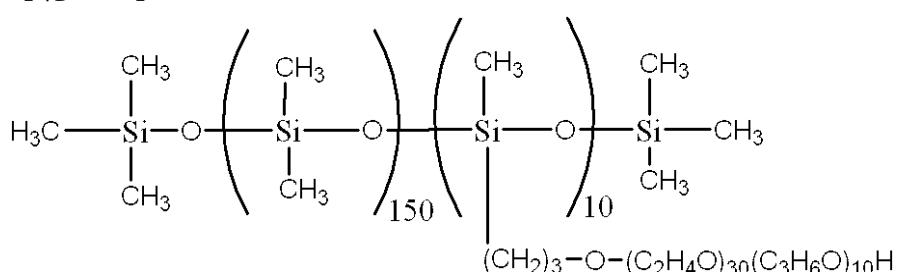
で表されるポリオキシアルキレン変性ジメチルポリシロキサンの 50 重量 % 溶液（粘度 30,000 mPa · s、以下、シリコーン溶液 No. 4 と言う）を得た。

【0122】

[合成例5]

合成例 1 において、ジプロピレングリコールを加えずに減圧下でストリッピングした後、エタノール 50 重量部を加えて 30 分間攪拌することにより、平均構造式（17）：

【化22】



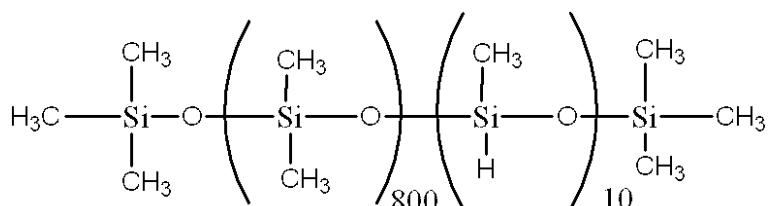
で表されるポリオキシアルキレン変性ジメチルポリシロキサンの 50 重量 % 溶液（粘度 800 mPa · s。以下、シリコーン溶液 No. 5 と言う）を得た。

【0123】

[合成例6]

攪拌装置と温度計付きガラスフラスコ内で、平均構造式（18）：

【化23】



で表されるジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体 35.1 重量部と合成例 3 で使用した片末端アリルエーテル化ポリオキシアルキレン 14.9 重量部（

10

20

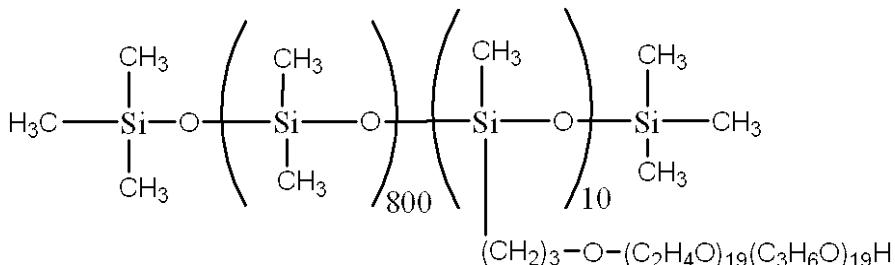
30

40

50

上記共重合体中のケイ素原子結合水素原子と上記アリルエーテル化ポリオキシアルキレン中のアリル基のモル比は1:1.3とを混合し、溶媒としてイソプロピルアルコール15重量部を加えた。更に塩化白金酸(反応原料の合計重量に対して15 ppmになる量)を加えて86で2時間攪拌した後、赤外分光分析(IR)にてケイ素原子結合水素原子を示すピークが消失していることを確認した。その後、ジプロピレングリコール50重量部を加えて30分間攪拌した後、減圧下でストリッピングすることにより、平均構造式(19)：

【化24】



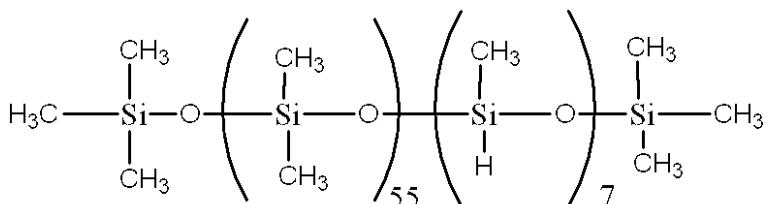
で表されるポリオキシアルキレン変性ジメチルポリシロキサンの50重量%溶液(粘度100,000 mPa·s。以下、シリコーン溶液No.6と言う)を得た。

【0124】

【合成例7】

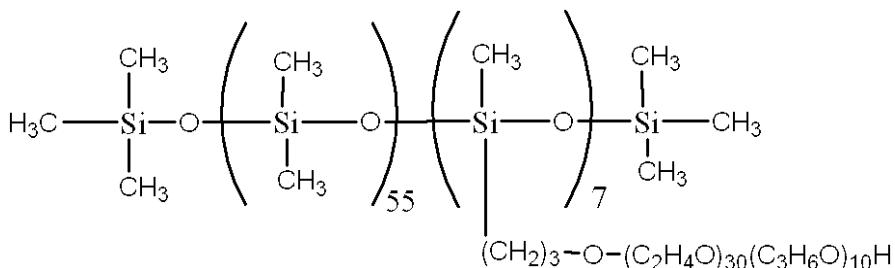
攪拌装置と温度計付きガラスフラスコ内で、平均構造式(20)：

【化25】



で表されるジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体10.4重量部と合成例1で使用した片末端アリルエーテル化ポリオキシアルキレン39.6重量部(上記共重合体中のケイ素原子結合水素原子と上記アリルエーテル化ポリオキシアルキレン中のアリル基のモル比は1:1.3とを混合し、溶媒としてイソプロピルアルコール30重量部を加えた。更に塩化白金酸(反応原料の合計重量に対して15 ppmになる量)を加えて反応温度86で2時間攪拌した後、赤外分光分析(IR)にてケイ素原子結合水素原子を示すピークが消失していることを確認した。その後、ジプロピレングリコール50重量部を加えて30分間攪拌した後、減圧下でストリッピングすることにより、平均構造式(21)：

【化26】



で表されるポリオキシアルキレン変性ジメチルポリシロキサンの50重量%溶液(粘度500 mPa·s。以下、シリコーン溶液No.7と言う)を得た。

【0125】

さらに、比較例用として、下記平均構造式で表されるジメチルポリシロキサン(粘度500 mPa·s)(以下、シリコーンNo.8と言う)を用意した。

平均構造式(22)：

10

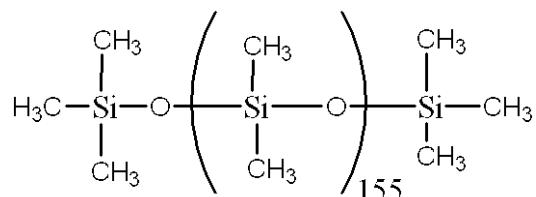
20

30

40

50

【化27】



【0126】

前記のシリコーン溶液No.1～No.7中のポリオキシアルキレン変性ジメチルポリシリコキサンとシリコーンNo.8の各平均構造式におけるm, n, a, bの値を表3に示した。

【表3】

表3

シリコーン	m	n	m+n	m/n	a	b	a+b
No.1	150	10	160	15	30	10	40
No.2	200	10	210	20	30	10	40
No.3	400	10	410	40	19	19	38
No.4	100	0	100	-	30	10	40
No.5	150	10	160	15	30	10	40
No.6	800	10	810	80	19	19	38
No.7	55	7	62	8	30	10	40
No.8	155	0	155	-	-	-	-

【0127】

[実施例1～実施例20、比較例1～比較例5]

ビーカー中で、表5および表6に記載の各成分をスリーワンモーター（ヤマト科学製、MO DEL LR500B）を用いて回転数300 rpmで均一に混合することにより、化粧料製造用組成物1～化粧料製造用組成物25を調製した。表5および表6中、シリコーン溶液No.1～No.7とシリコーンNo.8を配合したことを表す。表5および表6中、「部」は重量部を表す。また、表5および表6中の成分(b)、ポリオキシアルキレン変性ジメチルポリシリコキサン¹、ジメチルポリシリコキサン²およびメチルフェニルポリシリコキサン³は以下のとおりである。

【0128】

10

20

30

【表4】

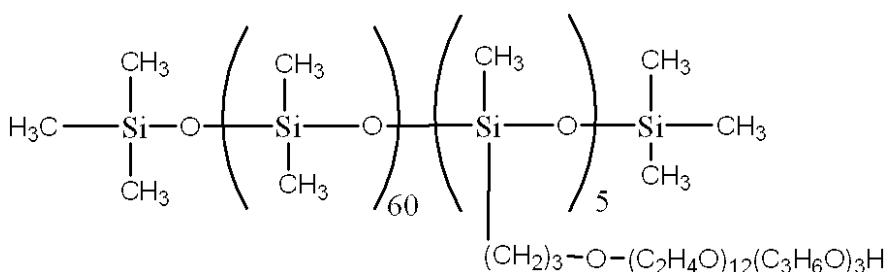
表4 成分(b)の商品名とメーカー名

成分名	商品名または商標	メーカー
ジ POE(8)アルキル(12~15)エーテルリン酸	ニッコール DDP-8	日光ケミカルズ
トリ POE(4)ラウリルエーテルリン酸ナトリウム	Hostarhat KL340D	クラリアントジャパン
N-ヤシ油脂肪酸アシル-L-グリタミン酸	アミソフトCA	花王
ポリオキシエチレンアルキル(12~14)スルホハク酸2ナトリウム	コハクールL-400	東邦化学
ポリオキシエチレンソルビタンモノオレート	レオドールTW-0120V	花王
ポリオキシエチレンソルビタンモノステアレート	レオドールスーパーTW-S120	花王
POE(60)硬化ヒマシ油	ニッコール HC0-60	日光ケミカルズ
PEG-12ジメチコンスルホコハク酸2Na ⁴	MACKANATE DC-100	McINTYRE

ポリオキシアルキレン変性ジメチルポリシロキサン¹；下記平均構造式で表されるポリオキシアルキレン変性ジメチルポリシロキサン（動粘度1,700mm²/s）

平均構造式(23)：

【化28】



ジメチルポリシロキサン²；SH200C-6cs（東レ・ダウコーニング製の両末端トリメチルシリキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン、動粘度6mm²/s）

メチルフェニルポリシロキサン³；SH556（東レ・ダウコーニング製フェニルトリメチコン、動粘度20mm²/s）

PEG-12ジメチコンスルホコハク酸2Na⁴；ポリオキシエチレン(12)変性ジメチルポリシロキサンのスルホコハク酸エステルニナトリウム塩

【0129】

10

20

30

【表5】

表5 各成分の配合量と組成物の外観

		実施例												
実施例、比較例の番号		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13
(a) 部	シリコーン溶液No.	1 6	1 5	2 5	3 10	1 10	1 10	1 5	1 5	1 5	1 5	1 5	4 5	4 5
(b) 部	ジPOE(8)アルキル(12~15)エーテルリン酸 トリPOE(4)ラウリルエーテルリン酸ナトリウム N-ヤシ油脂肪酸アシル-レーグルタミン酸 POEアルキル(12~14)スルホカク酸2ナトリウム ポリオキシエチレン(20)ソルビタンモノラウレート POE(60)硬化ヒマシ油 PEG-12ジメチコンスルホカク酸2Na ⁴ ポリオキシアルキレン変性ジメチルポリシロキサン ¹	0.5	1	1	3	1	5	5						
(c) 部	ジメチルポリシロキサン ² メチルフェニルポリシロキサン ³ デカメチルシクロペントシロキサン 流動パラフィン スクワラン イソノナン酸イソノニル	43 3 43	5 5 3	1	2	7		5	5	5	5	5	5	10 10
(d) 部	エタノール イソプロパノール 1, 3-ブチレングリコール	-	79	90	77	77	74	79	79	84	79	40	79	69
(e) 部	水	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
組成物の外観		△	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	○	◎	◎

10

20

【0130】

【表6】

表6 各成分の配合量と組成物の外観

		実施例								比較例				
実施例、比較例の番号		14	15	16	17	18	19	20	1	2	3	4	5	
(a) 部	シリコーン溶液No.	5 5	1 15	1 18	1 14	1 10	1 10	1 10	1 5	6 5	7 5	8 5	- 5	1 5
(b) 部	ジPOE(8)アルキル(12~15)エーテルリン酸 トリPOE(4)ラウリルエーテルリン酸ナトリウム N-ヤシ油脂肪酸アシル-レーグルタミン酸 POEアルキル(12~14)スルホカク酸2ナトリウム ム ポリオキシエチレン(20)ソルビタンモノオレート POE(60)硬化ヒマシ油 PEG-12ジメチコンスルホカク酸2Na ⁴ ポリオキシアルキレン変性ジメチルポリシロキサン ¹	1	5	3		1.5			1	1	1	1	1	-
(c) 部	ジメチルポリシロキサン ² メチルフェニルポリシロキサン ³ デカメチルシクロペントシロキサン	5 5	10 10	8 8	6 6	5 5	5 5	5 5	5 5	5 5	5 5	5 5	3 3	5 5
(d) 部	エタノール	79	50	25	39	78.5	78.5	72	79	79	79	95	85	
(e) 部	水	-	-	25	23	-	-	-	-	-	-	-	-	-
組成物の外観		◎	◎	○	○	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎

30

40

【0131】

[実施例21~実施例40、比較例6~比較例10]

以下の方法により、化粧料製造用組成物1~20、化粧料製造用組成物21~25を用いて水中油型エマルジョンを調製した。次いで、前記の方法により経日安定性試験を行い、各水中油型エマルジョンの安定性を評価した。また、前記の方法で該水中油型エマルジョンのエマルジョン粒子の平均粒子径を測定した。得られた測定・評価結果を表7と表8に示した。

50

[水中油型エマルジョンの調製 1]

イオン交換水 90 重量部をビーカーにとり、スリーワンモーター（ヤマト科学製、MODEL LR500B）により 500 rpm で攪拌しながら、化粧料製造用組成物 10 重量部を徐々に注入することにより、水中油型エマルジョンを調製した。

【 0 1 3 2 】

【表 7】

表 7 水中油型エマルジョンの特性

実施例、比較例の番号	実施例												
	21	22	23	24	25	26	27	28	29	30	31	32	33
化粧料製造用組成物	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13
平均粒子径 (nm) (製造直後)	4000	60	58	67	64	85	70	120	85	81	150	66	81
製造直後の乳化状態	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎
経日安定性 (40°C、1ヶ月後)	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	○	◎	◎	◎

【表 8】

表 8 水中油型エマルジョンの特性

実施例、比較例の番号	実施例							比較例				
	34	35	36	37	38	39	40	6	7	8	9	10
化粧料製造用組成物	14	15	16	17	18	19	20	21	22	23	24	25
平均粒子径 (nm) (製造直後)	68	80	34	55	105	88	56	濁り	89	濁り	110	80
製造直後の乳化状態	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	△	◎	×	◎	◎
経日安定性 (40°C、1ヶ月後)	◎	○	○	○	○	○	○	△	△	×	△	△

【 0 1 3 3 】

[実施例 4 1 ~ 実施例 4 3 、比較例 1 1 ~ 比較例 1 3]

以下の方法により、化粧料製造用組成物 2 ~ 化粧料製造用組成物 4 、化粧料製造用組成物 21 , 化粧料製造用組成物 24 , 化粧料製造用組成物 25 を用いて水中油型エマルジョン化粧料を調製した。次いで、前記の方法により経日安定性試験を行い、各水中油型エマルジョン化粧料の安定性を評価した。また、前記の方法で該水中油型エマルジョン化粧料のエマルジョン粒子の平均粒子径を測定した。得られた測定・評価結果を表 7 に示した。

[水中油型エマルジョン化粧料の調製 2]

イオン交換水 90 重量部をビーカーにとり、スリーワンモーター（ヤマト科学製、MODEL LR500B）により 500 rpm で攪拌しながら、化粧料製造用組成物 9 . 9 重量部および流動パラフィン 0 . 1 重量部を徐々に注入することにより、水中油型エマルジョン化粧料を調製した。

【 0 1 3 4 】

10

20

30

40

【表9】

表9 水中油型エマルジョン化粧料の特性

	実施例			比較例		
	41	42	43	11	12	13
実施例、比較例の番号	41	42	43	11	12	13
化粧料製造用組成物	2	3	4	21	24	25
平均粒子径 (nm) (製造直後)	65	72	80	濁り	濁り	90
製造直後の乳化状態	◎	◎	◎	△	△	△
経日安定性 (40℃、1ヶ月後)	◎	◎	◎	△	△	△

10

【0135】

表7、表8および表9から分かるように、本発明の実施例の化粧料製造用組成物1～化粧料製造用組成物20を用いた場合には、経日安定性に優れる水中油型エマルジョンを得ることができた(実施例21～実施例43)。特に、化粧料製造用組成物の分散媒としてエタノール等の成分(d)を用いた場合(実施例2～実施例20)、平均粒子径が200nm以下であり、経日安定性も良好な水中油型エマルジョンが得られた。一方、化粧料製造用組成物21～化粧料製造用組成物25を用いると、濁りがひどく、均一な水中油型エマルジョンを調製できない場合があり、製造直後は水中油型エマルジョンを調製できた場合であっても経時的に油分離してしまい、安定性が悪い結果となった(比較例6～比較例13)。

20

【0136】

以下、前記の化粧料製造用組成物と化粧品原料を用いて化粧料を調製し、化粧料の使用感を前記の方法により評価した。また、水中油型エマルジョンのエマルジョン粒子の平均粒子径を前記の方法により測定した。

【0137】

30

[実施例44] 白濁化粧水

(成分) (重量%)

1. 化粧料製造用組成物2	6.9
2. エタノール	2.0
3. リン酸1水素2ナトリウム	0.01
4. リン酸2水素1ナトリウム	0.02
5. パラベン	0.2
6. 精製水	残量

(製造方法)

A. 成分1, 成分2, 成分5を混合する。

B. 成分3, 成分4を成分6に溶解させる。

40

C. Bを500rpmで攪拌しながら、Aを徐々に加え、エマルジョン粒子の平均粒子径が58nmの白濁化粧水を得た。

この白濁化粧水の使用感を評価したところ、さらさらとした感触でありながら、しっとり感が持続するという好結果であった。

【0138】

[実施例45] 保湿美容液

(成分) (重量%)

1. 化粧料製造用組成物2	6.9
2. グリセリン	10.0
3. メチルイソチアゾリノン	0.05

50

4 . 精製水	残量
5 . シロキクラゲ多糖類	0 . 3
6 . 精製水	2 9 . 7

(製造方法)

- A . 成分 2 , 成分 3 , 成分 4 を混合する。
 B . 成分 5 を成分 6 に加え、加熱溶解させる。
 C . A を 5 0 0 r p m で攪拌しながら、成分 1 を徐々に加える。
 D . C に B を加えて混合し、エマルジョン粒子の平均粒子径が 6 4 n m の保湿美容液を得た。

この保湿美容液の使用感を評価したところ、するするとびて、水々しい使用感であった

10

。

【 0 1 3 9 】

[実施例 4 6] ふきとり美容液

(成分)	(重量 %)
1 . 化粧料製造用組成物 2	2 0 . 7
2 . P E G 3 ココアミド	0 . 2
3 . P E G 6 ココアミド	0 . 5
4 . エタノール	5 . 0
5 . 精製水	残量
6 . カルノシン	0 . 1
7 . ポリオキシプロピレンメチルグルコシド	0 . 4
8 . カルボキシビニルポリマー (0 . 2 % 水溶液)	1 8
9 . 水酸化ナトリウム (1 % 水溶液)	1 0
1 0 . クエン酸	0 . 0 5

(製造方法)

- A . 成分 1 ~ 成分 4 を混合する。
 B . 成分 6 を成分 5 に溶解させる。
 C . B を 5 0 0 r p m で攪拌しながら、A を徐々に加える。
 D . C に成分 7 、成分 8 、成分 9 、成分 1 0 の順序に加えて混合し、外観が半透明なふきとり美容液 (水中油型エマルジョン) を得た。

20

各パネラーが洗顔後に、このふきとり美容液の使用感を評価したところ、洗顔フォームで落としきれていない汚れが取れ、さらさらとした感触であった。

30

【 0 1 4 0 】

[実施例 4 7] 含水ゲル状パック (ふきとりタイプ)

(成分)	(重量 %)
1 . 化粧料製造用組成物 2 (実施例 2)	6 . 9
2 . ジメチルポリシリコン ⁵	1 0
3 . カルボキシビニルポリマー (0 . 2 % 水溶液)	2 2
4 . 精製水	残量
5 . 水酸化ナトリウム (1 % 水溶液)	1 2
6 . ポリオキシプロピレングルコシド	5
7 . 1 , 3 - ブチレングリコール	7
8 . エタノール	5
9 . グリセリン	8
1 0 . メチルイソチアゾリノン	0 . 0 5

ジメチルポリシリコン⁵ ; S H 2 0 0 - 1 0 0 c s (東レ・ダウコーニング製)

40

(製造方法)

- A . 成分 1 , 成分 2 を混合する。
 B . 成分 3 を成分 4 に溶解させる。

50

C . B を 1 0 0 0 r p m で攪拌しながら、A を徐々に加える。

D . C に成分 5 を加えて混合し、さらに成分 6 ~ 成分 10 を混合し、外観が半透明な含水ゲル状パックを得た。

この含水ゲル状パックの使用感を評価したところ、しっとりしているのに、べたつかず、好感触であった。

【 0 1 4 1 】

[実施例 4 8] ゲル状殺菌洗浄剤

(成 分)	(重 量 %)	
1 . 化粧料製造用組成物 2	6 . 9	
2 . 塩化ベンザルコニウム	0 . 3	10
3 . エタノール	7 0	
4 . カルボキシビニルポリマー	0 . 5	
5 . グリセリン	2 . 0	
6 . 精製水	残量	

(製造方法)

A . 成分 1 ~ 成分 3 を混合する。

B . 成分 4 を成分 6 に加えて、加熱溶解した。

C . B に A を加えて攪拌し、さらに成分 5 を加えて混合し、半透明な含水ゲル状殺菌剤を得た。

この含水ゲル状殺菌剤の使用感を評価したところ、つっぱらずに、さらさらとしており、好感触であった。 20

【 産業上の利用可能性 】

【 0 1 4 2 】

本発明に係る化粧料製造用組成物は、化粧料、特に経日安定性が優れた水中油型エマルジョン化粧料、含水化粧料の製造に有用である。

本発明に係る化粧料は、ヒトの皮膚の手入れ、保護、美化や、毛髪の保護、美化に有用である。

本発明に係る含水化粧料の製造方法は、含水化粧料を簡便に製造するのに有用である。

フロントページの続き

(72)発明者 音 智子

東京都中央区日本橋本町三丁目5番11号 株式会社マツモト交商内

審査官 小出 直也

(56)参考文献 特開平07-291825(JP,A)

特開平09-175933(JP,A)

国際公開第2004/006871(WO,A1)

特開平07-215817(JP,A)

特開平08-092037(JP,A)

特開平09-286710(JP,A)

特開平09-227330(JP,A)

特開2008-031045(JP,A)

特開2000-313808(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

A61K 8/00 - 8/99

A61Q 1/00 - 90/00

B01J 13/00