

(12) 특허협력조약에 의하여 공개된 국제출원

(19) 세계지식재산권기구
국제사무국

(43) 국제공개일
2017년 4월 13일 (13.04.2017)



(10) 국제공개번호
WO 2017/061759 A1

(51) 국제특허분류:

C07C 231/02 (2006.01) A61K 8/41 (2006.01)
C07C 233/49 (2006.01) A61K 8/44 (2006.01)
B01J 23/02 (2006.01) A61Q 19/10 (2006.01)

(21) 국제출원번호: PCT/KR2016/011119

(22) 국제출원일: 2016년 10월 5일 (05.10.2016)

(25) 출원언어: 한국어

(26) 공개언어: 한국어

(30) 우선권정보:
10-2015-0141710 2015년 10월 8일 (08.10.2015) KR

(71) 출원인: 주식회사 엘지생활건강 (LG HOUSEHOLD & HEALTH CARE LTD.) [KR/KR]; 03184 서울시 종로구 새문안로 58, Seoul (KR).

(72) 발명자: 최정윤 (CHOI, Jung-Yoon); 34114 대전시 유성구 가정로 175, Daejeon (KR). 송미연 (SONG, Mi-Yeon); 34114 대전시 유성구 가정로 175, Daejeon (KR). 박지웅 (PARK, Ji-Ung); 34114 대전시 유성구 가정로 175, Daejeon (KR). 민두식 (MIN, Doo-Sik); 34114 대전시 유성구 가정로 175, Daejeon (KR). 정국인 (JEONG, Gug-In); 34114 대전시 유성구 가정로 175, Daejeon (KR).

(74) 대리인: 특허법인 필앤온지 (PHIL & ONZI INT'L PATENT & LAW FIRM); 06670 서울시 서초구 반포대로 63, 8층, Seoul (KR).

(81) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 국내 권리의 보호를 위하여): 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, JP, KE, KG, KN, KP, 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) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 역내 권리의 보호를 위하여): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), 유라시아 (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), 유럽 (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).

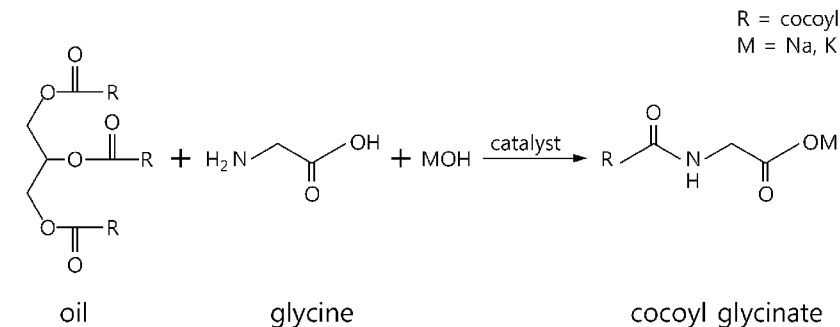
공개:

— 국제조사보고서와 함께 (조약 제 21 조(3))

— 청구범위 보정 기한 만료 전의 공개이며, 보정서를 접수하는 경우 그에 관하여 별도 공개함 (규칙 48.2(h))

(54) Title: METHOD FOR SYNTHESIZING ACYLGLYCINATE OR SALT THEREOF AND HUMAN DETERGENT COMPOSITION USING SAME

(54) 발명의 명칭 : 아실 글리시네이트 또는 이의 염의 합성 방법 및 이를 사용한 인체 세정제 조성물



(57) Abstract: The present invention relates to a method for synthesizing an acylglycinate salt, and a human body detergent composition using the same and, more particularly, to a method for synthesizing an acylglycinate salt having an improved reaction yield and product purity by using a small amount of a solvent which is safe on a human body, and a human body detergent composition using the same. The method for synthesizing an acylglycinate salt of the present invention can remarkably improve the reaction yield and the purity of the product while using a small amount of a dipropylene glycol solvent which is safe on a human body. In addition, the human body cleaning composition containing acylglycinate, obtained by the method for synthesizing an acylglycinate salt of the present invention, has low cytotoxicity and allergenicity and is hypoallergenic.

(57) 요약서: 본 발명은 아실 글리시네이트 염의 합성 방법 및 이를 사용한 인체 세정제 조성물에 관한 것으로, 보다 구체적으로 인체에 안전한 용제를 적은 양으로 사용하여 반응 수율 및 생성물의 순도를 향상시킨 아실 글리시네이트 염의 합성 방법 및 이를 사용한 인체 세정제 조성물에 관한 것이다. 본 발명의 아실 글리시네이트 염의 합성 방법은 인체에 안전한 디프로필렌글리콜 용제를 적은 양으로 사용하면서 반응 수율 및 생성물의 순도를 현저하게 향상시킬 수 있다. 또한, 본 발명의 아실 글리시네이트 염의 합성 방법을 사용하여 얻어진 아실 글리시네이트를 포함하는 인체 세정용 조성물은 세포 독성 및 알레르기 유발성이 낮고 피부 저자극성이다.



WO 2017/061759 A1

명세서

발명의 명칭: 아실 글리시네이트 또는 이의 염의 합성 방법 및 이를 사용한 인체 세정제 조성물

기술분야

- [1] 본 발명은 아실 글리시네이트 또는 이의 염의 합성 방법 및 이를 사용한 인체 세정제 조성물에 관한 것으로, 보다 구체적으로 인체에 안전한 용제를 적은 양으로 사용하여 반응 수율 및 생성물의 순도를 향상시킨 아실 글리시네이트 또는 이의 염의 합성 방법 및 이를 사용한 인체 세정제 조성물에 관한 것이다.
- [2] 본 출원은 2015년 10월 8일에 출원된 한국특허출원 제10-2015-0141710호에 기초한 우선권을 주장하며, 해당 출원의 명세서 및 도면에 개시된 모든 내용은 본 출원에 원용된다.

배경기술

- [3] 아실 아미노산 염류는 우수한 수용성, 세정력, 및 기포성을 가지며, 특히 이들은 다른 계면활성제에 비해 피부에 저자극성이다. 그 중 아실 글리시네이트 염류는 중성 pH에서 많이 쓰이며, 인체 콜라겐을 구성하는 아미노산 가운데 38% 정도로 가장 비율이 높다.
- [4] 하지만 아실 아미노산 염류는 제조 비용이 고가이기 때문에, 그 사용량 및 정도가 한정되고 있다. 미국특허 US 6,703,517 B2에는 현재까지 대부분의 상업적 아실 아미노산 염의 합성 경로가 개시되어 있다. 상기 미국특허에 개시된 합성 방법은 아미노산을 아실 클로라이드와 반응시키는 방법이며, 반응시 발생하는 염화수소를 제거하기 위해서 물 당량의 염기를 첨가해야 한다. 이러한 합성 방법은 부생성물이 발생하여 폐기물 처리의 문제로 인한 부가 비용이 발생하는 단점이 있다.
- [5] 국제공개특허 WO 2013/014268 A1호에는 글리세롤, 프로필렌글리콜, 또는 이들이 조합된 매체 가운데 하나에 글리신 또는 그 염과 지방 오일 혼합물을 반응시켜 아실 글리신산 또는 그 염을 형성시키는 공정, 및 생성된 혼합물로부터 아실 글리신산 또는 그 염을 회수하는 공정이 개시되어 있다. 그러나 상기 합성 방법은 용제의 물비를 글리신 대비 8:1 내지 1:1(용제:글리신)로 사용하여 사용되는 용제의 양이 과다하고, 용제로 사용되는 프로필렌글리콜은 안 자극성 및 피부 자극성을 가지는 단점이 있다. 또한 프로필렌글리콜은 분자량이 작고 끓는 점이 상대적으로 낮아(188°C), 반응 시 증발로 인한 수율이 감소하며, 합성 재현성이 낮은 문제가 있다.

발명의 상세한 설명

기술적 과제

- [6] 본 발명이 해결하고자 하는 과제는 종래의 아실 클로라이드를 사용한 합성법을 대신하여, 보다 안전한 용제를 적은 양으로 사용하면서 반응 수율 및 생성물의

순도는 향상시킨 아실 글리시네이트 또는 이의 염의 제조방법을 제공하는 것이다.

과제 해결 수단

- [7] 본 발명은 상기 기술적 과제를 해결하기 위해, 디프로필렌글리콜을 포함하는 용제에 글리신과 지방산 에스테르의 혼합물을 반응시키는 단계를 포함하는 아실 글리시네이트 또는 이의 염의 제조 방법을 제공한다.
- [8] 본 발명자들은 상기 종래기술들의 문제점을 극복하기 위하여 예의 연구 노력하였으며, 디프로필렌글리콜을 반응매체로 선택하여 글리신 및 지방산 에스테르의 반응을 수행하였다. 연구 결과, 본 발명의 제조 방법은 인체에 안전한 디프로필렌글리콜 용제를 기존에 비해 적은 양으로 사용하면서, 생성물인 아실 글리시네이트를 높은 순도로 반응 수율을 현저하게 향상시킬 수 있는 놀라운 발견을 하여, 본 발명을 완성하게 되었다.
- [9]
- [10] 본 발명은 디프로필렌글리콜을 포함하는 용제에 글리신과 지방산 에스테르의 혼합물을 반응시키는 단계를 포함하는 아실 글리시네이트 또는 이의 염의 제조 방법을 제공한다.
- [11] 본 발명에 있어서, 상기 지방산 에스테르는 C8-C22 지방산을 포함하는 C1-C3 알킬 에스테르를 사용할 수 있으며, 이는 모노글리세라이드, 디글리세라이드, 및 트리글리세라이드로 이루어진 군에서 선택된 어느 하나 이상을 포함할 수 있다.
- [12] 상기 지방산 에스테르는 라우린산 메틸, 올레인산 메틸, 리놀산 메틸, 미리스트산 메틸, 스테아린산 메틸, 팔미트산 메틸, 라우린산 에틸, 올레인산 에틸, 리놀산 에틸, 스테아린산 에틸, 팔미트산 에틸, 라우린산 n-프로필, 올레인산 n-프로필, 리놀산 n-프로필, 라우린산 이소프로필, 올레인산 이소프로필, 리놀산 이소프로필, 미리스트산 이소프로필, 스테아린산 이소프로필, 및 팔미트산 이소프로필 등으로 이루어진 군에서 선택된 어느 하나 이상을 포함할 수 있다.
- [13] 또한, 상기 지방산 에스테르는 코코넛오일, 옥수수기름, 팜핵유, 팜유, 콩기름, 면실유, 채종유, 카놀라유, 해바라기 종자유, 참기름, 미강유, 올리브유, 탈로유, 및 피마자유 등으로 이루어진 군에서 선택된 어느 하나 이상으로부터 유래된 지방산 에스테르, 바람직하게는 트리글리세라이드를 포함할 수 있으며, 더욱 바람직하게는 코코넛오일 또는 팜핵유로부터 유래된 트리글리세라이드를 사용할 수 있다.
- [14] 본 발명에 있어서, 상기 제조 방법의 반응 시간은 4시간 미만으로 반응시킬 수 있으며, 1 내지 3.8 시간, 바람직하게는 1.5 내지 3.5 시간 동안 반응시킬 수 있다. 상기 반응 시간이 1 시간 미만일 경우에는 반응이 충분히 일어나지 않고, 4 시간 이상일 경우에는 반응물의 색상이 갈변되는 문제가 발생한다.
- [15] 본 발명에 있어서, 상기 제조 방법의 반응 온도는 140°C 미만으로 반응시킬 수

- 있으며, 110 내지 138°C, 바람직하게는 115 내지 135°C의 온도에서 반응시킬 수 있다. 상기 반응 온도가 110°C 미만일 경우에는 반응이 충분히 일어나지 않고, 140°C 이상일 경우에는 반응물의 색상이 갈변되는 문제가 발생한다.
- [16] 본 발명에 있어서, 상기 제조 방법의 용제의 몰수는 글리신 몰수의 2배 미만으로 사용될 수 있다. 보다 구체적으로, 용제와 글리신의 몰비는 1.8:1 내지 0.3:1, 바람직하게는 1.5:1 내지 0.4:1, 더욱 바람직하게는 1:1 내지 0.5:1(용제:글리신)의 몰비로 반응시킬 수 있다.
- [17] 상기 용제의 몰수가 글리신 몰수의 2배 이상일 경우에는 용제의 양이 과다하여 최종 제품의 점도 하락으로 처방에 적용 시 증점이 어려워지는 문제가 생기며, 용제의 몰비가 0.3:1(용제:글리신)에 미달할 경우에는 반응이 불충분하게 일어나는 문제가 발생한다.
- [18] 본 발명에 있어서, 반응물인 상기 글리신 및 지방산 에스테르의 몰비는 1.5:1 내지 0.5:1, 바람직하게는 1.2:1 내지 0.8:1(글리신:지방산 에스테르)일 수 있다. 반응물이 상기 몰비 범위를 벗어날 경우에는 반응이 불충분하게 일어나 반응 수율이 감소하는 문제가 발생한다.
- [19] 본 발명에 있어서, 상기 제조 방법은 반응 수율 및 반응 속도를 개선하기 위해 염기성 촉매를 추가적으로 포함할 수 있다. 상기 염기성 촉매는 알칼리 금속 또는 알칼리 토금속을 포함하는 수산화물, 인산염, 유산염, 및 산화물로 이루어진 군에서 선택된 어느 하나 이상을 포함할 수 있다. 보다 구체적으로, 상기 염기성 촉매는 산화 칼슘, 산화 마그네슘, 산화 발륨, 산화 칼륨, 수산화 나트륨, 수산화 칼슘, 수산화 마그네슘, 인산 칼슘, 인산 마그네슘, 및 소듐 메톡사이드 등으로 이루어진 군에서 선택되는 어느 하나 이상을 포함할 수 있다. 바람직하게는 상기 염기성 촉매로 수산화 나트륨, 수산화 칼륨, 또는 소듐 메톡사이드를 사용할 경우 반응 수율이 높다.
- [20] 상기 염기성 촉매는 글리신 중량 대비 0.5 내지 10 중량%, 바람직하게는 0.7 내지 7 중량%, 더욱 바람직하게는 1 내지 5 중량%로 포함될 수 있다. 상기 염기성 촉매가 글리신 중량 대비 0.5 중량% 미만일 경우에는 반응 수율이 감소하며, 10 중량% 초과일 경우에는 촉매량을 증가시키더라도 효과가 더 이상 향상되지 않는다.
- [21] 본 발명의 아실 글리시네이트 또는 이의 염의 제조 방법은 반응 수율 및 반응 속도를 향상시키기 위하여 글리신과 지방산 에스테르의 반응 단계 전에 글리신에 중화제를 첨가하여 중화시키는 단계를 추가적으로 포함할 수 있다. 상기 중화제는 통상적인 중화 반응에 사용되는 NaOH 또는 KOH 등이 사용될 수 있으며, 사용되는 중화제의 몰수는 반응물인 글리신의 몰수와 동일하게 사용하는 것이 바람직하다. 상기 중화 반응 이후에 생성된 물은 예를 들어 Dean stark trap 등의 장비를 통해 제거할 수 있다.
- [22] 또한, 본 발명의 아실 글리시네이트 또는 이의 염의 제조 방법은 생성물을 높은 순도로 제조할 수 있으며, 글리세린을 포함하는 부산물을 소량 생성할 수 있다.

상기 글리세린을 포함하는 부산물은 생성물 총 중량 대비 20 중량% 미만으로 포함될 수 있으며, 구체적으로 3 내지 18 중량%, 바람직하게는 5 내지 15 중량%, 더욱 바람직하게는 8 내지 12 중량%로 포함될 수 있다. 바람직하게, 상기 부산물은 모노글리세라이드, 디글리세라이드, 포타슘 글리시네이트, 또는 이들의 혼합물을 더 포함할 수 있다.

[23] 또한, 본 발명의 아실 글리시네이트 또는 이의 염의 제조 방법의 반응 수율은 80% 이상, 바람직하게는 90% 이상, 더욱 바람직하게는 95% 이상이다. 본 발명의 제조 방법은 적은 양의 용제를 사용하면서도 상기와 같이 높은 반응 수율을 나타내는 장점이 있다.

[24] 또한, 본 발명의 제조 방법에 따라 제조된 아실 글리시네이트 또는 이의 염은 용제로 글리세린 및 프로필렌글리콜이 아닌 디프로필렌글리콜을 사용함으로써 세포 독성 및 알레르기 유발성이 매우 낮으며, 안자극성 및 피부자극성 또한 현저하게 낮은 장점이 있다.

[25] 본 발명은 (s1) 글리신에 중화제를 부가하여 중화시키는 단계; (s2) 상기 (s1) 단계의 중화된 글리신에 디프로필렌글리콜, 지방산 에스테르, 및 염기성 촉매를 혼합시키는 단계; (s3) 상기 (s2) 단계의 혼합물을 1.5 내지 3.5 시간 동안 115 내지 135°C의 온도에서 반응시키는 단계를 포함하는 아실 글리시네이트 또는 이의 염의 제조 방법을 제공한다. 상기 (s1) 단계에서 중화제는 NaOH 또는 KOH 등이 사용될 수 있으며, 중화 반응 이후 생성된 물은 예를 들어 Dean stark trap으로 진공을 통해 제거할 수 있다. 반응의 진행 정도는 아마이드화 반응에 따른 아민가 변화를 통해 측정할 수 있으며, 생성물인 아실 글리시네이트는 적외선 분광법, 액체 크로마토그래피로 확인할 수 있으며, 반응 부산물은 가스 크로마토그래피로 확인할 수 있다.

[26]

[27] 또한, 본 발명은 상기 아실 글리시네이트 또는 이의 염의 제조 방법을 사용하여 얻어진 아실 글리시네이트 또는 이의 염을 포함하는 조성물을 제공한다. 상기 조성물은 본 발명의 제조 방법으로부터 생성된 글리세린을 포함하는 부산물을 생성물 총 중량 대비 3 내지 18 중량%, 바람직하게는 5 내지 15 중량%, 더욱 바람직하게는 8 내지 12 중량%로 포함할 수 있다. 바람직하게, 상기 부산물은 모노글리세라이드, 디글리세라이드, 포타슘 글리시네이트, 또는 이들의 혼합물을 더 포함할 수 있다.

[28] 상기 조성물에 포함되는 아실 글리시네이트는 중성 pH에서 사용되는 계면활성제로서 다른 계면활성제에 비해 수용성, 세정력, 및 기포성이 우수하며 피부에 저자극성이다. 따라서, 상기 본 발명에 따른 조성물은 인체 세정용 조성물에 포함되어 사용될 수 있다.

[29] 또한 본 발명에 따른 인체 세정용 조성물은 세정 성분으로서 음이온성 계면활성제를 포함할 수 있으며, 바람직하게 음이온성 계면활성제의 함량은 조성물 총 중량 대비 1 내지 50 중량%이다. 그 함량이 1 중량% 미만인 경우에는

세정력이 미미하며, 50 중량%를 초과하는 경우에는 세정력이 과도하여 피부, 모발 또는 두피에 거친 느낌을 줄 수 있어 바람직하지 않다.

[30] 본 발명에 사용될 수 있는 상기 음이온성 계면활성제로는, 통상적인 인체 세정용 조성물, 샴푸 조성물 등에 사용될 수 있는 것이면 특별히 제한되지 않으며, 예를 들어, 라우릴황산나트륨, 라우릴황산암모늄, 라우릴황산마그네슘, 라우릴황산트리에탄올아민, 폴리옥시에틸렌라우릴황산나트륨, 및 폴리옥시에틸렌라우릴황산암모늄 등으로 이루어진 군에서 선택된 하나 이상의 음이온성 계면활성제를 본 발명의 목적을 저해하지 않는 범위 내에서 단독 또는 혼합하여 사용할 수 있으나, 상기 구체적 종류에 한정된 것은 아니다.

[31] 또한, 본 발명에 따른 인체 세정용 조성물은 세정력 증가 등의 목적으로 비이온성 계면활성제 및/또는 양쪽성 계면활성제를 추가로 포함할 수 있으며, 예를 들어, 라우릴산디에탄올아미드, 야자유지방산디에탄올아미드, 야자유지방산모노에탄올아미드 등과 같은 비이온성 계면활성제; 및 베타인, 아미도 프로필 베타인, 코코암포카르복시 글리시네이트, 사코시네이트 등과 같은 양쪽성 계면활성제로 이루어진 군에서 선택된 하나 이상의 계면활성제를 본 발명의 목적을 저해하지 않는 범위 내에서 단독 또는 혼합 사용할 수 있으나, 상기 구체적 종류에 한정된 것은 아니다.

[32] 또한 본 발명에 따른 인체 세정용 조성물은 컨디셔닝 성분으로서 통상적인 인체 세정용 조성물, 샴푸 조성물 등에 사용될 수 있는 실리콘 화합물; 탄화수소 오일, 합성 에스테르 오일 등의 유성 오일 등을 포함할 수 있으며, 예를 들어, 수불용성 비휘발성의 디메치콘, 사이클로메치콘, 아미노화 실리콘, 트리메틸실릴아모디메치콘, 비닐 실리콘 등의 실리콘 및 이들의 유도체 등으로 이루어진 군에서 선택된 하나 이상의 실리콘 화합물; 유동파라핀(미네랄 오일), 이소파라핀, 수소화된 폴리데센(Hydrogenated Polydecene) 등의 탄화수소 오일; 및 미리스틴산이소프로필, 팔미틴산이소프로필, 이소스테아린산이소스테아릴, 탄소수 12-15의 알킬 벤조에이트 등의 에스테르 오일 등으로 이루어진 군에서 선택된 하나 이상의 성분을 본 발명의 목적을 저해하지 않는 범위 내에서 단독 또는 혼합하여 사용할 수 있으나, 상기 구체적 종류에 한정된 것은 아니다.

[33] 또한 본 발명에 따른 인체 세정용 조성물은 그 물성 및 사용감을 조절하기 위한 목적으로 통상적인 인체 세정용 조성물, 샴푸 조성물 등에 사용될 수 있는 천연 양이온성 폴리머, 합성 양이온성 폴리머 등의 양이온성 폴리머를 포함할 수 있으며, 예를 들어, 구아 하이드록시프로필트리모늄 클로라이드, 하이드록시프로필 구아 하이드록시프로필트리모늄 클로라이드 등의 양이온 구아, 셀룰로스(폴리쿼터늄-10) 등의 천연 양이온성 폴리머; 및 디메틸디알릴암모늄클로라이드 폴리머, 아크릴아미드-디메틸디알릴암모늄 클로라이드 코폴리머, PVP-디메틸아미노에틸메타크릴레이트 코폴리머, 아크릴산-디메틸디알릴암모늄 클로라이드 코폴리머, 아크릴아미드-디메틸아미노 에틸메타크릴레이트 메틸 클로라이드 코폴리머,

트리메틸아미노에틸메타크릴레이트 폴리머 등의 합성 양이온성 폴리머 등으로 이루어진 군에서 선택된 하나 이상의 양이온성 폴리머를 본 발명의 목적을 저해하지 않는 범위 내에서 단독 또는 혼합하여 사용할 수 있으나, 상기 구체적인 종류에 한정된 것은 아니다.

- [34] 또한, 본 발명에 따른 인체 세정용 조성물은 통상적인 샴푸 조성물 등에 사용될 수 있는 방부제, 점증제, 점도 조정제, pH 조정제, 향료, 염료, 컨디셔닝제 등의 첨가제를 더 포함할 수 있으며, 예를 들어, 파라옥시안식향산메틸, 메틸클로로이소티아졸리논, 메틸이소티아졸리논의 혼합물(상품명: Kathon CG, 제조회사: 미국 롬앤하스사) 등의 방부제; 하이드록시프로필메틸셀룰로오스, 하이드록시메틸셀룰로오스, 염화나트륨, 염화암모늄, 프로필렌글리콜, 헥실렌글리콜 등의 점증제와 점도 조정제; 구연산, 수산화나트륨, 트리에탄올아민 등의 pH 조정제; 수용성 타르 색소 등의 염료; 동식물성 추출물, 단백질, 단백질 변형체, 고급 지방산(Fatty Acid) 등의 컨디셔닝제와 같은 첨가제를 사용할 수 있다.

- [35] 또한, 본 발명에 따른 인체 세정용 조성물은 피부 및 모발에 유연, 항균, 방취, 방향, 발수, 자외선 차단 등의 유익한 특성을 제공하는 성분들을 더 포함할 수 있으나, 이러한 구체적인 종류에 한정된 것은 아니다.

발명의 효과

- [36] 본 발명의 아실 글리시네이트 또는 이의 염의 합성 방법은 인체에 안전한 디프로필렌글리콜 용제를 적은 양으로 사용하면서 반응 수율 및 생성물의 순도를 현저하게 향상시킬 수 있다.

- [37] 또한, 본 발명의 아실 글리시네이트 또는 이의 염의 합성 방법을 사용하여 얻어진 아실 글리시네이트를 포함하는 인체 세정용 조성물은 세포 독성 및 알레르기 유발성이 낮고 피부 저자극성이다.

도면의 간단한 설명

- [38] 도 1은 본 발명의 아실 글리시네이트 또는 이의 염의 합성 방법에 따른 cocoyl glycinate의 합성 공정도를 나타낸 것이다.
- [39] 도 2는 적외선 흡수분광법을 통해 반응물 및 생성물의 흡수 스펙트럼을 측정한 결과를 도시한 그래프이다.
- [40] 도 3은 coconut oil에 대한 액체 크로마토그래피 결과를 나타낸 그래프이다.
- [41] 도 4는 potassium cocoyl glycinate에 대한 액체 크로마토그래피 결과를 나타낸 그래프이다.
- [42] 도 5는 Standard(DPG, Glycerin)에 대한 가스 크로마토그래피 결과를 나타낸 그래프이다.
- [43] 도 6은 potassium cocoyl glycinate에 대한 가스 크로마토그래피 결과를 나타낸 그래프이다.

발명의 실시를 위한 형태

- [44] 이하, 본 발명의 이해를 돕기 위하여 실시예 등을 들어 상세하게 설명하기로 한다. 그러나, 본 발명에 따른 실시예들은 여러 가지 다른 형태로 변형될 수 있으며, 본 발명의 범위가 하기 실시예들에 한정되는 것으로 해석되어서는 안 된다. 본 발명의 실시예들은 당업계에서 평균적인 지식을 가진 자에게 본 발명을 보다 완전하게 설명하기 위해 제공되는 것이다.
- [45]
- [46] **합성 방법과 생성물의 확인 및 평가**
- [47] 아실 글리시네이트 제조를 위해 글리신에 sodium hydroxide 또는 potassium hydroxide를 부가하여 중화시킨 후 생성되는 물을 진공을 통해 제거하였다. 이후 디프로필렌글리콜 및 지방 오일을 첨가하고 반응 촉매로 NaOH, KOH, 또는 NaOCH₃을 사용하였다. 반응의 진행 정도는 반응 진행에 따른 글리신의 아민기의 아미드 결합에 의한 혼합물의 아민가 변화를 조사하여 파악하였다.
- [48] 생성물의 확인은 Infrared Spectroscopy 및 Liquid Chromatography를 통해 확인하였고, Gas Chromatography를 통해 반응 부산물인 글리세린을 확인하였다. 또한 안전성 실험을 위해 세포독성 평가, 알레르기 평가, 및 HET-CAM 테스트를 진행하였다.
- [49]
- [50] **합성 조건 최적화를 위한 실험**
- [51] 최적화된 합성 조건을 찾기 위해 디프로필렌글리콜과 촉매의 투입 여부, 반응 시간 및 온도에 따른 반응 수율과 색상을 측정하여, 하기 표 1에 그 결과를 나타내었다. 모든 실험은 250mL round bottom flask에서 진행하였다.

[52] [표1]

No.	오일	디프로필렌글리콜(DPG)	NaOCH ₃ ²	반응시간(h)	반응온도(°C)	수율(%)	color scale (Gardener 3.0)
1	Coconut	X	O	3	150	45	4.2
2	Coconut	O	O	3	150	99	4.0
3	Coconut	O ¹	O	3	120	98	2.1
4	Coconut	O	X	3	120	21	1.9
5	Coconut	O	X	3	160	27	4.5
6	Coconut	O	O	3	130	98	2.3
7	Coconut	O	O	3	120	82	1.3
8	Coconut	O	O	5	110	30	1.1
9	Coconut	O	O	2	130	98	2.0
10	Palm kernel	X	O	3	150	32	4.8
11	Palm kernel	O	X	3	150	25	4.2
12	Palm kernel	O	O	4	130	90	3.3
13	Palm kernel	O	O	3	130	83	2.8

[53] ¹: 글리신 중량 대비 최대 100 중량%의 DPG를 투입[54] ²: 30% solution in Methanol

[55] 상기 표 1에 나타난 결과를 볼 때, DPG 용제를 사용하고 NaOCH₃ 촉매를 사용하면서, 2~3 시간 동안 120 내지 130°C의 온도에서 반응시켰을 때, 95% 이상의 높은 수율을 얻을 수 있으며 목적하는 색상이 나타나는 것을 알 수 있었다.

[56] 또한, 상기와 동일한 조건으로 용제만 달리하여 반응 수율과 색상을 측정한 결과를 하기 표 2에 나타내었다.

[57] [표2]

N o.	오 일	용 제 ¹	NaOC H ₃	반응 시 간(h)	반응 온 도(°C)	수 율(%)	color scale (Gard ener 3.0)
1	Coconu t	MeOH*	O	2	130	5	3.3
2	Coconu t	EtOH*	O	2	130	7	3.5
3	Coconu t	Isopropanol*	O	2	130	7	3.4
4	Coconu t	1,2-Isopropylideneglycerol	O	2	130	8	3.9
5	Coconu t	DMSO	O	2	130	7	4.1
6	Coconu t	1,3-propandiol	O	2	130	34	3.5
7	Coconu t	benzyl alcohol	O	2	130	41	2.9
8	Coconu t	water*	O	2	130	5	1.8

[58] ¹: 처방량은 표 1의 DPG와 동일

[59] *: 용제의 끓는점보다 높아서 환류(reflux)

[60] 상기 표 2에 나타난 결과를 볼 때, DPG 외에 다른 용제를 사용할 경우 반응 수율이 대부분 10% 미만 또는 30~40% 정도로 나타나, DPG가 가장 적절한 용제인 것을 알 수 있었다.

[61]

[62] 아민가의 측정 방법

[63] 아민가는 시료 1g에 포함되어 있는 미반응 아민 등을 중화하는데 필요한 HCl의 소비 mg수를 말한다. 아민가의 측정은 산가 측정과 같은 방법으로 시료를 준비한 후, 0.1N HCl 수용액으로 적정하여 소비된 0.1N HCl의 ml를 하기 수학적 식 1에 대입하여 측정할 수 있다.

[64] [수학적 식 1]

[65]

$$\text{아민가} = \frac{\text{소비ml} \times f \times 5.61}{\text{Sample 무게(g)}}$$

[66] (f: 0.1N KOH 또는 HCl의 factor)

[67]

[68] 적외선 분광 데이터(**Infrared Spectroscopy Data**) 분석

[69] 합성 결과물의 확인은 적외선 흡수분광법(IR Spectrophotometer, AVATAR 320 FT-IR, Nicolet社)을 이용하여 실시하였다. 반응물인 coconut oil과 생성물인 cocoyl glycinate의 흡수 스펙트럼을 비교하였으며, 그 결과를 도 2에 나타내었다.

[70] 도 2에서 위쪽 스펙트럼은 coconut oil이며 아래쪽 스펙트럼은 cocoyl glycinate이다. coconut oil에서 1번 피크는 에스테르 결합에서의 C=O을 나타낸다. 합성 후 새롭게 생성된 2, 3번 피크는 아미도 결합에서 각각 C=O와 N-H을 나타내며, 4번 피크는 카르복실 그룹화된 C=O를 나타낸다. 이러한 결과로부터, 반응물인 coconut oil에서 생성물인 cocoyl glycinate가 합성된 것을 확인할 수 있다.

[71]

[72] 액체 크로마토그래피 데이터(**Liquid Chromatography Data**) 분석

[73] 합성 결과물을 확인하기 위해, 고성능액체크로마토그래피(High Performance Liquid Chromatography, HPLC, Agilent)를 이용하였다. 액체 크로마토그래피 측정 결과 가운데 반응물(coconut oil)은 도 3에, 생성물(potassium cocoyl glycinate)은 도 4에 나타내었다.

[74] 도 3 및 도 4에 나타난 결과를 볼 때, 도 3에서 coconut oil은 탄소 분포대로 30분 이후에 검출된 반면, 도 4에서 생성물인 코코일 글리시네이트로 합성된 이후에는 20분 이후 쪽으로 검출 피크가 이동하여 합성되었음을 확인하였다.

[75]

[76] 가스 크로마토그래피 데이터(**Gas Chromatography Data**) 분석

[77] 가스 크로마토그래피로 Standard(DPG, glycerin)와 반응 생성물을 분석하였다. 가스 크로마토그래피는 Agilent 7890A GC-FID 모델을 사용하여 수행하였다. 반응 생성물의 그래프를 Standard와 비교 분석하여 반응 부산물을 확인하였다. 도 5에 Standard(DPG, glycerin)의 가스 크로마토그래피 측정 결과를 나타내었고, 도 6에 potassium cocoyl glycinate 합성 반응의 생성물의 측정 결과를 나타내었다.

[78] 도 5 및 도 6에 나타난 결과를 볼 때, 반응 생성물에는 Standard와 동일하게 DPG 및 glycerin 피크가 검출되어, 반응 부산물로 glycerin이 생성되는 것을 확인하였다.

[79]

[80] 코코넛 오일을 사용한 코코일 글리시네이트의 제조 방법

[81] 본 제조 방법에서는 250ml 3구 구형 플라스크를 사용하였다. 중앙 목에는 감압탈수 시 나오는 물과 에스테르 반응 시 촉매로 투입된 소듐 메톡사이드

용액의 메탄올을 제거하기 위해 condensor을 연결한 Dean stark trap를 설치하였다. 제 2의 목에는 반응물의 색상이 변색되는 것을 막기 위해 질소를 충전하고 온도계를 설치하였다. 반응기는 오일 배스에 실리콘 오일(Shinetchu, KF-96-50) 안에 담겨 온도 제어 디바이스에 접속된 hot plate로 외부 가열하였다. 반응기에 글리신 7.5g 95% KOH 5.6g을 넣고 80°C로 가열하여 중화되면서 완전히 녹인 후, 감압 탈수(10torr) 하여 물을 제거하였다. 그 후 디프로필렌글리콜 5.0g과 코코넛 오일 23.0g을 넣어 질소 충전을 충분히 한 뒤, 30% 소듐 메톡사이드 용액을 0.5g 넣고 130°C에서 2시간 동안 교반하여 반응시켰다. 초기에는 글리신염과 오일의 고상과 액상이 존재하였으나 반응 중에는 투명한 황색 액상으로 나타났다. 반응의 종료는 아민가 측정으로 확인하였고, 이후 증류수를 넣어 반응기로부터 제거하였다. 결과물은 투명한 황색의 액상이었다. Liquid chromatography를 사용한 분석을 통해 반응물인 글리신에 대해서 수율 약 98.5%의 포타슘 코코일 글리시네이트가 생성된 것을 확인하였다. 수분을 제외한 결과물의 구성 성분은 포타슘 코코일 글리시네이트 78.4%, 디프로필렌글리콜 13.0%, 글리세린 6.8%, 모노글리세라이드, 디글리세라이드 및 포타슘 글리시네이트를 1.8% 포함하고 있었다.

[82]

[83] 팜핵유를 사용한 코코일 글리시네이트의 제조 방법

[84] 본 제조 방법에서는 250ml 3구 구형 플라스크를 사용하였다. 중앙 목에는 감압탈수 시 나오는 물과 에스테르 반응 시 촉매로 투입된 소듐 메톡사이드 용액의 메탄올을 제거하기 위해 condensor을 연결한 Dean stark trap를 설치하였다. 제2의 목에는 반응물의 색상이 변색되는 것을 막기 위해 질소를 충전하고 온도계를 설치하였다. 반응기는 오일 배스에 실리콘 오일(Shinetchu, KF-96-50) 안에 담겨 온도 제어 디바이스에 접속된 hot plate로 외부 가열했다. 반응기에 글리신 7.5g 및 95%의 KOH 5.6g을 넣고 80°C로 가열하여 중화시키면서 완전히 녹인 후, 감압 탈수(10torr)하여 물을 제거하였다. 그 후 디프로필렌글리콜 5.0g과 팜핵유 25.0g을 넣어 질소를 충분히 충전한 뒤, 30% 소듐 메톡사이드 용액을 0.5g 넣고 130°C에서 4시간 동안 교반하며 반응시켰다. 초기에는 글리신염과 오일의 고상과 액상이 존재하였으나, 반응 중에는 투명한 황색 액상으로 나타났다. 아민가 측정으로 반응이 종료되었음을 확인한 후, 증류수를 넣어 반응기로부터 제거하였다. 결과물은 투명한 황색의 액상이었다. Liquid chromatography를 사용한 분석을 통해 생성물인 글리신에 대해서 수율 약 94.9%의 포타슘 코코일 글리시네이트가 생성된 것을 확인하였다. 수분을 제외한 결과물의 구성 성분은 포타슘 코코일 글리시네이트 77.1%, 디프로필렌글리콜 12.5%, 글리세린 5.8%, 모노글리세라이드, 디글리세라이드 및 포타슘 글리시네이트를 4.6% 포함하고 있었다.

[85]

[86] 실시예 및 비교예의 제조

[87] 용제의 종류에 따른 반응 수율 및 세포 독성을 평가하고, 알레르기 테스트 및 HET-CAM 테스트를 수행하기 위해, 용제로 비교예 1은 글리세린, 비교예 2는 프로필렌글리콜, 실시예 1은 디프로필렌글리콜을 사용하여 상기 제조방법과 동일하게 아실 글리시네이트를 제조하였다.

[88]

[89] 실험예 1: 반응 수율 평가

[90] 용제의 종류 및 글리신 대비 용제의 몰비에 따른 반응 수율을 평가하기 위하여, 비교예 1, 2 및 실시예 1의 반응 수율을 평가하였다.

[91] [표3]

용제	글리신 대비 용제의 몰비(용제:글리신)	수율(%)	반응 시간(hr)	반응 온도(°C)
글리세린	2:1	92.7%	2	130
	0.8:1	86.3%		
프로필렌글리콜 (PG)	2:1	85.3%	2	130
	0.8:1	82.7%		
디프로필렌글리콜(DPG)	2:1	99.5%	2	130
	0.8:1	98.6%		

[92] 상기 표 3에 나타난 결과를 볼 때, 종래의 합성 방법에서 사용된 글리세린(비교예 1) 또는 프로필렌글리콜(비교예 2)에 비해 디프로필렌글리콜(실시예 1)을 용제로 사용할 때 동일한 반응 조건에서 반응 수율이 현저하게 개선되는 것을 확인하였다. 또한 글리세린 또는 프로필렌글리콜에 비해 디프로필렌글리콜은 글리신 대비 용제 처방량을 대폭 줄이더라도 수율이 현저하게 높아 제품 물성에 영향을 줄일 수 있음을 확인하였다.

[93]

[94] 실험예 2: 세포 독성 평가

[95] 비교예 1, 2 및 실시예 1을 대상으로 하기와 같은 방법으로 세포 독성 평가를 수행하였다. 우선, V79-4 cell(Chinese Hamster, CCL of lung tissue fibroblast)를 세포 24시간 배양하였다. 그 다음, 비교예 1, 2 및 실시예 1의 시료를 배지(3% FBS)에 희석하여 24시간 배양하였다. 배양된 세포에 MTT시약을 사용해 흡광도를 측정하여 세포의 viability를 결정하였다.

[96] 하기 표 4에 측정된 흡광도로부터 세포 독성을 평가하는 기준을 나타내었고, 하기 표 5에 비교예 1, 2 및 실시예 1의 세포 독성 평가 결과를 나타내었다.

[97] [표4]

^a IC ₅₀ (%)구간	^b CTI
≥ 1	Extremely low
0.1 ≤ IC ₅₀ < 1	Low
0.01 ≤ IC ₅₀ < 0.1	Moderate
0.001 ≤ IC ₅₀ < 0.01	High
< 0.001	Extremely high

[98] ^aIC₅₀ : Inhibitory Concentration 50 (50%의 세포를 사멸 시키는 농도.)[99] ^bCTI : Cellular Toxicity Index

[100] [표5]

	비교예 1	비교예 2	실시예 1
용제	글리세린	프로필렌글리콜	디프로필렌글리콜
IC ₅₀ (%, W/V)	0.009	0.007	0.04
CTI	High	High	Moderate

[101] 상기 표 5에 나타난 결과를 볼 때, 비교예 1, 2에 비해서 실시예 1은 IC₅₀가 확연히 높고, CTI도 비교예 1, 2는 High임에 비해 실시예 1은 Moderate로 나타났다. 이로부터 용제로 글리세린 및 프로필렌글리콜에 비해 디프로필렌글리콜을 사용할 때 세포 독성에 있어서 더 안전함을 알 수 있다.

[102]

[103] 실험예 3: 알레르기 평가

[104] 비교예 1, 2 및 실시예 1을 대상으로 하기와 같은 방법으로 알레르기 평가를 수행하고, 하기 표 7에 그 결과를 나타내었다.

[105] ① 실험군의 처리 농도를 설정 (사전 세포독성 실험)

[106] - CV75 (세포 생존율이 75%인 농도)를 기준으로, CV75*1.2, CV75, CV75/1.2³, CV75/1.2⁵

[107] - Highest technical dose(HTD) : 수용성 10,000 µg/ml, 비수용성 1,000 µg/ml 농도까지 독성이 나타나지 않으면 이를 기준으로 농도 설정

[108] ② 1단계에서 설정된 처리농도로 THP-1(human monocytic cell line)에 실험군을 접촉시키고 세포를 24시간 배양

[109] ③ 실험군과 접촉한 THP-1 세포를 형광물질(FITC)이 표지된 항체로 염색하여, Isotype control, CD54, CD84 검출

[110] ④ Flow cytometric analysis 결과로부터 CD54, CD86의 검출량을 등급화하여 분류

[111]

[112] 알레르기 유발성 판정 기준은 CD54 RFI ≥ 200 및/또는 CD86 RFI ≥ 150 이면 양성으로 판단하였다. RFI 값은 하기 수학적 식 2에 나타내었다.

[113] [수학적 식 2]

[114]

$$RFI^a = \frac{\text{시료 처리한 세포의 CD54/CD86 MFI}^b - \text{시료 처리한 세포의 Isotype control MFI}}{\text{vehicle 세포의 CD54/CD86 MFI} - \text{vehicle 세포의 Isotype control MFI}} \times 100$$

[115] RFI^a = Relative fluorescence intensity

[116] MFI^b = Mean fluorescence intensity (FACS 기기 측정값)

[117]

[118] 알레르기 유발성 등급 분류 기준은 하기 표 6에 나타내었다.

[119] [표6]

Category	Test results
Strong sensitizer	MIT ^c $\leq 10 \mu\text{g/ml}$
Weak sensitizer	MIT $\geq 10 \mu\text{g/ml}$

[120] MIT^c = Minimum induction threshold (CD54 RFI=200 또는 CD86 RFI=150 인 농도 중 낮은 농도 값)

[121] [표7]

	비교예 1	비교예 2	실시예 1
용제	글리세린	프로필렌글리콜	디프로필렌글리콜
CD54	131	168	117
CD86	152	174	155
Category	Weak sensitizer	Weak sensitizer	Weak sensitizer

[122] 상기 표 7에 나타난 결과를 볼 때, 모든 실험군의 MIT 값이 $10 \mu\text{g/ml}$ 이상으로 weak sensitizer인 것을 확인하였다.

[123]

[124] 실험예 4: HET-CAM 평가

[125] 비교예 1, 2 및 실시예 1을 대상으로 하기와 같은 방법을 통해 HET-CAM 평가를 수행하였다.

[126] ① 수정된 백색 계란을 부화기에서 부화 (10일)

[127] ② 부화 10일차 계란의 기낭 부분의 난각/용모 요막 제거

[128] ③ 실험 물질을 적용한 후 혈관 반응의 시간 측정

[129] 하기 표 8에 반응시간 평가 기준(Reaction Time Method)의 HET-CAM 환산 점수 판정표를 나타내고, 하기 표 9에 비교예 1, 2 및 실시예 1에 대한 평가 결과를

나타내었다.

[130] [표8]

[Q] Score	Slightlyirritating	Moderatelyirritating	Irritating	Severelyirritating
$Q \leq 0.8$	o			
$0.8 < Q < 1.2$		o		
$1.2 \leq Q < 2.0$			o	
$2.0 \leq Q$				o

[131] [표9]

시료명	Slightlyirritating $Q \leq 0.8$	Moderately irritating $0.8 < Q < 1.2$	Irritating $1.2 \leq Q < 2.0$	Severely irritating $2.0 \leq Q$	비교(농도)
비교예 1		0.82			5%
비교예 2		0.98			5%
실시예 1	0.74				5%

[132] 상기 표 9에 나타난 결과를 볼 때, 글리세린 및 프로필렌글리콜을 용제로 각각 사용한 비교예 1, 2는 Moderately irritating으로 안자극을 줄 가능성이 있었다. 반면, DPG를 용제로 사용한 실시예 1은 Q score가 제일 낮아 slightly irritating으로 안자극을 줄 가능성이 낮았다.

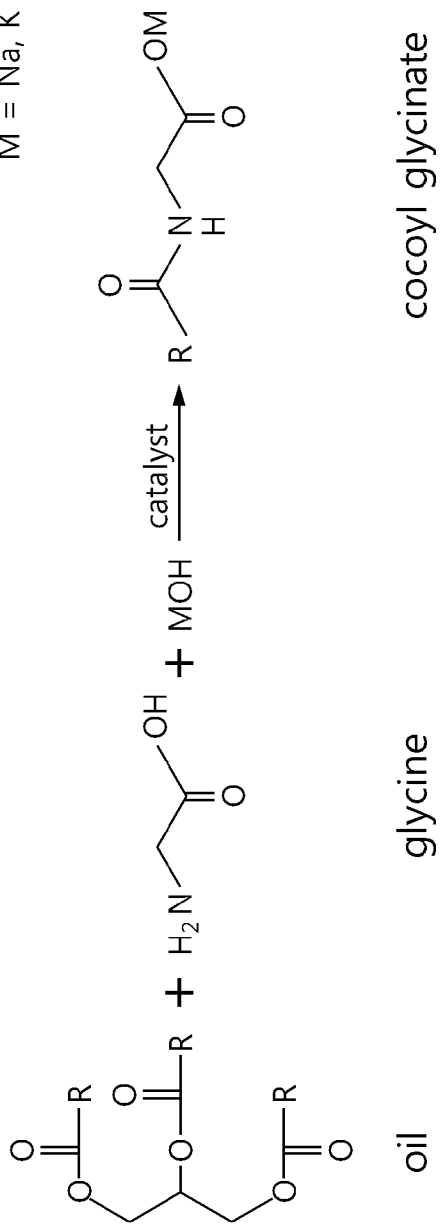
청구범위

- [청구항 1] 디프로필렌글리콜을 포함하는 용제에 글리신과 지방산 에스테르의 혼합물을 반응시키는 단계를 포함하는 아실 글리시네이트 또는 이의 염의 제조 방법.
- [청구항 2] 제1항에 있어서, 상기 지방산 에스테르는 C8-C22 지방산을 포함하는 C1-C3 알킬 에스테르인 것을 특징으로 하는 아실 글리시네이트 또는 이의 염의 제조 방법.
- [청구항 3] 제2항에 있어서, 상기 C8-C22 지방산을 포함하는 C1-C3 알킬 에스테르는 코코넛오일, 옥수수기름, 팜핵유, 팜유, 콩기름, 면실유, 채종유, 카놀라유, 해바라기 종자유, 참기름, 미강유, 올리브유, 탈로우 및 피마자유로 이루어진 군에서 선택된 어느 하나 이상으로부터 유래된 것을 특징으로 하는 아실 글리시네이트 또는 이의 염의 제조 방법.
- [청구항 4] 제2항에 있어서, 상기 C8-C22 지방산을 포함하는 C1-C3 알킬 에스테르는 코코넛오일 또는 팜핵유로부터 유래된 트리글리세라이드인 것을 특징으로 하는 아실 글리시네이트 또는 이의 염의 제조 방법.
- [청구항 5] 제1항에 있어서, 상기 제조 방법은 1.5 내지 3.5 시간 동안, 115 내지 135 °C의 온도에서 반응시키는 것을 특징으로 하는 아실 글리시네이트 또는 이의 염의 제조 방법.
- [청구항 6] 제1항에 있어서, 상기 용제와 글리신의 몰비는 1.8:1 내지 0.3:1(용제:글리신)인 것을 특징으로 하는 아실 글리시네이트 또는 이의 염의 제조 방법.
- [청구항 7] 제1항에 있어서, 상기 글리신 및 지방산 에스테르의 몰비는 1.5:1 내지 0.5:1(글리신:지방산 에스테르)인 것을 특징으로 하는 아실 글리시네이트 또는 이의 염의 제조 방법.
- [청구항 8] 제1항에 있어서, 상기 제조 방법은 염기성 촉매를 추가적으로 포함하는 것을 특징으로 하는 아실 글리시네이트 또는 이의 염의 제조 방법.
- [청구항 9] 제8항에 있어서, 상기 염기성 촉매는 알칼리 금속 또는 알칼리 토금속을 포함하는 수산화물, 인산염, 유산염, 및 산화물로 이루어진 군에서 선택된 어느 하나 이상을 포함하는 것을 특징으로 하는 아실 글리시네이트 또는 이의 염의 제조 방법.
- [청구항 10] 제8항에 있어서, 상기 염기성 촉매는 글리신 중량 대비 0.5 내지 10 중량%로 포함되는 것을 특징으로 하는 아실 글리시네이트 또는 이의 염의 제조 방법.
- [청구항 11] 제1항에 있어서, 상기 제조 방법은 상기 글리신과 지방산 에스테르의 반응 단계 전에 글리신에 중화제를 첨가하여 중화시키는 단계를 추가적으로 포함하는 것을 특징으로 하는 아실 글리시네이트 또는 이의 염의 제조 방법.

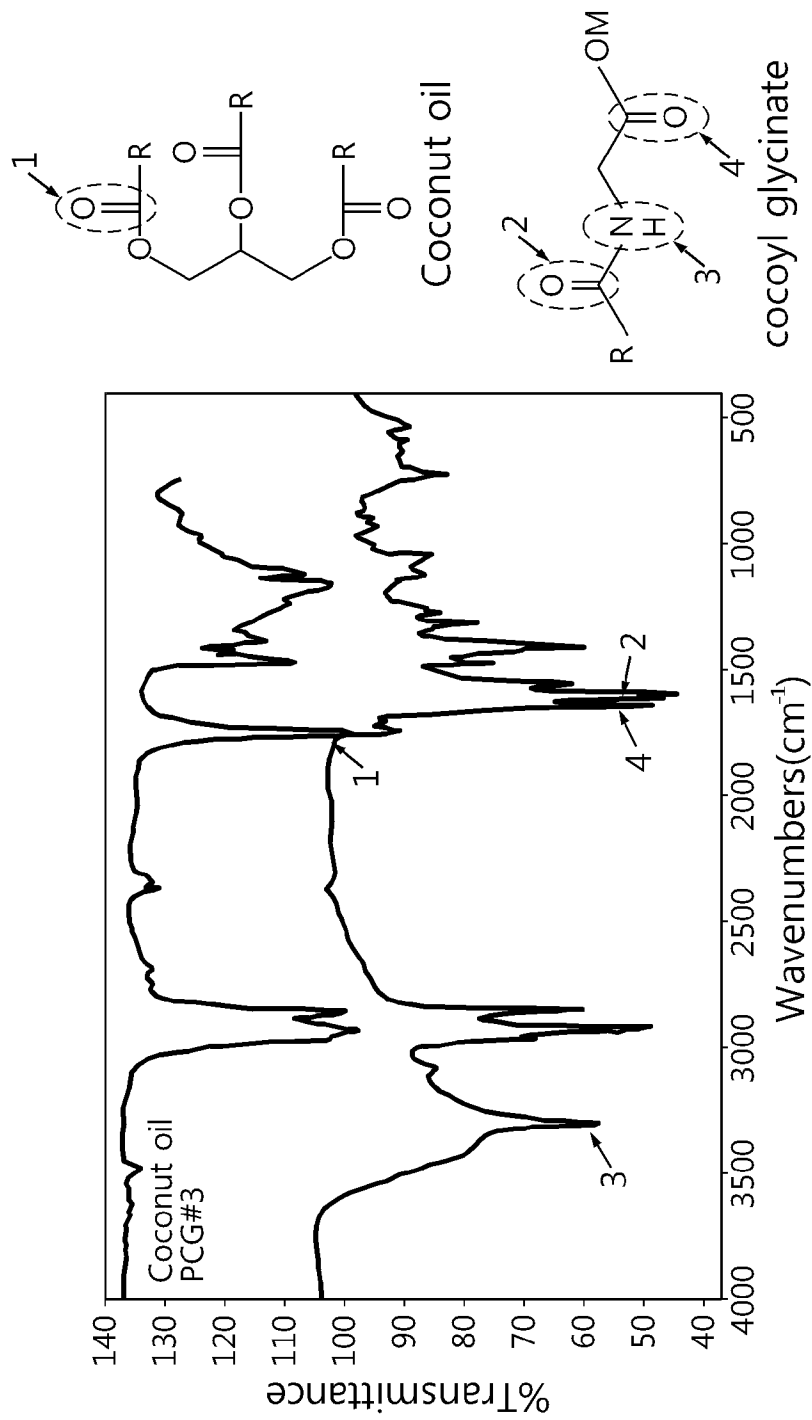
- [청구항 12] (s1) 글리신에 중화제를 부가하여 중화시키는 단계;
(s2) 상기 (s1) 단계의 중화된 글리신에 디프로필렌글리콜, 지방산 에스테르, 및 염기성 촉매를 혼합시키는 단계;
(s3) 상기 (s2) 단계의 혼합물을 1.5 내지 3.5 시간 동안 115 내지 135 °C의 온도에서 반응시키는 단계
를 포함하는 아실 글리시네이트 또는 이의 염의 제조 방법.
- [청구항 13] 제1항 내지 제12항 중 어느 한 항의 제조 방법을 사용하여 얻어진 아실 글리시네이트 또는 이의 염을 포함하는 인체 세정용 조성물.
- [청구항 14] 제13항에 있어서, 상기 조성물은 상기 제조 방법으로부터 생성된 글리세린을 포함하는 부산물을 8 내지 12 중량%로 포함하는 것을 특징으로 하는 인체 세정용 조성물.
- [청구항 15] 제14항에 있어서, 상기 부산물은 모노글리세라이드, 디글리세라이드, 포타슘 글리시네이트, 또는 이들의 혼합물을 더 포함하는 것을 특징으로 하는 인체 세정용 조성물.

[圖1]

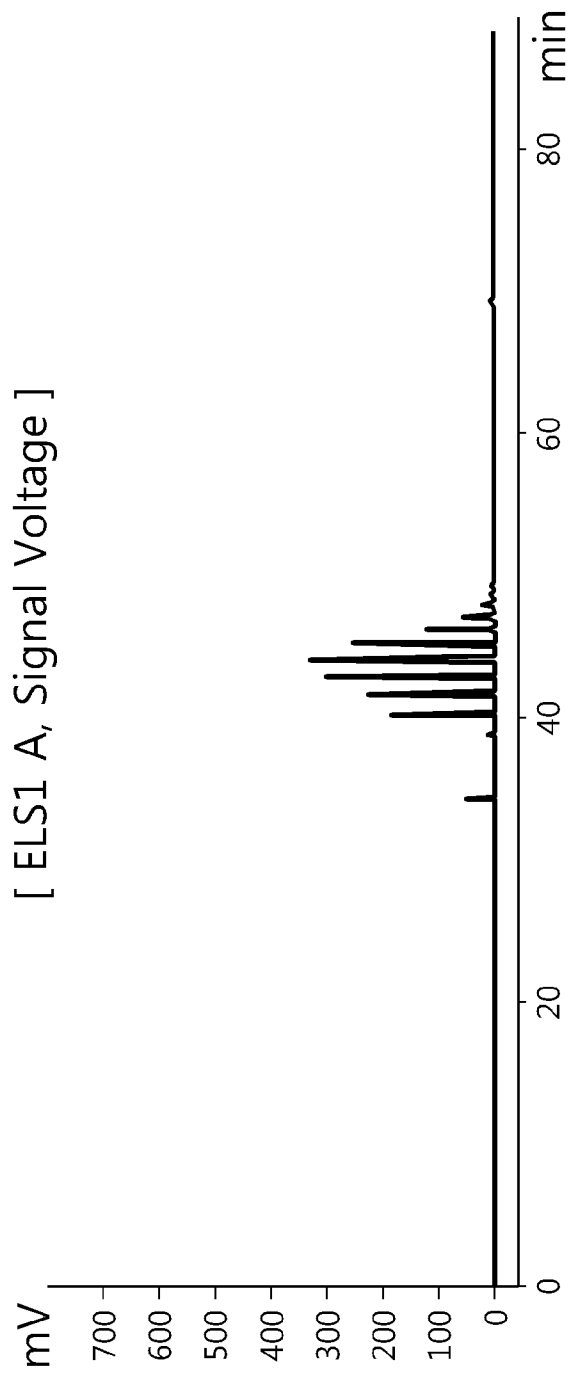
R = cocoyl
M = Na, K



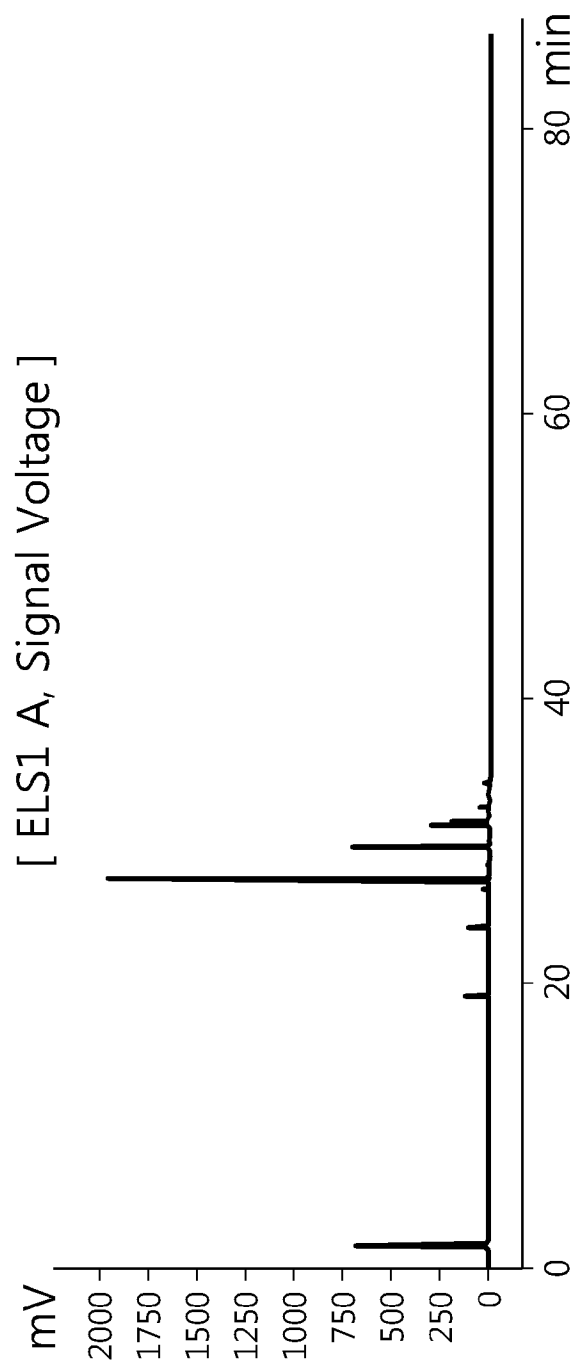
[도2]



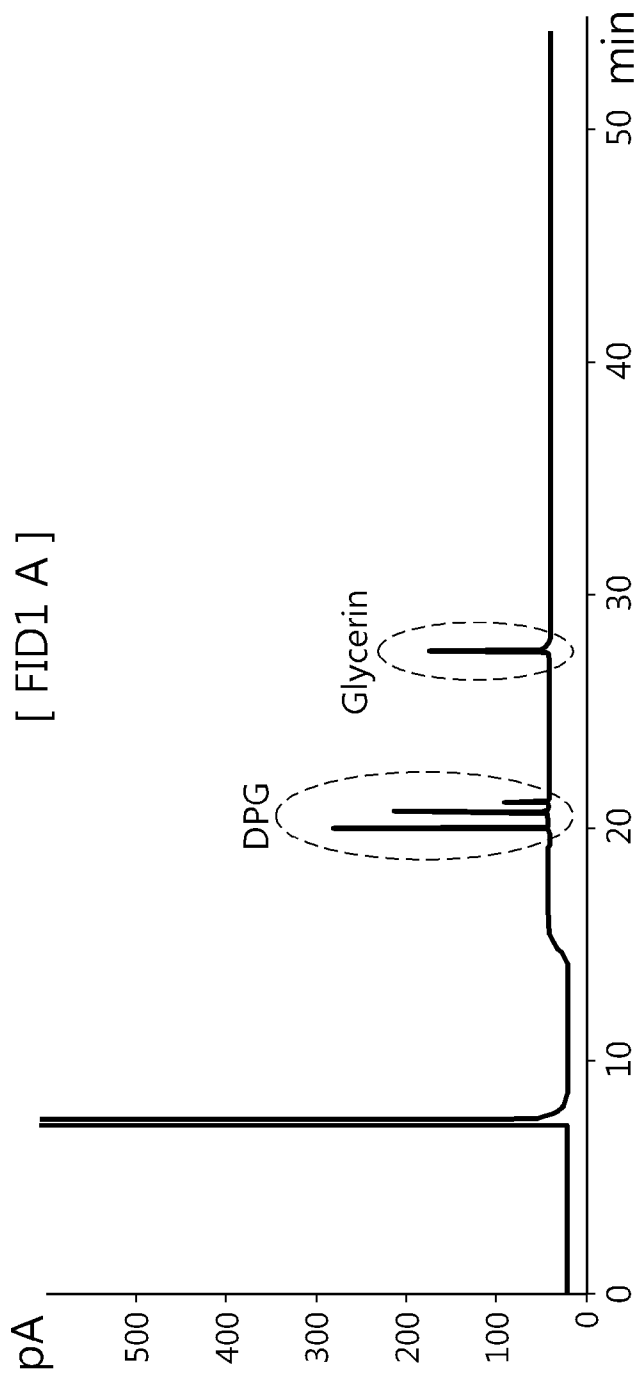
[도3]



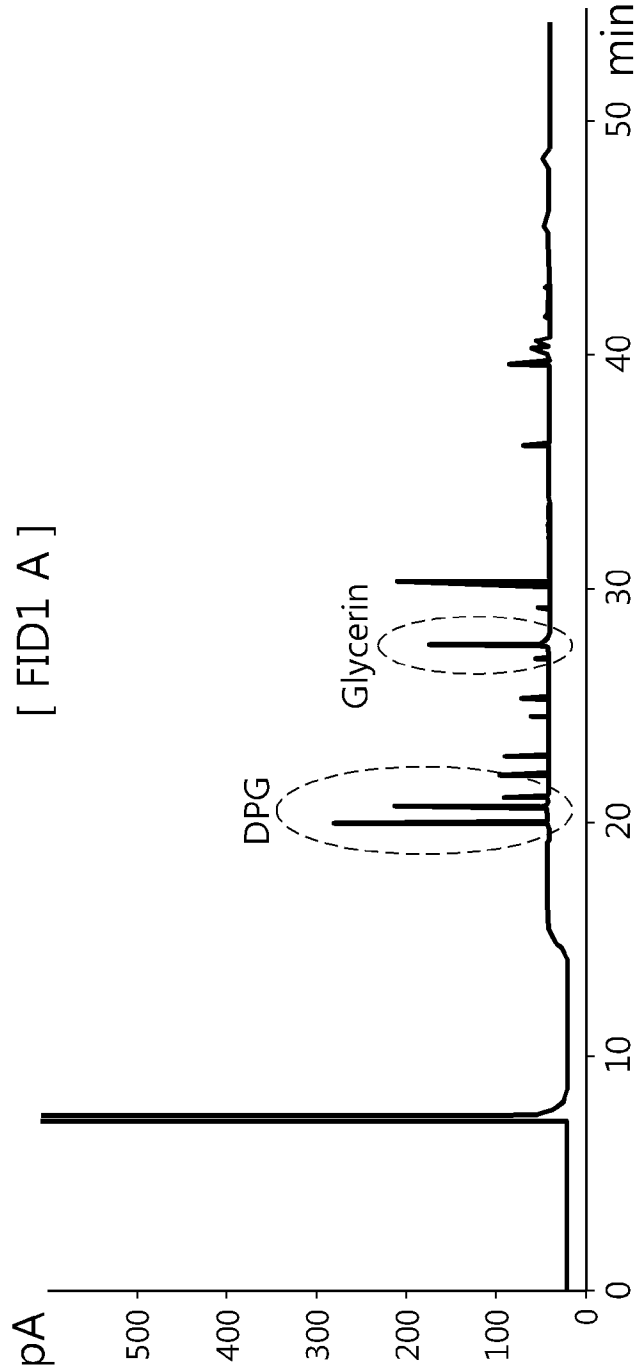
[도4]



[도5]



[도6]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/KR2016/011119

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C07C 231/02(2006.01)i, C07C 233/49(2006.01)i, B01J 23/02(2006.01)i, A61K 8/41(2006.01)i, A61K 8/44(2006.01)i, A61Q 19/10(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)

C07C 231/02; C11D 1/00; A61K 8/64; C07C 231/00; C07K 5/04; C11C 3/00; C07C 233/47; C07C 233/49; B01J 23/02; A61K 8/41; A61K 8/44; A61Q 19/10

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

Korean Utility models and applications for Utility models: IPC as above

Japanese Utility models and applications for Utility models: IPC as above

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

eKOMPASS (KIPO internal) & Keywords: dipropylene glycol, glycine, fatty acid ester, acyl glycinate

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 2013-014268 A1 (UNILEVER PLC. et al.) 31 January 2013 See claims 1, 2, 4, 13; page 8, lines 16-24; and page 11, lines 8-12	1-15
Y	US 2004-0063980 A1 (RATHS, H. -C. et al.) 01 April 2004 See claims 1, 2, 6, 10; and paragraph [0033].	1-15
A	WO 2015-026538 A1 (STEPAN COMPANY) 26 February 2015 See claims 1, 7-12.	1-15
A	US 2004-0048766 A1 (RATHS, H. -C. et al.) 11 March 2004 See claims 1-10.	1-15
A	US 2006-0239952 A1 (HATTORI, T.) 26 October 2006 See claims 1-22.	1-15
A	US 6703517 B2 (HATTORI, T. et al.) 09 March 2004 See the entire document.	1-15



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date

“L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

“T” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

“X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

“Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

“&” document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

09 FEBRUARY 2017 (09.02.2017)

Date of mailing of the international search report

10 FEBRUARY 2017 (10.02.2017)

Name and mailing address of the ISA/KR



Korean Intellectual Property Office
Government Complex-Daejeon, 189 Seonsa-ro, Daejeon 302-701,
Republic of Korea

Facsimile No. 82-42-472-7140

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/KR2016/011119

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member	Publication date
WO 2013-014268 A1	31/01/2013	AR 087321 A1	12/03/2014
		CA 2839050 A1	31/01/2013
		CN 103649043 A	19/03/2014
		CN 103649043 B	23/09/2015
		EA 023748 B1	29/07/2016
		EA 201490361 A1	30/05/2014
		EP 2736878 A1	04/06/2014
		EP 2736878 B1	22/06/2016
		ES 2592754 T3	01/12/2016
		JP 2014-527519 A	16/10/2014
		JP 5940665 B2	29/06/2016
		MX 2014001147 A	27/02/2014
		US 2013-0030201 A1	31/01/2013
		US 2013-0030202 A1	31/01/2013
		US 8697897 B2	15/04/2014
		US 8822711 B2	02/09/2014
		ZA 201309449 B	29/04/2015
US 2004-0063980 A1	01/04/2004	EP 1419137 A2	19/05/2004
		JP 2004-529084 A	24/09/2004
		US 6828452 B2	07/12/2004
		WO 02-57217 A2	25/07/2002
		WO 2002-057217 A3	25/03/2004
WO 2015-026538 A1	26/02/2015	AR 097387 A1	09/03/2016
		CN 105531256 A	27/04/2016
		EP 3036214 A1	29/06/2016
		JP 2016-528284 A	15/09/2016
		SG 11201600835 A	30/03/2016
		US 2016-152555 A1	02/06/2016
US 2004-0048766 A1	11/03/2004	AT 342327 T	15/11/2006
		DE 10102006 A1	02/10/2002
		EP 1352045 A1	15/10/2003
		EP 1352045 B1	11/10/2006
		ES 2274032 T3	16/05/2007
		JP 2004-525210 A	19/08/2004
		WO 02-57399 A1	25/07/2002
US 2006-0239952 A1	26/10/2006	BR P10414953 A	07/11/2006
		BR P10414953 B1	25/10/2016
		CN 100448968 C	07/01/2009
		CN 1856565 A	01/11/2006
		EP 1672055 A1	21/06/2006
		EP 1672055 A4	13/12/2006
		EP 1672055 B1	01/10/2008
		ES 2313068 T3	01/03/2009
		JP 4771134 B2	14/09/2011
		WO 2005-033255 A1	14/04/2005

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/KR2016/011119

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member	Publication date
US 6703517 B2	09/03/2004	EP 1314717 A1	28/05/2003
		EP 1314717 B1	28/04/2010
		JP 2003-221371 A	05/08/2003
		KR 10-0894220 B1	20/04/2009
		KR 10-2003-0043709 A	02/06/2003
		US 2003-0125227 A1	03/07/2003

A. 발명이 속하는 기술분류(국제특허분류(IPC))

C07C 231/02(2006.01)i, C07C 233/49(2006.01)i, B01J 23/02(2006.01)i, A61K 8/41(2006.01)i, A61K 8/44(2006.01)i, A61Q 19/10(2006.01)i

B. 조사된 분야

조사된 최소문헌(국제특허분류를 기재)

C07C 231/02; C11D 1/00; A61K 8/64; C07C 231/00; C07K 5/04; C11C 3/00; C07C 233/47; C07C 233/49; B01J 23/02; A61K 8/41; A61K 8/44; A61Q 19/10

조사된 기술분야에 속하는 최소문헌 이외의 문헌

한국등록실용신안공보 및 한국공개실용신안공보: 조사된 최소문헌란에 기재된 IPC
일본등록실용신안공보 및 일본공개실용신안공보: 조사된 최소문헌란에 기재된 IPC

국제조사에 이용된 전산 데이터베이스(데이터베이스의 명칭 및 검색어(해당하는 경우))

eKOMPASS(특허청 내부 검색시스템) & 키워드: 디프로필렌글리콜, 글리신, 지방산 에스테르, 아실 글리시네이트

C. 관련 문헌

카테고리*	인용문헌명 및 관련 구절(해당하는 경우)의 기재	관련 청구항
Y	WO 2013-014268 A1 (UNILEVER PLC 등) 2013.01.31 청구항 1, 2, 4, 13; 페이지 8, 라인 16-24; 및 페이지 11, 라인 8-12 참조	1-15
Y	US 2004-0063980 A1 (RATHS, H. -C. 등) 2004.04.01 청구항 1, 2, 6, 10; 및 단락 [0033] 참조.	1-15
A	WO 2015-026538 A1 (STEPAN COMPANY) 2015.02.26 청구항 1, 7-12 참조.	1-15
A	US 2004-0048766 A1 (RATHS, H. -C. 등) 2004.03.11 청구항 1-10 참조.	1-15
A	US 2006-0239952 A1 (HATTORI, T.) 2006.10.26 청구항 1-22 참조.	1-15
A	US 6703517 B2 (HATTORI, T. 등) 2004.03.09 전체 문헌 참조.	1-15

☐ 추가 문헌이 C(계속)에 기재되어 있습니다.

☒ 대응특허에 관한 별지를 참조하십시오.

* 인용된 문헌의 특별 카테고리:

“A” 특별히 관련이 없는 것으로 보이는 일반적인 기술수준을 정의한 문헌

“T” 국제출원일 또는 우선일 후에 공개된 문헌으로, 출원과 상충하지 않으며 발명의 기초가 되는 원리나 이론을 이해하기 위해 인용된 문헌

“E” 국제출원일보다 빠른 출원일 또는 우선일을 가지나 국제출원일 이후에 공개된 선출원 또는 특허 문헌

“X” 특별한 관련이 있는 문헌. 해당 문헌 하나만으로 청구된 발명의 신규성 또는 진보성이 없는 것으로 본다.

“L” 우선권 주장에 의문을 제기하는 문헌 또는 다른 인용문헌의 공개일 또는 다른 특별한 이유(이유를 명시)를 밝히기 위하여 인용된 문헌

“Y” 특별한 관련이 있는 문헌. 해당 문헌이 하나 이상의 다른 문헌과 조합하는 경우로 그 조합이 당업자에게 자명한 경우 청구된 발명은 진보성이 없는 것으로 본다.

“O” 구두 개시, 사용, 전시 또는 기타 수단을 언급하고 있는 문헌

“&” 동일한 대응특허문헌에 속하는 문헌

“P” 우선일 이후에 공개되었으나 국제출원일 이전에 공개된 문헌

국제조사의 실제 완료일

2017년 02월 09일 (09.02.2017)

국제조사보고서 발송일

2017년 02월 10일 (10.02.2017)

ISA/KR의 명칭 및 우편주소



대한민국 특허청
(35208) 대전광역시 서구 청사로 189,
4동 (둔산동, 정부대전청사)

팩스 번호 +82-42-481-8578

심사관

조기윤

전화번호 +82-42-481-5655



국제조사보고서에서 인용된 특허문헌	공개일	대응특허문헌	공개일
WO 2013-014268 A1	2013/01/31	AR 087321 A1 CA 2839050 A1 CN 103649043 A CN 103649043 B EA 023748 B1 EA 201490361 A1 EP 2736878 A1 EP 2736878 B1 ES 2592754 T3 JP 2014-527519 A JP 5940665 B2 MX 2014001147 A US 2013-0030201 A1 US 2013-0030202 A1 US 8697897 B2 US 8822711 B2 ZA 201309449 B	2014/03/12 2013/01/31 2014/03/19 2015/09/23 2016/07/29 2014/05/30 2014/06/04 2016/06/22 2016/12/01 2014/10/16 2016/06/29 2014/02/27 2013/01/31 2013/01/31 2014/04/15 2014/09/02 2015/04/29
US 2004-0063980 A1	2004/04/01	EP 1419137 A2 JP 2004-529084 A US 6828452 B2 WO 02-57217 A2 WO 2002-057217 A3	2004/05/19 2004/09/24 2004/12/07 2002/07/25 2004/03/25
WO 2015-026538 A1	2015/02/26	AR 097387 A1 CN 105531256 A EP 3036214 A1 JP 2016-528284 A SG 11201600835 A US 2016-152555 A1	2016/03/09 2016/04/27 2016/06/29 2016/09/15 2016/03/30 2016/06/02
US 2004-0048766 A1	2004/03/11	AT 342327 T DE 10102006 A1 EP 1352045 A1 EP 1352045 B1 ES 2274032 T3 JP 2004-525210 A WO 02-57399 A1	2006/11/15 2002/10/02 2003/10/15 2006/10/11 2007/05/16 2004/08/19 2002/07/25
US 2006-0239952 A1	2006/10/26	BR PI0414953 A BR PI0414953 B1 CN 100448968 C CN 1856565 A EP 1672055 A1 EP 1672055 A4 EP 1672055 B1 ES 2313068 T3 JP 4771134 B2 WO 2005-033255 A1	2006/11/07 2016/10/25 2009/01/07 2006/11/01 2006/06/21 2006/12/13 2008/10/01 2009/03/01 2011/09/14 2005/04/14

국제조사보고서에서 인용된 특허문헌	공개일	대응특허문헌	공개일
US 6703517 B2	2004/03/09	EP 1314717 A1	2003/05/28
		EP 1314717 B1	2010/04/28
		JP 2003-221371 A	2003/08/05
		KR 10-0894220 B1	2009/04/20
		KR 10-2003-0043709 A	2003/06/02
		US 2003-0125227 A1	2003/07/03