

19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 623 438**

51 Int. Cl.:

**A61K 8/11** (2006.01)  
**A61K 8/34** (2006.01)  
**A61K 8/35** (2006.01)  
**A61K 8/37** (2006.01)  
**A61K 8/45** (2006.01)  
**A61K 8/49** (2006.01)  
**A61K 8/60** (2006.01)  
**A61Q 13/00** (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **29.12.2009 E 09180900 (4)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **01.02.2017 EP 2204156**

54 Título: **Composición de fragancia para microcápsulas con núcleo y envuelta**

30 Prioridad:

**30.12.2008 EP 08173121**

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:

**11.07.2017**

73 Titular/es:

**TAKASAGO INTERNATIONAL CORPORATION  
(100.0%)  
37-1, KAMATA 5-CHOME, OHTA-KU  
TOKYO 144-8721, JP**

72 Inventor/es:

**FRASER, STUART;  
AUSSANT, EMMANUEL y  
WARR, JONATHAN**

74 Agente/Representante:

**ARIAS SANZ, Juan**

**ES 2 623 438 T3**

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín Europeo de Patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre Concesión de Patentes Europeas).

**DESCRIPCIÓN**

Composición de fragancia para microcápsulas con núcleo y envuelta

**5 Campo técnico de la invención**

La invención se refiere a composiciones de fragancia que se van a incorporar en el núcleo de microcápsulas de tipo núcleo y envuelta para controlar la administración y liberación de fragancia y opcionalmente otros agentes beneficiosos, cuando se usan como componentes en productos domésticos, de lavado de ropa, de cuidado personal y cosméticos líquidos.

La invención se refiere además al uso de estas microcápsulas en productos de consumo líquidos, especialmente limpiadores domésticos, productos de lavado de ropa, y productos de cuidado personal y cosméticos incluyendo líquidos espesados y pseudoplásticos que puede parecer que son geles en condiciones de baja cizalla.

**15 Antecedentes de la invención**

Se sabe encapsular perfumes insolubles en agua u otros materiales de no fragancia en cápsulas pequeñas, con frecuencia denominadas microcápsulas, que típicamente tienen un diámetro entre 1 y 1000 micrómetros (micras), por una variedad de razones que se refieren a la protección, administración y liberación del perfume u otros materiales.

La preparación de microcápsulas se describe en Kirk Othmer's Encyclopaedia of Chemical Technology 5ª edición y también en las siguientes patentes US 2.800.457, US 3.415.758 y US 6.261.483 y referencias en las mismas. Un tipo de microcápsulas, denominadas como una microcápsula con pared o envuelta o núcleo y envuelta, comprende una envuelta generalmente esférica de materiales insolubles en agua y aceite, típicamente un material polimérico en red, dentro del que está contenido el perfume u otro material.

Cuando tales cápsulas se incorporan en productos de consumo líquidos, por ejemplo, productos de cuidado personal, tal como champús, acondicionadores de pelo, jabones corporales, geles de ducha, productos para el lavado de ropa tal como acondicionadores textiles o detergentes de lavadora líquidos o limpiadores domésticos tal como limpiadores de las superficies de la cocina, pueden surgir problemas, con la microcápsula que o bien padece cremado (subir a la superficie) o se asienta a lo largo del tiempo, especialmente si el producto está almacenado. El cremado o asentamiento es debido a diferencias en la densidad entre la microcápsula, sus contenidos y el líquido circundante. Muchos limpiadores domésticos líquidos, productos del lavado de ropa líquidos y productos de cuidado personal y cosméticos tienen densidades de aproximadamente 1,00 g por centímetro cúbico ( $\text{g/cm}^3$ ), mientras que muchos compuestos orgánicos tienen densidades menores de 1,00  $\text{g/cm}^3$ . Así, una microcápsula que contiene una alta proporción de aceites de fragancia u otros aceites hidrofóbicos puede tener una densidad menor que la fase líquida del producto en que las microcápsulas se dispersan, por tanto, estas microcápsulas tenderán a subir o cremar a lo largo del tiempo.

A partir de leyes físicas conocidas es posible calcular un tamaño máximo teórico para que una cápsula permanezca establemente dispersa en un líquido.

45 A continuación hay una ecuación para la velocidad de cremado/asentamiento de una emulsión derivada de la ley de Stokes:

$$v = \frac{2a^2(d_o - d)g}{9\eta}$$

50  $v$  = velocidad de cremado/asentamiento;

$a$  = el radio de la partícula;

$d_o$  = la densidad de la fase continua;

$d$  = la densidad de la fase dispersa (microcápsula);

$g$  = la constante gravitacional;

55  $\eta$  = la viscosidad de la fase continua, asumiendo una cizalla newtoniana.

Se debe indicar que esta ecuación asume que las partículas son esféricas, uniformes y no floculadas. Se pueden derivar ecuaciones más complejas, pero esencialmente de la misma forma, para partículas de tamaños mixtos. Esta ecuación tampoco incluye ningún efecto debido a movimiento browniano que mantendrá una partícula muy pequeña dispersada. A pesar de describir un modelo ideal y por tanto no exacto para muestras reales, la ecuación presenta los factores importantes que rigen el cremado o asentamiento de partículas.

Puede no ser posible o deseable preparar microcápsulas de tamaño diferente (habitualmente menores) para reducir el cremado o asentamiento ya que esto puede tener otras consecuencias, tal como que afecte la facilidad de romper las paredes de esas microcápsulas que se basa en la friabilidad para liberar el contenido. Además, se encapsula menos material en una microcápsula menor lo que requiere una mayor proporción de material de pared relativo al contenido y un mayor número de microcápsulas para contener la misma cantidad de material de núcleo que en consecuencia puede afectar atributos del producto tal como color y de forma importante el coste de fabricación. También puede ser indeseable aumentar la viscosidad del producto líquido en el que se dispersan las microcápsulas, por tanto, se preferirá si las densidades de las microcápsulas y la fase líquida se pueden equilibrar más igualmente.

La solicitud de patente en EE UU 2005/112.152 describe añadir solventes a fragancias encapsuladas en núcleo y envuelta, pero estipula que las fragancias deben tener ClogP mayor de 3,3, preferiblemente mayor de 8. Está claro del contexto que la densidad no fue una consideración al seleccionar estos materiales, ya que la mayoría de esas fragancias nombradas tienen densidades mayores de 1,0 g/cm<sup>3</sup> y los mayores requisitos de ClogP sugieren que grupos alquilo mayores son preferidos tal como tributirato de glicerilo más que triacetato de glicerilo, aunque el último se preferiría como un ingrediente que sube la densidad.

La solicitud de patente EP 1502646 describe modificadores de densidad para microcápsulas coacervadas para productos detergentes líquidos, pero solo describe materiales que disminuyen la densidad de la microcápsula.

La solicitud internacional WO 00/59616 también describe modificar el contenido de la microcápsula para equilibrar la densidad con el líquido circundante. Sin embargo, los materiales sugeridos para subir la densidad no son muy adecuados para productos de cuidado personal, lavado de ropa y domésticos, siendo algunas sales de alta densidad o líquidos hidrofóbicos de alta densidad tal como los que contienen halógenos. No es deseable o en muchos casos permisible incluir compuestos orgánicos halogenados en microcápsulas pretendidas para productos de consumo doméstico ya que se cree que muchos de tales compuestos tienen efectos adversos en el medio ambiente y/o la salud.

El documento WO 2008/098387 divulga comprenden un núcleo de fragancia y una envuelta de polímero de aminoplasto, la composición de la envuelta es desde el 75-100% de una resina termofraguada que comprende el 50-90% de un terpolímero y el 10-50% de un estabilizador polimérico.

Sorprendentemente, pocos compuestos orgánicos tienen densidades mayores de 0,950 g/cm<sup>3</sup> incluso menos tienen densidades mayores de 1,00 g/cm<sup>3</sup> especialmente si se excluyen todos los compuestos orgánicos que contienen átomos de halógeno. Los compuestos que tienen mayores densidades tienden a comprender una proporción sustancial de átomos de oxígeno, nitrógeno y azufre en sus fórmulas moleculares y/o poseen anillos tal como anillos aromáticos en sus estructuras químicas. Sin embargo, tales compuestos con frecuencia son bastante hidrofílicos debido a la naturaleza polar de muchos grupos funcionales que contienen átomos de oxígeno, nitrógeno o azufre. En consecuencia, tales compuestos hidrofílicos pueden no ser eficazmente encapsulados por técnicas de polimerización en emulsión.

Un requisito adicional es que las moléculas encapsuladas no deben salirse de las microcápsulas durante el almacenamiento y se ha observado que las moléculas pequeñas y/o moléculas más solubles en agua se salen bastante rápidamente, especialmente de microcápsulas hechas por reacciones de condensación de amina y aldehído.

Así mientras que es ventajoso si las densidades de las microcápsulas están estrechamente equilibradas a la densidad del producto líquido en el que se van a dispersar, esto es particularmente difícil de alcanzar para productos líquidos que tienen densidades mayores de 1,010 g/cm<sup>3</sup>. Además, de las diversas restricciones sobre las propiedades de los materiales del núcleo de la microcápsula y la necesidad de que la fragancia debe ser de suficiente calidad para ser aceptable en un producto comercial Premium, no es inmediatamente aparente que la densidad de la composición de fragancia para una microcápsula con núcleo y envuelta se pueda controlar que sea cercana o incluso mayor que 0,950 g/cm<sup>3</sup> solo formulando los contenidos de compuestos de fragancia de alta densidad.

### **Compendio de la invención**

Es un objeto de la presente invención proporcionar una composición de fragancia para una microcápsula con núcleo y envuelta que comprende en peso de la composición:

- A) del 50-100% de al menos un material de fragancia cíclico con una densidad entre 0,950 g/cm<sup>3</sup> y 1,500 g/cm<sup>3</sup> y un ClogP entre 1,00 y 6,00;
- B) del 0-80% de al menos un material de fragancia con una densidad entre 0,630 g/cm<sup>3</sup> y 0,950 g/cm<sup>3</sup>;
- C) del 0-50% de al menos un compuesto orgánico soluble en aceite que tiene una densidad entre 0,950 g/cm<sup>3</sup> y 1,500 g/cm<sup>3</sup>;

donde la suma de A), B) y C) equivale al 100%.

Las composiciones de fragancia preferidas son las que comprenden entre el 50% y el 100% en peso de materiales de fragancia cíclicos con densidades entre  $1,000 \text{ g/cm}^3$  y  $1,500 \text{ g/cm}^3$ , preferiblemente entre  $1,050 \text{ g/cm}^3$  y  $1,400 \text{ g/cm}^3$  y valores ClogP entre 1,50 y 5,00 y más preferiblemente entre 2,00 y 4,50.

Composiciones especialmente preferidas son las que comprenden entre el 60% y el 100% en peso de materiales de fragancia cíclicos con densidades entre  $0,950 \text{ g/cm}^3$  y  $1,500 \text{ g/cm}^3$ , preferiblemente entre  $1,000 \text{ g/cm}^3$  y  $1,500 \text{ g/cm}^3$ , más preferiblemente entre  $1,050 \text{ g/cm}^3$  y  $1,400 \text{ g/cm}^3$  y valores ClogP entre 1,50 y 5,00 y más preferiblemente entre 2,00 y 4,50.

Composiciones de fragancia más especialmente preferidas son las que comprenden entre el 75% y el 100% en peso de materiales de fragancia cíclicos con densidades entre  $0,950 \text{ g/cm}^3$  y  $1,500 \text{ g/cm}^3$ , preferiblemente entre  $1,000 \text{ g/cm}^3$  y  $1,500 \text{ g/cm}^3$ , más preferiblemente entre  $1,050 \text{ g/cm}^3$  y  $1,400 \text{ g/cm}^3$  y valores ClogP entre 1,50 y 5,00 y más preferiblemente entre 2,00 y 4,50.

En un aspecto de la invención se prefiere si la microcápsula con núcleo y envuelta se forma predominantemente por la condensación de aldehídos y aminas o urea. Predominantemente significa más del 50% en peso de la pared de la cápsula. El resto de la pared de la cápsula puede comprender otros polímeros tal como poliuretanos o gelatina o carragenano o polímeros de adición de radicales libres de monómeros vinílicos o acrílicos tal como poliacrilamidas, o ésteres de poliacrilato acetatos de polivinilo o copolímeros de cualquiera de estos.

La composición de fragancia encapsulada de la invención es adecuada para uso en productos de consumo que contienen tensioactivo líquido que tienen una densidad mayor de  $1,010 \text{ g/cm}^3$  a  $20^\circ\text{C}$  y que tienen una viscosidad entre 10 mPas y 5.000 mPas, preferiblemente entre 10 mPas y 2.500 mPas medida bien a  $25^\circ\text{C}$  o  $40^\circ\text{C}$ , preferiblemente una viscosidad entre 10 mPas y 5.000 mPas, preferiblemente entre 10 mPas y 2.500 mPas medida a  $25^\circ\text{C}$ .

#### Descripción detallada de la invención

En esta especificación, todos los porcentajes citados son porcentaje en peso a menos que se indique de otra manera. Los porcentajes que se refieren a composiciones de fragancia se basan en la composición antes de la emulsión y encapsulación y no a la composición de fragancia encapsulada. Todos los documentos citados en esta especificación se incorporan al presente documento por referencia.

La densidad de una sustancia se define como el cociente de su masa y volumen y se expresa en gramos por centímetro cúbico ( $\text{g/cm}^3$ ). Están disponibles varios métodos para determinar la densidad de sustancias; los más comunes se describen en Las Directrices de la OCDE para el Ensayo de Sustancias Químicas No 109 adoptado por el Consejo el 27/07/1995. ASTM D4052 describe el procedimiento para medir densidades de líquidos con un densímetro digital usando el principio del tubo U oscilante.

Las densidades de las mezclas líquidas mencionadas en la presente especificación se han medido usando un densímetro digital Mettler Toledo DR40 a  $20^\circ\text{C}$  según el procedimiento de ASTM D4052, a menos que se indique de otra manera. Las densidades de los ingredientes líquidos se miden de la misma manera o se toman valores de la bibliografía publicada, por ejemplo, del catálogo químico 2008-2009 de la empresa Sigma-Aldrich o base de datos Beilstein (02/2008) de Elsevier Information Systems GmbH como fuentes de datos secundarios. Las densidades para materiales sólidos con puntos de fusión por encima de  $35^\circ\text{C}$  se miden como líquidos a las temperaturas expresadas o se toman de la bibliografía y se referencian.

La densidad es un cociente de dos valores medidos y por tanto sometida a sesgo y variación dependiendo de los métodos y condiciones de prueba usados. La reproducibilidad con un densímetro digital es menor que  $0,001 \text{ g/cm}^3$  y el sesgo también menor que  $0,001 \text{ g/cm}^3$  comparado con un método de picnómetro. Por tanto, para los fines de la presente especificación, las densidades solo se citan hasta tres lugares decimales y el cuarto lugar decimal se redondea arriba o abajo según la convención habitual. En caso de valores disputados para muestras líquidas a temperatura ambiente, el densímetro digital es el método designado para la determinación de la densidad como se describe en ASTM D4052.

En la presente especificación, el término "alta densidad" se usa para densidades mayores de  $0,950 \text{ g/cm}^3$  a  $20^\circ\text{C}$ .

Las viscosidades se miden a  $25^\circ\text{C}$ , usando un viscosímetro Brookfield LVT con huso No. 31 a 30 rpm a menos que se indique de otra manera.

Para el fin de la presente especificación el término "compuesto orgánico" significa un compuesto químico que contiene solo átomos de entre, pero no necesariamente que contiene todos de, los siguientes; carbono, hidrógeno, oxígeno, azufre y nitrógeno. Un compuesto orgánico de alta densidad es un compuesto que consiste en átomos de

entre el grupo de carbono, hidrógeno, oxígeno, azufre y nitrógeno, que tiene una densidad mayor de 0,950 g/cm<sup>3</sup>, preferiblemente mayor de 1,000 g/cm<sup>3</sup> e incluso más preferiblemente mayor de 1,050 g/cm<sup>3</sup>.

5 El término "cíclico" o la palabra "anillo" en el contexto de estructura molecular en la presente especificación se refiere a una serie de átomos que forman un anillo cerrado en una molécula, por ejemplo, ciclohexano más que el compuesto alifático de cadena abierta hexano. Los anillos aromáticos son los capaces de experimentar reacciones de sustitución electrofílica más que las reacciones de adición que se producen con compuestos insaturados no aromáticos. También se pueden definir como anillos planares que tienen  $(4n + 2) \pi$  electrones según la regla de Hückels e incluyen arenos y heteroarenos. El término cíclico también incluye anillos heterocíclicos y moléculas de anillo sustituidas. Se pueden encontrar definiciones adicionales de nomenclatura química como se usa en este texto en "G. P. Moss, P.A.S. Smith y D. Tavernier, Pure and Applied Chemistry, vol. 67 pp1307-1375 1995".

### **Materiales de fragancia**

15 En el contexto de esta especificación, el término composición de fragancia se entiende que es sinónimo de los términos "composición de perfume" o "perfume" y se refiere a una mezcla de materiales olfativamente activos que proporcionan un olor agradable. El término ingrediente de fragancia que también es sinónimo de los términos "componente de fragancia", "ingrediente de perfume" y "componente de perfume" se toma que significa cualquier material individual que puede ser un ingrediente en la composición de fragancia incluso aunque ese ingrediente de perfume pueda comprender él mismo muchos compuestos químicos individuales y posee un olor agradable. Esta distinción la entienden los que son familiares con el arte de creación de fragancias.

25 Se conocen una amplia variedad de materiales odoríferos para uso en perfumería, incluyendo materiales tales como alquenos, alcoholes, aldehídos, cetonas, ésteres, éteres, nitrilos, aminas, oximas, acetales, cetales, tioles, tiocetonas, iminas, etc. Sin querer estar limitado, los ingredientes de fragancia de la composición núcleo preferiblemente tendrán pesos moleculares de menos de 325 unidades de masa atómica, preferiblemente menos de 300 unidades de masa y más preferiblemente menos de 275 unidades de masa atómica para asegurar suficiente volatilidad para ser perceptible cuando se liberan las microcápsulas. Además, los ingredientes de fragancia preferiblemente tendrán pesos moleculares mayores de 75 unidades de masa, preferiblemente mayores de 100 unidades de masa, más preferiblemente mayores de 150 unidades de masa ya que masas menores pueden ser demasiado volátiles para ser eficaces como parte de una fragancia, o demasiado solubles en agua para emulsionarse durante la encapsulación. Los ingredientes de las composiciones de fragancia no contendrán grupos funcionales fuertemente ionizantes tal como sulfonatos, sulfatos, o iones de amonio cuaternario, ni contendrán átomos de halógeno. En efecto, los ingredientes de fragancia de la invención estarán compuestos de compuestos que contienen solo átomos de entre, pero no necesariamente todos de, los siguientes: hidrógeno, carbono, oxígeno, nitrógeno y azufre.

40 Se describen ingredientes de fragancia y solventes de perfume más completamente en S. Arctander, Perfume Flavors and Chemicals. Vols. I y II, Montclair, N.J y en Allured's Flavor and Fragrance Materials 2007 ISBN 978-1-93263326-9 publicado por Allured Publishing Corp.

Preferiblemente, los ingredientes de fragancia que con adecuados para inclusión en el núcleo de una microcápsula con núcleo y envuelta no están afectados por las reacciones químicas del proceso de encapsulación.

45 Los aceites y exudados vegetales naturales que comprenden mezclas complejas de varios componentes químicos también son conocidos para uso como perfumes, y tales materiales se pueden usar en el presente documento, aunque cada material se considera como un único ingrediente a pesar de ser bien sabido que la mayoría de los extractos naturales son mezclas de compuestos. Los componentes químicos principales de los materiales naturales más relevantes son conocidos, por tanto, en su mayor parte se pueden evaluar de la misma manera que compuestos químicos de aroma sintéticos.

### **Solventes de perfume**

55 Es común usar solventes con perfumes sea como agentes solubilizantes líquidos para ingredientes de fragancia sólidos o como diluyentes para los ingredientes más potentes o para controlar la presión de vapor y características de evaporación de la fragancia. Los solventes pueden tener muchas de las características de los ingredientes de perfume, pero no tienen olores fuertes en ellos mismos. En efecto, los solventes se pueden distinguir de los ingredientes de fragancia porque se pueden añadir a composiciones de fragancia en altas proporciones tal como el 30% o incluso el 50% en peso sin cambiar significativamente la calidad de olor de la composición de fragancia. Los solventes se deben tratar como pertenecientes a la categoría Ciii) o D. Algunos ejemplos de solventes de perfume incluyen dipropilenglicol, miristato de isopropilo y propilenglicol.

### **Agentes benéficos solubles en aceite**

65 Los agentes benéficos se definen como materiales no perfumados que se pueden incorporar en núcleos de cápsulas para proporcionar beneficios diferentes a la fragancia cuando las cápsulas se rompen y los contenidos se liberan.

Soluble en aceite en el contexto de la presente especificación significa materiales que tienen una solubilidad mayor de 1,5 g por 100 g de ftalato de dietilo a 20°C después de 48 horas. Los agentes benéficos típicos incluyen compuestos de protección solar, repelentes de insectos, profragancias y materiales que proporcionan un efecto de calentamiento o enfriamiento tal como los descritos en *Cosmetics and Toiletries* Vol. 120 No 5 p.105 por M Erman y materiales que suprimen o reducen el mal olor y su percepción por cualquiera de los muchos mecanismos propuestos. Los materiales que mejoran las propiedades de la emulsión del núcleo antes de la encapsulación, o las propiedades de las cápsulas mismas también son agentes benéficos. Algunas veces los materiales de perfumería pueden tener funciones secundarias y conferir otro beneficio a la composición, por ejemplo, los ésteres de salicilato pueden actuar como agentes de protección solar, así como moléculas de fragancia. Los agentes benéficos que también son ingredientes de perfume se clasificarán como ingredientes de perfume, es decir, pertenecientes a cualquiera de las categorías A o B de otra manera los agentes benéficos se tratan como solventes de perfume.

Para que la fragancia encapsulada proporcione una fragancia perceptible al liberarse y sea apreciada como una fragancia de alta calidad apropiada para un producto de consumo Premium, una composición de fragancia para encapsulación debe contener preferiblemente al menos 4 ingredientes de fragancia, más preferiblemente al menos 10 ingredientes de fragancia e incluso más preferiblemente al menos 15 ingredientes de fragancia que pueden comprender una mezcla de ingredientes naturales y sintéticos elegidos para crear cualquier olor deseado. Además, es preferible que ningún compuesto químico individual comprenda más del 70% en peso de la composición de fragancia total, más preferiblemente que ningún compuesto químico individual comprenda más del 60% en peso de la composición de fragancia total e incluso más preferiblemente que ningún compuesto químico individual comprenda más del 50% en peso de la composición de fragancia total.

ClogP se refiere a al coeficiente de reparto (P) en octanol/agua de ingredientes de fragancia. El coeficiente de reparto en octanol/agua de un ingrediente de perfume es el cociente entre sus concentraciones de equilibrio en octanol y en agua. Los coeficientes de reparto de los ingredientes de perfume se dan más convenientemente en forma de su logaritmo en base 10, logP. Por tanto, los ingredientes de perfume de esta invención tienen un logP de aproximadamente 1,00 a 6,00, preferiblemente en el intervalo de 1,50 a 5,00 y más preferiblemente en el intervalo de 2,00 a 4,50. Los valores de logP de muchos ingredientes de perfume se han descrito; por ejemplo, la base de datos Pomona92, disponible de Daylight Chemical Information Systems, Inc. (Daylight CIS), Irvine, Calif., contiene muchos, junto con citas de la bibliografía original. Sin embargo, los valores de ClogP descritos en el presente documento se calculan más convenientemente mediante el programa "CLOGP" disponible en el software Chemoffice Ultra, versión 9 disponible de CambridgeSoft Corporation, 100 CambridgePark Drive, Cambridge, MA 02140 EE UU o CambridgeSoft Corporation, 8 Signet Court, Swanns Road, Cambridge CB5 8LA RU. Los valores ClogP se usan preferiblemente en lugar de los valores de logP experimentales en la selección de ingredientes de perfume que son útiles en la presente invención. Para aceites o extractos naturales, la composición de tales aceites se puede determinar por análisis o usando las composiciones publicadas en la base de datos ESO 2000 publicada por BACIS (Boelens Aroma Chemical Information Service, Groen van Prinsterlaan 21, 1272 GB Huizen, Países Bajos).

Es preferible que la composición de fragancia sea suficientemente insoluble en agua para formar una emulsión como parte del proceso de encapsulación. Puesto que la solubilidad en agua está aproximadamente inversamente correlacionada con ClogP es preferible que más del 50% en peso, preferiblemente más del 70% en peso, de la composición de fragancia comprenda ingredientes de fragancia cíclicos que tienen valores ClogP entre 1,00 y 6,00, más preferiblemente es que más del 50% en peso y más preferiblemente más del 70% en peso tengan valores ClogP entre 1,50 y 5,00 e incluso más preferible es que más del 50% en peso y preferiblemente más del 70% en peso tengan valores ClogP entre 2,00 y 4,50.

#### **Materiales de perfume cíclicos de alta densidad (categoría A)**

Una característica esencial de la invención es que del 50% al 100% de la composición de fragancia para encapsulación debe contener al menos un material de fragancia cíclico con una densidad entre 0,950 g/cm<sup>3</sup> y 1,500 g/cm<sup>3</sup>. Preferiblemente, la composición de fragancia comprende del 50 al 100% de al menos 3 y más preferiblemente al menos 6 y en especial preferiblemente al menos 10 materiales de fragancia o perfume cíclicos de alta densidad con una densidad entre 0,950 g/cm<sup>3</sup> y 1,500 g/cm<sup>3</sup>. Los materiales de perfume cíclicos de alta densidad adecuados se definen como ingredientes de perfume que contienen al menos un anillo en la estructura química que puede ser alicíclico, heterocíclico, aromático o macrocíclico y tienen densidades entre 0,950 g/cm<sup>3</sup> y 1,500 g/cm<sup>3</sup>, preferiblemente entre 1,000 g/cm<sup>3</sup> y 1,500 g/cm<sup>3</sup> y más preferiblemente entre 1,050 g/cm<sup>3</sup> y 1,400 g/cm<sup>3</sup>, con valores ClogP entre 1,00 y 6,00, preferiblemente entre 1,50 y 5,00 y más preferiblemente entre 2,00 y 5,00 e incluso más preferiblemente entre 2,00 y 4,50. Preferiblemente, los ingredientes de fragancia de alta densidad útiles para los fines de la invención tienen pesos moleculares mayores de 150 unidades de masa y por debajo de 300 unidades de masa. La tabla 1 a continuación, enumera ejemplos de un número de materiales de perfume cíclicos de alta densidad comunes apropiados para los fines de la presente invención. Se pretende que esta lista ejemplifique materiales de perfume y que no sea exhaustiva, ni limite en modo alguno la invención.

**Tabla 1: Ejemplos de ingredientes de perfumería cíclicos**

Compuesto	Número CAS	Densidad	ClogP
-----------	------------	----------	-------

ES 2 623 438 T3

FENOXI ACETATO DE ALILO	007493-74-5	1,100	2,45
SALICILATO DE AMILO	2050-08-0	1,065 <sup>c</sup>	4,45
SALICITATO DE ISOAMILO	87-20-7	1,053 <sup>c</sup>	4,45
PROPIONATO DE ANISILO	007549-33-9	1,07 <sup>d</sup>	2,41
BENZOFENONA	119-61-9	1,067 <sup>c</sup>	3,18
ACETATO DE BENCILO	140-11-4	1,055	1,96
BENZOATO DE BENCILO	120-21-4	1,112	3,70
SALICILATO DE BENCILO	000118-58-1	1,176	4,16
ACETATO DE ISOBORNILO	125-12-2	0,986 <sup>c</sup>	4,04
CEDANOL	7070-15-7	0,986 <sup>c</sup>	3,12
ACETATO DE CINAMILO	000103-54-8	1,050	2,55
SALICILATO DE CIS 3 HEXENILO	65405-77-8	1,059	4,50
CUMARINA	91-64-5	1,237 <sup>c</sup>	1,41
SALICILATO DE CICLOHEXILO	025485-88-5	1,112 <sup>a</sup>	4,37
CYCLACET™ (acetato de (3a,4,5,6,7,7a-hexahidro-4,7-metano-1H-inden-5(o 6)-ilo)	005413-60-5	1,071	2,88
DIHIDROEUGENOL	002785-87-7	1,038 <sup>d</sup>	2,88
DIHIDROISOJASMONATO	37172-53-5	1,003 <sup>c</sup>	3,09
DIMETIL RESORCINOL	000151-10-0	1,055 <sup>d</sup>	2,15
3,4-DIMETOXITOLUENO	000494-99-5	0,990	2,30
ÉTER DIFENILICO	000101-84-8	1,075	4,24
ANISATO DE ETILO	000094-30-4	1,103 <sup>d</sup>	2,81
BENZOATO DE ETILO	000093-89-0	1,050	2,64
ETIL 4-GUAIACOL	002785-89-9	1,050	2,35
GLICIDATO DE ETIL 3-FENILO	000121-39-1	1,102	2,43
GLICIDATO DE ETIL 3-METIL 3-FENILO	77-83-8	1,094 <sup>c</sup>	2,95
SALICILATO DE ETILO	000118-61-6	1,130	2,86
ETILVAINILLINA	121-32-4	1,130 a 80°C	1,81
BRASILATO DE ETILENO	105-95-3	1,018 <sup>c</sup>	3,02
EUGENOL	000097-53-0	1,070	2,40
ACETATO DE EUGENILO	000093-28-7	1,055	2,30
HELIOBOUQUET	001205-17-0	1,163	2,37
HELIOTROPINA	120-57-0	1,267 <sup>c</sup>	1,76
ACETATO DE HELIOTROPILO	326-61-4	1,24 <sup>c</sup>	1,78
INDOL	000120-72-9	1,086 <sup>d</sup>	2,13
SALICILATO DE ISOBUTILO	000087-19-4	1,060	3,79
ACETATO DE ISOEUGENIL FENILO	000120-24-1	1,119 <sup>d</sup>	4,33
ISOEUGENOL	000097-54-1	1,099 <sup>c</sup>	2,58
INDENO DE MAGNOLIA	027606-09-3	1,087	2,45
4-METOXIACETOFENONA	000100-06-1	1,082	1,80
BENZOATO DE METILO	000093-58-3	1,089	2,11
CINAMATO DE METILO	001754-62-7	1,057 <sup>c</sup>	2,46

Compuesto	Número CAS	Densidad	ClogP
SALICILATO DE METILO	000119-36-8	1,180	2,33
2-METIL-4-PROPILO-1,3-OXATIANO	59323-76-1	1,050 <sup>c</sup>	1,22
FENILACETALDEHÍDO GLICERIL ACETAL	29895-73-6	1,157	1,08
BENZOATO DE FENILO	000093-99-2	1,230	3,04
ACETATO DE 2-FENILETILO	000103-45-7	1,088	2,28
BVENZOATO DE FENIL ETILO	000094-47-3	1,093 <sup>d</sup>	4,22
ACETATO DE FENIL ETIL FENILO	000102-20-5	1,082 <sup>d</sup>	3,92
SALICILATO DE FENIL ETILO	000087-22-9	1,154 <sup>d</sup>	4,43
SALICILATO DE FENILO	000118-55-8	1,260	3,84
ISOBUTIRATO DE FENOXI ETILO	000103-60-6	1,044 <sup>d</sup>	2,92
VAINILLINA	121-33-5	1,056 <sup>c</sup>	1,28
ISOBUTIRATO DE VAINILLINA	20665-85-4	1,12 <sup>d</sup>	1,72
ETIL MALTOL	4940-11-8	1,379 <sup>c</sup>	1,13
CETONA DE SANDÍA	28940-11-6	1,161 a 40°C	1,80

*a* Kao MSDS para salicilato de ciclohexilo

*b* medido a 60°C descrito en JCS Perkin Trans 2 p199-200 (2002)

*c* Beilstein

5 *d* catálogo de Sigma-Aldrich 2008-2009 y referencias en el mismo  
Cycladet es una marca registrada de International Flavors and Fragrances

Un grupo especialmente preferido de materiales de fragancia cíclicos para inclusión en núcleos de cápsulas incluye: acetato de bencilo, benzofenona, salicilato de bencilo, salicilato de cis 3-hexenilo, cumarina, salicilato de ciclohexilo, cyclacet™, etilvainillina, eugenol, heliotropina, indol, isoeugenol, antranilato de metilo, benzoato de metilo, oxano (2-metil-4-propil-1,3-oxatiano), 2-feniletanol, vainillina, isobutirato de vainillina, cetona de sandía.

Los materiales de perfume cíclicos de alta densidad deben comprender del 50-100% en peso de la composición de fragancia y preferiblemente deben comprender del 60-100% en peso de la composición de fragancia y más preferiblemente deben comprender del 75-100% en peso de la composición de fragancia.

Los aceites esenciales que tienen una densidad mayor de 0,950 g/cm<sup>3</sup> y contienen más del 50% en peso de materiales de fragancia cíclicos con valores ClogP entre 1,00 y 6,00 se consideran que son también materiales de perfume cíclico en su totalidad y no solo la proporción de materiales de fragancia cíclicos.

#### 15 **Materiales de fragancia convencionales (categoría B)**

Una característica opcional, pero con frecuencia deseable de la invención es la inclusión en el núcleo de la microcápsula del 0-80%, preferiblemente del 5-60%, más preferiblemente del 10-55%, más preferiblemente del 20-55% o incluso más preferiblemente del 30-55% en peso de uno o más materiales de fragancia de categoría B.

Los materiales de fragancia de la categoría B se caracterizan en que pueden o no poseer una unidad cíclica en su estructura molecular, pero sus densidades están por debajo de 0,950 g/cm<sup>3</sup> a 20°C o tal temperatura más alta que la densidad se pueda medir apropiadamente. También se ajustan a la definición anterior de materiales de fragancia en que tienen valores ClogP entre 1,00 y 6,00 y pesos moleculares entre 75 uma y 325 uma. La tabla 2 a continuación enumera ejemplos de un número de materiales de perfume comunes que pueden o no tener unidades cíclicas como parte de la estructura molecular, tienen densidades entre 0,630 y 0,950 g/cm<sup>3</sup> y valores ClogP entre 1,00 y 6,00. Se pretende que la lista ejemplifique materiales de perfume de categoría B y no sea exhaustiva, ni limitante en modo alguno de la invención.

#### 30 **Tabla 2 Ejemplos de materiales de perfume de categoría B**

COMPUESTO	NÚMERO CAS	DENSIDAD	ClogP
CAPROATO DE ALILO	123-68-2	0,887	3,07
CITRONELOL	106-22-9	0,885	3,25
GAMMA DECALACTONA	706-14-9	0,948	2,36
DIHIDROMIRCENOL	18479-58-8	0,834	3,033
ACETATO DE CIS 3-HEXENILO	35926-04-6	0,897	2,32
LIMONENO	5989-27-5	0,844	4,35
LINALOL	78-70-6	0,87	2,75
ACETATO DE PRENILO	1191-16-8	0,917	1,88
ACETATO DE BUTIL CICLOHEXILO	88-41-5	0,937	4,06

Preferiblemente, los materiales de perfume de la categoría A y la categoría B juntos comprenden al menos 10 materiales de fragancia.

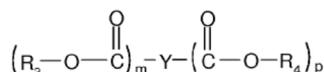
#### 35 **Ingredientes orgánicos solubles en aceite de alta densidad (categoría C)**

Una característica opcional, pero con frecuencia deseable de la invención es la inclusión en el núcleo de la microcápsula del 0-50%, preferiblemente del 5-50%, más preferiblemente del 10-50%, e incluso más preferiblemente del 20-50% en peso de uno o más compuestos orgánicos de alta densidad. "Orgánico" y "alta densidad" tienen los mismos significados que se han definido previamente en la especificación. Algunos ingredientes orgánicos de alta densidad pueden tener estructuras cíclicas en sus fórmulas moleculares, pero no necesitan hacerlo. En general, los ingredientes orgánicos de alta densidad no se usan comúnmente como ingredientes de fragancia, aunque pueden tener un olor y se pueden usar en composiciones de fragancia. También se pueden usar como diluyentes en fragancias o se pueden usar como ingredientes en productos alimenticios. Los compuestos orgánicos solubles en aceite de alta densidad se pueden definir además como:

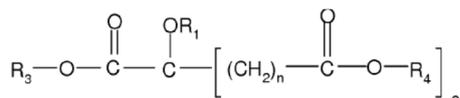
##### i) Compuestos de poliéster orgánicos solubles en aceite de alta densidad (categoría Ci)

50 Soluble en aceite en el contexto de la presente especificación significa materiales que tienen una solubilidad mayor de 1,5 g por 100 g de ftalato de dietilo a 20°C después de 48 horas. Además, los compuestos de poliéster solubles en aceite de alta densidad deben tener un peso molecular entre 100 uma y 1500 uma, preferiblemente entre 125 uma y 1000 uma y más preferiblemente entre 150 y 750 uma y contener al menos 2 grupos éster por molécula y tener densidades entre 0,950 g/cm<sup>3</sup> y 1,500 g/cm<sup>3</sup>, preferiblemente entre 1,000 g/cm<sup>3</sup> y 1,500 g/cm<sup>3</sup> incluso más

preferiblemente entre 1,050 g/cm<sup>3</sup> y 1,500 g/cm<sup>3</sup> y en especial preferiblemente entre 1,100 g/cm<sup>3</sup> y 1,500 g/cm<sup>3</sup> y en especial preferiblemente entre 1,150 g/cm<sup>3</sup> y 1,400 g/cm<sup>3</sup> o son compuestos de las siguientes fórmulas:

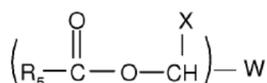


- 5 en la que:
- R<sub>3</sub> y R<sub>4</sub>, idénticos o diferentes, representan un alquilo de (C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>) lineal o ramificado;
  - Y es un alquenileno o alquinileno de (C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>), opcionalmente sustituido por uno o varios hidroxilos o un grupo fenilo;
  - m y p, idénticos o diferentes, son números enteros de 1 a 4.

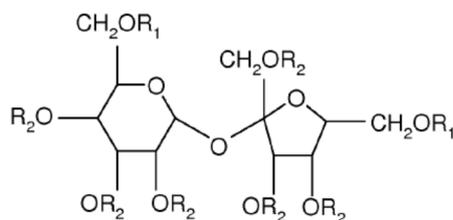


- 10 en la que:
- R<sub>1</sub> es hidrógeno o un alquilcarbonilo de (C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>) lineal o ramificado;
  - R<sub>3</sub> y R<sub>4</sub>, idénticos o diferentes, representan un alquilo de (C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>) lineal o ramificado;
  - n es de 0 a 3, preferiblemente de 1 a 3.

15 En las fórmulas anteriores, R<sub>3</sub> y R<sub>4</sub> son preferiblemente grupos alquilo de (C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>), R<sub>1</sub> es preferiblemente un grupo alquilcarbonilo de (C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>) e Y es preferiblemente un alquenileno o alquinileno de (C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>).



- 20 en la que:
- X representa H, un alquilo de C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>, CH(R<sub>6</sub>)OCOR<sub>7</sub>;
  - W representa H, un alquilo de C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>, CH(R<sub>6</sub>)OCOR<sub>7</sub>, (CH<sub>2</sub>)<sub>n</sub>CH(R<sub>6</sub>)OCOR<sub>7</sub>;
  - R<sub>5</sub> representa un alquilo de C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> lineal o ramificado;
  - R<sub>6</sub> y R<sub>7</sub>, idénticos o diferentes, representan H o un alquilo de C<sub>1</sub>-C<sub>3</sub> lineal o ramificado;
  - n es un número entero de 1 a 4, siempre que al menos X o W sea un grupo éster.



- 30 en la que:
- R<sub>1</sub> y R<sub>2</sub>, idénticos o diferentes, representan un grupo -CO-R en el que R es un grupo alquilo de C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub> lineal o ramificado.

35 La tabla 3 enumera un número de ingredientes orgánicos solubles en aceite de alta densidad que se pretende que ejemplifiquen la gama de materiales de poliéster orgánicos solubles en aceite de alta densidad, pero no que sea exhaustiva, o limitante en modo alguno de la invención.

40 **Tabla 3. Ejemplos de ingredientes de poliéster orgánicos solubles en aceite de alta densidad (categoría Ci)**

COMPUESTO	No CAS	Densidad* (g/cm <sup>3</sup> )
CITRATO DE ACETIL TRIETILO	77-89-4	1,136
MALEATO DE DIETILO	141-05-9	1,064
MALONATO DE DIETILO	105-53-3	1,055
ADIPATO DE DIETILO	141-28-6	1,009
ADIPATO DE DIMETILO	627-93-0	1,062 a 20°C
SUCCINATO DE DIETILO	123-25-1	1,047
TARTRATO DE DIETILO	87-91-2	1,204
FTALATO DE DIETILO	84-66-2	1,12
TEREFTALATO DE DIMETILO	120-61-6	1,20

TRIACETATO DE GLICERILO	102-76-1	1,21
DIACETATO DE PROPILENGLICOL	623-84-7	1,050**
OCTA-ACETATO DE SACAROSA	126-14-7	1,28
DIACETATO HEXABUTIRATO DE SACAROSA	27216-37-1	1,15
TRIPROPIONATO DE GLICERILO	139-45-7	1,08
CITRATO DE TRIETILO	77-93-0	1,137

\* descrito en el catálogo de Sigma-Aldrich 2008-2009

\*\* descrito en la hoja de datos técnicos de Dow Chemicals a 25°C para Dowanol PGDA.

5 Los materiales orgánicos de poliéster solubles en aceite orgánicos de alta densidad deben, sin embargo, ser seguros para uso en productos de cuidado personal y cosméticos y también deben ser seguros para desecharse en el medio ambiente. Por esta razón, los materiales orgánicos que contienen halógenos no se consideran como adecuados para incorporación en microcápsulas. Los ejemplos de compuestos de poliéster orgánicos solubles en aceite de alta densidad incluyen octa-acetato de sacarosa, triacetato de glicerilo, tripropionato de glicerilo, tartrato de dietilo, citrato de trietilo y citrato de acetil trietilo.

10

#### ii) Polímeros orgánicos de alta densidad (categoría Cii)

15 Los polímeros orgánicos con pesos moleculares entre 2.000 uma y 250.000 uma, preferiblemente entre 5.000 uma y 100.000 uma que contienen al menos el 19% y preferiblemente más del 25% en peso de cualquiera o una mezcla de átomos de oxígeno, nitrógeno y azufre calculado sobre el peso molecular del monómero, o en el caso de copolímeros, sobre el peso molecular medio en peso de cualquier mezcla de monómeros antes de la reacción de polimerización y que tienen densidades entre 1,000 g/cm<sup>3</sup> y 1,500 g/cm<sup>3</sup> preferiblemente entre 1,050 g/cm<sup>3</sup> y 1,500 g/cm<sup>3</sup> incluso más preferiblemente entre 1,100 g/cm<sup>3</sup> y 1,500 g/cm<sup>3</sup> y en especial preferiblemente entre 1,150 g/cm<sup>3</sup> y 1,400 g/cm<sup>3</sup> se pueden incluir en la composición de fragancia al 0-50%, preferiblemente el 10-50% y más preferiblemente al 20-50% en peso para inclusión en la composición de fragancia para encapsulación.

20

25 Para ingredientes orgánicos de alta densidad que son polímeros (grupo Cii) el monómero del que se produce el polímero debe contener preferiblemente al menos el 19% en peso de cualquier combinación de átomos de oxígeno, nitrógeno o azufre, preferiblemente más del 25% de cualquier combinación de estos átomos y más preferiblemente más del 30% de cualquier combinación de átomos de oxígeno, nitrógeno o azufre. Los polímeros deben tener preferiblemente un intervalo de peso molecular entre 2000 y 250.000 uma, preferiblemente entre 5000 y 200.000 uma y más preferiblemente entre 10.000 y 100.000 uma. Además, los monómeros comprenden solo átomos de entre, pero no necesariamente todos de, átomos de carbono, hidrógeno, oxígeno, nitrógeno y azufre. Los monómeros no deben contener ningún grupo fuertemente ionizante tal como sales de sulfonato o sulfato o sales de amonio cuaternario. Los polímeros se pueden preparar por cualquier medio estándar tal como polimerización por radicales de monómeros insaturados tal como monómeros vinílicos o acrílicos, por ejemplo, acetato de vinilo para producir polímeros tal como acetatos de polivinilo o poli(acrilamidas o poli(acrilatos). Alternativamente, los polímeros se pueden producir por reacciones de condensación como las producen poliéteres o poliésteres, tal como propilenglicol o ésteres de politereftalato o poliamidas.

35

40 Los polímeros que contienen más de un tipo de monómero también se consideran parte de la invención siempre que el polímero preferiblemente contenga al menos el 19% de cualquier combinación de átomos de oxígeno, nitrógeno o azufre promediados sobre el porcentaje en peso de los monómeros, preferiblemente más del 25% de cualquier combinación de átomos de oxígeno, nitrógeno y azufre y más preferiblemente más del 30% de cualquier combinación de átomos de oxígeno, nitrógeno o azufre.

45

La tabla 4 enumera un número de polímeros orgánicos de alta densidad que se pretende que ejemplifiquen la gama de materiales, pero no sea exhaustiva, ni limitante en modo alguno de la invención. Algunos de los datos se citan en intervalos ya que las densidades de los polímeros pueden variar dependiendo de los antecedentes de la muestra. Los datos se toman de Polymer Handbook 4<sup>a</sup> Edición Ed por J Brandup et al publicado por J Wiley and Sons in 2005 (ISBN 978-0-471-16628-3).

**Tabla 4: Ejemplos de materiales poliméricos orgánicos de alta densidad**

Polímero	Densidad (g/cm <sup>3</sup> )
ACETATO DE CELULOSA	1,22-1,34
POLIESTIRENO	1,04-1,11
ACETATO DE POLIVINILO	1,19
POLIAMIDA 6	1,24
POLI(METACRILATO DE METILO)	1,17-1,20

50

#### Solventes de perfume (Categoría Ciii)

Es común usar solventes con perfumes sea como agentes solubilizantes líquidos para ingredientes de fragancia sólidos o como diluyentes para los ingredientes más potentes o para controlar la presión de vapor y características de evaporación de la fragancia. Para el fin de esta especificación, se definen solventes de perfume como líquidos a 25°C que se pueden añadir al 50% en peso a una fragancia sin cambiar sustancialmente la nota de fragancia. La tabla 5 a continuación enumera un número de solventes de perfume que se pretende ejemplifiquen la gama de solventes, pero que no sea exhaustiva, ni limitante en modo alguno de la invención.

**Tabla 5 Solventes de perfumería comunes**

COMPUESTOS	No. CAS	Densidad (g/cm <sup>3</sup> )
Dipropilenglicol	25265-71-8	1,023*
Dowanol TPM	25498-49-1	0,962**
Propilenglicol	57-55-6	1,036*

\* descrito en el catálogo de Sigma-Aldrich 2008-2009

\*\* densidades de la hoja de datos técnicos de la empresa Dow Chemicals a 25°C.

Los ingredientes orgánicos de alta densidad también pueden comprender mezclas de materiales de las categorías Ci), Cii) y Ciii) en cualquier proporción.

#### Otros solventes (categoría D)

La composición de fragancia para encapsulación de la invención también puede comprender opcionalmente uno o más solventes que no están en la categoría Ciii) definida anteriormente. La tabla 5a a continuación enumera un número de tales solventes, que tienen una densidad habitualmente por encima de 0,800 g/cm<sup>3</sup> y por debajo de 0,950 g/cm<sup>3</sup>.

**Tabla 5a Otros solventes**

COMPUESTOS	No. CAS	Densidad (g/cm <sup>3</sup> )
3-metoxi-3-metilbutan-1-ol	56539-66-3	0,926 a 20°C
Diwanol PM	107-98-2	0,916**
Dowanol DPM	34590-94-8	0,948**
Éter n-butílico de dipropilenglicol	29911-28-2-	0,907**
Isopar L	N/A	0,853***
Miristato de isopropilo	110-27-0	0,853*

\* descrito en el catálogo de Sigma-Aldrich 2008-2009

\*\* densidades de la hoja de datos técnicos de la empresa Dow Chemicals a 25°C

\*\*\* Isopar L es una marca registrada de Exxon Mobil Chemicals la densidad se describe como medida a 15°C

Cuando están presentes, los materiales de la categoría D comprenden del 0-50%, preferiblemente del 5-50%, más preferiblemente del 10-50% e incluso más preferiblemente del 20-50% en peso de la composición de fragancia para encapsulación. Huelga decir, que la suma de A), B), C) y D) equivale entonces al 100%. Sin embargo, la cantidad combinada de los materiales de la categoría C y los materiales de la categoría D no puede superar el 50% en peso de la composición.

#### Microcápsulas

La composición de fragancia de la invención es particularmente apropiada para hacer productos de fragancia encapsulados o microcápsulas con núcleo y envuelta que contienen fragancia. El término "microcápsula" se usa en el presente documento en el sentido más amplio e incluye la encapsulación de perfume y otros materiales o activos en pequeñas cápsulas (es decir, microcápsulas), que típicamente tienen un tamaño medio de partícula entre 1 micrómetro y 500 micrómetros, preferiblemente entre 2 micrómetros y 200 micrómetros, más preferiblemente entre 5 micrómetros y 100 micrómetros y en especial preferiblemente entre 10 micrómetros y 50 micrómetros. El tamaño medio de partícula se puede determinar de varias formas diferentes, sin embargo, la técnica preferida es por dispersión de la luz usando un Malvern Mastersizer tomándose el tamaño medio de partícula como el valor de tamaño de partícula mediana D (0,5).

Las microcápsulas con núcleo y envuelta típicamente comprende una envuelta hueca esférica de material insoluble en agua o al menos parcialmente insoluble en agua, típicamente material polimérico, en el que está contenido el perfume y otros materiales. Se describen microcápsulas en las siguientes solicitudes de patente o patentes US 2003/215.417 A1; US 2003/216.488 A1; US 2003/165.692 A1; US 2004/071.742 A1; US 2004/071.746 A1; US 2004/072.719 A1; US 2004/072.720 A1; EP 1393706 A1; US 2003/203.829 A1; US 2003/195.133 A1; US 2004/087.477 A1; US 2004/106.536 A1; US 6.200.949; US 4.882.220; US 4.917.920; US 4.514.461; US RE 32.713; US 4.234.627.

Las microcápsulas se pueden preparar usando una gama de métodos convencionales conocidos para los expertos en la materia de hacer microcápsulas con núcleo y envuelta, tales como coacervación, polimerización interfacial, y policondensación. Véase, por ejemplo, los documentos US 3.516.941, US 4.520.142, US 4.528.226, US 4.681.806, US 4.145.184; GB 2.073.132; WO 99/17871; y MICROENCAPSULATION: Methods and Industrial Applications Editado por Benita y Simon (Marcel Dekker, Inc. 1996). Sin embargo, se reconoce que muchas variaciones con respecto a materiales y pasos de proceso son posibles mientras que aún se fabrica esencialmente un microcápsula con núcleo y envuelta. Los ejemplos no limitantes de materiales adecuados para hacer la envuelta de la microcápsula incluyen urea-formaldehído, melamina-formaldehído, fenol-formaldehído, ésteres de polimetacrilatos, compuestos de polivinilo, gelatina, carragenano, poliuretano, poliamidas, o cualquier combinación de los anteriores.

En una forma de realización preferida de la invención, la envuelta de las microcápsulas comprende predominantemente una resina de aminoplasto. Los métodos para formar tales microcápsulas con envuelta incluyen reacciones de policondensación. Las resinas de aminoplasto son los productos de reacción de una o más aminas con uno o más aldehídos, típicamente formaldehído. Los ejemplos no limitantes de aminas adecuadas incluyen urea, tiourea, melamina y sus derivados, benzoguanamina y acetoguanamina y combinaciones de aminas. También se pueden usar agentes de entrecruzamiento adecuados (por ejemplo, diisocianato de tolueno, divinilbenceno, diacrilato de butanodiol, etc.) y también se pueden usar polímeros de pared secundarios, según sea apropiado, por ejemplo, anhídridos y sus derivados, particularmente polímeros y copolímeros de anhídrido maleico como se divulga en el documento US 2004/0.087.477 A1. En una forma de realización preferida de la invención, la envuelta de las microcápsulas comprende urea-formaldehído, melamina-formaldehído; o combinaciones de las mismas y las microcápsulas resultantes se conocen comúnmente como microcápsulas con núcleo y envuelta de aminoplasto.

Los expertos en la fabricación de cápsulas apreciarán que hay muchas variaciones que se pueden introducir en la fabricación de las microcápsulas con núcleo y envuelta, tal como variar las proporciones de los ingredientes y/o parámetros del proceso, pero que todavía están en la descripción general para la preparación de núcleo y envuelta descrita en la presente especificación y las referencias citadas. Sin embargo, una variación que se puede indicar es la de disolver sales de metales alcalinos o amonio y derivados de amina en la fase acuosa de la emulsión antes de la reacción de encapsulación para ayudar en la formación de una fase de emulsión estable cuando están presentes ingredientes menos hidrofóbicos en la composición del núcleo. Estas sales pueden ser de ácidos inorgánicos tal como ácidos clorhídrico, sulfúrico, fosfórico o nítrico.

Sin querer limitar la patente en ningún modo, un proceso típico para preparar una dispersión de cápsula incluiría los siguientes pasos.

La preparación de una emulsión de los ingredientes de perfume y cualquier agente benéfico o modificador que puede incluir agentes emulsionantes o estabilizadores de emulsión tiene lugar con agitación vigorosa.

El primer paso es la mezcla de la emulsión anterior con resina de melamina-formaldehído (con una mezcla melamina:formaldehído:metanol en las proporciones molares aproximadas de 1:3:2 a 1:6:4) y un emulsionante. Estos monómeros pueden estar precondensados o los monómeros se pueden usar directamente. Algo de la melamina se puede sustituir por urea. En estos polímeros, el formaldehído puede estar parcialmente eterificado como los éteres metílicos.

Preferiblemente, la envuelta está constituida del 50-100% de polímeros de condensación de formaldehído-melamina o formaldehído-melamina-urea o formaldehído-urea o los polímeros de condensación de formaldehído parcialmente eterificados correspondientes, preferiblemente como los éteres metílicos. La envuelta también puede estar constituida del 50-100% de metacrilato o uretano.

A continuación, se añade ácido a la mezcla anterior para ajustar a un pH de 3,5 a 6,5 y la temperatura se sube a 30-45°C. Se permite agitar para seguir hasta que la dispersión esté libre de aceite. En este proceso se puede usar cualquier ácido que no tenga propiedades adversas, tal como, por ejemplo, ácido fórmico o ácido acético.

Es particularmente ventajoso si las cápsulas se curan calentando a una temperatura entre 60°C a 100°C durante varias horas con agitación moderada.

Es particularmente ventajosos si durante la fase temprana del curado se puede hacer una adición adicional de urea, melamina u otras aminas, o mezclas de las mismas para reducir la concentración de formaldehído en la dispersión acabada, y aumentar el espesor de la pared.

Típicamente, se puede añadir del 10-30% de melamina y/o urea adicional en esta fase, y una proporción particularmente ventajosa es melamina:urea de 5:1 a 1:1.

Una vez se ha completado el curado, la temperatura se reduce a aproximadamente 50°C, y la dispersión se neutraliza antes de ajustarla a un pH de aproximadamente 9,5.

Las microcápsulas de la presente invención, en una forma de realización, son de naturaleza friable. Friabilidad se refiere a la propensión de las microcápsulas de romperse o abrirse cuando se someten a presiones externas directas o fuerzas de cizalla. Para los fines de la presente invención, las microcápsulas utilizadas son "friables" si, mientras están unidas a telas tratadas con ellas, se pueden romper por las fuerzas encontradas cuando las telas que contienen microcápsulas se manipulan al gastarse o ser manipuladas (liberando de esta manera los contenidos de las microcápsulas). En una forma de realización, las microcápsulas con núcleo y envuelta típicamente tienen un diámetro externo medio en el intervalo desde 1 micrómetro a 500 micrómetros, preferiblemente de 5 micrómetros a 200 micrómetros, y más preferiblemente de 5 micrómetros a 100 micrómetros, y en especial preferiblemente de 10 micrómetros a 50 micrómetros. La distribución del tamaño de partícula puede ser estrecha, amplia o multimodal.

Las microcápsulas de la presente invención se distinguen de microcápsulas activadas por humedad, tal como esas microcápsulas que comprenden almidón que estallan tras entrar en contacto con humedad tal como las descritas en el documento US 5.246.603 que no se considera que sean microcápsulas de núcleo y envuelta.

### 15 **Productos domésticos para el lavado de ropa de cuidado personal y cosméticos líquidos**

Las formulaciones e ingredientes de productos domésticos, para el lavado de ropa y de cuidado personal y cosméticos líquidos en los que las microcápsulas que contienen composiciones de fragancia de la invención se pueden usar los conocen bien los expertos en la materia, se puede hacer referencia a los siguientes trabajos que se incorporan al presente documento mediante referencia:

Formulating Detergents and Personal Care Products A guide to Product Development por L. Ho Tan Tai, ISBN 1-893997-10-3 publicado por AOCS Press. También al volumen 67 de Surfactant Science Series Liquid Detergents ISBN 0-8247-9391-9 (Marcel Dekker Inc), así como a las siguientes patentes o solicitudes de patentes:

#### 25 Detergentes para el lavado de ropa líquidos:

US 5.929.022, US 5.916.862, US 5.731.278, US 5.470.507, US 5.466.802, US 5.460.752, y US 5.458.810.

#### 30 Champús y acondicionadores de cabello:

US 6.162.423, US 5.968.286, US 5.935.561, US 5.932.203, US 5.837.661, US 5.776.443, US 5.756.436, US 5.661.118, US 5.618.523.

Los productos domésticos, para el lavado de ropa, y de cuidado personal y cosméticos líquidos pueden tener un intervalo de densidades típicamente de 0,800-1,600 g/cm<sup>3</sup> más preferiblemente para composiciones líquidas que contienen tensioactivos, aceites emulsionados, solventes y material inorgánico sea en solución o suspendido en la formulación, 0,900-1,400 g/cm<sup>3</sup>. Los que son composiciones predominantemente acuosas tenderán a tener densidades cercanas a 1,000 g/cm<sup>3</sup>. El término producto líquido predominantemente acuoso significa un producto en el que el agua es el mayor ingrediente en porcentaje en peso. Típicamente, las composiciones predominantemente acuosas contendrán agua entre el 30% en peso y el 95% en peso.

Algunas formulaciones de productos líquidos no acuosos o acuosos bajas contienen proporciones sustanciales de solventes polares tal como alcoholes y glicoles, consecuentemente sus densidades pueden ser mayores de 1,000 g/cm<sup>3</sup> como se ilustra en la tabla 6.

La mayoría de los suavizantes de ropa líquidos acuosos que se pueden denominar acondicionadores de ropa contienen predominantemente agua y tensioactivo catiónico y sus densidades son menores de 1,000 g/cm<sup>3</sup> especialmente las formulaciones concentradas que contienen mayor concentración de tensioactivo catiónico. Por tanto, los acondicionadores de enjuague líquidos acuosos que se definen como productos usados en el paso de aclarado de lavado de ropa doméstica que contienen más del 50% de agua y entre el 4% y el 30% de un tensioactivo catiónico suavizante, se excluyen de esta invención. La tabla 6 a continuación contiene algunos ejemplos ilustrativos de las densidades de algunas marcas comerciales de productos domésticos, para el lavado de ropa, de cuidado personal y cosméticos líquidos. De nuevo la lista es ilustrativa y ni se pretende que sea exhaustiva ni limitante de la invención.

**Tabla 6 Densidades de productos domésticos, para el lavado de ropa, cuidado personal y cosméticos líquidos comerciales**

Producto	Densidad (g/cm <sup>3</sup> )	Viscosidad a 25°C	Fabricante
Detergente líquido Ariel concentrado europeo	1,070		Procter y Gamble
Detergente líquido Ariel estándar europeo	1,040	338	Procter y Gamble
Aerial hidroactivo europeo	1,050		Procter y Gamble
Líquido concentrado Dash/Bold	1,100		Procter y Gamble

Líquido estándar Dash/Bold	1,070		Procter y Gamble
All Small and Mighty	1,050-1,070		Unilever
Comfort Pearls	1,042		Unilever
Tabletas líquidas Persil	1,026		Unilever
Gel concentrado Le Chat Fr	1,070-1,080	360	Henkel
Líquido estándar Super Croix	1,020-1,030		Henkel
Gel Color Persil (De)	1,070-1,080		Henkel
Gel concentrado Persil Kraft (De)	1,070-1,080	874	Henkel
<b>Producto</b>	<b>Densidad (g/cm<sup>3</sup>)</b>	<b>Viscosidad a 25°C</b>	<b>Fabricante</b>
US Tide 2X Concentrado sin fragancia Piel sensible	1,081	400	Procter y Gamble
US Tide regular sin fragancia piel sensible	1,048		Procter y Gamble
US Tide 2X concentrado HE	1,040-1,090		Procter y Gamble
US 2X Clean Burst Concentrado	1,031		Arm & Hammer
US Fresh Scent and Oxy Clean	1,042		Arm & Hammer
Attack Bio Gel japonés	1,027		Kao
Liquid Top japonés	1,039		Lion
Aerial Ion Power japonés	1,043		Procter y Gamble
Dove Cool Moisture Champú	1,054		Unilever
Dove Douche Soins de Beauté (Fr)	1,034	800	Unilever
Palmolive Tahiti Homme Shampoo et Douche (Fr)	1,018		Colgate
Palmolive lavado de manos	1,042		Colgate

Como se ha indicado anteriormente las microcápsulas, que tienen un tamaño medio de partícula mayor de 5 micras, incorporadas en productos líquidos tienen una tendencia separarse sea por cremado o asentamiento, especialmente en almacenamiento extendido o a temperaturas elevadas, por ejemplo, a 40°C. Sin embargo, para productos líquidos que tienen altas viscosidades y particularmente si tienen altas viscosidades a velocidades de cizalla muy bajas la viscosidad puede prevenir la separación, de la ecuación es aparente que hay una relación entre la viscosidad del producto y la diferencia de densidad entre la cápsula y el producto líquido. Cuanto mayor sea la diferencia en las densidades más viscoso necesita ser un producto para que las cápsulas estén suspendidas. Esto se ilustra fácilmente mediante productos que son lo suficientemente viscosos que pueden suspender burbujas de aire durante periodos bastante largos. La temperatura puede afectar la viscosidad de productos líquidos. Los productos que tienen altas viscosidades a temperaturas ambiente de 20°C pueden tener viscosidades mucho menores cuando se almacenan a temperaturas mayores. La tabla 7 a continuación muestra el efecto de la velocidad de cizalla y la temperatura sobre la viscosidad de un detergente líquido Persil Kraft gel concentrado hecho por Henkel en Europa. No solo cae la viscosidad al aumentar la cizalla, sino que la viscosidad es mucho menor cuando se mide a 37°C. También se sabe para las viscosidades de algunos productos que espesan cuando se almacenan a 37°C o temperaturas superiores durante un periodo de tiempo.

**Tabla 7 Viscosidad de detergente líquido para lavar ropa Persil Kraft Gel concentrado**

Velocidad de rotación rpm	Viscosidad a 25°C (mPas)	Viscosidad a 37°C (mPas)
0,3	6600	1130
0,6	3600	675
1,5	2100	570
3	1610	525
6	1280	493
12	1060	No medida
30	874	No medida

La temperatura ambiente varía a través del mundo y debido al cambio de estaciones por eso para que una cápsula permanezca suspendida se requiere que la viscosidad permanezca alta a menos que las densidades estén bien emparejadas. Por tanto, es preferible si los productos domésticos, de lavado de ropa, de cuidado personal o cosméticos líquidos en los que se introducen las microcápsulas que contienen composiciones de fragancia de esta invención tienen viscosidades de entre 10 y 5.000 mPas, preferiblemente entre 10 y 2.500 mPas, más preferiblemente entre 20 y 2.000 mPas, e incluso más preferiblemente entre 50 y 1500 mPas medidas bien a 25°C o a 40°C cualquiera que dé el valor más bajo usando un viscosímetro Brookfield LVT con husillo No. 31 a 30 rpm. Para algunas formulaciones la viscosidad del producto puede cambiar durante almacenamiento prolongado a temperatura elevada. Por tanto, los valores dados anteriormente se deben no solo aplicar a muestras recién hechas, sino también a esas que se han almacenado durante 12 semanas a 40°C.

Los productos domésticos, de lavado de ropa, de cuidado personal o cosméticos líquidos en los que se introducen las microcápsulas que contienen composiciones de fragancia de esta invención, pueden contener un tensioactivo.

Este se usa típicamente en una cantidad de al menos el 2% en peso del producto, preferiblemente en el intervalo desde el 2% hasta el 40% en peso.

5 La dosis de fragancia en microcápsula en los productos líquidos depende de la carga útil total de agente benéfico que se va a administrar. Varios aspectos influyen la dosis: la concentración de dispersión de la microcápsula, la proporción de fragancia en la microcápsula y la cantidad de material necesario para crear el efecto deseado. Medida como peso seco de microcápsulas después de la eliminación de todo el agua y solventes de la preparación de microcápsulas la dosis de microcápsula en productos líquidos debe estar en el intervalo del 0,01 al 10% en peso de la composición de producto líquido, preferiblemente desde el 0,05% al 2,5% en peso, más preferiblemente desde el 10 0,1 al 1,25% en peso de la composición. Las microcápsulas se pueden incorporar en los productos por cualquier medio convencional, habitualmente como una dispersión líquida añadida en una fase adecuada en el proceso, pero habitualmente después de cualquier mezcla de alta cizalla.

15 La presente invención se divulgará ahora en más detalle mediante los siguientes ejemplos ilustrativos, pero no limitantes.

### Ejemplos

#### Ejemplo 1: Preparación de microcápsulas

20 Un recipiente de agitación cilíndrico de 2 l se equipó con un dispersador ajustable que tenía un disco de dispersión comercial estándar con un diámetro de 50 mm.

Se cargó en sucesión con:

- 25
- 400 g de una composición de fragancia de la invención
  - 86 g de una solución acuosa del 70% de potencia de una resina de melamina-formaldehído metilada (proporción molar melamina: formaldehído: metanol 1:3,9:2,4) con una viscosidad de Brookfield de 275 mPas y un pH de 8,5;
  - 80 g de una solución al 20% de potencia de sal sódica del ácido poli-2-acrilamido-2-metilpropanosulfónico;
  - 30 - 350 g de agua;
  - 15 g del 10% de potencia en peso de solución acuosa de ácido fórmico.

35 Esta carga se procesó a una dispersión de microcápsulas ajustando la velocidad de agitación a una velocidad periférica de aproximadamente  $20 \text{ ms}^{-1}$ . La temperatura se mantuvo a aproximadamente  $35^\circ\text{C}$ .

Después de 60 minutos, la dispersión estaba libre de aceite; se había establecido un tamaño de partícula de aproximadamente 20-30  $\mu\text{m}$ . La velocidad de agitación del disco de dispersión se redujo después a un nivel suficiente para la circulación uniforme del contenido del recipiente.

40 Se ajustó una temperatura de curado de  $80^\circ\text{C}$ , y una vez alcanzada por inyección de vapor caliente, se añadió una alimentación de una suspensión al 27% de melamina-urea (proporción 2,5:1, melamina:urea) en ácido fórmico (para ajustar el pH a pH 4,5) a la dispersión de las microcápsulas realizadas con una velocidad de flujo de masa constante y se midió durante el curso de una hora. Se midió un total de 46 g de la suspensión de melamina-urea.

45 Siguió una fase de curado de 120 min a  $90^\circ\text{C}$ .

Después de haber enfriado la dispersión a aproximadamente  $55^\circ\text{C}$ , se neutralizó con dietanolamina a pH 7,0 y se ajustó a un pH de 8,5 usando amoniaco.

50 Se añadió un agente dispersante para dar una dispersión de microcápsulas uniforme con contenido en sólidos del 50% y una viscosidad de 83 mPas.

#### Ejemplo 2: Composición de fragancia 1

55 La tabla 8 a continuación da una composición de fragancia que comprende 4 materiales de fragancia, todos los cuales tienen densidades mayores de  $0,950 \text{ g/cm}^3$  y ClogP entre 1,00 y 5,00. Así, la composición de fragancia 1 que tiene una densidad de  $1,0553 \text{ g/cm}^3$  contiene el 100% de materiales de perfume cíclicos de alta densidad y es adecuada para encapsulación mediante el procedimiento del ejemplo 1 o se puede tratar como un acorde y mezclar con hasta el 80% en peso de materiales de perfume de baja densidad antes de la encapsulación.

60

**Tabla 8: Composición de fragancia 1**

Ingrediente	No. CAS	% en peso	Peso Mol	Densidad $\text{g/cm}^3$	ClogP
Dihidroisojasmonato	37172-53-5	30	226,32	0,996 <sup>a</sup>	3,09
Éter difenílico	101-84-8	10	170,21	1,073 <sup>b</sup>	4,24

3-(3,4-metilendioxfenil)-2-metilpropanal	1205-17-0	20	192,21	1,162 <sup>b</sup>	2,37
Brasilato de etileno	105-95-3	40	270,36	1,042 <sup>b</sup>	3,02

a medido a 20°C

b del catálogo Sigma-Aldrich 2008-2009

Ejemplo 3: Composición de fragancia 2

5 La tabla 9 proporciona un ejemplo adicional de una composición de fragancia adecuada para encapsulación mediante una reacción de condensación como en el ejemplo 1. La composición de fragancia 2 comprende el 81% de ingredientes de perfume cíclicos que tienen densidades mayores de 0,950 g/cm<sup>3</sup> y ClogP entre 1,00 y 5,00 y el 15% de un compuesto orgánico soluble en aceite de alta densidad. La densidad de esta composición de fragancia es 1,1549 g/cm<sup>3</sup>.

En la tabla 9 y en los ejemplos posteriores los ingredientes de la composición están asignados a las categorías A, B, C o D para ilustrar más fácilmente la invención.

**Tabla 9: Composición de fragancia 2**

Ingrediente	No. CAS	% en peso	Categoría de material
Acetato de heliotropilo	326-61-4	50	A
Salicilato de amilo	2050-08-0	25	A
Etilvainillina	121-32-4	6	A
Acetato de cis 3-hexenilo	3681-71-8	4	B
Citrato de trietilo	77-93-0	15	C

Ejemplo 4: Composición de fragancia 3

20 La composición de fragancia 3 en la tabla 10 a continuación da una composición de fragancia que es adecuada para incorporación en microcápsulas por el procedimiento del ejemplo 1. La composición de fragancia 3 tiene una densidad de 0,9384 g/cm<sup>3</sup> y contiene 5 ingredientes de fragancia de alta densidad cíclicos que comprende el 45,65% de la composición de fragancia en peso.

**Tabla 10: Composición de fragancia 3**

Ingrediente	No. CAS	% en peso	Categoría de material
Caproato de alilo	123-68-2	0,050	B
Goma de canfor en polvo	464-49-3	2,00	A
Cedanol	7070-15-7	12,50	A
Nitrilo de citronelilo	51566-62-2	3,75	B
Óxido de difenilo	101-84-8	6,25	A
Dipropilenglicol	25265-71-8	0,50	C
1-(5,5-dimetil-1-ciclohexen-1-il)-4-penten-1-ona (Dynascone™)	56973-85-4	0,50	B
2-metil-4-(2,2,3-trimetil-3-ciclo-pentenil)-2-buten-1-ol (Santaliff™)	28219-60-5	16,25	B
β-ionona	14901-07-6	6,25	B
Acetato de isobornilo	125-12-2	10,00	A
Pentanoato de etil 2 metilo	39255-32-8	9,40	B
Limoneno		9,40	B
Fenil acetaldéhidó DMA	101-48-4	6,90	A
3-pentanol 2,2,4-trimetil-1-[(2-metil-2-propenil)oxi]	526218-21-3	6,25	B
Óxido de rosa	3033-23-6	2,00	B

Ejemplo 5: Composiciones de fragancia 4 a 10

30 Se pueden formular composiciones de núcleo para encapsulación como en la tabla 11 a continuación que muestra cómo la densidad de la composición del núcleo se puede variar añadiendo diferentes proporciones de ingredientes orgánicos solubles en aceite de alta densidad a la composición de fragancia 3 para aumentar la densidad y ajustarse a la densidad más estrechamente que la de un producto de consumo líquido diana.

**Tabla 11. Composiciones de fragancia**

	% en peso de la composición de fragancia	% en peso de octaacetato de sacarosa	% en peso de citrato de trietilo	Densidad de la composición
Composición de fragancia 3	100	0	0	0,938
Composición de fragancia 4	97	3	0	0,946
Composición de fragancia 5	91	9	0	0,961
Composición de fragancia 6	87,5	12,5	0	0,977
Composición de fragancia 7	70	30	0	1,019
Composición de fragancia 8	85	0	15	0,964
Composición de fragancia 9	70	0	30	0,990
Composición de fragancia 10	50	0	50	1,028

Ejemplo 6: Composición de fragancia 11

- 5 Se formula una composición de fragancia adecuada para incorporación en una composición de núcleo de microcápsulas como en la tabla 12 a continuación.

**Tabla 12: Composición de fragancia 11**

Ingrediente	No. CAS	% en peso	Categoría de material
Caproato de alilo	123-68-2	0,050	B
Salicilato de bencilo	118-58-1	30	A
Goma de canfor en polvo	464-49-3	1,5	A
Cedanol	7070-15-7	8,75	A
Nitrilo de citronelilo	51566-62-2	2,60	B
Óxido de difenilo	101-84-8	4,30	A
Dipropilenglicol	25265-71-8	0,35	C
1-(5,5-dimetil-1-ciclohexen-1-il)-4-penten-1-ona (Dyname™)	56973-85-4	0,35	B
2-metil-4-(2,2,3-trimetil-3-ciclo-pentenil)-2-buten-1-ol (Santaliff™)	28219-60-5	11,50	B
β-ionona	14901-07-6	4,30	B
Acetato de isobornilo	125-12-2	12,50	A
Pentanoato de etil 2 metilo	39255-32-8	6,50	B
Limoneno		6,50	B
Fenil acetaldéhid DMA	101-48-4	5,0	A
3-pentanol 2,2,4-trimetil-1-[(2-metil-2-propenil)oxi]	526218-21-3	4,40	B
Óxido de rosa	3033-23-6	1,40	B

- 10 La composición de fragancia 11 comprende el 62,05% de materiales de categoría A y tiene una densidad de 0,9973 g/cm<sup>3</sup>. Esta composición de fragancia se encapsuló en una microcápsula con núcleo y envuelta de formaldehído melamina mediante el procedimiento del ejemplo 1. La composición final era TAKAPS 47.

Ejemplo 7: Composición de fragancia 12

- 15 Un ejemplo adicional de una composición de fragancia de la invención que incluye un aceite esencial se da en la tabla 13 a continuación.

**Tabla 13: Composición de fragancia 12**

20

Ingrediente	No. CAS	% en peso	Categoría de material
Aceite de Amyris	8015-65-4	21,44	A (véase la tabla 14)
Acetato de bencilo	140-11-4	7,16	A
Cedril metil éter	19870-74-7	2,30	A
Acetato de cedrenilo	77-54-3	2,0	A
Dihidroisojasmonato	37172-53-5	13,24	A
Etilvainillina	121-32-4	1,85	A
2-heptilciclopentanona	137-03-1	1,43	B
Heliotropina	120-57-0	11,08	A
Undecalactona gamma	104-67-6	1,43	B
(1,7,7-trimetilbicyclo[2,2,1]hept-2-il)ciclohexanol	68877-29-2	4,07	B
Brasilato de etileno	105-95-3	27,79	A

Citrato de trietilo	77-93-0	5,66	C
Miristato de isopropilo	110-27-0	0,55	D

Los constituyentes principales del aceite de Amyris se enumeran en la tabla 14 a continuación que representan el 70,3% de los constituyentes del aceite de Amyris. El aceite usado tenía una densidad de 0,959 g/cm<sup>3</sup> y los componentes principales contienen anillos alicíclicos en sus estructuras químicas y tienen valores ClogP mayores de 1,5, pero por debajo de 6,00. Por tanto, el aceite de Amyris contribuye componentes de alta densidad de la invención a la composición de fragancia. Otros siete ingredientes de alta densidad con valores ClogP entre 1,50 y 6,00 y un ingrediente de no fragancia de alta densidad (citrato de trietilo) llevan el porcentaje total combinado de ingredientes de alta densidad al 93,07% en peso de la composición de fragancia. Esta composición de fragancia tiene una densidad mayor de 0,950 g/cm<sup>3</sup> y es adecuada para encapsulación por el método del ejemplo 1.

**Tabla 14: Componentes principales de aceite de Amyris**

Ingrediente	No. CAS	% en peso	Peso Mol.	ClogP
Valerianol	20489-45-6	21,5	222,4	4,62
7-epi- $\alpha$ -eudesmol	123123-38-6	10,7	222,4	4,69
Elemol	639-99-6	9,10	222,4	4,75
$\beta$ -eudesmol	473-15-4	7,9	222,4	4,68
$\gamma$ -eudesmol	1209-71-8	6,6	222,4	4,86
$\alpha$ -eudesmol	473-16-5	4,80	222,4	4,68
$\beta$ -sesqui-felandreno	20307-83-9	4,70	204,3	4,70
Selina-3,7(11)dieno*	6813-21-4	2,50	204,3	6,73
Zingibereno**	495-60-3	2,50	204,3	6,60

\* zingibereno y Selina-3,7(11)dieno tienen valores ClogP fuera del intervalo de 1,00 a 6,00.

#### 15 Ejemplo 8: Estabilidad de almacenamiento

Este ejemplo compara la estabilidad de almacenamiento de microcápsulas que contienen composiciones de fragancia de la invención con una composición de fragancia convencional cuando las cápsulas se almacenan en un producto de lavado de ropa líquido. Se encapsularon muestras de las composiciones de fragancia 3, 7 y 11 mediante el procedimiento del ejemplo 1, junto con una fragancia convencional fuera de la invención. Las dispersiones de cápsulas resultantes se codificaron Taka21, Taka46, Taka47 y Taka160, respectivamente. Se añadieron 0,3 g de cada dispersión de cápsulas a 19,7 g de líquido de lavado de ropa Persil Kraft Gel Concentrado y después de mezclar se almacenaron a 40°C. Después de solo 5 horas se vio que la muestra que contenía Taka160 que se separaba mientras que el resto de las muestras permanecieron dispersas.

## REIVINDICACIONES

1. Una microcápsula con núcleo y envuelta que tiene un tamaño medio de partícula entre 1 y 500 micrómetros y contiene una composición de fragancia que comprende en peso de la composición antes de la encapsulación:
- 5
- A) del 50-100% de al menos un material de fragancia cíclico con una densidad entre 0,950 g/cm<sup>3</sup> y 1,500 g/cm<sup>3</sup> y un ClogP entre 1,50 y 5,00
- B) del 0-80% de al menos un material de fragancia con una densidad entre 0,630 g/cm<sup>3</sup> y 0,950 g/cm<sup>3</sup>;
- 10 C) del 0-50% de al menos un compuesto orgánico soluble en aceite que tiene una densidad entre 0,950 g/cm<sup>3</sup> y 1,500 g/cm<sup>3</sup>,
- en donde la suma de A), B) y C) equivale al 100%;  
en donde la densidad se mide a 20°C según el procedimiento de ASTM D4052.
- 15 2. La microcápsula con núcleo y envuelta según la reivindicación 1, en donde la composición de fragancia comprende entre el 50% y el 100% en peso de materiales de fragancia cíclicos A) con densidades entre 1,000 g/cm<sup>3</sup> y 1,500 g/cm<sup>3</sup> y un ClogP entre 1,50 y 5,00.
3. La microcápsula con núcleo y envuelta según la reivindicación 1 o 2, en donde la composición de fragancia comprende entre el 75% y el 100% en peso de materiales de fragancia cíclicos A) que tienen valores ClogP entre 2,00 y 4,50.
- 20 4. La microcápsula con núcleo y envuelta según cualquiera de las reivindicaciones 1 a 3, en donde la composición de fragancia comprende entre el 5% y el 60% en peso de al menos un material de fragancia B) con una densidad entre 0,630 g/cm<sup>3</sup> y 0,950 g/cm<sup>3</sup>.
- 25 5. La microcápsula con núcleo y envuelta según cualquiera de las reivindicaciones 1 a 4, en donde los materiales A) y B) juntos comprenden al menos 10 materiales de fragancia.
- 30 6. La microcápsula con núcleo y envuelta según cualquiera de las reivindicaciones 1 a 5, en donde la composición de fragancia comprende entre el 10 y el 50% en peso de al menos un compuesto orgánico soluble en aceite C) que tiene una densidad entre 0,950 g/cm<sup>3</sup> y 1,500 g/cm<sup>3</sup>.
- 35 7. La microcápsula con núcleo y envuelta según cualquiera de las reivindicaciones 1 a 6, en donde los materiales de fragancia cíclicos A) se seleccionan entre acetato de bencilo, benzofenona, salicilato de bencilo, salicilato de cis 3-hexenilo, cumarina, salicilato de ciclohexilo, acetato de 3a,4,5,6,7,7a-hexahidro-4,7-metano-1H-inden-5(o 6)-ilo, etilvainillina, eugenol, heliotropina, indol, isoeugenol, antranilato de metilo, benzoato de metilo, oxano (2-metil-4-propil-1,3-oxatiano), 2-feniletanol, vainillina, isobutirato de vainillina y cetona de sandía y mezclas de los mismos.
- 40 8. La microcápsula con núcleo y envuelta según cualquiera de las reivindicaciones 1 a 7, en donde los materiales de fragancia B) se seleccionan entre caproato de alilo, citronelol, gamma decalactona, dihidromircenol, acetato de cis 3-hexenilo, limoneno, linalool, acetato de prenilo y acetato de butil ciclohexilo y mezclas de los mismos.
- 45 9. La microcápsula con núcleo y envuelta según cualquiera de las reivindicaciones 1 a 8, en donde los compuestos orgánicos solubles en aceite C) se seleccionan entre citrato de acetil trietilo, maleato de dietilo, malonato de dietilo, adipato de dietilo, adipato de dimetilo, succinato de dietilo, tartrato de dietilo, tereftalato de dimetilo, triacetato de glicerilo, diacetato de propilenglicol, octa-acetato de sacarosa, diacetato hexaisobutirato de sacarosa, tripropionato de glicerilo, citrato de trietilo y mezclas de los mismos.
- 50 10. La microcápsula con núcleo y envuelta según cualquiera de las reivindicaciones 1 a 9, en donde la composición de fragancia comprende además:
- 55 D) del 0-50% en peso de al menos un solvente con una densidad por debajo de 0,950 g/cm<sup>3</sup>,
- en donde la suma de A), B), C) y D) equivale al 100%, y  
en donde la suma de C) y D) es el 50% en peso o menos.
- 60 11. La microcápsula con núcleo y envuelta según cualquiera de las reivindicaciones 1 a 10, en donde la composición de fragancia tiene una densidad mayor de 0,950 g/cm<sup>3</sup>.
- 65 12. Un producto doméstico, para el lavado de ropa, de cuidado personal o cosmético líquido que tiene una densidad mayor de 1,010 g/cm<sup>3</sup> y una viscosidad entre 10 mPas y 5000 mPas a 25°C o 40°C, que contiene microcápsulas con núcleo y envuelta como se han definido en cualquiera de las reivindicaciones 1 a 11.

- 5
13. El producto líquido según la reivindicación 12, que tiene una viscosidad entre 10 mPas y 2500 mPas medido bien a 25°C o 40°C.
  14. El producto líquido según la reivindicación 12 o 13, que comprende al menos el 2% en peso de tensioactivo.
  15. El producto líquido según la reivindicación 14, en el que el agua es el componente mayoritario en porcentaje en peso.