

(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
2017年12月7日(07.12.2017)



(10) 国際公開番号

WO 2017/209077 A1

(51) 国際特許分類:

C08G 81/00 (2006.01) A61Q 1/00 (2006.01)
A61K 8/19 (2006.01) C08K 3/00 (2006.01)
A61K 8/81 (2006.01) C08L 33/14 (2006.01)
A61K 8/891 (2006.01) C08L 83/06 (2006.01)
A61K 8/898 (2006.01) C08L 83/08 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2017/019972

(22) 国際出願日: 2017年5月29日(29.05.2017)

(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 2016-108740 2016年5月31日(31.05.2016) JP

(71) 出願人: 株式会社 資生堂 (SHISEIDO COMPANY, LTD.) [JP/JP]; 〒1040061 東京都中央区銀座7丁目5番5号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 大澤友 (OSAWA, Tomo); 〒2248558 神奈川県横浜市都筑区早渕2丁目2番1号 株式会社資生堂 リサーチセンター (新横浜) 内 Kanagawa (JP). 松尾綾野 (MATSUO, Ayano); 〒2248558 神奈川県横浜市都筑区早渕2丁目2番1号 株式会社資生堂 リサーチセンター (新横浜) 内 Kanagawa (JP). 園山悠治 (SONOYAMA, Yuji); 〒2248558 神奈川県横浜市都筑区早渕2丁目2番1号 株式会社資生堂 リサーチセンター (新横浜) 内 Kanagawa (JP). 池田智子 (IKEDA, Tomoko); 〒2248558 神奈川県横浜市都筑区早渕2丁目2番1号 株式会社資生堂 リサーチセンター (新横浜) 内 Kanagawa (JP). 久保田俊 (KUBOTA, Shun); 〒2248558 神奈川県

横浜市都筑区早渕2丁目2番1号 株式会社資生堂 リサーチセンター (新横浜) 内 Kanagawa (JP). 人見真央 (HITOMI, Mao); 〒2248558 神奈川県横浜市都筑区早渕2丁目2番1号 株式会社資生堂 リサーチセンター (新横浜) 内 Kanagawa (JP). 蛭間卓也 (HIRUMA, Takuya); 〒2248558 神奈川県横浜市都筑区早渕2丁目2番1号 株式会社資生堂 リサーチセンター (新横浜) 内 Kanagawa (JP). 金丸哲也 (KANEMARU, Tetsuya); 〒2248558 神奈川県横浜市都筑区早渕2丁目2番1号 株式会社資生堂 リサーチセンター (新横浜) 内 Kanagawa (JP).

(74) 代理人: 岩橋 祐司 (IWAHASHI, Yuji); 〒2220033 神奈川県横浜市港北区新横浜二丁目5番地15 Kanagawa (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, 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, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, 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,

(54) Title: ELASTOMER

(54) 発明の名称: エラストマー

(57) Abstract: Provided is an elastomer which improves the skin feel of an inorganic powder. The elastomer according to the present invention is characterized by comprising: (A) a silicone polymer having an amino group; and (B) a silicone polymer having a carboxyl group or an acrylic polymer having a carboxyl group, wherein the molar ratio Y/X of the carboxyl group to the amino group is within the range of 0.1-1.2 (Y represents the molar amount of the carboxyl group contained in the component (B), and X represents the molar amount of the amino group contained in the component (A)).

(57) 要約: 無機粉末の肌への感触を改善するエラストマーを提供する。本発明に係るエラストマーは、(A) アミノ基を有するシリコンポリマーと、(B) カルボキシル基を有するシリコンポリマー又はカルボキシル基を有するアクリルポリマーと、からなるエラストマーであって、アミノ基とカルボキシル基のモル比が、 $Y/X = 0.1 \sim 1.2$ (Yは、(B)成分に含まれるカルボキシル基のモル量、Xは、(A)成分に含まれるアミノ基のモル量)の範囲にあることを特徴とする。

WO 2017/209077 A1

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：

- 国際調査報告（条約第21条(3)）
- 補正された請求の範囲及び説明書（条約第19条(1)）

明 細 書

発明の名称： エラストマー

関連出願

[0001] 本出願は、2016年05月31日付け出願の日本国特許出願2016-108740号の優先権を主張しており、ここに折り込まれるものである。

技術分野

[0002] 本発明はエラストマーに関し、特に無機粉末に被覆した際に、肌への感触を向上することができるエラストマーに関する。

背景技術

[0003] ファンデーションや化粧下地等のメーキャップ化粧料に求められる機能を得るために、様々な粉末処理がされている。

たとえば、疎水性に優れるとともに、洗い流し性の改善をするために、基粉体表面上に、疎水化処理剤と、特定構造のアクリル系モノマー（11-メタクリルアミドウンデカン酸など）を構成モノマーとして含有するポリマーを被覆した粉体が知られていた（特許文献1）

[0004] また、化粧持ち（化粧崩れ防止）に優れた粉末化粧料、特に、ファンデーション又は化粧下地等の粉末メーキャップ化粧料を提供するために、特定の処理粉末を配合することで、化粧持ち（化粧崩れ防止）に優れた粉末化粧料を提供することは知られていた（特許文献2）。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特表2007-277167

特許文献2：特開2008-184399

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] しかしながら、特許文献1や2に教示される処理された無機粉末は、化粧料に配合し、肌に塗布すると、きしきしとした感触を肌へ与え、粉っぽい感

触を肌へ与えてしまうという場合があるという問題があった。

本発明は、上記事情を鑑みなされたものであり、無機粉末を、特定のエラストマーを被覆することにより、肌への感触を向上し、しっとりとして粉っぽくない感覚をもたせることを目的としている。また、化粧品に該エラストマーで被覆した無機粉末を使用することにより、落下安定性に優れた化粧品を提供することを目的としている。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明者らは、上記課題を解決するために鋭意検討した結果、アミノ基を有するシリコンポリマーとカルボキシル基を有するシリコンポリマー又はカルボキシル基を有するアクリルポリマーとを複合したエラストマー状の性質を有する組成物が、無機粉末に被覆することにより、肌への感触を向上させ、しっとりとして粉っぽくない感覚をとることを見出した。そして、化粧品に該エラストマーで被覆した無機粉末を使用することにより、落下安定性に優れた化粧品を得られることを見出し、本発明を完成するに至った。

すなわち、本発明に係るエラストマーは、

(A) アミノ基を有するシリコンポリマーと、

(B) カルボキシル基を有するシリコンポリマー又はカルボキシル基を有するアクリルポリマーと、

からなるエラストマーであって、アミノ基とカルボキシル基のモル比が、 $Y/X = 0.1 \sim 1.2$ (Yは、(B)成分に含まれるカルボキシル基のモル量、Xは、(A)成分に含まれるアミノ基のモル量)にあるもの。

また、(C) 無機粉末の表面に、前記エラストマーで被覆することが好適に用いられる。

また、前記エラストマー被覆無機粉末において、エラストマーの量が(C) 無機粉末の量に対して0.5~20質量%が好適である。

また、前記エラストマー被覆無機粉末において、(C) 無機粉末が、タルク、マイカ、合成金雲母鉄、セリサイト、硫酸バリウム、カオリン、酸化チタン、酸化亜鉛、酸化鉄であることが好適である。

前記エラストマー被覆無機粉末は化粧品に配合することが好適である。

また、(D) 有機粉末の表面に、前記エラストマーで被覆することが好適に用いられる。

また、前記エラストマー被覆無機粉末の製造方法としては、(C) 無機粉末と、(B) カルボキシル基を有するシリコンポリマー又はカルボキシル基を有するアクリルポリマーとを混合する工程と、該混合物と(A) アミノ基を有するシリコンポリマーを混合し、加熱する工程と、を含むことが好適である。

また、前記エラストマー被覆無機粉末の製造方法としては、(C) 無機粉末と、(A) アミノ基を有するシリコンポリマーとを混合する工程と、該混合物と(B) カルボキシル基を有するシリコンポリマー又はカルボキシル基を有するアクリルポリマーを混合し、加熱する工程と、を含むことが好適である。

また、エラストマー被覆無機粉末配合化粧品の製造方法としては、前記エラストマー被覆無機粉末に、さらに、(A) と (B) 以外の油分を混合する工程を含むことが好適である。

発明の効果

[0008] 本発明によれば、新規なエラストマーを提供することができる。また、該エラストマーを無機粉末に被覆した際には、肌への感触を向上させ、しっとりとして粉っぽくない感覚を有する。そして、化粧品に該エラストマーを被覆した無機粉末を使用すると、落下安定性に優れた化粧品を提供することができる。

発明を実施するための形態

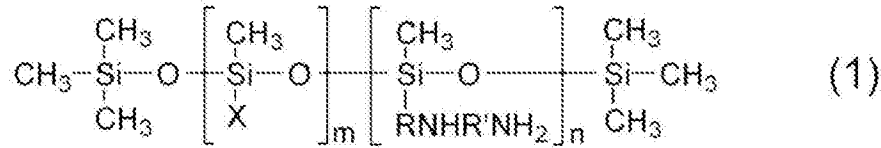
[0009] 以下、本発明について詳細に説明する。

本発明に係るエラストマーは、アミノ基を有するシリコンポリマーと、カルボキシル基を有するシリコンポリマーとを混合し、加熱することによって製造されるものである。まず、本発明の構成成分について説明する。

[0010] (A) アミノ基を有するシリコンポリマー

本発明に使用される（A）アミノ基を有するシリコンポリマーは、下記一般式（1）で示される側鎖型アミノ変性シリコンである。

[0011] [化1]



（一般式（1）中、Xは炭素数1～18のアルキル基、R、R'はアルキル基である。）

[0012] 一般式（1）中、mは、20～2000であると、得られるエラストマーの硬さが好適という理由で好ましい。20未満であると、エラストマーを形成しない場合がある点で好ましくない。また、2000を超えると、ハンドリングの困難さ、製造の困難さを生じる場合がある点で好ましくない。

[0013] 一般式（1）中、nは、1～100であると、得られるエラストマーの硬さが好適という理由で好ましい。1未満であると、エラストマーを形成しない場合がある点で好ましくない場合がある。また、100を超えると、エラストマーが硬すぎる場合がある点で好ましくない場合がある。

[0014] 一般式（1）中、Rは、アルキル鎖が好適に用いられ、プロピル基が量産性という理由で好ましい。

一般式（1）中、R'は、アルキル鎖が好適に用いられ、エチル基が量産性という理由で好ましい。

[0015] （A）アミノ基を有するシリコンポリマーのアミノ基当量は、500g/mol～20000g/molであると、得られるエラストマーの硬さが好適という理由で好ましい。アミノ基当量が500未満であると、エラストマーが硬すぎる場合がある点で好ましくない。また、アミノ基当量が20000を超えると、エラストマーを形成しない場合がある点で好ましくない。

[0016] （A）アミノ基を有するシリコンポリマーの市販品としては、例えば、KF-8004、KF-8005S、KF-867S（信越化学工業社製）、XF42-B1989（MOMENTIVE社製）、ADM1650、A

DM1370（旭化成ワッカーシリコン社製）、SF8452C、SS3551（東レ・ダウコーニング社製）等が挙げられる。

[0017] 上記アミノ基当量とは、アミノ基を含む物質に対して、1モルのアミノ基あたりのその物質の重量を表す数値を表す。

[0018] (B) カルボキシル基を有するシリコンポリマー又はカルボキシル基を有するアクリルポリマー

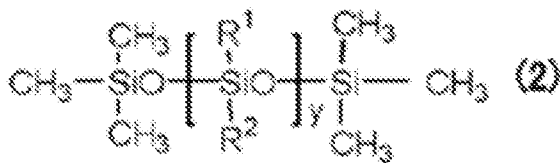
本発明に使用される(B)カルボキシル基を有するシリコンポリマーとしては、下記一般式(2)で示されるカルボキシル基当量が1000g/mol~40000g/molである側鎖型カルボキシル変性シリコンである。

本発明に使用される(B)カルボキシル基を有するアクリルポリマーとしては、下記一般式(3)で示されるカルボキシル基当量が200g/mol~1000g/molである側鎖型カルボキシル変性アクリルポリマーである。

[0019] 上記カルボキシル基当量とは、カルボキシル基を含む物質に対して、1モルのカルボキシル基あたりのその物質の重量を表す数値を表す。

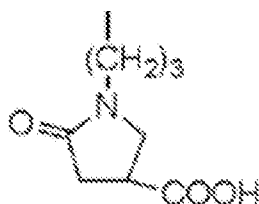
[0020] 一般式(2)は、次の化学式2と化学式3からなる。

[0021] [化2]



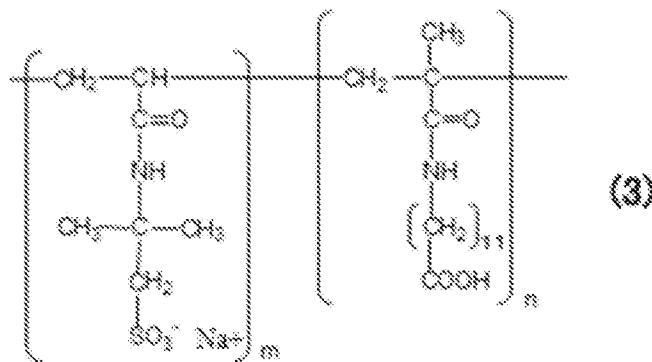
(式中R1及びR2は、メチル基若しくは下記の[化3]で表される基を示し、該基を1分子中に1~100含有し、yは1~50,000の整数を表す。)

[0022] [化3]



[0023] 一般式(3)は、次の化学式4からなる。

[0024] [化4]



(一般式 (3) 中、 $m/(m+n) = 0 \sim 0.5$ である。)

[0025] 一般式 (2) で示されるカルボキシル基を有するシリコーンポリマーの市販品としては、例えば、センサシルPCA (クローダ社製) 等が挙げられる。

[0026] 一般式 (3) で示されるカルボキシル基を有するアクリルポリマーは、公知の方法を用いて合成できる。

具体例を挙げれば、12-メタクリルアミドドデカン酸 (MAD) / 2-アクリルアミド-2-メチルプロパンスルホン酸 (AMPS) コポリマー (90/10)、12-メタクリルアミドドデカン酸 (MAD) 18.50g (65.37mmol)、2-アクリルアミド-2-メチルプロパンスルホン酸 (AMPS: シグマ-アルドリッチ・ジャパン社製) 1.50g (7.24mmol)、水酸化ナトリウム0.29g (7.25mmol)、アゾビスイソブチロニトリル (ナカライテスク社製) 0.30g (1.83mmol) を、メタノール60.0gに溶解した。アゾビスイソブチロニトリルは、定法に従い、メタノールから再結晶して用いた。60分間アルゴンをバブルして脱気を行い、セプタムで容器に蓋をして60℃で20時間加熱して重合した。重合反応終了後に大過剰のジエチルエーテル中に反応溶液を滴下して沈殿物を吸引ろ過で回収した。減圧乾燥の後、ランダム状のMAD/AMPSコポリマー (90/10) 15.2gを得た (収率: 75.1%)。重量平均分子量は50000だった。

[0027] (B) 成分のカルボキシル基当量は、200~40000であると、得られるエラ

ストマーの硬さが好適という理由で好ましい。200未満であると、エラストマーが硬すぎる場合がある点で好ましくない。また、40000を超えると、エラストマーを形成しない場合がある点で好ましくない。

- [0028] (A) アミノ基を有するシリコンポリマー中のアミノ基と、(B) カルボキシル基を有するシリコンポリマー又はカルボキシル基を有するアクリルポリマーのカルボキシル基のモル比は、 $Y/X = 0.1 \sim 1.2$ (Yは、(B) 成分に含まれるカルボキシル基のモル量、Xは(A) 成分に含まれるアミノ基のモル量) である必要がある。より好ましくは、 $0.1 \sim 0.8$ である。0.1未満であると、エラストマーを形成しない場合があるため好ましくない。また、1.2より大きいと、エラストマーを形成しない場合があるため好ましくない。

- [0029] (C) 無機粉末

本発明のエラストマーを(C) 無機粉末に被覆することにより、肌への感触を向上させ、しっとりとして粉っぽくない感覚を有する。また、エラストマーで被覆した無機粉末を化粧品に使用すると、落下安定性に優れた化粧品を得ることができる。

- [0030] 本発明に使用される(C) 無機粉末は、化粧品において使用可能な粉体素材が選択される。

- [0031] 無機粉末は、例えば、タルク、窒化硼素、セリサイト、天然マイカ、焼成マイカ、合成マイカ、合成セリサイト、アルミナ、マイカ、カオリン、ベントナイト、スメクタイト、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、リン酸カルシウム、無水ケイ酸、酸化マグネシウム、酸化スズ、酸化鉄、酸化イットリウム、酸化クロム、酸化チタン、酸化亜鉛、酸化セリウム、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、水酸化クロム、紺青、群青、リン酸カルシウム、水酸化アルミニウム、硫酸バリウム、硫酸マグネシウム、ケイ酸、ケイ酸アルミニウムマグネシウム、ケイ酸カルシウム、ケイ酸バリウム、ケイ酸マグネシウム、ケイ酸アルミニウム、ケイ酸ストロンチウム、炭化ケイ素、フッ化マグネシウム、タングステン酸金属塩、アルミン酸マグネシウム、メタケイ

酸アルミン酸マグネシウム、クロルヒドロキシアルミニウム、クレー、ゼオライト、ヒドロキシアパタイト、セラミックパウダー、スピネル、ムライト、コージェライト、窒化アルミニウム、窒化チタン、窒化ケイ素、ランタン、サマリウム、タンタル、テルビウム、ユーロピウム、ネオジウム、Mn-Znフェライト、Ni-Znフェライト、シリコンカーバイド、チタン酸コバルト、チタン酸バリウム、チタン酸鉄、リチウムコバルトチタネート、アルミン酸コバルト、アンチモン含有酸化スズ、スズ含有酸化インジウム、マグネタイト、アルミニウム粉、金粉、銀粉、白金粉、銅粉、貴金属コロイド、鉄粉、亜鉛粉、コバルトブルー、コバルトバイオレット、コバルトグリーン、低次酸化チタン、微粒子酸化チタン、バタフライ状硫酸バリウム、花びら状酸化亜鉛、テトラポッド状酸化亜鉛、微粒子酸化亜鉛、パール顔料としては酸化チタン被覆雲母、酸化チタン被覆マイカ、酸化チタン被覆合成マイカ、酸化チタン被覆シリカ、酸化チタン被覆合成マイカ、酸化チタン被覆タルク、酸化亜鉛被覆シリカ、酸化チタン被覆着色雲母、ベンガラ被覆雲母チタン、ベンガラ・黒酸化鉄被覆雲母チタン、カルミン被覆雲母チタン、コンジョウ被覆雲母チタン等が挙げられる。

これらのうち、タルク、マイカ、セリサイト、カオリン、酸化チタン、酸化鉄、酸化亜鉛等が好ましく用いられる。

[0032] 無機粉末に被覆されているエラストマーの量は、無機粉末に対して、0.5~20質量%、より好ましくは1~15質量%である。20質量%を超えて配合すると、無機粉末の融着や粉末化粧料の成形性の低下を生じる場合がある点で好ましくない。また、配合量が0.5質量%未満であると、感触の改善効果が得られない場合がある点で好ましくない。

[0033] これら無機粉末の市販品としては、例えば、MERCK社のIRIODIN（登録商標）シリーズ、TIMIRON（登録商標）シリーズ、COLORONAシリーズ（登録商標）シリーズ、DICHRONA（登録商標）シリーズ、XIRONA（登録商標）シリーズ、RONASTAR（登録商標）シリーズ、BASF社のDESERTREFLECTIONSシリーズ、

TIMICAシリーズ、FLAMENCOシリーズ、CLOIZONNEシリーズ、DUOCROMEシリーズ、GEMTONEシリーズ、CELLINIシリーズ、MEARLMAIDシリーズ、REFLECKSシリーズ、CHROMA-LITEシリーズ、COSMICAシリーズ、ECKART社のPRESTIGE（登録商標）シリーズ、VISIONAIRE（登録商標）シリーズ、MIRAGEシリーズ、日本板硝子社のメタシャイン（登録商標）、日本光研社のPROMINENCE（登録商標）、CQV社のCosmetica White Pearlシリーズ、Sharon Pearlシリーズ、Taizu社のPrecioso White Peartescent Pigmentsシリーズ等が挙げられる。アルミフレーク、シリカフレーク、アルミナフレーク、ガラスフレーク等のエフェクト顔料、ベンガラ被覆雲母、カルミン、酸化チタン被覆ホウケイ酸（ナトリウム／カルシウム）、酸化チタン被覆ホウケイ酸（カルシウム／アルミニウム）、オキシ塩化ビスマス、魚鱗箔、ステンレスパウダー、トルマリン粉末、サファイアやルビー等の宝石を粉砕したパウダー、マンゴバイオレット、ガラスファイバー、カーボンファイバー、炭化ケイ素繊維、アルミナ繊維、 β -ウオラストナイト、ゾノライト、チタン酸カリウム繊維、硼酸アルミニウム繊維、塩基性硫酸マグネシウム繊維、窒化ケイ素繊維等が挙げられる。

[0034] (D) 有機粉末

本発明のエラストマーを(D)有機粉末にも被覆することができる。

[0035] 本発明に使用される(D)有機粉末は、化粧品において使用可能な粉体素材が選択される。

[0036] (D)成分としては、有機粉末（例えば、シリコーンエラストマー粉末、シリコーン粉末、シリコーンレジン被覆シリコーンエラストマー粉末、ポリアミド樹脂粉末(ナイロン粉末)、ポリエチレン粉末、ポリメタクリル酸メチル粉末（例えばメタクリル酸メチルクロスポリマー）、ポリスチレン粉末、スチレンとアクリル酸の共重合体樹脂粉末、ベンゾグアナミン樹脂粉末、ポリ四弗化エチレン粉末、セルロース粉末等）；ジルコニウム、バリウム又は

アルミニウムレーキ等の有機顔料（例えば、赤色201号、赤色202号、赤色204号、赤色205号、赤色220号、赤色226号、赤色228号、赤色405号、橙色203号、橙色204号、黄色205号、黄色401号、及び青色404号などの有機顔料、等が挙げられる。

[0037] (C) 無機粉末と、(A) アミノ基を有するシリコーンポリマーを混合する工程と、(B) カルボキシル基を有するシリコーンポリマーを混合し、加熱する工程によって本発明に係るエラストマー被覆無機粉末を得ることができる。

[0038] エラストマー被覆無機粉末は、公知の被覆粉末の製造方法で得ることができる。具体例を挙げると、ヘンシャルミキサーに、タルクと、(A) アミノ基を有するシリコーンポリマーを加え、低速にて、10分間混合する。そして、そこに、(B) カルボキシル基を有するシリコーンポリマーを加えて、低速にて10分間混合し、加熱することで、本発明に係るエラストマー被覆無機粉末を得ることができる。

また、(A) 成分と(B) 成分の添加順序は、逆でも本発明に係るエラストマー被覆無機粉末を得ることができる。

エラストマー被覆有機粉末も、公知の被覆粉末の製造方法で得ることができる。

[0039] 本発明のエラストマー被覆無機粉末は、優れた使用感を有するため、化粧品に配合することが好ましい。化粧品としては特に限定されないが、粉末化粧品、W/O乳化化粧品、O/W乳化化粧品、油性化粧品等が挙げられる。

[0040] 〈乾式の製造方法〉

無機粉末成分、油性成分とその他の成分をあらかじめヘンシェルミキサーにて混合した後、パルペライザーにて二回解砕する。そして、得られた混合物を樹脂製の中皿容器に充填し、公知の方法で乾式プレス成型を行ない、本発明のエラストマー被覆無機粉末を化粧品に配合した固形状の粉末化粧品を得ることができる。

[0041] 〈その他の製造方法〉

本発明のエラストマー被覆無機粉末を化粧品に配合して製造する方法としては、公知の方法を用いることができる。たとえば、特許第5422092号に記載の揮発性溶媒を用いたスラリーを乾燥して作製する製造方法、特許第5972437号に記載の揮発性溶媒を用いたスラリーを充填後除去して作製する製造方法でも好適に得ることができる。

[0042] エラストマー被覆有機粉末も、無機粉末の場合と同様の製造方法で、化粧品に配合することができる。

[0043] 本技術は、化粧品中に配合されるすべての（C）無機粉末、（D）有機粉末に一括してエラストマー被覆を施し、そこに他の油分を加えて化粧品を得ることもできる。すなわち、化粧品中のすべての無機粉末、有機粉末をあらかじめ混合し、得られた混合粉末にエラストマー形成油分を加え加熱し、エラストマー被覆混合粉末を得てから、（A）と（B）以外の油分を配合することで優れた使用感触、落下耐性を有する化粧品を得た。

[0044] 一方、本技術で用いられるエラストマー形成油分（A）、（B）を他の油分とともに加えてしまい、加熱する工程では本発明の目的の機能は得られない。

すなわち、化粧品中の無機粉末、有機粉末を混合し、ここに（A）、（B）および他の油分を混合して添加し、加熱した場合、使用感触、落下耐性ともに劣化する化粧品を得た。

[0045] （A）と（B）以外の油分としては、本発明の効果を損なわない質的、量的範囲で含有させることが可能である。液体油脂、固体油脂、ロウ、炭化水素、高級脂肪酸、高級アルコール、エステル、シリコーン、保湿剤、水溶性高分子、増粘剤、皮膜剤、紫外線吸収剤、金属イオン封鎖剤、低級アルコール、多価アルコール、糖、アミノ酸、有機アミン、高分子エマルジョン、pH調整剤、皮膚栄養剤、酸化防止剤、酸化防止助剤、香料を必要に応じて適宜配合し、目的とする剤形に応じて常法により製造することが出来る。

[0046] 液体油脂としては、例えば、アボガド油、ツバキ油、タートル油、マカデミアナッツ油、トウモロコシ油、ミンク油、オリーブ油、ナタネ油、卵黄油

、ゴマ油、パーシク油、小麦胚芽油、サザンカ油、ヒマシ油、アマニ油、サフラワー油、綿実油、エノ油、大豆油、落花生油、茶実油、カヤ油、コメヌカ油、シナギリ油、日本キリ油、ホホバ油、胚芽油、トリグリセリン等が挙げられる。

固体油脂としては、例えば、カカオ脂、ヤシ油、馬脂、硬化ヤシ油、パーム油、牛脂、羊脂、硬化牛脂、パーム核油、豚脂、牛骨脂、モクロウ核油、硬化油、牛脚脂、モクロウ、硬化ヒマシ油等が挙げられる。

[0047] ロウ類としては、例えば、ミツロウ、カンデリラロウ、綿ロウ、カルナウバロウ、ベイベリーロウ、イボタロウ、鯨ロウ、モンタンロウ、ヌカロウ、ラノリン、カポックロウ、酢酸ラノリン、液状ラノリン、サトウキビロウ、ラノリン脂肪酸イソプロピル、ラウリン酸ヘキシル、還元ラノリン、ジョジョバロウ、硬質ラノリン、セラックロウ、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、POEコレステロールエーテル、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等が挙げられる。

炭化水素油としては、例えば、流動パラフィン、オゾケライト、スクワラン、プリスタン、パラフィン、セレシン、スクワレン、ワセリン、マイクロクリスタリンワックス等が挙げられる。

高級脂肪酸としては、例えば、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、ウンデシレン酸、トール酸、イソステアリン酸、リノール酸、リノレイン酸、エイコサペンタエン酸（EPA）、ドコサヘキサエン酸（DHA）等が挙げられる。

[0048] 高級アルコールとしては、例えば、直鎖アルコール（例えば、ラウリルアルコール、セチルアルコール、ステアリルアルコール、ベヘニルアルコール、ミリスチルアルコール、オレイルアルコール、セトステアリルアルコール等）；分枝鎖アルコール（例えば、モノステアリルグリセリンエーテル（バチルアルコール）、2-デシルテトラデシノール、ラノリンアルコール、コレステロール、フィトステロール、ヘキシルドデカノール、イソステアリルアルコ

ール、オクチルドデカノール等)等が挙げられる。

合成エステル油としては、ミリスチン酸イソプロピル、オクタン酸セチル、ミリスチン酸オクチルドデシル、パルミチン酸イソプロピル、ステアリン酸ブチル、ラウリン酸ヘキシル、ミリスチン酸ミリスチル、オレイン酸デシル、ジメチルオクタン酸ヘキシルデシル、乳酸セチル、乳酸ミリスチル、酢酸ラノリン、ステアリン酸イソセチル、イソステアリン酸イソセチル、12-ヒドロキシステアリン酸コレステリル、ジ-2-エチルヘキサン酸エチレングリコール、ジペンタエリスリトール脂肪酸エステル、モノイソステアリン酸N-アルキルグリコール、ジカプリン酸ネオペンチルグリコール、リンゴ酸ジイソステアリル、ジ-2-ヘプチルウンデカン酸グリセリン、トリ-2-エチルヘキサン酸トリメチロールプロパン、トリイソステアリ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、トリ-2-エチルヘキサン酸グリセリン、トリオクタン酸グリセリン、トリイソパルミチン酸グリセリン、トリイソステアリン酸トリメチロールプロパン、セチル2-エチルヘキサノエート、2-エチルヘキシルパルミテート、トリミリスチン酸グリセリン、トリ-2-ヘプチルウンデカン酸グリセライド、ヒマシ油脂肪酸メチルエステル、オレイン酸オレイル、アセトグリセライド、パルミチン酸2-ヘプチルウンデシル、アジピン酸ジイソブチル、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、アジピン酸ジ-2-ヘプチルウンデシル、エチルラウレート、セバシン酸ジ-2-エチルヘキシル、ミリスチン酸2-ヘキシルデシル、パルミチン酸2-ヘキシルデシル、アジピン酸2-ヘキシルデシル、セバシン酸ジイソプロピル、コハク酸2-エチルヘキシル、クエン酸トリエチル等が挙げられる。

[0049] シリコーン油としては、例えば、鎖状ポリシロキサン（例えば、ジメチルポリシロキサン、メチルフェニルポリシロキサン、ジフェニルポリシロキサン等）；環状ポリシロキサン（例えば、オクタメチルシクロテトラシロキサン、デカメチルシクロペンタシロキサン、ドデカメチルシクロヘキサシロキサン等）、3次元網目構造を形成しているシリコーン樹脂、シリコーンゴム

、各種変性ポリシロキサン（アミノ変性ポリシロキサン、ポリエーテル変性ポリシロキサン、アルキル変性ポリシロキサン、フッ素変性ポリシロキサン等）等が挙げられる。

[0050] 保湿剤としては、例えば、ポリエチレングリコール、プロピレングリコール、グリセリン、1,3-ブチレングリコール、キシリトール、ソルビトール、マルチトール、コンドロイチン硫酸、ヒアルロン酸、ムコイチン硫酸、カロニン酸、アテロコラーゲン、コレステリル-12-ヒドロキシステアレート、乳酸ナトリウム、胆汁酸塩、dl-ピロリドンカルボン酸塩、アルキレンオキシド誘導体、短鎖可溶性コラーゲン、ジグリセリン(E0)P0付加物、イザヨイバラ抽出物、セイヨウノコギリソウ抽出物、メリロート抽出物等が挙げられる。

[0051] 紫外線吸収剤としては、例えば、安息香酸系紫外線吸収剤（例えば、パラアミノ安息香酸(以下、PABAと略す)、PABAモノグリセリンエステル、N,N-ジプロポキシPABAエチルエステル、N,N-ジエトキシPABAエチルエステル、N,N-ジメチルPABAエチルエステル、N,N-ジメチルPABAブチルエステル、N,N-ジメチルPABAエチルエステル等）；アントラニル酸系紫外線吸収剤（例えば、ホモメンチル-N-アセチルアントラニレート等）；サリチル酸系紫外線吸収剤（例えば、アミルサリシレート、メンチルサリシレート、ホモメンチルサリシレート、オクチルサリシレート、フェニルサリシレート、ベンジルサリシレート、p-イソプロパノールフェニルサリシレート等）；桂皮酸系紫外線吸収剤（例えば、オクチルメトキシシンナメート、エチル-4-イソプロピルシンナメート、メチル-2,5-ジイソプロピルシンナメート、エチル-2,4-ジイソプロピルシンナメート、メチル-2,4-ジイソプロピルシンナメート、プロピル-p-メトキシシンナメート、イソプロピル-p-メトキシシンナメート、イソアミル-p-メトキシシンナメート、オクチル-p-メトキシシンナメート(2-エチルヘキシル-p-メトキシシンナメート)、2-エトキシエチル-p-メトキシシンナメート、シクロヘキシル-p-メトキシシンナメート、エチル- α -シアノ- β -フェニルシンナメート、2-エチルヘキシル- α -シアノ- β -フェニルシンナメート、グリセリルモノ-2-エチルヘキサノイル-ジパラメトキシシンナメート等）；ベ

ンゾフェノン系紫外線吸収剤（例えば、2,4-ジヒドロキシベンゾフェノン、2,2'-ジヒドロキシ-4-メト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、2,2',4,4'-テトラヒドロキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-メトキシ-4'-メチルベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノン-5-スルホン酸塩、4-フェニルベンゾフェノン、2-エチルヘキシル-4'-フェニル-ベンゾフェノン-2-カルボキシレート、2-ヒドロキシ-4-n-オクトキシベンゾフェノン、4-ヒドロキシ-3-カルボキシベンゾフェノン等）；3-(4'-メチルベンジリデン)-d, l-カンファー、3-ベンジリデン-d, l-カンファー；2-フェニル-5-メチルベンゾキサゾール；2,2'-ヒドロキシ-5-メチルフェニルベンゾトリアゾール；2-(2'-ヒドロキシ-5'-t-オクチルフェニル)ベンゾトリアゾール；2-(2'-ヒドロキシ-5'-メチルフェニルベンゾトリアゾール；ジベンザラジン；ジアニソイルメタン；4-メトキシ-4'-t-ブチルジベンゾイルメタン；5-(3,3-ジメチル-2-ノルボルニリデン)-3-ペンタン-2-オン、ジモルホリノピリダジノ；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；2,4-ビス-[[4-(2-エチルヘキシルオキシ)-2-ヒドロキシ]-フェニル]-6-(4-メトキシフェニル)-(1,3,5)-トリアジン等が挙げられる。

[0052] 具体的には、トリ2-エチルヘキサ酸グリセリル、セスキソステアリン酸ソルビタンなどがあげられる。

[0053] 本発明のエラストマー被覆無機粉末を配合した化粧品は、エラストマー被覆無機粉末以外に、必要に応じて、水、上記以外の粉末、界面活性剤、低級アルコール、多価アルコール、保湿剤、防腐剤、高分子（被膜剤を含む）、酸化防止剤、香料、その他の各種薬剤等を本発明の効果を損なわない質的、量的範囲で含有させることが可能である。

[0054] 化粧品としては、ファンデーション、アイシャドウ、チーク、日焼け止め、化粧水、美容液、パック、クレンジング、洗顔フォーム、ハンドクリーム、シャンプー、リンス等、任意の製品形態とすることができ、特に、ファンデーションとしての使用が好適である。

実施例

[0055] 以下、実施例を挙げて本発明について詳述するが、本発明はこれらにより何ら限定されるものではない。配合量は特記しない限り、その成分が配合される系に対する質量%で示す。

まず、以下の試験で用いた評価方法及び評価基準について説明する。

[0056] <エラストマー被覆試験>

試験方法は目視での観察および触感で元粉末とエラストマーが分離していないことを確認した。また元素分析で仕込み量に対して適切な量のエラストマーが被覆されていること、水に浮かべて撥水性を示すことを確認して被覆が適切であるか確認した。

○：エラストマーで粉末が被覆されている

×：エラストマーで粉末が被覆されていない

[0057] まず、本発明に係る組成物が、(A) アミノ基を有するシリコーンポリマーと、(B) カルボキシル基を有するシリコーンポリマーが、混合した際に、エラストマーとなる配合量について検討した。

[0058] 下記各表に記載する処方本発明に係るエラストマーは、下記製造方法に従って調製した。

<製造方法>

カルボキシル基を有するシリコーンポリマーと、アミノ基を有するシリコーンポリマーを加えて攪拌し、105℃にて12時間加熱することで、本発明に係るエラストマーを得た。

[0059] まず、本発明者は、(A) アミノ基を有するシリコーンポリマーと、(B) カルボキシル基を有するシリコーンポリマーがエラストマー状の性質を示すアミノ基とカルボキシル基のモル比 Y/X (Y は、(B)成分に含まれるカルボキシル基のモル量、 X は、(A)成分に含まれるアミノ基のモル量)について検討した。 Y/X は、NMRから求めたカルボキシル基当量、ジアミノ基当量から算出したカルボキシル基量 (mmol) / アミノ基量 (mmol) である。

以下の表1と表2に掲げる試験例の処方は以下の通りである。

[0060] [表1]

試験例	1-1	1-2	1-3	1-4	1-5	1-6
(A) アミノエチルアミノプロピルメチルシロキサン・ジメチルシロキサン共重合体(g) (*1)	2	1.8	1.6	1.4	1.2	1
(B) PCA ジメチコン(g) (*2)	-	0.2	0.4	0.6	0.8	1
Y/X X:アミンのモル量、Y:カルボン酸のモル量(NMRより算出)		0.03	0.07	0.12	0.18	0.27
状態	液状			エラストマー		

[0061] [表2]

試験例	1-7	1-8	1-9	1-10	1-11
(A) アミノエチルアミノプロピルメチルシロキサン・ジメチルシロキサン共重合体(*1)	0.8	0.6	0.4	0.2	-
(B) PCA ジメチコン(*2)	1.2	1.4	1.6	1.8	2
Y/X X:アミンのモル量、Y:カルボン酸のモル量(NMRより算出)	0.41	0.64	1.1	2.5	
状態	エラストマー			液状	

[0062] (*1) KF-8004 (信越化学工業株式会社)

KF-8004の¹H NMRを測定し、CH₃由来のシグナルと、-CH₂-由来のシグナルのそれぞれの積分値から、ジアミン当量を算出したところ、3090.4 g/molであった。

(*2) センサシルPCA (クローダ社)

センサシルPCAの¹H NMRを測定し、CH₃由来のシグナルと、-CH₂-由来のシグナルのそれぞれの積分値から、カルボキシル当量を算出したところ、5631 g/molであった。

[0063] 試験例1-4から1-9の範囲で、エラストマーとなることがわかった。

したがって、アミノ基とカルボキシル基のモル比が、Y/X=0.1~1.2が優れていることがわかった。

[0064] 次に、本発明者は、その他の(B)成分として、カルボキシル基を有するアクリルポリマーに置き換えることが可能であるか検討した。

[0065] [表3]

試験例	2-1	2-2	2-3	2-4	2-5	2-6	2-7	2-8
(A) アミノエチル アミノプロピ ルメチルシ ロキサン・ジ メチルシロ キサン共重 合体(*1)	1	1	1	1	1	1	1	1
(B) COOH含有 アクリルポリ マー(*3)	1	0.5	0.33	0.25	0.2	0.17	0.13	0.1
Y/X X:アミンのモル量 、Y:カルボン酸の モル量(NMRより 算出)	5.0	2.5	1.7	1.3	1.0	0.8	0.6	0.5
状態	硬い固体				エラストマー			

[0066] (*3) COOH含有アクリルポリマーは、以下の方法により得た。

1,2-メタクリルアミドドデカン酸 (MAD) / 2-アクリルアミド-2-メチルプロパンスルホン酸 (AMPS) コポリマー (90/10)、1,2-メタクリルアミドドデカン酸 (MAD) 18.50 g (65.37 mmol)、2-アクリルアミド-2-メチルプロパンスルホン酸 (AMPS: シグマアルドリッチ・ジャパン社製) 1.50 g (7.24 mmol)、水酸化ナトリウム 0.29 g (7.25 mmol)、アゾビスイソブチロニトリル (ナカライテスク社製) 0.30 g (1.83 mmol) を、メタノール 60.0 g に溶解した。アゾビスイソブチロニトリルは、定法に従い、メタノールから再結晶して用いた。

60分間アルゴンをバブルして脱気を行い、セプタムで容器に蓋をして 60°C で 20 時間加熱して重合した。重合反応終了後に大過剰のジエチルエーテル中に反応溶液を滴下して沈殿物を吸引ろ過で回収した。

減圧乾燥の後、ランダム状のCOOH含有アクリルポリマーを 15.2 g 得た (収率: 75.1%)。得られたCOOH含有アクリルポリマーは、重量平均分子量は 50000 だった。

[0067] このことから、カルボキシル基を有するアクリルポリマーでも、本発明に

係るエラストマーが得られることがわかった。

[0068] <エラストマー被覆無機粉末>

さらに、本発明者は、以下において、本発明に係るエラストマーを様々な (C) 無機粉末に被覆できるかどうか検討した。

[0069] <製造方法>

ヘンシャルミキサーに、(C) 各種無機粉末と、カルボキシル基を有するシリコーンポリマーを加え、低速にて、10分間混合する。そして、そこに、アミノ基を有するシリコーンポリマーを加えて、低速にて10分間混合し、加熱することで、本発明に係るエラストマー被覆無機粉末を得た。

[0070] [表4]

試験例		3-1	3-2	3-3
(A)	アミノエチルアミノプロピルメチルシロキサン・ジメチルシロキサン共重合体(g)(*1)	2	2	2
(B)	PCA ジメチコン(g)(*2)	3	3	3
(C)	タルク	95	-	-
	マイカ	-	95	-
	合成金雲母鉄	-	-	95
被覆状態		○	○	○

[0071] 表4中の各種無機粉体

タルク：タルクJA-68R（浅田製粉社製）

マイカ：PDM-9WA（トピー工業社製）

合成金雲母鉄：PDM-FE（トピー工業社製）

[0072] 試験例3-1～3-4より、本発明に係るエラストマーは、様々な(C)無機粉体を被覆することができると分かった。

[0073] <エラストマー被覆無機粉末配合化粧品>

本発明者は、本発明に係るエラストマー被覆無機粉末を化粧品に配合する

ことについて検討を行った。

[0074] <落下試験>

各試験例組成物を30cmの高さより5回落下させた際の製剤の破損について、下記の基準で評価した。

○：破損しない

×：破損する

[0075] <使用感触>

各試験例組成物を掌上に載せ、肌に塗布した際の粉っぽさのなさ、軽さ、滑らかさ、フィット感、肌なじみを総合した使用感触について、10名の専門パネルにより下記の基準で評価した。

◎：10名中9名以上が、使用感触が良いと回答した。

○：10名中6名以上9名未満が、使用感触が良いと回答した。

△：10名中3名以上6名未満が、使用感触が良いと回答した。

×：10名中3名未満が、使用感触が良いと回答した。

[0076] <乾式エラストマー被覆無機粉末配合化粧料の製造方法>

下記処方に示す粉末成分、油性成分とその他の成分をあらかじめヘンシェルミキサーにて混合した後、パルペライザーにて二回解砕した。得られた混合物を樹脂製の中皿容器に充填し、公知の方法で乾式プレス成型を行ない、固形状の粉末化粧料を得た。

[0077] 次に、本発明者は、本発明に係るエラストマー被覆無機粉末を化粧料に配合した場合に、得られた化粧料の使用感および落下安定性について検討を行った。

[0078]

[表5]

試験例	4-1	4-2	4-3	4-4
タルク(*4)	40	-	-	-
ステアリン酸カルシウム処理タルク(*6)	-	40	-	-
シリコーンエラストマー処理タルク(*7)	-	-	40	40
合成金雲母(*10)	残余	残余	残余	-
シリコーンエラストマー処理合成金雲母				残余
アルキル変性シリコーン処理酸化チタン(*11)	6	6	6	6
アルキル変性シリコーン処理ベンガラ(*13)	1.00	1.00	1.00	1.00
アルキル変性シリコーン処理酸化鉄(黄)(*14)	3.00	3.00	3.00	3.00
アルキル変性シリコーン処理酸化鉄(黒)(*15)	0.1	0.1	0.1	0.1
無水ケイ酸(*16)	3	3	3	3
メタクリル酸メチルクロスポリマー(*17)	9	9	9	9
トリ2-エチルヘキサン酸グリセリル(*20)	7	7	7	7
セスキイソステアリン酸ソルピタン(*22)	1	1	1	1
合計	100.00	100.00	100.00	100.00
落下	×	○	○	○
使用感触	△	○	◎	◎

[0079] (*4) タルク JA-68R (浅田製粉社製)

(*6) タルク ACS-515 (藤本化学製品社製)

(*7) エラストマー処理タルク (タルク JA-68R (A : 2%、B : 3%))

(*10) PDM-9WA (トピー工業社製)

(*11) EP1-CR-50P (大東化成工業社製)

(*13) EP1-ベンガラ #216P (大東化成工業社製)

(*14) EP1-オークル #1P (大東化成工業社製)

(*15) EP1-BL-100P (大東化成工業社製)

(*16) サンスフェア L-51S (AGCエスアイテック社製)

(*17) マイクロスフェア M-306 (松本油脂製薬社製)

(* 2 1) R A - G - 3 0 8 (日本精化社製)

(* 2 2) エステモール 1 8 2 V (日清オイリオグループ社製)

シリコーンエラストマー処理合成金雲母 (P D M - F E A : 2 %、 B : 3 %))

[0080] 本発明者は、これらの試験例 4 - 1 ~ 4 - 3 から、本発明であるエラストマー被覆した無機粉末を化粧品に配合すると、得られた化粧品が、使用感および落下安定性に非常に優れていることが分かった。

また、試験例 4 - 4 から、タルク以外の無機粉末を母核としたエラストマー被覆無機粉末を化粧品に配合した場合でも、使用感および落下安定性に優れた化粧品が得られることが分かった。

[0081] 本発明者は、その他の (B) 成分として、カルボキシル基を有するアクリルポリマーを用いた場合の化粧品についても検討した。

[0082] [表6]

試験例	5-1
アクリル-シリコーンエラストマー処理タルク(* 7)	40
合成金雲母(* 10)	残余
アルキル変性シリコーン処理酸化チタン(* 11)	6
アルキル変性シリコーン処理ベンガラ(* 13)	1.00
アルキル変性シリコーン処理酸化鉄(黄)(* 14)	3.00
アルキル変性シリコーン処理酸化鉄(黒)(* 15)	0.1
無水ケイ酸(* 16)	3
メタクリル酸メチルクロスポリマー(* 17)	9
トリ2-エチルヘキサン酸グリセリル(* 20)	7
セスキイソステアリン酸ソルビタン(* 22)	1
合計	100.00
落下	○
使用感触	◎

(* 7) アクリル-シリコーンエラストマー処理タルク (タルク J A - 6 8 R (A) : 4 . 5 %、 (B) : 0 . 5 %)

[0083] 試験例5-1から分かるように、カルボキシル基を有するアクリルポリマーを用いたエラストマーを被覆した無機粉末を化粧品に配合しても、得られた化粧品が、使用感および落下安定性に非常に優れていることが分かった。

[0084] さらに、本発明者は、(A)成分または、(B)成分のみを、(C)無機粉末を被覆し、該被膜無機粉末を化粧品に配合した場合に、本発明の効果を発揮する化粧品が得られるのかどうか検討を行った。

[0085] [表7]

試験例	6-1	6-2	6-3	6-4
タルク(*4)	40	-		-
アミノエチルアミノプロピルメチルシロキサン・ジメチルシロキサン共重合体(*1)処理タルク	-	40		-
PCA ジメチコン(*2)処理タルク			40	
シリコーンエラストマー処理タルク(*7)	-	-		40
合成金雲母(*10)	残余	残余	残余	残余
アルキル変性シリコーン処理酸化チタン(*11)	6	6	6	6
アルキル変性シリコーン処理ベンガラ(*13)	1.00	1.00	1.00	1.00
アルキル変性シリコーン処理酸化鉄(黄)(*14)	3.00	3.00	3.00	3.00
アルキル変性シリコーン処理酸化鉄(黒)(*15)	0.1	0.1	0.1	0.1
無水ケイ酸(*16)	3	3	3	3
メタクリル酸メチルクロスポリマー(*17)	9	9	9	9
トリ2-エチルヘキサン酸グリセリル(*20)	7	7	7	7
セスキイソステアリン酸ソルビタン(*22)	1	1	1	1
合計	100.00	100.00	100.00	100.00
落下	○	×	×	○
使用感触	△	○	△	◎

[0086] これらの試験例より、(A)成分または、(B)成分のみで、(C)無機粉末を被覆したものを化粧品に配合したとしても、本発明の効果を発揮する化粧品は得られなかった。

[0087] また、発明者は、本発明に係るエラストマー被覆無機粉末の配合した化粧品を得るために、エラストマーを形成する(A)アミノ基を有するシリコーン

ポリマーと (B) カルボキシル基を有するシリコーンポリマーの油分と、(C) 無機粉末、その他の油分とを混合する順序について検討した。

[0088] [表8]

試験例		7-1	4-3
	シリコーンエラストマー処理タルク	—	40
(A)	アミノ変性シリコーン	1.8	—
(B)	ピロリドンカルボン酸変性シリコーン	2.7	—
(C)	タルク(*4)	40	—
	合成金雲母(*10)	残余	残余
	アルキル変性シリコーン処理酸化チタン(*11)	6	6
	アルキル変性シリコーン処理ベンガラ(*13)	1	1
	アルキル変性シリコーン処理酸化鉄(黄)(*14)	3	3
	アルキル変性シリコーン処理酸化鉄(黒)(*15)	0.1	0.1
	無水ケイ酸(*16)	3	3
(D)	メタクリル酸メチルクロスポリマー(*17)	9	9
油分	トリ2-エチルヘキサン酸グリセリル(*20)	5	7
	セスキイソステアリン酸ソルビタン(*22)	1	1
	合計	100	100
評価	落下	○	○
	使用感触	◎	◎

[0089] 試験例7-1では、タルクから無水ケイ酸までの(C)無機粉末と、(D)有機粉末をヘンシェルミキサーで混合した後、(A)アミノ変性シリコーンを加えヘンシェルミキサーで混合した。

更に(B)ピロリドンカルボン酸変性シリコーンを加え、ヘンシェルミキサーにて混合した後、バットに取り出し、105℃12時間加熱し、エラストマー処理混合粉末を得た。

エラストマー処理混合粉末および残りの油分をヘンシェルミキサーにて混合した後、パルペライザーにて二回解砕した。

得られた粉末を樹脂製の中皿容器に充填し、公知の方法で乾式プレス成型を行ない、固形状の粉末化粧品を得た。

[0090] 本発明は、化粧品中に配合されるすべての(C)無機粉末、(D)有機粉末を一括してエラストマー被覆を施し、そこに他の油分を加えて化粧品を得ることもできる。すなわち、化粧品中のすべての無機粉末、有機粉末をあらかじめ混合し、得られた混合粉末にエラストマー形成油分を加え加熱し、エラストマー被覆混合粉末を得てから、(A)と(B)以外の油分を配合するこ

とで優れた使用感触、落下耐性を有する化粧料を得た。(試験例7-1)。

[0091] [表9]

試験例		7-2	4-3
	シリコンエラストマー処理タルク	—	40
(A)	アミノ変性シリコーン	0.8	—
(B)	ピロリドンカルボン酸変性シリコーン	1.2	—
(C)	タルク(*4)	38	—
	合成金雲母(*10)	残余	残余
	アルキル変性シリコーン処理酸化チタン(*11)	6	6
	アルキル変性シリコーン処理ベンガラ(*13)	1	1
	アルキル変性シリコーン処理酸化鉄(黄)(*14)	3	3
	アルキル変性シリコーン処理酸化鉄(黒)(*15)	0.1	0.1
	無水ケイ酸(*16)	3	3
(D)	メタクリル酸メチルクロスポリマー(*17)	9	9
油分	トリ2-エチルヘキサン酸グリセリル(*20)	5	7
	セスキイソステアリン酸ソルビタン(*22)	1	1
	合計	100	100
評価	落下	×	○
	使用感触	○△	◎

[0092] 試験例7-2では、タルクから無水ケイ酸までの(C)無機粉末をヘンシエルミキサーに加え、混合する。(A)、(B)のエラストマー形成油分と、その他の油分をあらかじめ混合してヘンシエルミキサーに加え、混合攪拌、パルペライザーにて2回解砕した。得られた粉末を樹脂製の中皿容器に充填し、公知の方法で乾式プレス成型を行ない、固形状の粉末化粧料を得た。

[0093] 一方で、本技術で用いられるエラストマー形成油分(A)、(B)を他の油分とともに加えてしまい、加熱する工程では本発明の目的の機能は得られない。すなわち、化粧料中の無機粉末、有機粉末を混合し、ここに(A)、(B)および他の油分を混合して添加し、加熱した場合、使用感触、落下耐性ともに劣化する化粧料を得た(試験例7-2)。

[0094] (C)さらに他の無機粉体をエラストマーで被覆したものを粉末固形化粧料に配合した場合の粉末固形化粧料の処方例を挙げる。

[0095]

[表10]

処方例	1-1	1-2	1-3	1-4
シリコーンエラストマー処理タルク(*7)	40	40	40	40
合成金雲母(*10)	-	残余	残余	残余
シリコーンエラストマー処理合成金雲母鉄	残余	-	-	-
シリコーンエラストマー処理窒化硼素	-	5	-	-
シリコーンエラストマー処理硫酸バリウム	-	-	5	-
アルキル変性シリコーン処理酸化チタン(*11)	6	6	6	-
アルキル変性シリコーン処理ベンガラ(*13)	1.00	1.00	1.00	-
アルキル変性シリコーン処理酸化鉄(黄)(*14)	3.00	3.00	3.00	-
アルキル変性シリコーン処理酸化鉄(黒)(*15)	0.1	0.1	0.1	0.1
シリコーンエラストマー処理酸化チタン				6
シリコーンエラストマー処理酸化鉄(赤)				1
シリコーンエラストマー処理酸化鉄(黄)				3
シリコーンエラストマー処理酸化亜鉛				3
無水ケイ酸(*16)	3	3	3	3
メタクリル酸メチルクロスポリマー(*17)	9	9	9	9
トリ2-エチルヘキサン酸グリセリル(*20)	7	7	7	7
セスキイソステアリン酸ソルビタン(*22)	1	1	1	1
合計	100.00	100.00	100.00	100.00

[0096] <その他のエラストマー被覆無機粉末配合化粧料の製造方法>

本エラストマー被覆無機粉末を配合した粉末固形化粧料は、特許第5422092号に記載の揮発性溶媒を用いたスラリーを乾燥して作製する製造方法、特許第5972437号に記載の揮発性溶媒を用いたスラリーを充填後除去して作製する製造方法を用いて製造できるかどうか検討した。

[0097] スラリーを乾燥して作製する製造方法の例

下記処方Aに示す粉末成分、油性成分とその他の成分をあらかじめヘンシェルミキサーにて混合した後、パルペライザーにて二回解砕した。開催した

粉末をエチルアルコール中に加え、ディスパーミキサーにて混合し、2 mm φのジルコニアビーズを充填した媒体攪拌ミル（サンドグラインダーミル）を用いて解砕／粉碎／分散を行ないスラリーを得た。スラリーを攪拌乾燥装置（スピンプラッシュド라이어、APV Nordic Anhyro社製）を用い、微小液滴の状態乾燥を行ない、乾燥粉末を得た。得られた乾燥粉末を樹脂製の中皿容器に充填し、公知の方法で乾式プレス成型を行ない、固形状の粉末化粧料を得た。

[0098] [表11]

処方A	
シリコーンエラストマー処理タルク	残余
硫酸バリウム	20
シリコーンエラストマー処理セリサイト	20
シリコーンエラストマー処理合成金雲母	5
合成フッ素金雲母	5
ミスチン酸亜鉛	2
窒化硼素	1
シリコーン処理酸化チタン	11
シリコーン処理酸化鉄（赤）	0.5
シリコーン処理酸化鉄（黄）	2.5
シリコーン処理酸化鉄（黒）	0.1
シリコーンエラストマー球状粉末	5
球状ナイロン粉末	5
ワセリン	1
スクワラン	2
リンゴ酸ジイソステアリル	1
オクチルメトキシシンナメート	1
ジメチコン	1
ソルビタンセスキイソステアレート	0.5
防腐剤	適量
酸化防止剤	適量
香料	適量
合計	100.00

[0099] スラリーを容器に充填後、溶媒を除去して作製する製造方法の例

下記処方Bに示す粉末成分、油性成分をヘンシェルミキサーにて混合した

後、パールライザーにて二回解砕した。この混合物に等量の水（＝揮発性分散媒）を添加し、ディスパーミキサーを用いて混合してスラリーを得た。このスラリーを中皿に充填し、前期溶媒を吸引除去した後乾燥を行ない、固形粉末化粧品を得た。

[0100] [表12]

処方B	
シリコーンエラストマー処理タルク	12.0
タルク	12.0
合成フッ素金雲母	10.0
合成フッ素金雲母鉄	10.0
窒化硼素	5.0
シリコーン処理酸化チタン(顔料級)	7.0
ステアリン酸アルミニウム処理二酸化チタン(超微粒子)	4.0
シリコーン処理酸化鉄(赤)	0.6
シリコーン処理酸化鉄(黄)	2.1
シリコーン処理酸化鉄(黒)	0.2
シリコーンエラストマー球状粉末	7.0
球状ナイロン粉末	7.0
クロルフェネシン	0.1
ジメチルポリシロキサン	3.0
メチルフェニルポリシロキサン	1.0
トリ2-エチルヘキサン酸グリセリル	4.0
オクチルメトキシシンナメート	5.0
合計	100%

[0101] 特許第5422092号に記載の揮発性溶媒を用いたスラリーを乾燥して作製する製造方法、特許第5972437号に記載の揮発性溶媒を用いたスラリーを充填後除去して作製する製造方法のいずれでも好適に化粧品を得ることができた。

[0102] (C) 無機粉体をエラストマーで被覆したものを固形アイライナーに配合した場合の粉末固形化粧品の処方例を挙げる。

[0103]

[表13]

処方例	2-1
ワセリン	3
硬化油	30
モクロウ	10
ステアリン酸	12
トリオクタン酸トリメチロールプロパン	5
雲母チタン	10
シリコーンエラストマー処理酸化チタン	2
シリコーンエラストマー処理酸化鉄(赤)	2
シリコーンエラストマー処理酸化鉄(黄)	0.5
酸化鉄(黒)	1
紺青	5
シリコーンエラストマー処理合成金雲母	残余
合計	100.00

請求の範囲

- [請求項1] (A) アミノ基を有するシリコンポリマーと、
(B) カルボキシル基を有するシリコンポリマー又はカルボキシル基を有するアクリルポリマーと、
からなるエラストマーであって、アミノ基とカルボキシル基のモル比が、 $Y/X = 0.1 \sim 1.2$ (Yは、(B)成分に含まれるカルボキシル基のモル量、Xは、(A)成分に含まれるアミノ基のモル量)の範囲にあることを特徴とするエラストマー。
- [請求項2] (C) 無機粉末の表面に、請求項1に記載のエラストマーで被覆されていることを特徴とするエラストマー被覆無機粉末。
- [請求項3] 請求項2に記載の被覆無機粉末において、エラストマーの量が(C)無機粉末の量に対して0.5~20質量%であることを特徴とするエラストマー被覆無機粉末。
- [請求項4] 請求項2または3のいずれかに記載の被覆無機粉末において、(C)無機粉末が、タルク、マイカ、合成金雲母鉄、セリサイト、硫酸バリウム、カオリン、酸化チタン、酸化亜鉛、酸化鉄であることを特徴とするエラストマー被覆無機粉末。
- [請求項5] 請求項2~4のいずれかに記載のエラストマー被覆無機粉末を配合する化粧料。
- [請求項6] (D) 有機粉末の表面に、請求項1に記載のエラストマーで被覆されていることを特徴とするエラストマー被覆有機粉末。
- [請求項7] (C) 無機粉末と、(B) カルボキシル基を有するシリコンポリマー又はカルボキシル基を有するアクリルポリマーとを混合する工程と、該混合物と(A) アミノ基を有するシリコンポリマーを混合し、加熱する工程と、を含むことを特徴とする請求項2記載のエラストマー被覆無機粉末の製造方法。
- [請求項8] (C) 無機粉末と、(A) アミノ基を有するシリコンポリマーとを混合する工程と、該混合物と(B) カルボキシル基を有するシリコ

ーンポリマー又はカルボキシル基を有するアクリルポリマーを混合し、加熱する工程と、を含むことを特徴とする請求項2記載のエラストマー被覆無機粉末の製造方法。

[請求項9] 請求項2に記載のエラストマー被覆無機粉末に、さらに、(A)と(B)以外の油分を混合する工程を含むことを特徴とするエラストマー被覆無機粉末配合化粧料の製造方法。

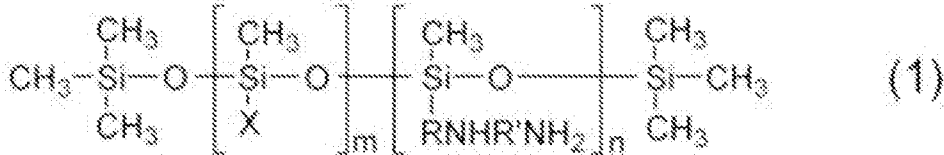
補正された請求の範囲

[2017年9月25日(25.09.2017)国際事務局受理]

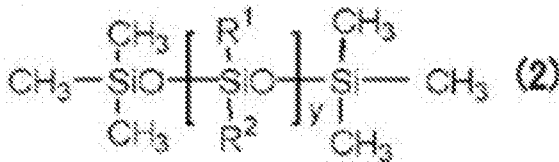
【書類名】

【請求項1】 (補正後)

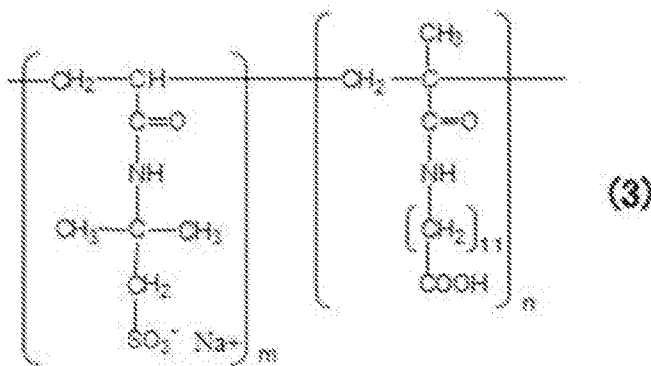
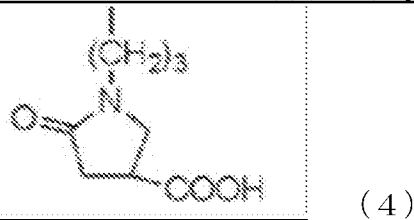
(A) 下記一般式(1)からなるアミノ基を有するシリコンポリマーと、
 (B) 下記一般式(2)からなるカルボキシル基を有するシリコンポリマー又は
 下記一般式(3)からなるカルボキシル基を有するアクリルポリマーと、
 からなるエラストマーであって、アミノ基とカルボキシル基のモル比が、 $Y/X = 0.1 \sim 1.2$ (Yは、(B)成分に含まれるカルボキシル基のモル量、Xは、(A)成分に含まれるアミノ基のモル量)の範囲にあることを特徴とするエラストマー。



(一般式(1)中、Xは炭素数1~18のアルキル基、R、R'はアルキル基である。)



(式中R1及びR2は、メチル基若しくは下記の(4)で表される基を示し、該基を1分子中に1~100含有し、yは1~50、000の整数を表す。)



【請求項2】

(C) 無機粉末の表面に、請求項1に記載のエラストマーで被覆されていることを特徴とするエラストマー被覆無機粉末。

【請求項3】

請求項2に記載の被覆無機粉末において、エラストマーの量が(C)無機粉末の量

に対して0.5～20質量%であることを特徴とするエラストマー被覆無機粉末。

【請求項4】

請求項2または3のいずれかに記載の被覆無機粉末において、(C)無機粉末が、タルク、マイカ、合成金雲母鉄、セリサイト、硫酸バリウム、カオリン、酸化チタン、酸化亜鉛、酸化鉄であることを特徴とするエラストマー被覆無機粉末。

【請求項5】

請求項2～4のいずれかに記載のエラストマー被覆無機粉末を配合する化粧品。

【請求項6】

(D)有機粉末の表面に、請求項1に記載のエラストマーで被覆されていることを特徴とするエラストマー被覆有機粉末。

【請求項7】(補正後)

(C)無機粉末と、(B)上記一般式(2)からなるカルボキシル基を有するシリコンポリマー又は上記一般式(3)からなるカルボキシル基を有するアクリルポリマーとを混合する工程と、該混合物と(A)上記一般式(1)からなるアミノ基を有するシリコンポリマーを混合し、加熱する工程と、を含むことを特徴とする請求項2記載のエラストマー被覆無機粉末の製造方法。

【請求項8】(補正後)

(C)無機粉末と、(A)上記一般式(1)からなるアミノ基を有するシリコンポリマーとを混合する工程と、該混合物と(B)上記一般式(2)からなるカルボキシル基を有するシリコンポリマー又は上記一般式(3)からなるカルボキシル基を有するアクリルポリマーを混合し、加熱する工程と、を含むことを特徴とする請求項2記載のエラストマー被覆無機粉末の製造方法。

【請求項9】

請求項2に記載のエラストマー被覆無機粉末に、さらに、(A)と(B)以外の油分を混合する工程を含むことを特徴とするエラストマー被覆無機粉末配合化粧料の製造方法。

条約第19条（1）に基づく説明書

請求の範囲の第1項は、（A）アミノ基を有するシリコーンポリマーと、（B）カルボキシル基を有するシリコーンポリマー又はカルボキシル基を有するアクリルポリマーの種類を特定した。

請求項7および請求項8も、同様に、（A）アミノ基を有するシリコーンポリマーと、（B）カルボキシル基を有するシリコーンポリマー又はカルボキシル基を有するアクリルポリマーの種類を特定した。

それに伴い請求の範囲の第2～9項は、引用する請求の範囲を補正した。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2017/019972

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C08G81/00(2006.01)i, A61K8/19(2006.01)i, A61K8/81(2006.01)i, A61K8/891(2006.01)i, A61K8/898(2006.01)i, A61Q1/00(2006.01)i, C08K3/00(2006.01)i, C08L33/14(2006.01)i, C08L83/06(2006.01)i, C08L83/08(2006.01)i
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)
C08G81/00-81/02, A61K8/00-8/99, A61Q1/00-1/14, C08K3/00-3/40, C08L33/00-33/26, C08L83/00-83/16

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2017
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2017 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2017

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII), CAplus/REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2007-302800 A (Kao Corp.), 22 November 2007 (22.11.2007), claims 1 to 5; paragraphs [0001], [0005], [0008], [0009], [0029], [0033]; examples; tables 1 to 3 (Family: none)	1-9
A	JP 2013-49658 A (San-Ei Kagaku Co., Ltd.), 14 March 2013 (14.03.2013), entire text (Family: none)	1-9

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

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

Date of the actual completion of the international search 12 June 2017 (12.06.17)	Date of mailing of the international search report 20 June 2017 (20.06.17)
--	---

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

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/019972

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 97/30934 A1 (Kao Corp.), 28 August 1997 (28.08.1997), entire text & JP 3332386 B & US 6090373 A1 entire text & EP 882673 A1 & DE 69733811 D & DE 69733811 T & AU 1673197 A & TW 474896 B & CN 1216515 A	1-9
A	JP 2004-182729 A (Toshiki Pigment Co., Ltd.), 02 July 2004 (02.07.2004), entire text (Family: none)	1-9
A	JP 2007-277415 A (Shiseido Co., Ltd.), 25 October 2007 (25.10.2007), entire text (Family: none)	1-9
A	JP 2009-179606 A (Kabushiki Kaisha System Toto, Fujikasei Co., Ltd., Shiseido Co., Ltd.), 13 August 2009 (13.08.2009), entire text (Family: none)	1-9
A	JP 2005-53736 A (Shiseido Co., Ltd.), 03 March 2005 (03.03.2005), entire text (Family: none)	1-9

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. C08G81/00(2006.01)i, A61K8/19(2006.01)i, A61K8/81(2006.01)i, A61K8/891(2006.01)i, A61K8/898(2006.01)i, A61Q1/00(2006.01)i, C08K3/00(2006.01)i, C08L33/14(2006.01)i, C08L83/06(2006.01)i, C08L83/08(2006.01)i

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））

Int.Cl. C08G81/00-81/02, A61K8/00-8/99, A61Q1/00-1/14, C08K3/00-3/40, C08L33/00-33/26, C08L83/00-83/16

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	1971-2017年
日本国実用新案登録公報	1996-2017年
日本国登録実用新案公報	1994-2017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）

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII), CPlus/REGISTRY (STN)

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	JP 2007-302800 A (花王株式会社) 2007. 11. 22, 請求項1~請求項5, 段落【0001】, 【0005】, 【0008】, 【0009】, 【0029】, 【0033】, 実施例, 表1-表3 (ファミリーなし)	1-9
A	JP 2013-49658 A (山栄化学株式会社) 2013. 03. 14, 文献全体 (ファミリーなし)	1-9

☑ 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矛盾するものではなく、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

12.06.2017

国際調査報告の発送日

20.06.2017

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)
 郵便番号100-8915
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

岡▲崎▼ 忠

電話番号 03-3581-1101 内線 3457

4 J

4515

C (続き) . 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	WO 97/30934 A1 (花王株式会社) 1997. 08. 28, 文献全体 & JP 3332386 B & US 6090373 A1, 文献全体 & EP 882673 A1 & DE 69733811 D & DE 69733811 T & AU 1673197 A & TW 474896 B & CN 1216515 A	1-9
A	JP 2004-182729 A (東色ピグメント株式会社) 2004. 07. 02, 文献全体 (ファミリーなし)	1-9
A	JP 2007-277415 A (株式会社資生堂) 2007. 10. 25, 文献全体 (ファミリーなし)	1-9
A	JP 2009-179606 A (株式会社システム・トート、不二化成株式会社、株式会社資生堂) 2009. 08. 13, 文献全体 (ファミリーなし)	1-9
A	JP 2005-53736 A (株式会社資生堂) 2005. 03. 03, 文献全体 (ファミリーなし)	1-9