

(19) 日本国特許庁(JP)

再公表特許(A1)

(11) 国際公開番号

W02013/132914

発行日 平成27年7月30日 (2015. 7. 30)

(43) 国際公開日 **平成25年9月12日 (2013. 9. 12)**

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
A 6 1 K 8/89 (2006.01)	A 6 1 K 8/89	4 C 0 8 3
A 6 1 Q 17/04 (2006.01)	A 6 1 Q 17/04	
A 6 1 K 8/37 (2006.01)	A 6 1 K 8/37	
A 6 1 K 8/40 (2006.01)	A 6 1 K 8/40	
A 6 1 K 8/41 (2006.01)	A 6 1 K 8/41	
審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 33 頁) 最終頁に続く		

出願番号	特願2014-503712 (P2014-503712)	(71) 出願人	000206956 大塚製薬株式会社 東京都千代田区神田司町2丁目9番地
(21) 国際出願番号	PCT/JP2013/051651	(74) 代理人	110000796 特許業務法人三枝国際特許事務所
(22) 国際出願日	平成25年1月25日 (2013. 1. 25)	(72) 発明者	田中 雅彦 大阪府大阪市中央区大手通3-2-27 大塚製薬株式会社内
(31) 優先権主張番号	特願2012-48258 (P2012-48258)	(72) 発明者	荻原 美代子 大阪府大阪市中央区大手通3-2-27 大塚製薬株式会社内
(32) 優先日	平成24年3月5日 (2012. 3. 5)	(72) 発明者	加古 純子 大阪府大阪市中央区大手通3-2-27 大塚製薬株式会社内
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)		
(31) 優先権主張番号	特願2012-158118 (P2012-158118)		
(32) 優先日	平成24年7月13日 (2012. 7. 13)		
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)		
最終頁に続く			

(54) 【発明の名称】 日焼け止め用組成物

(57) 【要約】

本発明は、2種以上の油溶性紫外線吸収剤及び平均粒径が10 μm以下の複合シリコン粒子を含有する日焼け止め用組成物を提供する。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

2 種以上の油溶性紫外線吸収剤及び平均粒径 10 μm 以下の複合シリコーン粒子を有する日焼け止め用組成物。

【請求項 2】

前記油溶性紫外線吸収剤がメトキシケイ皮酸エチルヘキシル、オクトクリレン、ジエチルアミノヒドロキシベンゾイル安息香酸ヘキシル、ポリシリコーン型紫外線吸収剤、ホモサレート、t-ブチルメトキシベンゾイルメタン、サリチル酸エチルヘキシル、エチルヘキシルトリアゾン、ビスエチルヘキシルオキシフェノールメトキシフェニルトリアジン、メチレンビスベンゾトリアゾリルテトラメチルブチルフェノール、オキシベンゾン-3 及びドロメトリゾールトリシロキサンからなる群より選択される少なくとも 2 種である、請求項 1 に記載の日焼け止め用組成物。

10

【請求項 3】

前記油溶性紫外線吸収剤がメトキシケイ皮酸エチルヘキシル、オクトクリレン、ジエチルアミノヒドロキシベンゾイル安息香酸ヘキシル及びポリシリコーン-15 からなる群より選択される少なくとも 2 種である、請求項 1 または 2 に記載の日焼け止め用組成物。

【請求項 4】

前記複合シリコーン粒子が、シリコーンゴムがシリコーンレジンで被覆された複合シリコーン粒子である、請求項 1 ~ 3 のいずれかに記載の日焼け止め用組成物。

【請求項 5】

前記複合シリコーン粒子が、球状シリコーンゴムをシリコーンレジンで被覆した複合シリコーン粒子である、請求項 4 に記載の日焼け止め用組成物。

20

【請求項 6】

前記油溶性紫外線吸収剤の含有量が合計で 10 重量% 以上である、請求項 1 ~ 5 のいずれかに記載の日焼け止め用組成物。

【請求項 7】

油中水型 (W/O) エマルションの形態である、請求項 1 ~ 6 のいずれかに記載の日焼け止め用組成物。

【請求項 8】

更に無機塩、プリン系化合物、水溶性ビタミン、水溶性ビタミンの誘導体及びその塩からなる群より選択される少なくとも 1 種の電解質を含む、請求項 1 ~ 7 のいずれかに記載の日焼け止め用組成物。

30

【請求項 9】

前記電解質を 0.5 重量% 以上含有する、請求項 8 に記載の日焼け止め用組成物。

【請求項 10】

日焼け止め用組成物中、水を 10 ~ 40 重量% 含有する、請求項 1 ~ 9 のいずれかに記載の日焼け止め用組成物。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、紫外線予防効果に優れた日焼け止め用組成物に関する。また、本発明は、耐水性に優れた肌に優しい安定な紫外線予防効果の高い日焼け止め用組成物に関する。

40

【背景技術】

【0002】

従来、紫外線から肌を守るために日焼け止め剤が頻用されている。近年、日焼け止め化粧料は季節を問わず、また、老若男女を問わず使用される傾向があり、その需要は現在においても高まっている。

【0003】

日焼け止め剤による紫外線防御力は、UV-B (波長 290 ~ 320 nm) の防御指数を表す SPF 値 (サンプロテクションファクター、Sun Protection Factor) や、UV -

50

A (波長 320 ~ 400 nm) の防御指数を表す PFA 値 (プロテクションファクターオブ UVA、Protection Factor of UVA) 又はこれに基づく分類表示である PA (プロテクショングレードオブ UVA、Protection Grade of UVA) で示すことができ、SPF 値や PFA 値が高いほど紫外線防御力が高いとされる。通常、SPF 値や PFA 値を有する日焼け止め剤は、屋内や短時間の外出など日常生活での使用が目的とされる。その中でも、高い SPF 値や PFA 値を示す日焼け止め剤は、長時間の屋外での活動や海、山、スキーといったアウトドアスポーツなど紫外線を多く浴びる場所での使用が目的とされる。

【0004】

これまでも、日焼け止め剤については多数報告されている。例えば、特許文献 1 にはオクチルメトキシシナメート、t-ブチルメトキシジベンゾイルメタン及び/又は 2-ヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノン、特定のポリオキシエチレン・ポリオキシアルキレンアルキルエーテルブロックポリマー、ならびに非極性油を特定の割合で含有する平均乳化粒子径が 700 nm 以下の水中油型日焼け止め剤が開示されている。特許文献 1 には、紫外線吸収剤を高配合して紫外線防御能を向上できるとともに、乳化安定性に優れ、且つ、使用性も良好な水中油型日焼け止め剤が開示されている。また、特許文献 2 には、特定のラテックス粒子と紫外線吸収剤とを含有する紫外線吸収組成物が開示されており、該紫外線吸収組成物によれば、ラテックス粒子を混合しない場合と比較して、紫外線吸収効果が高まったことが開示されている。

10

【0005】

前述のように日焼け止め剤は既に多数報告され、販売されている。しかしながら、オゾン層の破壊等の影響により、地上に到達する紫外線量が増加している今日においては、高い紫外線予防効果を有する日焼け止め剤の需要が未だ高まり続けている。また、高い紫外線予防効果を有しながらも皮膚に優しい安定な日焼け止め剤とできれば、消費者の安心感や満足感をより高められると考えられる。

20

【先行技術文献】

【特許文献】

【0006】

【特許文献 1】特開 2011-157282 号公報

【特許文献 2】特開平 09-104822 号公報

【発明の概要】

30

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

紫外線防御効果を高める観点から、日焼け止め剤においては、高い紫外線防御効果を付与することが重要であると考えられる。また、そこに汗や水にも強い耐水性を備えさせることによって、日焼け止め剤による紫外線防御効果の経時的な剥脱を防ぐことができる。このことから、本発明は、より優れた日焼け予防効果を有する日焼け止め用組成物を提供することを目的とする。さらに、本発明は、日焼け予防効果が高いとともに、耐水性に優れた肌に優しい安定な日焼け止め用組成物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】

40

本発明者らは、上記課題を解決すべく鋭意検討したところ、2種以上の油溶性紫外線吸収剤及び平均粒径が 10 μm 以下の複合シリコン粒子を含有させることにより、SPF 値の向上がもたらされることを見出した。また、該組成物は耐水性にも優れることを見出した。また、これにより PFA 値についても所望の高い効果を備える日焼け止め用組成物が得られることを見出した。更に、特に前記油溶性紫外線吸収剤を 3種以上とすることで、PFA 値についてもより高い日焼け止め用組成物とすることが可能となることを見出した。本発明は、これらの知見に基づいて、さらに安定性についても検討を重ねることによって完成したものである。

【0009】

即ち、本発明は、以下に掲げる発明を提供する。

50

項 1 . 2 種以上の油溶性紫外線吸収剤及び平均粒径 1 0 μ m 以下の複合シリコーン粒子を有する日焼け止め用組成物。

項 2 . 前記油溶性紫外線吸収剤がメトキシケイ皮酸エチルヘキシル、オクトクリレン、ジエチルアミノヒドロキシベンゾイル安息香酸ヘキシル、ポリシリコーン型紫外線吸収剤、ホモサレート、*t*-ブチルメトキシベンゾイルメタン、サリチル酸エチルヘキシル、エチルヘキシルトリアゾン、ビスエチルヘキシルオキシフェノールメトキシフェニルトリアジン、メチレンビスベンゾトリアゾリルテトラメチルブチルフェノール、オキシベンゾン - 3 及びドロメトリゾールトリシロキサンからなる群より選択される少なくとも 2 種である、項 1 に記載の日焼け止め用組成物。

項 3 . 前記油溶性紫外線吸収剤がメトキシケイ皮酸エチルヘキシル、オクトクリレン、ジエチルアミノヒドロキシベンゾイル安息香酸ヘキシル及びポリシリコーン - 1 5 からなる群より選択される少なくとも 2 種である、項 1 または 2 に記載の日焼け止め用組成物。

項 4 . UV - B 防御能を示す指標として、SPF 値が 5 0 以上である、項 1 ~ 3 のいずれかに記載の日焼け止め用組成物。

項 5 . 前記油溶性紫外線吸収剤を 3 種以上含有する、項 1 ~ 4 のいずれかに記載の日焼け止め用組成物。

項 6 . 前記油溶性紫外線吸収剤が、ジエチルアミノヒドロキシベンゾイル安息香酸ヘキシルと、メトキシケイ皮酸エチルヘキシル、オクトクリレン、ポリシリコーン型紫外線吸収剤、ホモサレート、*t*-ブチルメトキシベンゾイルメタン、サリチル酸エチルヘキシル、エチルヘキシルトリアゾン、ビスエチルヘキシルオキシフェノールメトキシフェニルトリアジン、メチレンビスベンゾトリアゾリルテトラメチルブチルフェノール、オキシベンゾン - 3 及びドロメトリゾールトリシロキサンからなる群より選択される少なくとも 2 種である、項 1 ~ 5 のいずれかに記載の日焼け止め用組成物。

項 7 . UV - A 防御能を示す指標として、PFA 値が 5 以上である、項 1 ~ 6 のいずれかに記載の日焼け止め用組成物。

項 8 . 前記油溶性紫外線吸収剤がメトキシケイ皮酸エチルヘキシル、オクトクリレン、ジエチルアミノヒドロキシベンゾイル安息香酸ヘキシル及びポリシリコーン - 1 5 を含む、項 1 ~ 7 のいずれかに記載の日焼け止め用組成物。

項 9 . 前記複合シリコーン粒子が、シリコーンゴムがシリコーンレジンで被覆された複合シリコーン粒子である、項 1 ~ 8 のいずれかに記載の日焼け止め用組成物。

項 1 0 . 前記複合シリコーン粒子が、球状シリコーンゴムがシリコーンレジンで被覆された複合シリコーン粒子である、項 1 ~ 9 のいずれかに記載の日焼け止め用組成物。

項 1 1 . 前記複合シリコーン粒子の平均粒径が 2 μ m ~ 1 0 μ m である、項 1 ~ 1 0 のいずれかに記載の日焼け止め用組成物。

項 1 2 . 前記油溶性紫外線吸収剤の含有量が合計で 1 0 重量% 以上である、項 1 ~ 1 1 のいずれかに記載の日焼け止め用組成物。

項 1 3 . 前記複合シリコーン粒子の含有量が 4 ~ 2 0 重量% である、項 1 ~ 1 2 のいずれかに記載の日焼け止め用組成物。

項 1 4 . 油中水型 (W/O) エマルションの形態である、項 1 ~ 1 3 のいずれかに記載の日焼け止め用組成物。

項 1 5 . 更に無機塩、プリン系化合物、ならびに水溶性ビタミン、水溶性ビタミンの誘導体及びその塩からなる群より選択される少なくとも 1 種の電解質を含む、項 1 ~ 1 4 のいずれかに記載の日焼け止め用組成物。

項 1 6 . 電解質が、無機塩化物、無機硫化物、アデノシンのリン酸エステル、アスコルビン酸、その誘導体及びこれらの塩からなる群より選択される少なくとも 1 種である、項 1 5 に記載の日焼け止め用組成物。

項 1 7 . 電解質が、ナトリウム、マグネシウム、カルシウムの塩化物及び/または硫化物、ならびにアデノシン-リン酸、アスコルビン酸、その誘導体及びこれらの塩からなる群より選択される少なくとも 1 種である、項 1 5 または 1 6 に記載の日焼け止め用組成物。

項 1 8 . 電解質が、ナトリウム、マグネシウム、カルシウムの塩化物及び/または硫化物

10

20

30

40

50

からなる群より選択される少なくとも1種と、アデノシンーリン酸、アスコルビン酸、その誘導体及びこれらの塩からなる群より選択される少なくとも1種との組み合わせである、項15～17のいずれかに記載の日焼け止め用組成物。

項19．電解質が、ナトリウム、マグネシウム、カルシウムの塩化物及び/または硫化物からなる群より選択される少なくとも1種と、アデノシンーリン酸またはその塩からなり、更に精油を組み合わせることを特徴とする、項15～18のいずれかに記載の日焼け止め用組成物。

項20．電解質の含有量が0.5重量%以上である、項15～19のいずれかに記載の日焼け止め用組成物。

項21．日焼け止め用組成物中、水を10～40重量%含有する、項1～20のいずれかに記載の日焼け止め用組成物。

項22．水100重量部に対して電解質が1.5～40重量部である、項15～21のいずれかに記載の日焼け止め用組成物。

項23．20における粘度が100～1000mPa・sである、項1～22のいずれかに記載の日焼け止め用組成物。

項24．紫外線散乱剤を含有しないものである、項1～23のいずれかに記載の日焼け止め用組成物。

項25．前記紫外線散乱剤が、金属酸化物であることを特徴とする、項24に記載の日焼け止め用組成物。

項26．日焼け止め用組成物を製造するための、2種以上の油性紫外線吸収剤及び平均粒径10μm以下の複合シリコン粒子の使用。

項27．日焼け止め用組成物、油性紫外線吸収剤及び/または平均粒径10μm以下の複合シリコン粒子が項1～25の少なくともいずれかに記載される特徴を有する、項26に記載の使用。

項28．日焼け止め用組成物の紫外線防御効果を向上させるための、2種以上の油性紫外線吸収剤及び平均粒径10μm以下の複合シリコン粒子の使用。

項29．日焼け止め用組成物、油性紫外線吸収剤及び/または平均粒径10μm以下の複合シリコン粒子が項1～25の少なくともいずれかに記載される特徴を有する、項28に記載の使用。

項30．油性紫外線吸収剤を含有する日焼け止め用組成物の紫外線防御効果を向上させる方法であって、2種以上の油性紫外線吸収剤及び平均粒径10μm以下の複合シリコン粒子を用いる方法。

項31．日焼け止め用組成物、油性紫外線吸収剤及び/または平均粒径10μm以下の複合シリコン粒子が項1～25の少なくともいずれかに記載される特徴を有する、項30に記載の方法。

【発明の効果】

【0010】

本発明の日焼け止め用組成物によれば、従来の紫外線吸収剤独自が有する紫外線防御能以上の効果が付与される。また、本発明の日焼け止め用組成物を油中水型(W/O(water in oil))エマルションの形態とした場合には、特に汗や水などに対する耐水性を備えたものとなる。このことから、本発明の日焼け止め用組成物は油中水型エマルションの形態とすることで、所望の紫外線防御効果を長時間発揮することができると共に、汗や水などによっても皮膚から一層落ちにくいという、優れた効果を兼ね備える。このことから、本発明の日焼け止め用組成物は、屋内や短時間の外出などの日常生活における使用に有用であることは勿論、一層高い紫外線防御効果が求められる長時間の屋外活動やアウトドアスポーツなど紫外線を多く浴びる場所においても有用である。

【0011】

また、本発明の日焼け止め用組成物は、このように効果が高く、また、水や汗に強いにもかかわらず、適用時に皮膚が白くなりにくいという利点を備えている。更に本発明の日焼け止め用組成物は洗い流しやすく、使い勝手も非常に向上されている。さらに本発明の

10

20

30

40

50

日焼け止め用組成物が電解質を含有する場合には、特に油中水型エマルションの形態の日焼け止め用組成物において特定量の電解質を含有する場合には、高い日焼け止め効果、及び耐水性が奏されることに加え、その油中水型エマルション形態を良好な状態でより長期間維持することができ、従って、日焼け止め用組成物の経時的安定性の点でより一層優れた日焼け止め用組成物とすることができる。

【図面の簡単な説明】

【0012】

【図1】白色度評価の結果を示す写真である。

【図2】洗浄性評価の結果を示すグラフである。

【発明を実施するための形態】

【0013】

以下、本発明の日焼け止め用組成物について説明する。

【0014】

本発明の日焼け止め用組成物は、2種以上の油溶性紫外線吸収剤及び平均粒径10 μ m以下の複合シリコン粒子を含有することを特徴とする。

【0015】

油溶性紫外線吸収剤は、油溶性であって紫外線を吸収する作用を有する限り制限されず、各種の油溶性紫外線吸収剤が使用でき、固形状、半固形状、液状を問わない。油溶性紫外線吸収剤としては、メトキシケイ皮酸エチルヘキシル、オクトクリレン、ジエチルアミノヒドロキシベンゾイル安息香酸ヘキシル、ポリシリコン型紫外線吸収剤、ホモサレート、*t*-ブチルメトキシベンゾイルメタン、サリチル酸エチルヘキシル、エチルヘキシルトリアゾン、ビスエチルヘキシルオキシフェノールメトキシフェニルトリアジン、メチレンビスベンゾトリアゾリルテトラメチルブチルフェノール、オキシベンゾン-3、ジメチルPABAエチルヘキシル、ドロメトリゾールトリシロキサン等が例示される。これらの油溶性紫外線吸収剤において、好ましくはメトキシケイ皮酸エチルヘキシル、オクトクリレン、ジエチルアミノヒドロキシベンゾイル安息香酸ヘキシル、ポリシリコン型紫外線吸収剤、ホモサレート、*t*-ブチルメトキシベンゾイルメタン、サリチル酸エチルヘキシル、エチルヘキシルトリアゾン、ビスエチルヘキシルオキシフェノールメトキシフェニルトリアジン、メチレンビスベンゾトリアゾリルテトラメチルブチルフェノール、オキシベンゾン-3、ドロメトリゾールトリシロキサンが例示され、より好ましくはメトキシケイ皮酸エチルヘキシル、オクトクリレン、ジエチルアミノヒドロキシベンゾイル安息香酸ヘキシル、ポリシリコン型紫外線吸収剤、ホモサレート、*t*-ブチルメトキシベンゾイルメタン、サリチル酸エチルヘキシル、エチルヘキシルトリアゾン、ビスエチルヘキシルオキシフェノールメトキシフェニルトリアジン、メチレンビスベンゾトリアゾリルテトラメチルブチルフェノールが例示され、更に好ましくはメトキシケイ皮酸エチルヘキシル、オクトクリレン、ジエチルアミノヒドロキシベンゾイル安息香酸ヘキシル、ポリシリコン型紫外線吸収剤が例示される。ポリシリコン型紫外線吸収剤としては、例えばポリマーシリコンに結合したケイ皮酸塩が挙げられ、具体的にはポリシリコン-15等が例示される。

【0016】

油溶性紫外線吸収剤は2種以上を組み合わせ使用すればよく、UV-B、更にはUV-Aに対してより高い防御効果を獲得する観点から、3種以上の油溶性紫外線吸収剤を組み合わせ使用することがより好ましい。

【0017】

なお、本発明において、油溶性紫外線吸収剤とは、80で安息香酸アルキル(炭素数12-15)に少なくとも1重量%以上溶解できる紫外線吸収剤を指す。

【0018】

油溶性紫外線吸収剤の含有量は、本発明の効果が得られる限り制限されないが、日焼け止め用組成物中の油溶性紫外線吸収剤の合計の含有量として10重量%以上、好ましくは10~25重量%が例示される。

10

20

30

40

50

【0019】

本発明で使用される複合シリコーン粒子は、平均粒径が10 μ m以下であり、粒径分布としては、おおよそ1~15 μ mの範囲にある。複合シリコーン粒子の一つの例としては、シリコーンレジンを含むことが好ましい。より好ましい複合シリコーン粒子としては、シリコーンゴムをシリコーンレジンで被覆させた複合粒子、すなわちゴム・レジン複合シリコーン粒子が例示され、更に好ましくは球状シリコーンゴムをシリコーンレジンで被覆させたゴム・レジン複合シリコーン粒子が例示される。また、好ましいゴム・レジン複合シリコーン粒子として、ビニルジメチコン、ビニルジフェニルジメチコン、シルセスキオキサン、メチコンシルセスキオキサン等を組み合わせた複合粒子が例示される。ゴム・レジン複合シリコーン粒子として好ましくは平均粒径10 μ m以下のゴム・レジン複合シリコーン粒子であり、より好ましい平均粒子径は2~10 μ m、更に好ましい平均粒子径は2~8 μ mである。ゴム・レジン複合シリコーン粒子としては、KSP-100(平均粒子径5 μ m)、KSP-105(平均粒径2 μ m)、KSP-300(平均粒径5 μ m)、KMP-600(平均粒径5 μ m)、KMP-605(平均粒径2 μ m)(いずれも信越化学社製)が例示される。これらは単独で、または、2種以上を組み合わせ使用してもよい。

10

【0020】

平均粒径10 μ m以下の複合シリコーン粒子の含有量は、本発明の効果が得られる限り制限されず、その種類に応じて適宜設定すればよいが、日焼け止め用組成物中の該複合シリコーン粒子の含有量として4~20重量%が例示される。

20

【0021】

本発明において、前記シリコーン粒子の使用は、SPF及び/またはPAへの貢献の他、肌滑り感や日焼け止め用組成物の粘度の面でも寄与する。

【0022】

本発明の日焼け止め用組成物には、前述の成分に加えて、必要に応じて香粧学的または薬学的に許容可能な任意の他の成分を配合することができる。他の成分としては、溶剤、界面活性剤、水溶性紫外線吸収剤、水、電解質、皮膜形成剤、保湿剤、エモリエント剤、潤滑剤、防腐剤、抗炎症剤、清涼剤、キレート剤、中和剤、酸化防止剤、香料、顔料、色素、滑沢剤、乳化安定剤、消泡剤、保護剤、pH調整剤、皮膚コンディショニング剤、増粘剤、美白剤、細胞賦活剤、糖、アミノ酸、ビタミン等が例示される。

30

【0023】

本発明を制限するものではないが、前記他の成分のうち幾つかの成分について以下にさらに例示する。また、以下に示される成分においては、具体的にその塩、誘導體、付加体、複合体または重合体であってもその性質を損なうものでなければ、特にその使用が否定されるものではない。

【0024】

本発明の日焼け止め用組成物において溶剤は油溶性紫外線吸収剤を溶解できる限り制限されないが、油溶性紫外線吸収剤の溶解に使用される溶剤としては、例えば、シクロペンタシロキサン、ジメチコン、安息香酸アルキル(炭素数12-15)、水添ポリイソブテン、ネオペンタン酸イソステアリル、トリエチルヘキサン酸エリスリチル、テトラエチルヘキサン酸ペンタエリスリチル、エチルヘキサン酸セチル、エチルヘキサン酸エチルヘキシル、ジネオペンタン酸メチルペンタンジオール、ジネオペンタン酸ジエチルペンタンジオール、イソノナン酸イソノニル、トリ(カプリル/カプリン酸)グリセリル、シクロヘキサシロキサン、シクロテトラシロキサン、オクタメチルトリシロキサン、シクロメチコン、カプリルメチコン、コハク酸ジエチルヘキシル、セバシン酸ジイソプロピル等が例示され、好ましくはシクロペンタンシロキサン、ジメチコン、安息香酸アルキル(炭素数12-15)、カプリルメチコン、トリエチルヘキサン酸エリスリチル、テトラエチルヘキサン酸ペンタエリスリチルが例示される。これらは単独で使用してもよく、2種以上を組み合わせ使用してもよい。

40

【0025】

50

溶剤の含有量は、本発明の効果が得られる限り制限されないが、日焼け止め用組成物中の溶剤の含有量として10～50重量%が例示され、好ましくは20～50重量%、より好ましくは20～45重量%が例示される。

【0026】

また、例えば制限されないが界面活性剤として、非イオン性界面活性剤、シリコーン界面活性剤、カチオン性界面活性剤、アニオン性界面活性剤、両性界面活性剤が例示される。

【0027】

具体的には、非イオン性界面活性剤として、PEG水添ヒマシ油、イソステアリン酸PEG、オレイン酸ポリグリセリル、ジイソステアリン酸PEG、トリーソステアリン酸PEG、ヒドロキシステアリン酸グリセリル、ジポリヒドロキシステアリン酸PEG等が例示される。

10

【0028】

シリコーン系界面活性剤としては、ラウリルPEGポリジメチルシロキシエチルジメチコン、PEGポリジメチルシロキシエチルジメチコン、PEGメチルエーテルジメチコン、PEG/PPGブチルエーテルジメチコン、PEGジメチコン、PEGメチルエーテルジメチコン等が例示される。

【0029】

カチオン性界面活性剤として、塩化ステアリルトリメチルアンモニウム等の塩化アルキルトリメチルアンモニウム塩、塩化ジステアリルジメチルアンモニウム等の塩化ジアルキルジメチルアンモニウム塩、塩化ベンザルコニウム等が例示される。

20

【0030】

アニオン性界面活性剤としてステアリン酸カリウム、ステアリン酸トリエタノールアミン等の脂肪酸塩、セチル硫酸ナトリウム等のアルキル硫酸塩、POEアルキル(12, 13)エーテル硫酸トリエタノールアミン等のPOEアルキルエーテル硫酸塩、ミリストイルメチルタウリンナトリウム等のN-アシルメチルタウリン塩、セチルリン酸ジエタノールアミン等のアルキルリン酸塩、POEセチルエーテルリン酸ナトリウム等のPOEアルキルリン酸塩、N-ステアロイル-L-グルタミン酸ナトリウム、N-ステアロイル-L-グルタミン酸カリウム、N-ステアロイル-L-グルタミン酸トリエタノールアミン等のN-アシルアミノ酸塩等が例示される。

30

【0031】

両性界面活性剤として、2-アルキル-N-カルボキシメチル-N-ヒドロキシエチルイミダゾリニウムベタイン等のアルキルカルボキシメチルヒドロキシエチルイミダゾリニウムベタイン、ラウリン酸アミドプロピルベタイン等のアルキルアミドプロピルベタイン、ラウリルヒドロキシスルホベタイン等のアルキルヒドロキシスルホベタイン等が例示される。

【0032】

これらにおいて好ましくは、非イオン性界面活性剤やシリコーン系界面活性剤であり、具体的には、ジポリヒドロキシステアリン酸PEGやラウリルPEGポリジメチルシロキシエチルジメチコン等が例示される。これらも単独で使用してもよく、2種以上を組み合わせ使用してもよい。

40

【0033】

界面活性剤の含有量も本発明の効果が得られる限り制限されないが、日焼け止め用組成物中の界面活性剤の含有量として0.5～4重量%が例示される。

【0034】

また、本発明の日焼け止め用組成物においては、本発明の効果が得られる限り、場合によって、水溶性紫外線吸収剤を含有させてもよい。水溶性紫外線吸収剤としては、フェニルベンズイミダゾールスルホン酸、テレフタリリデンジカンフルスルホン酸、オキシベンゾン-4、これらの塩等が例示され、好ましくはフェニルベンズイミダゾールスルホン酸、テレフタリリデンジカンフルスルホン酸、これらの塩が例示される。これらも単独で使

50

用してもよく、2種以上を組み合わせ使用してもよいが、油溶性紫外線吸収剤を3種以上配合する場合においては、肌への負担を抑える目的から、本発明の日焼け止め用組成物に含有される水溶性吸収剤の種類は1種のみであるか、水溶性吸収剤を配合しないことがより好ましい。また、本発明において油中水型のエマルション形態をとる場合においては、水相には電解質を含むことから、安定性に影響を及ぼさない目的からも、水溶性紫外線吸収剤は1種以下とすることが望ましい。その場合、水溶性紫外線吸収剤としては、フェニルベンズイミダゾールスルホン酸またはその塩が例示される。

【0035】

水溶性紫外線吸収剤の含有量も本発明の効果が得られる限り制限されないが、日焼け止め用組成物中の水溶性紫外線吸収剤の含有量として0~10重量%、好ましくは0~5重量%が例示される。

10

【0036】

また、本発明の日焼け止め用組成物に水を含有させる場合、水として制限されないが、精製水、蒸留水、イオン交換水、天然水などを使用できる。

【0037】

水の含有量も本発明の効果が得られる限り制限されないが、日焼け止め用組成物中の水の含有量として10~40重量%が例示され、好ましくは15~30重量%、より好ましくは20~30重量%が例示される。本発明において電解質を含有する日焼け止め用組成物とする場合には、水の存在が必要であり、水分量が10重量%以下では電解質を安定に含有することが困難である一方、水分量が高すぎると日焼け止め用組成物の耐水性が損なわれてしまうことが危惧される。

20

【0038】

本発明の日焼け止め用組成物においては、これを安定な油中水型のエマルション形態とする目的においては、電解質を含有させることが望ましい。使用する電解質は特に限定されず、例えば外用剤、特に化粧品や外用の医薬品又は医薬部外品中に配合できるものを広く挙げるができる。

【0039】

本発明において好ましい電解質としては、無機塩、プリン系化合物、水溶性ビタミン、その誘導体及びその塩からなる群より選択される少なくとも1種が例示される。

【0040】

本発明における無機塩としては、ナトリウム、カリウム、マグネシウムまたはカルシウム等の金属の塩化物、硫化物等が例示される。

30

【0041】

本発明におけるプリン系化合物とは、プリン核を骨格とする各種の誘導体及びその塩の総称である。本発明において使用されるプリン系化合物は薬学的又は香粧学的に許容されるものであれば特に制限されないが、具体的にはアデニン、グアニン及びそれらの脱アミノ化物、アデノシン、グアノシン、イノシン、アデノシンのリン酸エステル(アデノシンーリン酸(アデノシン5'-リン酸)、アデノシン二リン酸、アデノシン三リン酸、アデノシン-3',5'-環状リン酸等)、グアノシンのリン酸エステル(グアノシンーリン酸、グアノシン二リン酸、グアノシン三リン酸等)、イノシンリン酸エステル(イノシンーリン酸、イノシン二リン酸、イノシン三リン酸等)等が例示される。

40

【0042】

本発明における水溶性ビタミン及びその誘導体としては、アスコルビン酸、ビタミンB群、リポ酸、及びこれらの誘導体が例示される。具体的にはアスコルビン酸の誘導体としては、リン酸アスコルビルマグネシウム、リン酸アスコルビルナトリウム、アスコルビン酸硫酸エステルナトリウム、アスコルビン酸グルコシド、アスコルビン酸グルコサミン、デヒドロアスコルビン酸等が例示される。

【0043】

前記各種の塩としては、薬学的又は香粧学的に許容されるものであれば特に制限されず、ナトリウム塩、カリウム塩等のアルカリ金属塩、アルカリ土類金属塩、塩基性アミノ酸

50

塩、アンモニウム塩、アルカノールアミン塩等が挙げられる。これらの塩の中でも、好ましくはアルカリ金属塩、更に好ましくはナトリウム塩が例示される。

【0044】

これらの中でもより好ましくは無機塩化物、無機硫化物、アデノシンのリン酸エステル、アスコルビン酸、その誘導体及びこれらの塩が例示され、更に好ましくはナトリウム、マグネシウム、カルシウムの塩化物及び/または硫化物、ならびにアデノシンーリン酸、アスコルビン酸、その誘導体及びこれらの塩が例示され、特に好ましくは塩化ナトリウム、塩化マグネシウム、塩化カルシウム、アデノシンーリン酸及びその塩、ならびにリン酸アスコルビル及びその塩が例示される。本発明において、電解質は1種単独で使用してもよく、また2種以上を組み合わせ使用してもよい。

10

【0045】

電解質の含有量は、本発明の効果が得られる限り制限されず、日焼け止め用組成物中、0.1~10重量%が例示される。その中でも、油中水型エマルションの形態の日焼け止め用組成物においては、油中水型エマルションの形態を良好な状態でより長期間安定に維持させる点から、電解質の含有量は、日焼け止め用組成物中、0.5~5重量%が好ましく、0.5~3重量%がより好ましい。また、油中水型エマルションの形態の日焼け止め用組成物における水100重量部あたりの電解質の含有量としては、1.5~40重量部が例示され、好ましくは2~20重量部、より好ましくは2~10重量部、特に好ましくは2~6重量部が例示される。

20

【0046】

本発明の日焼け止め用組成物は、油中水型(W/O(water in oil))エマルションの形態や水中油型(O/W(oil in water))エマルションの形態などの適宜所望の形態とできる。本発明の日焼け止め用組成物がエマルションの形態である場合には、そのエマルション形態を好適に維持させておくことが、本発明の前記所望の効果をj得る上で一層望ましい。好適なエマルション形態とは、水中油型では油滴が、油中水型では水滴がエマルション中に安定して存在していることをいう。より詳細には、例えば本発明の日焼け止め用組成物が油中水型のエマルション形態であり、静置させると主として2層に分かれる場合を説明すると、上層は油相であり、下層は目視できないほど微小な水滴が油中に分散している相であり、該下層において目視できないほど微小な水滴が油中に実質的に均一分散している状態が、好適な油中水型のエマルション形態が維持されているということがjできる。このような可逆的な分離状態をクリーミングという。一方、該下層において、油中の水滴が目視できるくらいに過剰に大きくなったり、更に合一して水相が生じたり分離してしまった場合には、好適なエマルション形態が十分に維持できなくなると判断でき、そうすると本発明の所望の紫外線防御効果が十分に獲得できなくなる場合がある。この点から、エマルションの形態にある本発明の日焼け止め用組成物において、特に油中水型のエマルション形態の日焼け止め用組成物において、好適なエマルション形態をより長期間維持させることは重要な特性の一つである。

30

【0047】

前述するように2種以上の油溶性紫外線吸収剤及び平均粒径10µm以下の複合シリコーン粒子を含有する本発明の日焼け止め用組成物によれば、そのSPFの向上が可能となる。また、本発明においては、油溶性紫外線吸収剤等の各成分を前述の複合シリコーン粒子と組み合わせる前j述の含有範囲において混合することによって、その目的にあわせて日焼け止め用組成物のSPFを所望の値に適宜設定できる。このように本発明の日焼け止め用組成物においてはSPF値を適宜設定できるため、屋内や短時間の外出などの日常生活での使用を目的とされる比較的SPFの低い日焼け止め用組成物とできることは勿論、紫外線を多く浴びる場所での使用に適したSPF値の高い日焼け止め用組成物とすることもできる。本発明は、特にSPF値の高い日焼け止め用組成物に適するものであり、紫外線を多く浴びる場所で使用される日焼け止め用の化粧品または医薬部外品(医薬部外品)を目的とする場合、望まれるSPF値は40以上、好ましくは50以上であり、例えば日本における紫外線UV-B防御能を表示する指標としてSPF50+の表示ができる程度jの

40

50

S P F 値を有することが望ましい。

【 0 0 4 8 】

さらに、本発明の日焼け止め用組成物は U V - B に対する紫外線防御効果だけでなく、U V - A の紫外線に対する防御効果も兼ね備え得る。特に、3 種以上の油溶性紫外線吸収剤を含有することによって、高い U V - B 領域の紫外線に対する防御効果とともに U V - A 領域の紫外線に対する高い防御効果を兼ね備える。このように、本発明においては、使用目的に応じて前述の油溶性紫外線吸収剤等の各成分を前述の複合シリコーン粒子と組み合わせて前述の含有範囲において適宜混合することによって、日焼け止め用組成物の P F A も S P F と共に所望の値に適宜設定できる。P A は国によって様々な表示がなされるが、その評価基準とされる P F A 値としては、紫外線を多く浴びる場所での使用を目的とされる日焼け止め用組成物では P F A 値が 4 以上であるものが好まれる傾向にある。そのため、高い日焼け止め効果を有する組成物という観点からは、S P F と同様に高い P A 効果を有することが望ましく、例えば日本における紫外線 U V - A 防御能を表示する指標として、P A + + + の表示ができる程度の P F A 値を有することが望ましい。すなわち、本発明の日焼け止め用組成物は、高い S P F 値と高い P F A 値、好ましくは S P F 4 0 以上と P F A 5 以上、さらに好ましくは S P F 5 0 またはそれ以上 (S P F 5 0 +) と P F A 8 以上 (日本で、P A + + + 以上) とを兼ね備え得る。

10

【 0 0 4 9 】

このように、本発明によれば、日焼け止め用組成物の S P F や P A を所望の値にすることができ、これを皮膚に適用した場合には優れた日焼け止め効果が発揮される。

20

【 0 0 5 0 】

また、本発明によれば、日焼け止め用組成物の粘度も制限されず所望の形態に応じて適宜設定できるが、肌滑り感等の使用感の点で一層優れたものとする点から、粘度は低い範囲が好ましい。かかる粘度としては、2 0 における B 型粘度計での測定範囲で 1 0 0 ~ 1 0 0 0 m P a ・ s 、好ましくは 1 0 0 ~ 5 0 0 m P a ・ s の範囲である。

【 0 0 5 1 】

また、本発明の日焼け止め用組成物としては、使用時の肌の白色化や塗布時のきしみ感を避けるため、金属酸化物である酸化亜鉛や酸化チタン等の紫外線散乱剤を配合しないことが望ましい。従来多数報告されている高い S P F が謳われてきた日焼け止め剤には、一般に紫外線散乱剤が広く使用されている。本発明において、紫外線散乱剤を配合しないことは、日焼け止め用組成物使用時の皮膚の白色化等の違和感を防ぐ目的で有用である。なお、紫外線散乱剤を配合する場合においても日焼け止め用組成物中の含有量は 0 . 5 重量 % 以下であることが好ましい。

30

【 0 0 5 2 】

本発明の日焼け止め用組成物の一態様としては、メトキシケイ皮酸エチルヘキシル、オクトクリレン、ジエチルアミノヒドロキシベンゾイル安息香酸ヘキシル、ポリシリコーン - 1 5 、ホモサレート、t - ブチルメトキシベンゾイルメタン、サリチル酸エチルヘキシル、エチルヘキシルトリアゾン、ビスエチルヘキシルオキシフェノールメトキシフェニルトリアジン、メチレンビスベンゾトリアゾリルテトラメチルブチルフェノール、オキシベンゾン - 3 及びドロメトリゾールトリシロキサンからなる群より選択される少なくとも 2 種の油溶性紫外線吸収剤、平均粒径 1 0 μ m 以下のゴム・レジン複合シリコーン粒子、溶剤、界面活性剤、ならびに水を含有するものが例示される。さらに U V - A に対する一層高い予防効果も兼ね備えさせる場合には、油溶性紫外線吸収剤を 3 種以上とし、そのうちの 1 種は、ジエチルアミノヒドロキシベンゾイル安息香酸ヘキシル、t - ブチルメトキシベンゾイルメタン、ビスエチルヘキシルオキシフェノールメトキシフェニルトリアジン、メチレンビスベンゾトリアゾリルテトラメチルブチルフェノール、オキシベンゾン - 3 及びドロメトリゾールトリシロキサンからなる群より選択されることが望ましく、特にジエチルアミノヒドロキシベンゾイル安息香酸ヘキシルであることが好ましい。

40

【 0 0 5 3 】

また、本発明の日焼け止め用組成物の別の態様としては、前記態様において更に前記

50

電解質を含有するものが例示される。

【0054】

本発明の日焼け止め用組成物には、さらに任意の成分として、特に前述する酸化防止剤、防腐剤、エモリエント剤、pH調整剤、キレート剤、抗炎症剤等が配合されていてもよい。

【0055】

本発明において配合に適する酸化防止剤または防腐剤としては、トコフェロール、ジブチルヒドロキシルエン、ペンチレングリコール、カテキン類、安息香酸、イソプロピルメチルフェノール、サリチル酸、パラオキシ安息香酸エステル、フェノキシエタノール等が例示される。

10

【0056】

本発明において配合に適するエモリエント剤としては、ジヒドロコレステロール、イソステアリン酸ヘキシルデシル、ホホバ油、スクワラン、ステアリン酸コレステリル、テトラエチルヘキサン酸ペンタエリスリチル、デカイソステアリン酸ポリグリセリル、エチルヘキサン酸ヘキシルデシル、PEGラノリン、ネオペンタン酸イソデシル、キミルアルコール、パチルアルコール、ステアリン酸イヌリン、水添ポリイソブテン、トリ(カプリル/カプリン酸)グリセリル等が例示される。

【0057】

本発明において配合に適するpH調整剤、キレート剤としては、アミノメチルプロパノール、アミノメチルプロパンジオール、トリエタノールアミン、クエン酸等の有機酸、EDTA等が例示される。

20

【0058】

本発明において配合に適する抗炎症剤としては、グリチルリチン酸またはその塩、グリチルレチン酸またはその脂肪酸エステル、トラネキサム酸、プロメラインやカミツレエキス等が例示される。本発明において抗炎症剤は、例えば前述の電解質の中でも、アデノシンのリン酸エステル等のプリン系化合物、水溶性ビタミン、水溶性ビタミンの誘導体及びその塩等といった電解質と併用して用いられることが好ましく、それにより、皮膚障害の改善作用と皮膚機能の改善作用が併せて示されることが期待できる。

【0059】

本発明の日焼け止め用組成物には、その他、必要に応じて薄荷(メントール)、香料(精油、合成香料等)を適宜配合してもよい。例えば薄荷は日焼け止め用組成物に清涼感や香りを付与する目的でも有効であり、この観点から、日焼け止め用組成物への薄荷の配合は好ましい。また、精油は、その油分によって肌滑り感の向上をもたらすとともに、肌に優しい香料としても使用できることから、日焼け止め用組成物への精油の配合は好ましい。配合する精油としては、油分である限り特に限定されるものではなく従来公知のものが使用できるが、特にアデノシンのリン酸エステル等のプリン系化合物と併用する場合、ダイウイキョウ油、ニオイヒバ油、アトラスシーダ油、ラバンデュラハイブリダ油、ライム油、ハッカ油、セイヨウアカマツ油、ローズマリー油及びテレピン油から選択されることが好ましく、その中でもダイウイキョウ油、セイヨウアカマツ油及びラバンデュラハイブリダ油から選択されることがより好ましい。

30

40

【0060】

これらの点から、本発明の日焼け止め用組成物の別の態様としては、油溶性紫外線吸収剤として、メトキシケイ皮酸エチルヘキシル、オクトクリレン、ジエチルアミノヒドロキシベンゾイル安息香酸ヘキシル、ポリシリコーン-15、ホモサレート、t-ブチルメトキシベンゾイルメタン、サリチル酸エチルヘキシル、エチルヘキシルトリアゾン、ビスエチルヘキシルオキシフェノールメトキシフェニルトリアジン及びメチレンビスベンゾトリアゾリルテトラメチルブチルフェノール、オキシベンゾン-3及びドロメトリゾールトリシロキサンからなる群より選択される少なくとも2種と、更に平均粒径10µm以下のゴム・レジン複合シリコーン粒子、溶剤、界面活性剤、電解質、抗炎症剤、精油ならびに水を含有するものが例示される。

50

【0061】

本発明の日焼け止め用組成物の形態は一層、多層は制限されず、目的に応じて、従来公知の種々の形態とできる。また、本発明の日焼け止め用組成物は、さらに日焼け止め効果を備えた化粧水、乳液、美容液等の液剤の他、化粧下地、ファンデーションや口紅等のメイクアップ化粧料、特に液状のメイクアップ化粧料としても使用可能である。

【0062】

また、本発明の日焼け止め用組成物は、油中水型エマルションの形態や水中油型エマルションの形態などの適宜所望の形態とできるが、耐水性を高める点から油中水型エマルションの形態が好ましい。

【0063】

本発明の日焼け止め用組成物は、前述の油性紫外線吸収剤等の各成分と平均粒径10 μ m以下の複合シリコン粒子とを、所望のSPF値、所望のPA値、所望の粘度及び/または所望の形態となるよう従来公知の方法に従い、目的に合わせて適宜混合することによって製造できる。

【0064】

本発明の日焼け止め用組成物を皮膚に適用する回数については特に制限されないが、例えば1cm²あたり約2mgを2時間毎に1回適用することで、十分にその効果が得られる。

【0065】

本発明によれば、日焼け止め用組成物を皮膚に適用した場合に優れた日焼け止め効果が発揮される。特に、本発明によれば日焼け止め用組成物を高いSPF効果とPA効果の双方を示すものとするを可能とし、紫外線を多く浴びる場所においても日焼け止め効果を十分に発揮できる。また、本発明によれば、日焼け止め用組成物のSPF及びPAを所望の値に適宜設定することができ、これを皮膚に適用することによりSPF及びPAの両観点から優れた日焼け止め効果を発揮できる。

【0066】

また、本発明の日焼け止め用組成物を油中水型エマルションの形態とした場合には、本発明の日焼け止め用組成物は、特に、汗や水などに対する耐水性を備えたものとなる。このことから、本発明の日焼け止め用組成物を油中水型エマルション形態とした場合には、本発明の日焼け止め用組成物は、所望のSPF、さらには所望PAを備えつつも、汗や水などによっても皮膚から一層落ちにくく該紫外線防御効果の経時的な低下の抑制または防止効果を備えるという、一層優れた効果を兼ね備える。また、本発明の日焼け止め用組成物を液状の油中水型エマルション形態とした場合には、本発明の日焼け止め用組成物は更に肌の滑り感がより良好になる点で一層優れた効果を兼ね備える。また、本発明の日焼け止め用組成物を、特に油中水型エマルション形態にある日焼け止め用組成物において、これを特定量の電解質を含有するものとした場合、これは経時的安定性の点でも特に優れた組成物となる。

【0067】

このことから、本発明の日焼け止め用組成物は、屋内や短時間の外出などの日常生活における使用に有用であることは勿論、一層高い紫外線防御効果が求められる屋外活動やアウトドアスポーツなど紫外線を多く浴びる場所においても優れた紫外線防御能且つ耐水性を発揮することができ、汗や水に強く使い心地のよい日焼け止め用組成物としても有用である。

【0068】

また、本発明の一態様によれば、皮膚に適用した際に白くなりにくい日焼け止め用組成物を製造できる。従来の日焼け止め用組成物の中には適用した際に皮膚が不自然に白くなり、従って、使用感が損なわれるものも多く存在する。本発明の日焼け止め用組成物によれば、皮膚に適用した際に白くなりにくいことから、この点の使用感も向上させることができる。また、本発明の一態様によれば、アデノシンのリン酸エステルといった前記電解質を含有しているにもかかわらず、日焼け止め用組成物を油中水型のエマルション形態と

10

20

30

40

50

した場合であっても前述のように高い日焼け止め効果等が得られるとともに、前記電解質に由来する皮膚の水分透過機能の正常化といった機能が促され、一層肌に優しいものとなる。さらに、本発明の日焼け止め用組成物は、使用後に除去する際にも日焼け止め用組成物を皮膚から容易に落とすことができることから、除去のために皮膚を過剰に擦るなどの過度の刺激を与えることもなく、洗い流しにくいという不便さ、不快感が軽減されているという点でも利点を有する。

【0069】

これらのことから、本発明は、日焼け止め用組成物の、SPF値、耐水性、PAF値及び/または経時的安定性といった点で、紫外線防御効果を向上させるための、2種以上の油溶性紫外線吸収剤及び平均粒径10 μ m以下の複合シリコーン粒子の使用を提供しているといえる。また、本発明は、2種以上の油溶性紫外線吸収剤を用い、且つ、平均粒径10 μ m以下の複合シリコーン粒子を用いることにより、油溶性紫外線吸収剤を含有する日焼け止め用組成物の、SPF値、耐水性、PAF値及び/または経時的安定性といった点で、紫外線防御効果を向上させる方法を提供しているといえる。当該使用の提供及び方法の提供において、日焼け止め用組成物、これを構成する油溶性紫外線吸収剤、平均粒径10 μ m以下の複合シリコーン粒子等の各成分やその含有量、製造方法、日焼け止め用組成物の適用方法等は前述と同様に説明される。

10

【実施例】

【0070】

以下、実施例を挙げて本発明を説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

20

試験例 1

1. 日焼け止め用組成物の製造

後述する表1に示す成分を各配合割合で混合し、乳液状の油中水型日焼け止め用組成物(実施例1~3)を作成した。なお、表中、各配合割合の単位は重量%である。

【0071】

【表 1】

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	比較例 1
メキシケイ皮酸エチルヘキシル *1	7	7	7	7
オクトクリレン *2	3	3	3	3
ジエチルアミノヒドロキシベンゾイル安息香酸 ヘキシル *3	4	4	4	4
ポリシリコーン-15 *4	3.5	3.5	3.5	3.5
(ビニルジメチコン/メチコンシルセスキオキサン) クロスポリマー(平均粒径5 μm) *5	4	4	4	0
(ビニルジメチコン/メチコンシルセスキオキサン) クロスポリマー(平均粒径12 μm) *6	0	0	0	4
ジメチコン *7	0	0.2	0	0
ジメチコン *8	1	0.8	1	3
カプリリルメチコン *9	2.5	2.5	2.5	0
ジフェニルシロキシフェニルトリメチコン *10	0.3	0.3	0.3	0.5
安息香酸アルキル(C12-15) *11	5	5	5	3
シクロペンタシロキサン *12	14	14	14	16
シクロペンタシロキサン/ジメチコノール *13	0	0	0.5	0
シクロペンタシロキサン/トリメチルシロキシ ケイ酸 *14	0.5	0.5	0.5	0.5
シクロペンタシロキサン/ポリメチル シルセスキオキサン *15	0	0	0	1
ポリメチルシルセスキオキサン (平均粒径6 μm) *16	3	3	3	4
ポリメチルシルセスキオキサン *17	2	2	2	0
フェニルベンゾイミダゾールスルホン酸 *18	1.5	1.5	1.5	1.5
ラウリルPEG9 ポリジメチルシロキシエチル ジメチコン *19	2.4	2.4	2.4	2.5
ジポリヒドロキシステアリン酸PEG30 *20	0.2	0.2	0.2	0.2
エタノール	7.5	7.5	7.5	7.5
アデノシン 5'-リン酸	0.5	0.5	0.5	0.5
酸化防止剤・防腐剤	適量	適量	適量	適量
キレート剤・pH 調整剤・エモリエント剤・香料	適量	適量	適量	適量
保湿剤・抗炎症剤	適量	適量	適量	適量
水	25-30	25-30	25-30	25-30
合計	100	100	100	100

*1 ; 商品名「ユビナルMC80N」(BASF社製)、*2 ; 商品名「オーソレックスOCR」(メルク社製)、*3 ; 「ユビナルA Plusグラニューラー」(BASF社製)、*4 ; 商品名「パルソールSLX」(DSM社製)、*5 ; 商品名「KSP-100」(信越化学工業社製)、*6 ; 商品名「KSP-101」(信越化学工業社製)、*7 ; 商品名「KF-96A-6CS」(信越化学工業社製)、*8 ; 商品名「KF-96A-50000CS」(信越化学工業社製)、*9 ; 商品名「SS-3408」(東レ・ダウコーニング社製)、*10 ; 商品名「KF-56A」(信越化学工業社製)、*11 ; 商品名「CRODAMOL A B」(クローダ社製)、*12 ; 商品名「SH245 Fluid」(東レ・ダウコーニング社製)、*13 ; 商品名「1501 Fluid」(東レ・ダウコーニング社製)、*14 ; 商品名「KF-7312J」(信越化学工業社製)、*15 ; 商品名「SilForm Flexible Fluid」(モメンティヴ社製)、*16 ; 商品名「トスパール2000B」(モメンティヴ社製)、*17 ; 商品名「KMP-590」(信越化学工業社製)、*18 ; 商品名「パルソールHS」(DSM社製)、*19 ; 商品名「KF-6038」(信

10

20

30

40

50

越化学工業社製)、*20;商品名「シスロールDPHS AP」(クローダ社製)

【0072】

なお、比較例として、表1に記載の平均粒径5 μ mのビニルジメチコン/メチコンシルセスキオキサン)クロスポリマーに代えて、平均粒径12 μ mの(ビニルジメチコン/メチコンシルセスキオキサン)クロスポリマーを使用し、同様に製造した日焼け止め用組成物を、比較例1とした。

【0073】

2. SPFの測定

製造した実施例1~3及び比較例1の日焼け止め用組成物について、in vitroの系でSPF値を測定した。

10

【0074】

具体的には、実施例1~3及び比較例1の日焼け止め用組成物をそれぞれ別々のヘリオプレートHD6(HELIOPLATE(登録商標)HD6、HerioScreen Lab.社製)全体に小さいスポット状にピペットで乗せた。このとき、日焼け止め用組成物は1プレートあたり28.7 \pm 0.3mgになるように乗せた。次いで、日焼け止め用組成物を、軽い力で素早くプレート全体に広げ、その後、プレート全体に均一に塗り付けた。次いで、室温下で暗所にて15分間静置したのち、UV-2000S(Labsphere社製)を用いてプレートのSPF値を測定し、その平均値を得た。

【0075】

【表2】

20

	実施例1	実施例2	実施例3	比較例1
SPF値	85	94	77	39

【0076】

3. 結果

表2から明らかなように、実施例1~3の日焼け止め用組成物において、比較例1の日焼け止め用組成物と比較して、SPFの明らかな向上が示された。このことから、実施例1~3の日焼け止め用組成物によれば、紫外線吸収剤の持つ効果を一層高めることができることが分かった。また、in vitroでのSPF値は、測定状況等により人での評価とずれを生じることもあるが、前記実施例1~3の数値をもってすれば、人においても少なくとも40以上のSPF値が得られると判断できる。加えて、前記実施例1~3においては、UV-Aに対して防御効果を有する油性紫外線吸収剤を組み合わせることで配合していることから、SPF同様、PAについても高い効果が得られると判断できる。

30

【0077】

また、実施例1~3は油中水型エマルジョン形態の日焼け止め用組成物であることから、汗や水などに対する耐水性を備えている。このことから、実施例1~3の日焼け止め用組成物はさらに皮膚から落ちにくいという効果を備えており、屋内や短時間の外出などの日常生活における使用に有用であるだけでなく、一層高い紫外線防御効果が求められる紫外線を多く浴びる場所においても優れた紫外線防御能かつ耐水性を発揮できる点で有用であり、水や汗に強い日焼け止め用組成物としても使用できることが明らかになった。

40

【0078】

また、結果には示さないが、実施例1~3の日焼け止め用組成物においては、酸化チタン等の金属粉体を含まないことから、高いSPFを有する日焼け止め用組成物に特有の皮膚に適用した際の不自然な肌の白色化が示されず、満足できるものであった。加えて、その粘度についても、所望の低い粘度域にあり、肌滑り感の面で、高粘度の日焼け止め製剤とは異なる、期待に合致するものであった。

【0079】

試験例2

実施例4~6

50

日焼け止め用組成物の製造

後述する表3に示す成分を各配合割合で混合し、油中水型日焼け止め用組成物（実施例4～6）を作成した。なお、表中、各配合割合の単位は重量%である。なお、実施例1～3の組成物の粘度は、それぞれ、20におけるB型粘度計で測定した場合、150～250 mPa・sであった。

【0080】

【表3】

表示名称	実施例4	実施例5	実施例6
メトキシケイ皮酸エチルヘキシル *1	7	7	7
オクトクリレン *2	3	2.5	3.5
ジエチルアミノヒドロキシベンゾイル安息香酸ヘキシル *3	3	3	3
ポリシリコーン-15 *4	3	3	3
(ビニルジメチコン/メチコンシルセスキオキサン)クロスポリマー *5	4	4	4
ポリメチルシルセスキオキサン *6	3	3	3
フェニルベンズイミダゾールスルホン酸 *7	0	1	0
グリチルリチン酸2カリウム	0.05	0.05	0.05
グリチルレチン酸ステアリル	0.05	0.05	0.05
ヒアルロン酸ナトリウム	0.001	0.001	0.001
塩化ナトリウム・アデノシン 5'-リン酸	0.5-1	0.5-1	0.5-1
溶剤・エモリエント剤	適量	適量	適量
界面活性剤・酸化防止剤・防腐剤	適量	適量	適量
キレート剤・pH調整剤・清涼剤・香料	適量	適量	適量
水	24-28	24-28	24-28
合計	100	100	100

*1；商品名「ユピナルMC80N」（BASF社製）、*2；商品名「オーソレックスOCR」（メルク社製）、*3；「ユピナルA Plusグラニューラー」（BASF社製）、*4；商品名「パルソールSLX」（DSM社製）、*5；商品名「KSP-100」（信越化学工業社製）、*6；商品名「トスパール2000B」（モメンティブ社製）、商品名「KMP-590」（信越化学工業社製）、*7；商品名「パルソールHS」（DSM社製）

【0081】

試験例2-1

実施例4の日焼け止め用組成物のSPFの評価

前述のように製造した実施例4の日焼け止め用組成物について、国際規格ISO24444に従い、SPF値を測定した。具体的には以下のようにしてSPF値を測定した。

【0082】

10名の被験者の背部肩甲骨から腰の間で区切られた部位を被験部位とし、実施例4の日焼け止め用組成物を塗布した。塗布面積はそれぞれ5cm×7cmとし、70mgを指先で全体におよそ30秒間で伸ばした。被験部位の紫外線照射は、塗布15分後に開始した。紫外線照射の光源としては、厚さ1mmのSchott WG320及びUG11フィルターを備えたフィルターシステムを装備したキセノンアークソーラーシミュレーター（USHIO OPTICAL MAODULEX、ウシオ電機株式会社製）を使用し、UVB（波長290～320nm）を含有する放射光を被験部位に照射した。照射野は6つとし、面積はいずれも0.5cm²とし

た。また、照射増幅量は等比1.10で行った。各被験者のSPF値は、各被験者の塗布部のMED/無塗布部のMEDの比として算出した。MEDは(Minimal Erythema Dose、最小紅斑量)の判定は、照射24±4時間後に、視覚的に皮膚反応を判定し決定した。なお、MEDとは、皮膚に微かな紅斑が認められる最小の紫外線量(時間)を示す。日焼け止め用組成物のSPFは、このようにして得られたそれぞれのSPF値の平均とした。このようにして求めたSPF値に基づき、各国所定の分類に従ったSPF表示が決定される。その結果を表2に示す。

【0083】

【表4】

	平均値(n=10)
SPF値	55.3

10

【0084】

表4から明らかのように、実施例4の日焼け止め用組成物のSPF値の平均値は55.3であった。本試験の結果より、実施例4の日焼け止め用組成物は、SPF50以上であることが示された

【0085】

また、実施例4は液状の油中水型エマルション形態の日焼け止め用組成物である。そのため、本組成物は汗や水などに対する耐水性も備えており、使用中に皮膚から落ちにくいという効果も備えている。このことから、該日焼け止め用組成物は屋内や短時間の外出などの日常生活における使用に有用であるだけでなく、一層高い紫外線防御効果が求められる紫外線を多く浴びる場所においても優れた紫外線防御能且つ耐水性を発揮できる点で有用であり、水や汗に強い日焼け止め用組成物としても使用できることが分かった。また、実施例4の日焼け止め用組成物はアデノシンリン酸エステルを含有していることから、皮膚の水分透過機能の維持や改善に寄与することが期待される。

20

【0086】

試験例2-2

実施例5の日焼け止め用組成物のSPFとPAの評価

前述のようにして製造した実施例5に記載の組成物について、試験例2-1と同様にしてSPF値を測定するとともに、PFA値を日本化粧品工業連合会指針の測定基準に従い評価した。

30

【0087】

まず、10名の被験者の背部肩甲骨から腰の間で区切られた部位を被験部位とし、実施例5の日焼け止め用組成物を塗布した。塗布面積はそれぞれ4cm×6cmとし、48mgを指先で全体におよそ30秒間で伸ばした。被験部位の紫外線照射は、塗布15分後に開始した。紫外線照射の光源としては、厚さ1mmのSchott WG320及びUG11フィルターを備えたフィルターシステムを装備したキセノンアークソーラーシミュレーター(USHIO OPTICAL MAODULEX、ウシオ電機株式会社製)を使用し、UVA(波長320~400nm)を含有する放射光を被験部位に照射した。照射野は6つとし、面積はいずれも0.5cm²とした。また、照射増幅量は等比1.10で行った。各被験者のPFA値は、各被験者の塗布部のMPPD/無塗布部のMPPDの比として算出した。MPPD(Minimal Persistent Pigment darkening Dose、最小持続型即時黒化量)は、照射終了後2~4時間後に判定した。なお、MPPDとは、照射終了後2~4時間で、照射野のほぼ全域に微かな黒化が認められる最小の紫外線量を示す。日焼け止め用組成物のPFA値は、このようにして得られたそれぞれのPFA値の平均とした。このようにして求めたPFA値に基づき、各国所定の分類に従ったPA表示が決定される。その結果を表3に示す。

40

【0088】

【表 5】

	平均値(n=10)
SPF値	54.0
PFA値	8.3

【0089】

表 5 から明らかなように、実施例 5 の日焼け止め用組成物の SPF 値の平均値は 54.0 であった。本試験の結果より、実施例 5 の日焼け止め用組成物も SPF 50 以上であることが示された。更に、実施例 5 の日焼け止め用組成物の PFA 値は 8 以上であることが示された。このように、該日焼け止め用組成物は UVB に対しても UVA に対しても著しく高い防御効果を備えていることがわかった。

10

【0090】

また、実施例 5 も液状の油中水型エマルション形態の日焼け止め用組成物である。そのため、本組成物は、実施例 4 と同様に、汗や水などに対する耐水性も備えており、使用中に皮膚から落ちにくいという効果も備えている。このことから、該日焼け止め用組成物は屋内や短時間の外出などの日常生活における使用に有用であるだけでなく、前述のように一層高い紫外線防御効果が求められる紫外線を多く浴びる場所においても優れた紫外線防御能且つ耐水性を発揮できる点で著しく有用であり、水や汗に強い日焼け止め用組成物としても効果的に使用できることが分かった。また、実施例 5 の日焼け止め用組成物もアデノシンリン酸エステルを含有していることから、皮膚の水分透過機能の維持や改善に寄与することが期待される。

20

【0091】

試験例 2 - 3

実施例 6 の日焼け止め用組成物の SPF と P A の評価

前述のようにして製造した実施例 6 に記載の組成物について、試験例 2 - 2 と同様に SPF 値及び PFA 値について評価した。その結果を表 4 に示す。

【0092】

【表 6】

	平均値(n=10)
SPF値	53.3
PFA値	8.1

30

【0093】

表 6 から明らかなように、実施例 6 の日焼け止め用組成物の SPF 値の平均値は 53.3 であった。本試験の結果より、実施例 6 の日焼け止め用組成物も SPF 50 以上であることが示された。更に、実施例 6 の日焼け止め用組成物も PFA 値が 8 以上であることが示された。このように、該日焼け止め用組成物も UVB に対しても UVA に対しても著しく高い防御効果を備えていることがわかった。

40

【0094】

また、実施例 6 も液状の油中水型エマルション形態の日焼け止め用組成物であるため、本組成物は、実施例 4 や実施例 5 と同様に、汗や水などに対する耐水性も備えており、使用中に皮膚から落ちにくいという効果も備えている。このことから、該日焼け止め用組成物は屋内や短時間の外出などの日常生活における使用に有用であるだけでなく、前述のように一層高い紫外線防御効果が求められる紫外線を多く浴びる場所においても優れた紫外線防御能且つ耐水性を発揮できる点で著しく有用であり、水や汗に強い日焼け止め用組成物としても効果的に使用できることが分かった。また、実施例 6 の日焼け止め用組成物もアデノシンリン酸エステルを含有していることから、皮膚の水分透過機能の維持や改善に寄与することが期待される。

50

【 0 0 9 5 】

試験例 3

実施例 6 の日焼け止め用組成物の塗布による白色化評価と洗浄性の確認

次に、実施例 6 に記載の日焼け止め用組成物について、塗布による皮膚の白色化を比較する試験を実施した。白色化の評価は、実施例 6 に記載の日焼け止め用組成物と、後述の 4 種の市販日焼け止め剤（比較例 2 ~ 5）とを用いて、その白色化の程度を比較することにより行った。具体的には、塗布による白色化の評価は、人の肌に近い感触と弾性を有するウレタンエラストマー（バイオスキン、ピューラックス製）を用いて行った。塗布による白色化の程度を確認する目的で、実施例 6 の日焼け止め用組成物、比較例 2 ~ 5 の日焼け止め剤をそれぞれ約 30 mg 量り取り、ウレタンエラストマーに直径約 2.5 cm の円となるように塗り広げ、目視による白色度を確認した。結果を図 1 に示す。

10

【 0 0 9 6 】

ここで、4 種の市販日焼け止め剤（比較例 2 ~ 5）について説明すると、これらはいずれも油性紫外線吸収剤を 1 種（メトキシケイ皮酸エチルヘキシル）のみ含有するものである。より具体的には、比較例 2 は、メトキシケイ皮酸エチルヘキシル、フェニルベンズイミダゾールスルホン酸、ポリメチルシルセスキオキサン、酸化亜鉛、香料、メントール、セイヨウハッカ葉エキス等を含有する。比較例 3 はメトキシケイ皮酸エチルヘキシル、ポリメチルシルセスキオキサン、酸化亜鉛、タルク、シリカ、香料、アセチルヒアルロン酸ナトリウム等を含有する。比較例 4 はパラメトキシケイ皮酸エチルヘキシル、酸化亜鉛、酸化チタン、ケイ酸、セリサイト、ヒドロキシアパタイト、香料、メントール、セージエキス、海藻エキス等を含有する。比較例 5 はメトキシケイ皮酸オクチル、ポリメタクリル酸メチル、酸化亜鉛、酸化チタン、水酸化アルミニウム、シリカ、メントール、ハッカ油等を含有する。

20

【 0 0 9 7 】

また、実施例 6 に記載の日焼け止め用組成物と、4 種の市販日焼け止め剤（比較例 2 ~ 5）を用いて、洗浄性（皮膚からの洗い流しやすさ）を評価した。具体的には、実施例 6 に記載の日焼け止め用組成物と比較例 2 ~ 5 をそれぞれ約 0.25 g 量り取り、これを 3 cm x 3 cm にカットした綿布に塗布し、塗布後の綿布を、市販のボディークリーム（商品名ウル・オス スキンウォッシュ、大塚製薬株式会社製）が 10% となるよう水道水（硬度 40 ppm）に希釈させた溶液に浸漬させ、50 の温浴にて 1.5 時間放置した後、水洗し、乾燥させた。乾燥後、各綿布に残存した日焼け止め用組成物または日焼け止め剤の量を重量にて評価した。

30

【 0 0 9 8 】

その結果を図 2 に示す。洗浄性は洗浄率（%）とし、（綿布への塗布量 - 綿布における残存量）/ 綿布への塗布量の比に 100 を乗じて求めた（n = 3 平均値）。図 2 から明らかのように、比較例 2 ~ 5 の日焼け止め剤と比較して、実施例 6 に記載の日焼け止め用組成物では洗浄率が非常に高く、皮膚から非常に洗い流しやすいことが分かった。

【 0 0 9 9 】

このことから明らかのように、実施例 6 の日焼け止め用組成物は高い SPF 及び高い PA を示すにもかかわらず、従来の高い SPF を有する日焼け止め剤に特有の、皮膚に適用した際の不自然な肌の白色化といった問題は認められず、非常に満足できるものであった。また、加えて、従来の高い SPF を有する日焼け止め剤に特有の、洗い流しにくいといった問題も認められず、この点でも非常に満足できるものであった。これらの実施例 6 の日焼け止め用組成物と同様の効果は実施例 4 及び 5 の日焼け止め用組成物においても得られる。また、これらの日焼け止め用組成物は、その粘度についても所望の低い粘度域にあり、肌滑り感の面で、高粘度の日焼け止め剤とは異なる、期待に合致するものであった。

40

【 0 1 0 0 】

試験例 4

1. 日焼け止め用組成物の製造

50

後述する表 7 に示す成分を、表 8 に示す各配合割合で混合し、油中水型エマルジョン形態の日焼け止め用組成物を作成した。表中、各配合割合の単位は重量%である。具体的には、表 7 中の 1 ~ 9 の成分を混合し、60 で均一に分散、溶解させて油相 A を調製した。また、表 7 中の 10 ~ 15 の成分を混合し、均一に溶解させて、更に 14 の成分を用いて pH を 7 に調整し、水相 B を調整した。当該油相 A 及び水相 B を 60 まで加熱し、油相 A をディスパー (T.K. ROBO MICS、特殊機化工業社製) を用いて 1400 rpm で攪拌しながら、水相 B を添加した。攪拌後、16 の成分を加え、再度 1400 rpm で攪拌させて乳化させることにより、表 8 に記載される実施例 7 ~ 17 の日焼け止め用組成物を得た。

【 0 1 0 1 】

10

【表 7】

成分名	
1	シクロペンタシロキサン (商品名「SH245 Fluid」(東レ・ダウコーニング社製))
2	水添ポリイソブテン
3	メキシケイヒ酸エチルヘキシル (商品名「ユビナール MC80N」(BASF 社製))
4	オクトクリレン (商品名「オーソレックス OCR」(メルク社製))
5	ジエチルアミノヒドロキシベンゾイル安息香酸ヘキシル (商品名「ユビナール A Plus グラニュラー」(BASF 社製))
6	ラウリル PEG-9 ポリジメチルシロキシエチルジメチコン (商品名「KF-6038」(信越化学工業社製))
7	安息香酸アルキル (C12-15) (商品名「CRODAMOL AB」(クローダ社製))
8	ポリメチルシルセスキオキサン (商品名「トスパール 2000B」(モメンティヴ社製))
9	(ビニルジメチコン/メチコンシルセスキオキサン)クロスポリマー (平均粒径 5 μm) (商品名「KSP-100」(信越化学工業社製))
10	グリセリン (商品名「濃グリセリン」、花王社製)
11	塩化ナトリウム
12	アデノシン5' - リン酸
13	リン酸 L-アスコルビルマグネシウム (和光純薬工業社製)
14	アミノメチルプロパンジオール (互応化学工業社製)
15	水
16	エタノール

20

30

40

【 0 1 0 2 】

2. 安定性試験

各サンプルを約 15 g ずつ試験管に入れ、蓋をした。60 の恒温水槽で 4 ~ 7 日間イ

50

ンキュベートした後に、各日焼け止め用組成物の様子を観察した。具体的には、前記日焼け止め用組成物は油中水型エマルションの形態にあり、製造後に静置させると主として2層に分かれ、上層は油相、下層は目視できないほど微小な水滴が油中に分散している乳化相となり、安定した状態となった。その後、前述の60の恒温水槽で4～7日間インキュベートしてその様子を目視によって観察した。

【0103】

3. 結果

実施例7～17の日焼け止め用組成物は、前述の製造後に静置させると、いずれも安定した状態にあり、望ましい日焼け止め用組成物が得られた。前記試験例1～3における結果に基づくと、本試験例4において製造された日焼け止め用組成物も、所望のSPF値及びPFA値が発揮されることが容易に理解でき、また、油中水型のエマルション形態であることから耐水性に優れていることも容易に理解できる。このように、本発明によれば優れた紫外線防御効果を備えた日焼け止め用組成物が獲得できることが分かった。

10

【0104】

ここで得られた日焼け止め用組成物は1層の良好な油中水型エマルションの形態であり、静置させると2層に分かれる。見かけ上2層に分離しているが、振り混ぜることで均一な1層のエマルション形態へと容易に戻るといった可逆的な分離状態をクリーミングという。本試験例において、日焼け止め用組成物が、振り混ぜることにより1層の均一なエマルション形態に戻る状態であれば、その日焼け止め用組成物の保存後の安定性は良い」と示す。一方、安定性の不十分な油中水型エマルションの一例として、振り混ぜても均一なエマルション形態へは戻らない不可逆的な分離を起こすものがある。例えば、一部の水滴が合一し、水がエマルションの相から排出されている状態である。本試験例において、保存後に不可逆的な分離が確認された場合を安定性が十分に良くないものとして「×」と示す。

20

【0105】

表8に示すように4日間インキュベートした後では、実施例7～10において前記の不可逆的な分離が確認できた。また7日間インキュベートした後でも同様の傾向が認められ、実施例7～10において不可逆的な分離が確認された。一方、実施例11～17の日焼け止め用組成物ではインキュベート後でも好適なエマルション形態が十分に維持されていた。

30

【0106】

このことから、本発明の日焼け止め用組成物において電解質を0.5重量%以上とすることで、前述の所望のSPF値、PFA値、耐水性ともに、経時的安定性の点でも著しく優れた日焼け止め用組成物が獲得できることが分かった。

【0107】

【表 8】

成分	実施例7	実施例8	実施例9	実施例10	実施例11	実施例12	実施例13	実施例14	実施例15	実施例16	実施例17
1	24	適量	適量	適量	適量	適量	適量	適量	適量	適量	適量
2	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10
3	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5
4	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5
5	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2
6	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5
7	7	7	7	7	7	7	7	7	7	7	7
8	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5
9	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5
10	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2
11	0	0	0.2	0	0.4	0.4	0.5	0.9	0.7	2.9	4.9
12	0	0.1	0.1	0.3	0.1	0	0	0.1	0.3	0.1	0.1
13	0	0	0	0	0	0.1	0	0	0	0	0
14	0	適量	適量	適量	適量	適量	適量	適量	適量	適量	適量
15	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25
16	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5
電解質濃度	0	0.1	0.3	0.3	0.5	0.5	0.5	1	1	3	5
インキュベート前	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
60°C 4days	x	x	x	x	○	○	○	○	○	○	○
60°C 7days	x	x	x	x	○	○	○	○	○	○	○

10

20

30

40

【0108】

処方例

試験例 1 ~ 4 より得られた結果より、以下の通りの日焼け止め用組成物を調製した。各

50

処方例において単位は重量%である。下記組み合わせは、いずれにおいても高いSPF値、さらには高いPFA値を示すことから、所望の効果が得られると判断できる。

【0109】

処方例 1

シクロペンタシロキサン	20	
水添ポリイソブテン	5	
安息香酸アルキル	7	
カプリルメチコン	3	
メトキシケイヒ酸エチルヘキシル	7.5	
オクトクリレン	3	10
ジエチルアミノヒドロキシベンゾイル安息香酸ヘキシル	3	
ポリシリコーン - 15	3.5	
ラウリルPEG - 9ポリジメチルシロキシエチルジメチコン (ビニルジメチコン/メチコンシルセスキオキサン)クロスポリマー (平均粒径5 μm)	2.5	
ポリメチルシルセスキオキサン	5	
エタノール	7.5	
酸化防止剤	適量	
フェノキシエタノール	0.2	
1,2-ペンタンジオール	3	20
アデノシン-リン酸二ナトリウム	0.5	
グリチルリチン酸ジカリウム	0.1	
塩化Na	0.5	
クエン酸	適量	
水	23	
合計	100	

【0110】

処方例 2

シクロペンタシロキサン	25	
安息香酸アルキル	5	30
テトラエチルヘキサ酸ペンタエリスリチル	3	
メトキシケイヒ酸エチルヘキシル	7.5	
オクトクリレン	3	
ジエチルアミノヒドロキシベンゾイル安息香酸ヘキシル	3	
ポリシリコーン - 15	3.5	
フェニルベンズイミダゾールスルホン酸	1	
PEG - 10ジメチコン	3	
(ビニルジメチコン/メチコンシルセスキオキサン)クロスポリマー (平均粒径5 μm)	4.5	
ポリメチルシルセスキオキサン	4	40
トリメチルシロキシケイ酸	1	
エタノール	6	
酸化防止剤	適量	
フェノキシエタノール	0.2	
1,2-ペンタンジオール	2	
アデノシン-リン酸	0.5	
グリチルレチン酸ステアリル	0.05	
トリエタノールアミン	適量	
水	27	
合計	100	50

【 0 1 1 1 】

処方例 3

シクロペンタシロキサン	1 2	
水添ポリイソブテン	1 5	
安息香酸アルキル	4	
トリエチルヘキサ酸エリスリチル	4	
メトキシケイヒ酸エチルヘキシル	7 . 5	
オクトクリレン	5	
ジエチルアミノヒドロキシベンゾイル安息香酸ヘキシル	2	
ビスエチルヘキシルオキシフェノールメトキシフェニルトリアジン	1	10
ステアリン酸イヌリン	0 . 5	
ラウリル P E G - 9 ポリジメチルシロキシエチルジメチコン	1 . 7	
ジポリヒドロキシステアリン酸 P E G - 3 0	0 . 5	
(ビニルジメチコン/メチコンシルセスキオキサン) クロスポリマー (平均粒径 5 μ m)	4 . 5	
ポリメチルシルセスキオキサン	5	
トリメチルシロキシケイ酸	1	
エタノール	7	
酸化防止剤	適量	
フェノキシエタノール	0 . 2	20
1 , 2 - ペンタンジオール	2	
アデノシンーリン酸	0 . 1	
塩化ナトリウム	0 . 5	
グリチルリチン酸ジカリウム	0 . 0 3	
グリチルレチン酸ステアリル	0 . 0 3	
アミノメチルプロパンジオール	適量	
水	2 6	
合計	1 0 0	

【 0 1 1 2 】

処方例 4

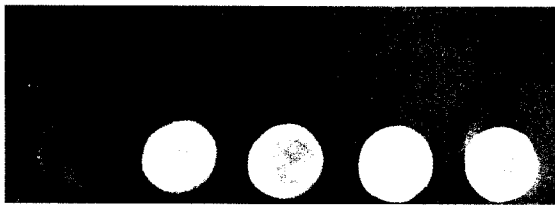
シクロペンタシロキサン	2 0	30
水添ポリイソブテン	5	
安息香酸アルキル	8	
カプリリルメチコン	3	
メトキシケイヒ酸エチルヘキシル	7 . 5	
オクトクリレン	3	
ジエチルアミノヒドロキシベンゾイル安息香酸ヘキシル	3	
ポリシリコーン - 1 5	3 . 5	
ラウリル P E G - 9 ポリジメチルシロキシエチルジメチコン	2 . 5	
ジポリヒドロキシステアリン酸 P E G - 3 0	0 . 3	40
(ビニルジメチコン/メチコンシルセスキオキサン) クロスポリマー (平均粒径 5 μ m)	5	
ポリメチルシルセスキオキサン	5	
エタノール	7 . 5	
酸化防止剤	適量	
フェノキシエタノール	0 . 2	
1 , 2 - ペンタンジオール	3	
アデノシンーリン酸	0 . 5	
塩化ナトリウム	0 . 5	
アミノメチルプロパンジオール	適量	50

水	2 7	
合計	1 0 0	
【 0 1 1 3 】		
<u>処方例 5</u>		
シクロペンタシロキサン	2 5	
安息香酸アルキル	5	
テトラエチルヘキサ酸ペンタエリスリチル	3	
メトキシケイヒ酸エチルヘキシル	7 . 5	
オクトクリレン	3	
ジエチルアミノヒドロキシベンゾイル安息香酸ヘキシル	3	10
ポリシリコーン - 1 5	3 . 5	
フェニルベンズイミダゾールスルホン酸	1	
ラウリル P E G - 9 ポリジメチルシロキシエチルジメチコン	2	
ジポリヒドロキシルステアリン酸 P E G - 3 0	0 . 5	
(ビニルジメチコン/メチコンシルセスキオキサン) クロスポリマー	4 . 5	
(平均粒径 5 μ m)		
ポリメチルシルセスキオキサン	4	
トリメトキシケイ酸	1	
エタノール	7 . 5	
酸化防止剤	適量	20
フェノキシエタノール	0 . 2	
1 , 2 - ペンタンジオール	2	
アデノシンーリン酸	0 . 5	
トリエタノールアミン	適量	
水	2 7	
合計	1 0 0	
【 0 1 1 4 】		
<u>処方例 6</u>		
シクロペンタシロキサン	2 5	
カプリリルメチコン	3	30
安息香酸アルキル	5	
メトキシケイヒ酸エチルヘキシル	1 0	
ジエチルアミノヒドロキシベンゾイル安息香酸ヘキシル	3	
疎水化微粒子酸化チタン	3	
疎水化微粒子酸化亜鉛	3	
(ビニルジメチコン/メチコンシルセスキオキサン) クロスポリマー	4	
(平均粒径 5 μ m)		
P E G - 9 ポリジメチルシロキシエチルジメチコン	3	
トリメチルシロキシケイ酸	1	
グリセリン	2	40
エタノール	8	
フェノキシエタノール	0 . 2	
1 , 2 - ペンタンジオール	1	
グリセリン	1	
塩化ナトリウム	0 . 5	
酸化防止剤	適量	
水	2 7	
合計	1 0 0	
【 0 1 1 5 】		
<u>処方例 7</u>		50

シクロペンタシロキサン	1 0	
水添ポリイソブテン	1 5	
安息香酸アルキル	5	
トリエチルヘキサノール	4	
メトキシケイヒ酸エチルヘキシル	7	
オクトクリレン	4	
ジエチルアミノヒドロキシベンゾイル安息香酸ヘキシル	3	
ポリシリコーン - 1 5	3	
ステアリン酸イヌリン	0 . 5	
高重合ジメチコン	0 . 2	10
ラウリル P E G - 9 ポリジメチルシロキシエチルジメチコン	1 . 7	
ジポリヒドロキシステアリン酸 P E G - 3 0	0 . 5	
(ビニルジメチコン/メチコンシルセスキオキサン) クロスポリマー (平均粒径 5 μ m)	4 . 5	
ポリメチルシルセスキオキサン	3	
トリメトキシケイ酸	1	
エタノール	7	
酸化防止剤	適量	
フェノキシエタノール	0 . 2	
1 , 2 - ペンタンジオール	2	20
アデノシンーリン酸	0 . 1	
リン酸アスコルビルマグネシウム	1	
アミノメチルプロパンジオール	適量	
水	2 6	
合計	1 0 0	
【 0 1 1 6 】		
<u>処方例 8</u>		
シクロペンタシロキサン	2 0	
ジメチコン	5	
安息香酸アルキル	5	30
トリエチルヘキサノール	4	
メトキシケイヒ酸エチルヘキシル	7 . 5	
ジエチルアミノヒドロキシベンゾイル安息香酸ヘキシル	3	
ポリシリコーン - 1 5	5	
ラウリル P E G - 9 ポリジメチルシロキシエチルジメチコン	1 . 7	
ジポリヒドロキシステアリン酸 P E G - 3 0	0 . 4	
(ビニルジメチコン/メチコンシルセスキオキサン) クロスポリマー (平均粒径 5 μ m)	4 . 5	
ポリメチルシルセスキオキサン	3	
エタノール	6	40
酸化防止剤	適量	
フェノキシエタノール	0 . 1	
1 , 2 - ペンタンジオール	1	
グリセリン	2	
メントール	0 . 2	
精油	0 . 1	
(ダイウイキョウ油、セイヨウアカマツ油、ラバンデュラハイブリダ油)		
アデノシンーリン酸	1	
アミノメチルプロパンジオール	適量	
水	3 0	50

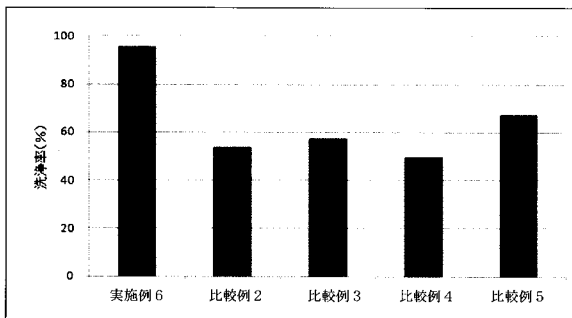
合計	1 0 0	
【 0 1 1 7 】		
<u>処方例 9</u>		
シクロペンタシロキサン	1 5	
水添ポリイソブテン	1 5	
エタノール	8	
メトキシケイヒ酸エチルヘキシル	8	
安息香酸アルキル (C12-15)	6	
ポリメチルシルセスキオキサン	5	
(ビニルジメチコン/メチコンシルセルキオキサン)クロスポリマー (平均粒径 5 μm)	5	10
ジエチルアミノヒドロキシベンゾイル安息香酸ヘキシル	3	
ポリシリコーン - 15	3	
グリセリン	3	
ラウリルPEG-9ポリジメチルシロキシエチルジメチコン	2 . 5	
塩化ナトリウム	1	
アデノシンーリン酸	0 . 5	
カワラヨモギエキス	適量	
チョウジエキス	適量	
アミノメチルプロパンジオール	適量	20
1, 3-ブチレングリコール	適量	
グリセリン脂肪酸エステル	適量	
酸化防止剤	適量	
水	2 3	
合計	1 0 0	

【 図 1 】



実施例 6 比較例 2 比較例 3 比較例 4 比較例 5

【 図 2 】



【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. PCT/JP2013/051651
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER A61K8/89(2006.01)i, A61K8/37(2006.01)i, A61K8/40(2006.01)i, A61K8/41(2006.01)i, A61K8/891(2006.01)i, A61Q17/04(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) A61K8/89, A61K8/37, A61K8/40, A61K8/41, A61K8/891, A61Q17/04 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 1996-2013 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2013 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2013 Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 2007-246521 A (Shiseido Co., Ltd.), 27 September 2007 (27.09.2007), claim 1; paragraphs [0015] to [0017], [0064]; example 5 & US 2010/0233103 A1 & EP 1990042 A1 & WO 2007/097304 A1 & KR 10-2008-0096770 A & CN 101384245 A	1-7,10 8-10
X Y	JP 2008-273880 A (Shiseido Co., Ltd.), 13 November 2008 (13.11.2008), example 11 (Family: none)	1-7,10 8-10
X A	JP 2007-269690 A (Kose Corp.), 18 October 2007 (18.10.2007), example 5 (Family: none)	1-5,7-9 6,10
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> 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 15 April, 2013 (15.04.13)		Date of mailing of the international search report 23 April, 2013 (23.04.13)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office		Authorized officer
Facsimile No.		Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/051651

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	JP 2009-524644 A (The Procter & Gamble Co.), 02 July 2009 (02.07.2009), claims 1 to 4, 7; paragraphs [0032] to [0034], [0050]; examples 4 to 6, 8 to 9 & US 2007/0173599 A1 & EP 1978916 A2 & WO 2007/086022 A2 & KR 10-2008-0077693 A & CN 101374489 A	1-5, 7, 10 6, 8-9
Y	Sei KYO, "Silica Nano Ryushi o Mochiita Emulsion Nyuka Tokusei", FRAGRANCE JOURNAL, 26 April 2005 (26.04.2005), no.19, pages 39 to 44	8-10

国際調査報告		国際出願番号 PCT/J P 2 0 1 3 / 0 5 1 6 5 1									
A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. A61K8/89(2006.01)i, A61K8/37(2006.01)i, A61K8/40(2006.01)i, A61K8/41(2006.01)i, A61K8/891(2006.01)i, A61Q17/04(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. A61K8/89, A61K8/37, A61K8/40, A61K8/41, A61K8/891, A61Q17/04											
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 <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2013年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2013年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2013年</td> </tr> </table>				日本国実用新案公報	1922-1996年	日本国公開実用新案公報	1971-2013年	日本国実用新案登録公報	1996-2013年	日本国登録実用新案公報	1994-2013年
日本国実用新案公報	1922-1996年										
日本国公開実用新案公報	1971-2013年										
日本国実用新案登録公報	1996-2013年										
日本国登録実用新案公報	1994-2013年										
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)											
C. 関連すると認められる文献											
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号									
X Y	JP 2007-246521 A (株式会社資生堂) 2007.09.27, 請求項1、 【0015】-【0017】、【0064】、実施例5 & US 2010/0233103 A1 & EP 1990042 A1 & WO 2007/097304 A1 & KR 10-2008-0096770 A & CN 101384245 A	1-7, 10 8-10									
X Y	JP 2008-273880 A (株式会社資生堂) 2008.11.13, 実施例11 (ファミリーなし)	1-7, 10 8-10									
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。		<input type="checkbox"/> 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 15.04.2013		国際調査報告の発送日 23.04.2013									
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) 八次 大二朗	4 D 4 7 6 6								
		電話番号 03-3581-1101	内線 3421								

国際調査報告		国際出願番号 PCT/J P 2 0 1 3 / 0 5 1 6 5 1
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
X A	JP 2007-269690 A (株式会社コーセー) 2007. 10. 18, 実施例 5 (ファミリーなし)	1-5, 7-9 6, 10
X A	JP 2009-524644 A (ザ プロクター アンド ギャンブル カンパ ニー) 2009. 07. 02, 請求項 1-4, 7, 【0032】 - 【0034】、 【0050】、実施例 4-6, 8-9 & US 2007/0173599 A1 & EP 1978916 A2 & WO 2007/086022 A2 & KR 10-2008-0077693 A & CN 101374489 A	1-5, 7, 10 6, 8-9
Y	許 晴怡, シリカナノ粒子を用いたエマルション乳化特性, FRAGRANCE JOURNAL, 2005. 04. 26, No. 19, 第 39-44 頁	8-10

フロントページの続き

(51) Int. Cl. F I テーマコード (参考)
A 6 1 K 8/891 (2006.01) A 6 1 K 8/891

(81) 指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), EP(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), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), 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, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, 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, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC

Fターム(参考) 4C083 AA112 AA122 AB102 AB212 AB24 AC102 AC112 AC122 AC172 AC302
AC341 AC342 AC392 AC422 AC511 AC512 AC542 AC552 AC852 AC912
AD022 AD151 AD152 AD162 AD172 AD212 AD532 AD602 AD642 BB24
BB46 CC19 DD32 EE10 EE17

(注) この公表は、国際事務局(WIPO)により国際公開された公報を基に作成したものである。なおこの公表に係る日本語特許出願(日本語実用新案登録出願)の国際公開の効果は、特許法第184条の10第1項(実用新案法第48条の13第2項)により生ずるものであり、本掲載とは関係ありません。