

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2022年2月17日(17.02.2022)



(10) 国際公開番号

WO 2022/034915 A1

(51) 国際特許分類:

A61Q 19/00 (2006.01) A61K 8/34 (2006.01)
A61Q 19/08 (2006.01) A61K 8/35 (2006.01)
A61K 8/02 (2006.01) A61K 8/81 (2006.01)
A61K 8/19 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2021/029753

(22) 国際出願日: 2021年8月12日(12.08.2021)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
63/065,818 2020年8月14日(14.08.2020) US

(71) 出願人: 花王株式会社(KAO CORPORATION)
[JP/JP]; 〒1038210 東京都中央区日本橋茅場
町一丁目14番10号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 八谷 輝(HACHIYA, Akira); 45214 オハ
イオ州シンシナティ スプリング グローブ ア
ベニュー 2 5 3 5 カオー ユーエスエー イン
コーポレイテッド アメリカ内 Ohio (US). スト
ルーウィング シャロン(STRUEWING, Sharon);
45214 オハイオ州シンシナティ スプリング グロ
ーブ アベニュー 2 5 3 5 カオー ユーエスエー
インコーポレイテッド アメリカ内 Ohio (US).
内山 雅普(UCHIYAMA, Masayuki); 〒1310044
東京都墨田区文花2-1-3 花王株式会社
研究所内 Tokyo (JP). 長澤 英広(NAGASAWA,
Hidehiro); 〒1310044 東京都墨田区文花2-1
-3 花王株式会社研究所内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人アルガ特許事務
所(THE PATENT CORPORATE BODY ARUGA
PATENT OFFICE); 〒1030013 東京都中央区
日本橋人形町1丁目3番8号 沢の鶴
人形町ビル Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保
護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ,

BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH,
CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ,
EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN,
HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, IT, JO, JP, KE, KG, KH,
KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY,
MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ,
NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT,
QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL,
ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG,
US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保
護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS,
MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM,
ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ,
TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ,
DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT,
LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS,
SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM,
GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第21条(3))

(54) Title: METHOD FOR PRODUCING FILM

(54) 発明の名称: 被膜の製造方法

(57) Abstract: To provide a means having a remarkable effect of reducing wrinkles on the skin. A method for producing a film on the skin, the method comprising: (step IB) a step for applying composition (B) on the skin; and (step II) a step for applying a film composed of a fiber-containing deposit on the skin, in this order or in the reverse order. Composition (B): a composition containing carbon dioxide.

(57) 要約: 皮膚のシワを改善する効果に優れた手段を提供すること。(工程 I B) 下記組成物 (B) を皮膚上に適用する工程と、(工程 I I) 繊維を含む堆積物からなる被膜を皮膚上に適用する工程とを、この順で又は逆の順で具備する、皮膚上への被膜の製造方法。組成物 (B): 炭酸ガスを含有する組成物。



WO 2022/034915 A1

明 細 書

発明の名称：被膜の製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、被膜の製造方法等に関する。

背景技術

[0002] 細胞間脂質は、角質細胞の間でラメラ構造をとっており、このラメラ構造によって、保湿バリア機能を発揮している。細胞間脂質と類似するラメラ構造を有する化粧品がこれまでに種々提案されており、ラメラ構造を形成させる技術として、例えば、セラミド類や脂肪酸アルギニン塩といった両親媒性分子を用いる技術が知られている（特許文献1、非特許文献1）。

また、良好な使用感を得ることや血行促進効果を向上させることを目的として、炭酸ガスを化粧品に配合することが提案されている（特許文献2）。

さらに、近年、静電スプレーなどで繊維の堆積物からなる被膜や、周縁端から内方に向かって漸次厚みが増加するグラデーション領域を有するナノファイバシートを皮膚上に適用する技術が提案されている（特許文献3、特許文献4）。

[0003] （特許文献1）特開平6-345633号公報

（特許文献2）特開2012-167061号公報

（特許文献3）特開2018-87186号公報

（特許文献4）特開2020-90097号公報

[0004] （非特許文献1）J. Oleo. Sci., vol. 54 (6), 325-333 (2005)

発明の概要

[0005] 本発明は、以下の<1>~<5>を提供するものである。

<1> （工程I B）下記組成物（B）を皮膚上に適用する工程と、（工程I I）繊維を含む堆積物からなる被膜を皮膚上に適用する工程とを、この順で又は逆の順で具備する、皮膚上への被膜の製造方法。

組成物（B）：炭酸ガスを含む組成物。

<2> 繊維を含む堆積物と、炭酸ガスを含む組成物とを含有する、皮膚上に適用するための被膜。

[0006] <3> 上記組成物（B）と、繊維を含む堆積物からなる被膜又は当該被膜を形成するための被膜形成用組成物とを備える、被膜形成用キット。

<4> （工程Ⅰ）下記組成物（A）及び組成物（B）から選ばれる1種又は2種の組成物を皮膚上に適用する工程と、（工程ⅠⅠ）繊維を含む堆積物からなる被膜を皮膚上に適用する工程とを、この順で又は逆の順で具備する、皮膚のシワを改善する方法。

組成物（A）：両親媒性分子を含有し、且つラメラ構造を有する組成物。

組成物（B）：炭酸ガスを含む組成物。

<5> 上記組成物（A）及び組成物（B）から選ばれる1種又は2種の組成物と、繊維を含む堆積物からなる被膜又は当該被膜を形成するための被膜形成用組成物との組み合わせの、皮膚シワ改善のための使用。

図面の簡単な説明

[0007] [図1]本発明で好適に用いられる静電スプレー装置の構成を示す概略図である。

。

[図2]静電スプレー装置を用いて静電スプレー法を行う様子を示す模式図である。

[図3]試験例1で検出された全シワの線の総計で示される面積の変化を示す図である。

[図4]太さ0.28mm以上のシワの線の総計で示される面積の変化を示す図である。

[図5]太さ0.28～0.34mmのシワの線の総計で示される面積の変化を示す図である。

[図6]小ジワ状態のスコアの変化を示す図である。

[図7]実施例3の方法でスキンケアをした場合のシワ改善効果を示す図である。

。

[図8]比較例3の方法でスキンケアをした場合のシワ改善効果を示す図である。

発明の詳細な説明

[0008] シワは、加齢や紫外線暴露などにより生じる皮膚老化のひとつであるが、大ジワ (coarse lines)、小ジワ (fine lines) を問わず、できるだけ目立たなくしたいという要求があり、目の下から目尻にかけてのシワは特に改善が望まれている。また、保湿するだけでは改善することが難しいシワを改善する手段が望まれている。

本発明は、皮膚のシワを改善する効果に優れた手段を提供することに関する。

[0009] 本発明者は、両親媒性分子を含有し、且つラメラ構造を有する組成物及び炭酸ガスを含有する組成物から選ばれる1種又は2種の組成物を皮膚上に適用する工程と、繊維を含む堆積物からなる被膜を皮膚上に適用する工程とを、この順で又は逆の順で具備する方法によって皮膚上に得られる被膜が、皮膚適用部のシワを改善する効果に優れることを見出し、本発明を完成した。

[0010] 本発明の被膜製造方法、被膜形成用キットによれば、皮膚のシワを改善する効果に優れた被膜を皮膚上に形成させることができる。

したがって、本発明の被膜は、皮膚のシワを改善する効果に優れる。また、本発明のシワ改善方法、シワ改善のための使用は、皮膚のシワを改善する効果に優れる。

[0011] [シワ改善方法、被膜製造方法]

本発明の皮膚のシワを改善する方法は、(工程I) 上記組成物(A)及び組成物(B)から選ばれる1種又は2種の組成物を皮膚上に適用する工程と、(工程II) 繊維を含む堆積物からなる被膜を皮膚上に適用する工程とを、この順で又は逆の順で具備することを特徴とする。

また、本発明の皮膚上への被膜製造方法は、(工程IB) 上記組成物(B)を皮膚上に適用する工程と、(工程II) 繊維を含む堆積物からなる被膜を皮膚上に適用する工程とを、この順で又は逆の順で具備することを特徴と

する。

[0012] 本明細書において、組成物（A）及び組成物（B）から選ばれる1種又は2種の組成物を皮膚上に適用する工程を工程Iという。このうち、組成物（A）を皮膚上に適用する工程を工程IAといい、組成物（B）を皮膚上に適用する工程を工程IBという。

まず、この工程IA、工程IBについて詳細に説明する。

[0013] ー工程IAー

（組成物（A））

組成物（A）は、両親媒性分子（以下、成分（a1）ともいう）を含有し、且つラメラ構造を有する組成物であるが、炭酸ガス含有組成物、繊維を含む堆積物からなる被膜及び当該被膜が形成される被膜形成用組成物（例えば、後述する組成物X）を除く概念である。本発明において、「ラメラ構造を有する」とは、25℃で塗布後の皮膜がラメラ構造を有することをいい、ラメラ構造は、小角X線回折測定により化粧料の皮膜の相状態を解析し、得られたX線回折プロファイルにおいて、ラメラ構造に特徴的な繰り返しの回折ピークを観察することで確認できる。

[0014] （成分（a1））

組成物（A）に含まれる両親媒性分子としては、例えば、セラミド類（以下、成分（a1-1）ともいう）、ヒドロキシ基を分子内に有する多価アルコール脂肪酸エステル類（以下、成分（a1-2）ともいう）、界面活性剤（以下、成分（a1-3）ともいう）、高級アルコール（以下、成分（a1-4）ともいう）の他、スフィンゴシン類（例えば、スフィンゴシン、スフィンゴシンの塩、擬似スフィンゴシン、擬似スフィンゴシンの塩）、リン脂質、糖脂質（例えば、グリセロ糖脂質、スフィンゴ糖脂質等）、バイオサーファクタント、ステロール類（例えば、コレステロール、コレステロール脂肪酸エステル、コレステロールサルフェート等）が挙げられる。これらのうち1種のみを単独で使用しても2種以上を組み合わせ使用してもよい。

これらの中でも、シワ改善効果の観点から、セラミド類、ヒドロキシ基を

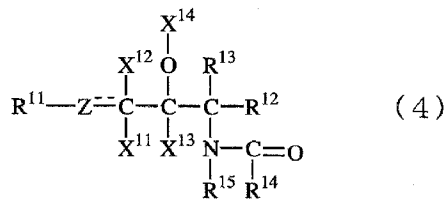
分子内に有する多価アルコール脂肪酸エステル類、界面活性剤、高級アルコールが好ましく、セラミド類、ヒドロキシ基を分子内に有する多価アルコール脂肪酸エステル類及び界面活性剤から選ばれる1種又は2種以上と高級アルコールとの組み合わせがより好ましく、成分(a 1-1)～(a 1-4)の組み合わせが特に好ましい。

[0015] 成分(a 1)の合計含有量は、シワ改善効果等の観点から、組成物(A)中、好ましくは0.1質量%以上、より好ましくは0.3質量%以上、更に好ましくは0.5質量%以上、特に好ましくは0.7質量%以上であり、また、シワ改善効果等の観点から、組成物(A)中、好ましくは15質量%以下、より好ましくは12質量%以下、更に好ましくは9質量%以下、特に好ましくは5質量%以下である。具体的な範囲としては、組成物(A)中、0.1質量%以上15質量%以下が好ましく、0.3質量%以上12質量%以下がより好ましく、0.5質量%以上9質量%以下が更に好ましく、0.7質量%以上5質量%以下が特に好ましい。

[0016] (成分(a 1-1))

セラミド類としては、一般式(4)で表わされるものが挙げられる。

[0017] [化1]



[0018] [式(4)中、

R¹¹は、ヒドロキシ基、カルボニル基若しくはアミノ基が置換していてもよい、炭素数4～30の直鎖、分岐鎖若しくは環状の飽和若しくは不飽和の炭化水素基、又は水素原子を示し；

Zは、メチレン基、メチン基又は酸素原子を示し；

X¹¹、X¹²及びX¹³は、各々独立して、水素原子、ヒドロキシ基又はアセトキシ基を示し、

X¹⁴は、水素原子、アセチル基又はグリセリル基を示すか、隣接する酸素原子と一緒にオキシ基を形成し（但し、Zがメチン基のとき、X¹¹とX¹²のいずれか一方が水素原子であり、他方は存在しない。X¹⁴がオキシ基を形成するとき、X¹³は存在しない。）；

R¹²及びR¹³は、各々独立して、水素原子、ヒドロキシル基、ヒドロキシアルキル基（例えばヒドロキシメチル基、ヒドロキシエチル基等）又はアセトキシメチル基を示し；

R¹⁴は、ヒドロキシル基、カルボニル基又はアミノ基が置換していてもよく、また、主鎖にエーテル結合、エステル結合又はアミド結合を有していてもよい炭素数5～60の直鎖、分岐鎖又は環状の飽和又は不飽和の炭化水素基を示し；

R¹⁵は、水素原子を示すか、ヒドロキシル基、ヒドロキシアルコキシ基、アルコキシ基及びアセトキシ基から選ばれる置換基を有していてもよい、総炭素数1～30の直鎖又は分岐鎖の飽和又は不飽和の炭化水素基を示し（なお、R¹¹が水素原子、Zが酸素原子のとき、R¹⁵は、ヒドロキシル基、ヒドロキシアルコキシ基、アルコキシ基及びアセトキシ基から選ばれる置換基を有していてもよい、総炭素数10～30の炭化水素基が好ましく、また、R¹¹が炭化水素基のとき、R¹⁵は、水素原子を示すか、ヒドロキシル基、ヒドロキシアルコキシ基、アルコキシ基及びアセトキシ基から選ばれる置換基を有していてもよい、総炭素数1～8の炭化水素基が好ましい）；

破線部は不飽和結合であってもよいことを示す。]

[0019] 式(4)中、R¹¹で示される「ヒドロキシル基、カルボニル基又はアミノ基が置換していてもよい、炭素数4～30の直鎖、分岐鎖又は環状の飽和又は不飽和の炭化水素基」としては、ヒドロキシル基が置換していてもよい炭素数7～22の直鎖、分岐鎖又は環状の飽和又は不飽和の炭化水素基が好ましい。

Zは、メチレン基、メチン基又は酸素原子を示す。

[0020] X¹¹、X¹²及びX¹³は、各々独立して、水素原子、ヒドロキシル基又はアセト

キシ基を示す。X¹¹、X¹²及びX¹³の組み合わせとしては、X¹¹、X¹²及びX¹³のうち0～1個がヒドロキシル基で、残余が水素原子である組み合わせが好ましい。Zがメチン基のとき、X¹¹とX¹²のいずれか一方のみが水素原子であり、他方は存在しない。

また、X¹⁴としては、水素原子、グリセリル基が好ましい。

R¹²及びR¹³は、各々独立して、水素原子、ヒドロキシル基、ヒドロキシアルキル基（例えばヒドロキシメチル基、ヒドロキシエチル基等）又はアセトキシメチル基を示し、好ましいR¹²は水素原子又はヒドロキシメチル基であり、好ましいR¹³は水素原子である。

[0021] R¹⁴は、ヒドロキシル基、カルボニル基又はアミノ基が置換していてもよく、また、主鎖にエーテル結合、エステル結合又はアミド結合を有していてもよい炭素数5～60の直鎖、分岐鎖又は環状の飽和又は不飽和の炭化水素基を示す。R¹⁴としては、ヒドロキシル基又はアミノ基が置換していてもよい炭素数5～35の直鎖、分岐鎖又は環状の飽和又は不飽和の炭化水素基、又は該炭化水素基の ω 位に、ヒドロキシル基が置換していてもよい炭素数8～22の直鎖、分岐鎖又は環状の飽和又は不飽和の脂肪酸がエステル結合又はアミド結合したものが挙げられる。結合する脂肪酸としては、イソステアリン酸、12-ヒドロキシステアリン酸又はリノール酸が好ましい。

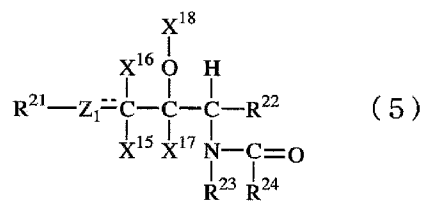
[0022] R¹⁵は、水素原子を示すか、ヒドロキシル基、ヒドロキシアルコキシ基、アルコキシ基及びアセトキシ基から選ばれる置換基を有していてもよい総炭素数1～30の直鎖又は分岐鎖の飽和又は不飽和の炭化水素基を示す。

R¹¹が水素原子、Zが酸素原子のとき、R¹⁵は、ヒドロキシル基、ヒドロキシアルコキシ基、アルコキシ基及びアセトキシ基から選ばれる置換基を有していてもよい総炭素数10～30の炭化水素基が好ましい。また、R¹¹が炭化水素基のとき、R¹⁵は、水素原子を示すか、ヒドロキシル基、ヒドロキシアルコキシ基、アルコキシ基及びアセトキシ基から選ばれる置換基を有していてもよい総炭素数1～8の炭化水素基が好ましく、水素原子を示すか、ヒドロキシル基、ヒドロキシアルコキシ基及びアルコキシ基から選ばれる1～3個

が置換していてもよい総炭素数 1～8 の炭化水素基がより好ましい。ここで、ヒドロキシアルコキシ基及びアルコキシ基としては炭素数 1～7 のものが好ましい。

[0023] セラミド類としては、次の一般式 (5) で表わされる天然由来のセラミド類若しくは同構造の合成物及びその誘導体（以下、天然型セラミドともいう。）、又は次の一般式 (6) で表わされる擬似型セラミド類（以下、擬似型セラミドともいう。）が好ましい。天然型セラミド、擬似型セラミドの中では、生産性等の観点から、擬似型セラミドが好ましい。

[0024] [化2]



[0025] [式 (5) 中、

R²¹は、ヒドロキシル基が置換していてもよい炭素数 7～19 の直鎖、分岐鎖又は環状の飽和又は不飽和の炭化水素基を示し；

Z₁は、メチレン基又はメチン基を示し；

X¹⁵、X¹⁶、及びX¹⁷は、各々独立して、水素原子、ヒドロキシル基又はアセトキシ基を示し；

X¹⁸は水素原子を示すか、隣接する酸素原子と一緒にオキソ基を形成し（但し、Z₁がメチン基のとき、X¹⁵とX¹⁶のいずれか一方が水素原子であり、他方は存在しない。X¹⁸がオキソ基を形成するとき、X¹⁷は存在しない。）

；

R²²は、ヒドロキシアルキル基（例えばヒドロキシメチル基、ヒドロキシエチル基等）又はアセトキシメチル基を示し；

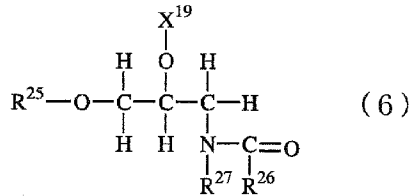
R²³は水素原子を示すか、炭素数 1～4 のアルキル基を示し；

R²⁴は、ヒドロキシル基が置換していてもよい炭素数 5～30 の直鎖、分岐鎖又は環状の飽和又は不飽和の炭化水素基（炭化水素基は、好ましくはアル

キル基)であるか、又は該炭化水素基(炭化水素基は、好ましくはアルキル基)の ω 末端に、ヒドロキシル基が置換していてもよい炭素数8~22の直鎖又は分岐鎖の飽和又は不飽和の脂肪酸がエステル結合したものを示し；

破線部は不飽和結合であってもよいことを示す。]

[0026] [化3]



[0027] [式(6)中、

R²⁵は、ヒドロキシル基が置換していてもよい炭素数10~22の直鎖、分岐鎖若しくは環状の飽和若しくは不飽和の炭化水素基、又は水素原子を示し；

X¹⁹は水素原子、アセチル基又はグリセリル基を示し；

R²⁶はヒドロキシル基又はアミノ基が置換していてもよい炭素数5~22の直鎖、分岐鎖又は環状の飽和又は不飽和の炭化水素基(炭化水素基は、好ましくはアルキル基)であるか、又は該炭化水素基(炭化水素基は、好ましくはアルキル基)の ω 末端に、ヒドロキシル基が置換していてもよい炭素数8~22の直鎖又は分岐鎖の飽和又は不飽和の脂肪酸がエステル結合したものを示し；

R²⁷は水素原子を示すか、ヒドロキシル基、ヒドロキシアルコキシ基、アルコキシ基又はアセトキシ基が置換していてもよい総炭素数1~30の炭化水素基(炭化水素基は、好ましくはアルキル基)を示す。]

[0028] ここで、一般式(5)で表わされる天然型セラミドについて説明する。

式(5)中、R²¹で示される炭化水素基の炭素数は7~19であるが、好ましくは11~15、より好ましくは13~15である。また、R²¹で示される炭化水素基としては、直鎖アルキル基が好ましい。

X¹⁸は、水素原子を示すか、隣接する酸素原子と一緒にオキソ基を形

成する。

また、R²⁴としては、ヒドロキシル基が置換していてもよい炭素数9～27の直鎖アルキル基、又は該アルキル基の ω 末端にリノール酸がエステル結合した基が好ましい。R²⁴としては、トリコシル基、1-ヒドロキシペンタデシル基、1-ヒドロキシトリコシル基、ヘプタデシル基、1-ヒドロキシウンデシル基、 ω 位にリノール酸がエステル結合したノナコシル基、ペンタコシル基がより好ましい。

[0029] 天然型セラミドの具体例としては、スフィンゴシン、ジヒドロスフィンゴシン、フィトスフィンゴシン又はスフィンガジエニンがアミド化されたセラミドType 1～7（例えば、J. Lipid Res., 24:759(1983)の図2、及びJ. Lipid. Res., 35:2069(1994)の図4記載のブタ及びヒトのセラミド類）が挙げられる。

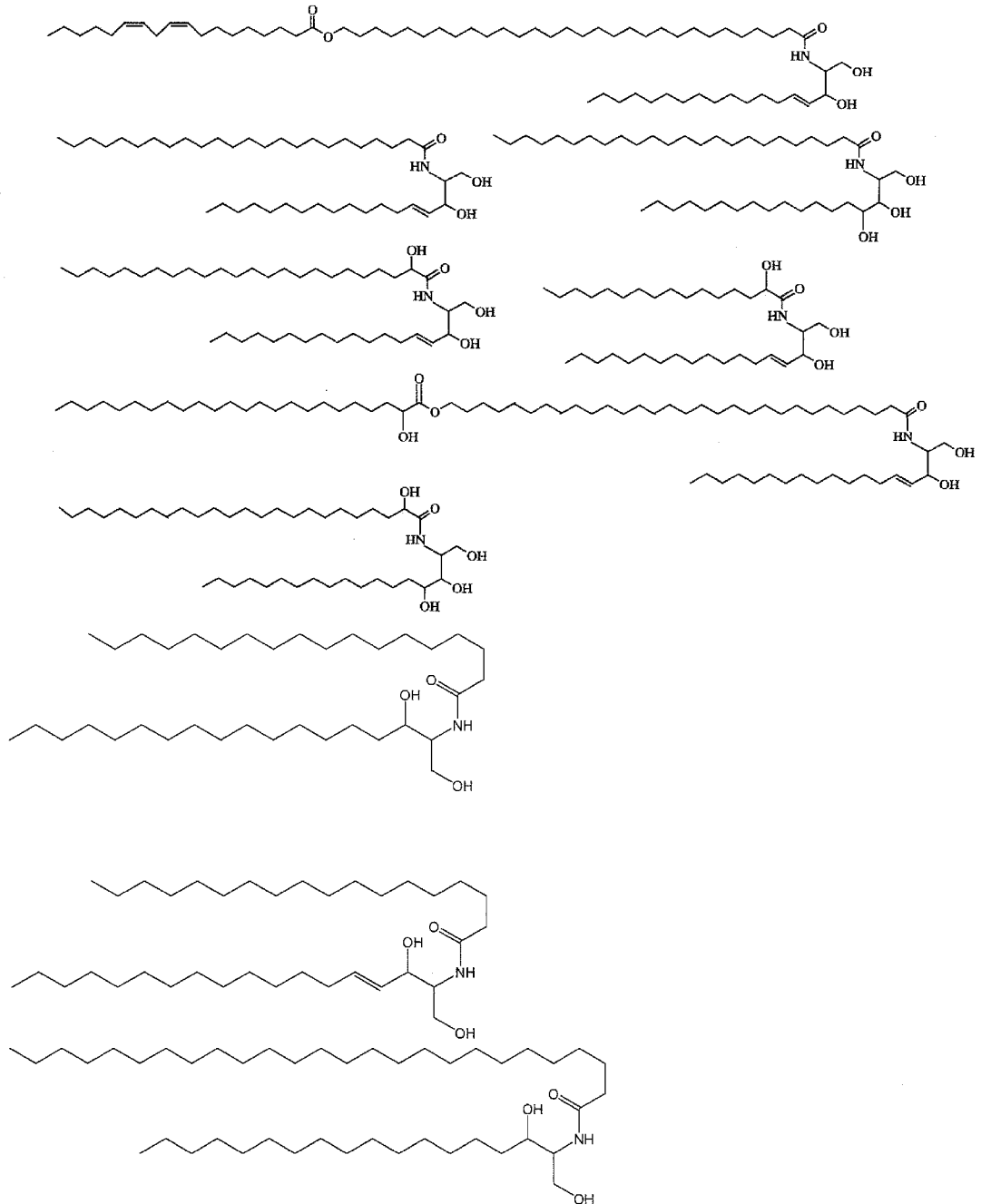
更にこれらのN-アルキル体（例えばN-メチル体）も、天然型セラミドに含まれる。

これらのセラミドは天然型（D（-）体）の光学活性体を用いても、非天然型（L（+）体）の光学活性体を用いても、更に天然型と非天然型の混合物を用いてもよい。上記化合物の相対立体配置は、天然型の立体配置のものでも、それ以外の非天然型の立体配置のものでもよく、また、これらの混合物によるものでもよい。

天然型セラミドの中では、CERAMIDE 1、CERAMIDE 2、CERAMIDE 3、CERAMIDE 5、CERAMIDE 6 IIの化合物（以上、INCI、8th Edition）及び次式で表わされるものが特に好ましい。

[0030]

[化4]

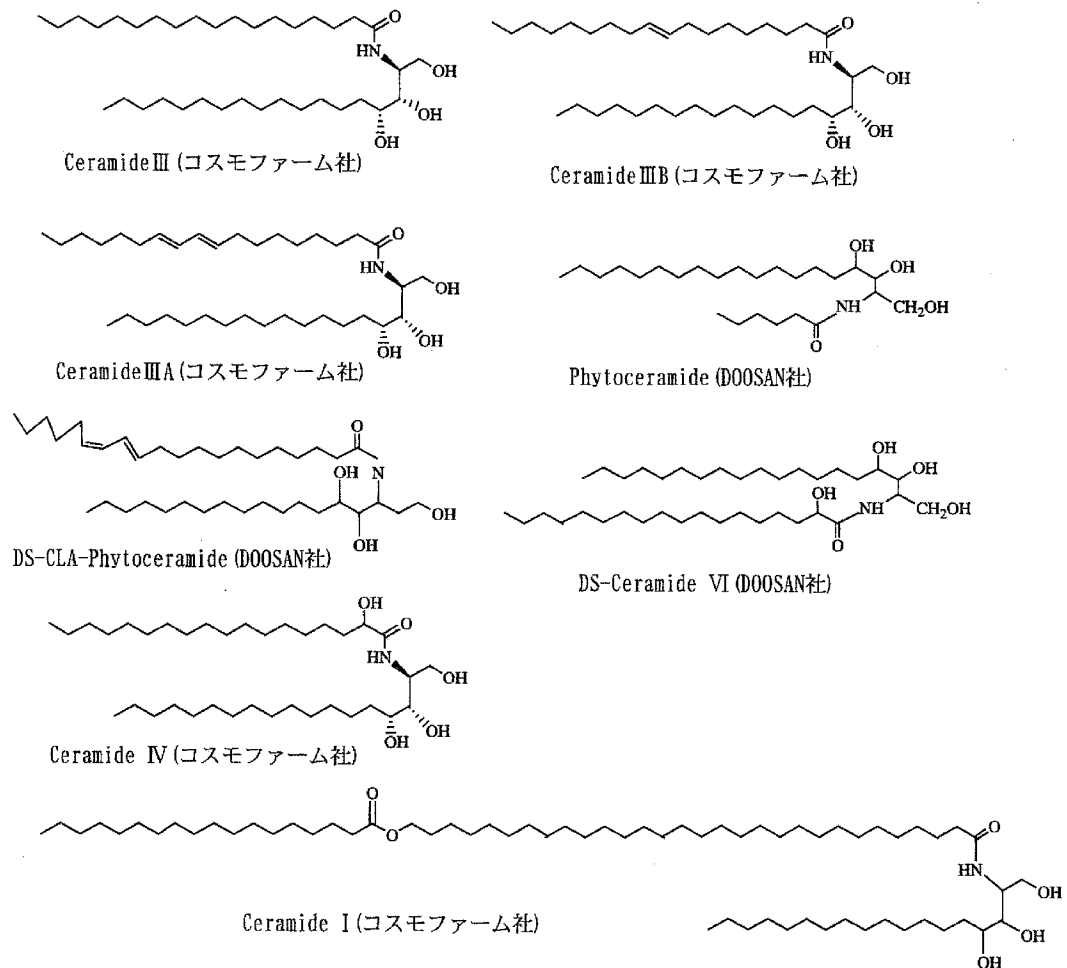


[0031] これらは、天然からの抽出物及び合成物のいずれでもよく、市販のものを用いることができる。

このような天然型セラミドの市販のものとしては、例えば、Ceramide I、Ceramide II、Ceramide III、Ceramide IIIA、Ceramide IIIB、Ceramide I

II C、Ceramide VI (以上、コスモファーム社製)、Ceramide TIC-001 (高砂香料社製)、CERAMIDE II (Quest International社製)、DS-Ceramide VI、DS-CLA-Phytoceramide、C6-Phytoceramide、DS-ceramide Y3S (DOOSAN社製)、CERAMIDE 2 (セダーマ社製) が挙げられる。

[0032] [化5]



[0033] 次に、一般式 (6) で表わされる擬似型セラミド類について説明する。

式 (6) 中、 R^{26} としては、ヘプチル基、1-ヒドロキシヘプチル基、ノニル基、トリデシル基、ペンタデシル基、 ω 位にリノール酸がエステル結合したウンデシル基、 ω 位にリノール酸がエステル結合したペンタデシル基、 ω

位に12-ヒドロキシステアリン酸がエステル結合したペンタデシル基、 ω 位にメチル分岐イソステアリン酸がアミド結合したウンデシル基が好ましい。

また、 R^{25} が水素原子の場合、 R^{27} としては、ヒドロキシル基、ヒドロキシアルコキシ基、アルコキシ基又はアセトキシ基が置換していてもよい総炭素数1~30の炭化水素基（炭化水素基は、好ましくはアルキル基）が好ましく、ヒドロキシル基、ヒドロキシアルコキシ基、アルコキシ基又はアセトキシ基が置換していてもよい総炭素数10~30の炭化水素基（炭化水素基は、好ましくはアルキル基）がより好ましく、総炭素数12~20のアルキル基が特に好ましい。

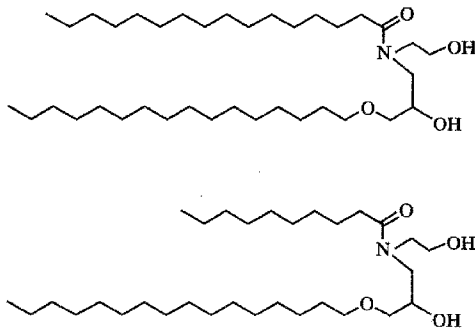
R^{25} が、ヒドロキシル基が置換していてもよい炭素数10~22の直鎖、分岐鎖又は環状の飽和又は不飽和の炭化水素基である場合には、 R^{27} としては、水素原子であるか、或いはヒドロキシル基、ヒドロキシアルコキシ基、アルコキシ基又はアセトキシ基が置換していてもよい総炭素数1~8のアルキル基が好ましい。

R^{27} におけるヒドロキシアルコキシ基又はアルコキシ基としては、炭素数1~7のものが好ましい。

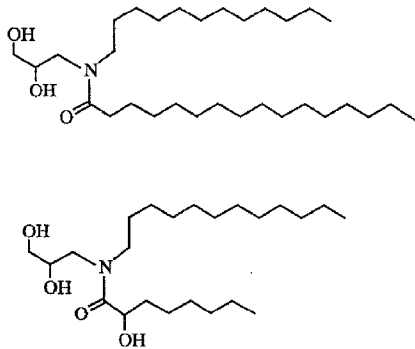
[0034] 擬似型セラミド類の中では、一般式(6)中の R^{25} がヘキサデシル基、 X^{19} が水素原子、 R^{26} がペンタデシル基、 R^{27} がヒドロキシエチル基のもの；一般式(6)中の R^{25} がヘキサデシル基、 X^{19} が水素原子、 R^{26} がノニル基、 R^{27} がヒドロキシエチル基のもの；一般式(6)中の R^{25} がヘキサデシル基、 X^{19} がグリセリル基、 R^{26} がトリデシル基、 R^{27} が3-メトキシプロピル基のもの；一般式(6)中の R^{25} が水素原子、 X^{19} が水素原子、 R^{26} がペンタデシル基、 R^{27} がドデシル基のもの；一般式(6)中の R^{25} が水素原子、 X^{19} が水素原子、 R^{26} が1-ヒドロキシヘプチル基、 R^{27} がドデシル基のものが好ましく、一般式(6)中の R^{25} がヘキサデシル基、 X^{19} が水素原子、 R^{26} がペンタデシル基、 R^{27} がヒドロキシエチル基のもの；一般式(6)中の R^{25} がヘキサデシル基、 X^{19} が水素原子、 R^{26} がノニル基、 R^{27} がヒドロキシエチル基のもの；一般

式(6)中の R^{25} がヘキサデシル基、 X^{19} がグリセリル基、 R^{26} がトリデシル基、 R^{27} が3-メトキシプロピル基のものがより好ましく、
 一般式(6)中の R^{25} がヘキサデシル基、 X^{19} が水素原子、 R^{26} がペンタデシル基、 R^{27} がヒドロキシエチル基のもの(N-(ヘキサデシロキシヒドロキシプロピル)-N-ヒドロキシエチルヘキサデカナミド)が特に好ましい。

[0035] [化6]



[0036] [化7]



[0037] 成分(a1-1)のセラミド類は、1種のみを単独で使用しても2種以上を組み合わせて使用してもよい。

[0038] 成分(a1-1)の含有量は、シワ改善効果等の観点から、組成物(A)中、好ましくは0.001質量%以上、より好ましくは0.01質量%以上、更に好ましくは0.1質量%以上、特に好ましくは0.2質量%以上であり、また、シワ改善効果等の観点から、組成物(A)中、好ましくは10質量%以下、より好ましくは7質量%以下、更に好ましくは5質量%以下、特に好ましくは3質量%以下である。具体的な範囲としては、組成物(A)中

、0.001質量%以上10質量%以下が好ましく、0.01質量%以上7質量%以下がより好ましく、0.1質量%以上5質量%以下が更に好ましく、0.2質量%以上3質量%以下が特に好ましい。

[0039] 成分(a1-1)と成分(a1-4)とを組み合わせる場合において、成分(a1-4)に対する成分(a1-1)の含有質量比〔(a1-1)/(a1-4)〕は、シワ改善効果等の観点から、好ましくは0.2以上、より好ましくは0.23以上、更に好ましくは0.26以上、特に好ましくは0.3以上であり、また、シワ改善効果等の観点から、好ましくは5以下、より好ましくは4以下、更に好ましくは3.5以下、特に好ましくは3以下である。具体的な範囲としては、0.2以上5以下が好ましく、0.23以上4以下がより好ましく、0.26以上3.5以下が更に好ましく、0.3以上3以下が特に好ましい。

[0040] (成分(a1-2))

ヒドロキシ基を分子内に有する多価アルコール脂肪酸エステル類としては、例えば、グリセリンモノ脂肪酸エステル、グリセリンジ脂肪酸エステル、ソルビタンモノ脂肪酸エステル、ソルビタンジ脂肪酸エステル、ジグリセリンジ脂肪酸エステル等が挙げられる。これらの中では、グリセリンモノ脂肪酸エステル、ソルビタンジ脂肪酸エステル、ジグリセリンジ脂肪酸エステルが好ましく、グリセリンモノ脂肪酸エステル、ジグリセリンジ脂肪酸エステルがより好ましい。

[0041] ヒドロキシ基を分子内に有する多価アルコール脂肪酸エステル類の脂肪酸残基としては、炭素数10~24の脂肪酸の残基が好ましく、炭素数16~24の脂肪酸の残基がより好ましく、炭素数18~24の脂肪酸の残基が特に好ましい。また、脂肪酸残基は、飽和脂肪酸残基でも不飽和脂肪酸残基でもよく、また、直鎖脂肪酸残基でも分岐脂肪酸残基でもよい。ヒドロキシ基を分子内に有する多価アルコール脂肪酸エステル類としては、飽和脂肪酸の残基を有するものが好ましい。

[0042] グリセリンモノ脂肪酸エステルとしては、例えば、グリセリンモノラウリ

ン酸エステル、グリセリンモノミリスチン酸エステル、グリセリンモノパルミチン酸エステル、グリセリンモノステアリン酸エステル、グリセリンモノベヘン酸エステル、グリセリンモノオレイン酸エステル、グリセリンモノイソステアリン酸エステル、グリセリンモノリノール酸エステル等が挙げられる。これらの中でも、グリセリンモノステアリン酸エステル、グリセリンモノベヘン酸エステルが好ましい。

ジグリセリンジ脂肪酸エステルとしては、例えば、ジイソステアリン酸ポリグリセリル-2、ジラウリン酸ポリグリセリル-2、ジステアリン酸ポリグリセリル-2、ジオレイン酸ポリグリセリル-2等が挙げられる。

[0043] 成分(a1-2)は、1種のみを単独で使用しても2種以上を組み合わせで使用してもよい。

[0044] 成分(a1-2)の含有量は、シワ改善効果等の観点から、組成物(A)中、好ましくは0.001質量%以上、より好ましくは0.01質量%以上、更に好ましくは0.05質量%以上、特に好ましくは0.1質量%以上であり、また、シワ改善効果等の観点から、組成物(A)中、好ましくは10質量%以下、より好ましくは5質量%以下、更に好ましくは3質量%以下、特に好ましくは2質量%以下である。具体的な範囲としては、組成物(A)中、0.001質量%以上10質量%以下が好ましく、0.01質量%以上5質量%以下がより好ましく、0.05質量%以上3質量%以下が更に好ましく、0.1質量%以上2質量%以下が特に好ましい。

[0045] 成分(a1-2)と成分(a1-4)とを組み合わせる場合において、成分(a1-4)に対する成分(a1-2)の含有質量比〔(a1-2)/(a1-4)〕は、シワ改善効果等の観点から、好ましくは0.1以上、より好ましくは0.13以上、更に好ましくは0.16以上、特に好ましくは0.2以上であり、また、シワ改善効果等の観点から、好ましくは5以下、より好ましくは4以下、更に好ましくは3.5以下、特に好ましくは3以下である。具体的な範囲としては、0.1以上5以下が好ましく、0.13以上4以下がより好ましく、0.16以上3.5以下が更に好ましく、0

、 2 以上 3 以下が特に好ましい。

[0046] (成分 (a 1 - 3))

成分 (a 1 - 3) の界面活性剤としては、イオン性界面活性剤、成分 (a 1 - 2) 以外の非イオン界面活性剤が挙げられる。この中では、イオン性界面活性剤が好ましく、アニオン界面活性剤、カチオン界面活性剤 (塩化ステアリルトリメチルアンモニウム、塩化ラウリルトリメチルアンモニウム等の塩化アルキルトリメチルアンモニウム ; 塩化ジアルキルジメチルアンモニウム、塩化トリアルキルメチルアンモニウム、アルキルアミン塩など)、両性界面活性剤 (アルキルジメチルアミノオキシド、アルキルカルボキシベタイン、アルキルスルホベタイン、アミドアミノ酸塩、アルキルアミドプロピルベタインなど) がより好ましく、アニオン界面活性剤が特に好ましい。

[0047] アニオン界面活性剤としては、例えば、ラウリン酸ナトリウム、パルミチン酸カリウム、ステアリン酸アルギニン等の脂肪酸塩 (好ましくは炭素数 12 ~ 24 の脂肪酸塩) ; ラウリル硫酸ナトリウム、ラウリル硫酸カリウム、セチル硫酸ナトリウム等のアルキル硫酸エステル塩 (好ましくは炭素数 12 ~ 24 のアルキル硫酸エステル塩) ; ポリオキシエチレンラウリルエーテル硫酸トリエタノールアミン等のポリオキシエチレンアルキルエーテル硫酸エステル塩 (好ましくはポリオキシエチレン炭素数 12 ~ 24 アルキルエーテル硫酸エステル塩) ; ラウロイルサルコシンナトリウム等の N-アシルサルコシン塩 (好ましくは炭素数 12 ~ 24 のアシル基を有する N-アシルサルコシン塩) ; モノステアリルリン酸ナトリウム等のアルキルリン酸塩 (好ましくは炭素数 12 ~ 24 のアルキルリン酸塩) ; ポリオキシエチレンオレイルエーテルリン酸ナトリウム、ポリオキシエチレンステアリルエーテルリン酸ナトリウム等のポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸塩 (好ましくはポリオキシエチレン炭素数 12 ~ 24 アルキルエーテルリン酸塩) ; ジ (2-エチルヘキシル) スルホコハク酸ナトリウム等のジアルキルスルホコハク酸塩 (好ましくはジ (炭素数 6 ~ 12 アルキル) スルホコハク酸塩) ; N-ステアロイル-N-メチルタウリンナトリウム、N-ミリストイル-N-

メチルタウリンナトリウム等のN-アルキロイルメチルタウリン塩（好ましくは炭素数12～24のアルキロイル基を有するN-アルキロイルメチルタウリン塩）；N-ラウロイル-L-グルタミン酸モノナトリウム、N-ミリストイル-L-グルタミン酸ナトリウム、N-ステアロイル-L-グルタミン酸ナトリウム、N-ステアロイル-L-グルタミン酸ジナトリウム、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-グルタミン酸アルギニン等のN-アシルグルタミン酸塩（好ましくは炭素数12～24のアシル基を有するN-アシルグルタミン酸塩）などが挙げられる。

[0048] これらのアニオン界面活性剤の中では、炭素数12～24のアシル基を有するN-アシルグルタミン酸塩、炭素数12～24の脂肪酸塩、ポリオキシエチレン炭素数12～24アルキルエーテルリン酸塩が好ましく、炭素数12～24のアシル基を有するN-アシルグルタミン酸塩がより好ましく、炭素数12～20のアシル基を有するN-アシルグルタミン酸塩が更に好ましく、N-ステアロイル-L-グルタミン酸塩が特に好ましい。

[0049] 成分(a1-2)以外の非イオン界面活性剤としては、ポリオキシエチレン基を有するHLB10以上の非イオン界面活性剤が好ましく、例えば、ポリオキシエチレン硬化ヒマシ油、ポリオキシエチレンソルビタン脂肪酸エステル、アルキルポリオキシエチレングリセリル、ポリオキシエチレンアルキルエーテル等が挙げられる。

[0050] 成分(a1-3)は、1種のみを単独で使用しても2種以上を組み合わせで使用してもよい。

[0051] 成分(a1-3)の含有量は、シワ改善効果等の観点から、組成物(A)中、好ましくは0.01質量%以上、より好ましくは0.05質量%以上、更に好ましくは0.075質量%以上、特に好ましくは0.1質量%以上であり、また、シワ改善効果等の観点から、組成物(A)中、好ましくは3質量%以下、より好ましくは2.5質量%以下、更に好ましくは2質量%以下、特に好ましくは1.5質量%以下である。具体的な範囲としては、組成物(A)中、0.01質量%以上3質量%以下が好ましく、0.05質量%以

上2. 5質量%以下がより好ましく、0.075質量%以上2質量%以下が更に好ましく、0.1質量%以上1.5質量%以下が特に好ましい。

なお、本明細書において、成分(a1-3)のうちアニオン界面活性剤の組成物(A)中の含有量については、酸換算の質量を示す。以下、成分(a1-3)と他の成分との含有質量比などにおいても同様である。

[0052] 成分(a1-3)と成分(a1-4)とを組み合わせる場合において、成分(a1-4)に対する成分(a1-3)の含有質量比〔(a1-3)/(a1-4)〕は、シワ改善効果等の観点から、好ましくは0.1以上、より好ましくは0.13以上、更に好ましくは0.16以上、特に好ましくは0.2以上であり、また、シワ改善効果等の観点から、好ましくは5以下、より好ましくは4以下、更に好ましくは3.5以下、特に好ましくは3以下である。具体的な範囲としては、0.1以上5以下が好ましく、0.13以上4以下がより好ましく、0.16以上3.5以下が更に好ましく、0.2以上3以下が特に好ましい。

[0053] (成分(a1-4))

成分(a1-4)の高級アルコールとしては、炭素数10~24の1価アルコールが好ましく、炭素数12~22の1価アルコールがより好ましく、炭素数14~22の1価アルコールが特に好ましい。また、高級アルコールは、直鎖状でも分岐鎖状でもよく、また、飽和アルコールでも不飽和アルコールでもよいが、直鎖状の飽和又は不飽和アルコールが好ましい。

高級アルコールとしては、例えば、ラウリルアルコール、ミリスチルアルコール、セタノール、ステアリルアルコール、ベヘニルアルコール、オレイルアルコール等が挙げられる。これらの中では、セタノール、ステアリルアルコール、ベヘニルアルコールが好ましく、セタノールがより好ましい。

なお、成分(a1-4)の高級アルコールは、1種のみを単独で使用しても2種以上を組み合わせ使用してもよい。

[0054] 成分(a1-4)の含有量は、シワ改善効果等の観点から、組成物(A)中、好ましくは0.001質量%以上、より好ましくは0.01質量%以上

、更に好ましくは0.1質量%以上、特に好ましくは0.5質量%以上であり、また、シワ改善効果等の観点から、組成物(A)中、好ましくは10質量%以下、より好ましくは5質量%以下、更に好ましくは3質量%以下、特に好ましくは2.5質量%以下である。具体的な範囲としては、組成物(A)中、0.001質量%以上10質量%以下が好ましく、0.01質量%以上5質量%以下がより好ましく、0.1質量%以上3質量%以下が更に好ましく、0.5質量%以上2.5質量%以下が特に好ましい。

[0055] 組成物(A)としては、シワ改善効果、保湿効果等の観点から、上記両親媒性分子に加えて、(a2)成分(a1)以外の油性成分、(a3)多価アルコール及び(a4)水から選ばれる1種又は2種以上を含有するものが好ましく、成分(a1)、(a2)及び(a4)を含有するものがより好ましく、成分(a1)～(a4)を含有するものが特に好ましい。

[0056] (成分(a2))

成分(a2)の油性成分としては、例えば、炭化水素油、エーテル油、エステル油、高級脂肪酸、シリコーン油、フッ素油等が挙げられる。具体的には、 α -オレフィンオリゴマー、流動パラフィン、スクワラン、ワセリン等の炭化水素油；セチルジメチルブチルエーテル、エチレングリコールジオクチルエーテル、グリセロールモノオレイルエーテル等のエーテル油；ミリスチン酸オクチルドデシル、パルミチン酸イソプロピル、ステアリン酸ブチル、アジピン酸ジ-2-エチルヘキシル、ジカプリン酸ネオペンチルグリコール、トリオクタノイン等のエステル油；ステアリン酸、ベヘン酸、イソミリスチン酸等の高級脂肪酸；メチルポリシロキサン、環状ジメチルポリシロキサン、メチルフェニルポリシロキサン、アミノ変性シリコーン、カルボキシ変性シリコーン、アルコール変性シリコーン、アルキル変性シリコーン、ポリエーテル変性シリコーン、フッ素変性シリコーン等のシリコーン油；パーフルオロアルキルエチルリン酸、パーフルオロアルキルポリオキシエチレンリン酸、パーフルオロポリエーテル、ポリテトラフルオロエチレン等のフッ素系油等が挙げられる。

また、成分（a 2）の油性成分としては、25℃で液状又は半固形状のものが好ましい。

成分（a 2）は、1種のみを単独で使用しても2種以上を組み合わせで使用してもよい。

また、成分（a 2）は、上記エステル油や炭化水素油を含む、オリーブ油、ホホバ油等の植物油や深海鮫オイル、ラノリン等の動物油を用いても良い。

[0057] 成分（a 2）の含有量は、シワ改善効果等の観点から、組成物（A）中、好ましくは0.001質量%以上、より好ましくは0.01質量%以上、更に好ましくは0.15質量%以上、特に好ましくは0.2質量%以上であり、また、シワ改善効果等の観点から、組成物（A）中、好ましくは20質量%以下、より好ましくは17質量%以下、更に好ましくは15質量%以下、特に好ましくは13質量%以下である。具体的な範囲としては、組成物（A）中、0.001質量%以上20質量%以下が好ましく、0.01質量%以上17質量%以下がより好ましく、0.15質量%以上15質量%以下が更に好ましく、0.2質量%以上13質量%以下が特に好ましい。

なお、成分（a 2）としてシリコン油を用いる場合、被膜の皮膚への密着性の観点から、組成物（A）中のシリコン油の含有量は、好ましくは10質量%以下であり、より好ましくは7質量%以下である。

また、成分（a 2）として30℃において粘度が10 mPa・s未満である揮発性の油性成分を用いる場合、被膜の皮膚への密着性の観点から、組成物（A）中の含有量は、好ましくは10質量%以下であり、より好ましくは5質量%以下であり、更に好ましくは1質量%以下であり、より更に好ましくは0.5質量%以下であり、含有しなくてもよい。

[0058] また、成分（a 1）に対する成分（a 2）の含有質量比〔（a 2）／（a 1）〕は、シワ改善効果等の観点から、好ましくは0.1以上、より好ましくは0.13以上、更に好ましくは0.16以上、特に好ましくは0.2以上であり、また、シワ改善効果等の観点から、好ましくは5以下、より好ましくは4以下、更に好ましくは3.5以下、特に好ましくは3以下である。

具体的な範囲としては、0.1以上5以下が好ましく、0.13以上4以下がより好ましく、0.16以上3.5以下が更に好ましく、0.2以上3以下が特に好ましい。

[0059] (成分(a3))

成分(a3)の多価アルコールとしては、例えば、グリコール類、グリセリン類等が挙げられる。グリコール類としては、例えば、エチレングリコール、プロピレングリコール、1,3-プロパンジオール、1,3-ブチレングリコール等のアルキレングリコール；ジエチレングリコール、ジプロピレングリコール等のジアルキレングリコール；ポリエチレングリコール（例えば、ポリエチレングリコール1000、ポリエチレングリコール1540、ポリエチレングリコール2000等）、ポリプロピレングリコール等のポリアルキレングリコールが挙げられる。グリセリン類としては、例えば、グリセリン、ジグリセリン、ポリグリセリン等が挙げられる。ポリアルキレングリコールの数平均分子量としては、300以上15000以下が好ましく、400以上10000以下がより好ましく、500以上5000以下が更に好ましく、600以上2500以下が特に好ましい。

これらの多価アルコールの中でも、アルキレングリコール、ポリエチレングリコール、グリセリンが好ましく、1,3-ブチレングリコール、ポリエチレングリコール、グリセリンが特に好ましい。

なお、多価アルコールは、1種のみを単独で使用しても2種以上を組み合わせ使用してもよい。

[0060] 成分(a3)の含有量は、シワ改善効果等の観点から、組成物(A)中、好ましくは0.001質量%以上、より好ましくは0.01質量%以上、更に好ましくは0.2質量%以上、特に好ましくは2質量%以上であり、また、シワ改善効果等の観点から、組成物(A)中、好ましくは30質量%以下、より好ましくは28質量%以下、更に好ましくは26質量%以下、特に好ましくは25質量%以下である。具体的な範囲としては、組成物(A)中、0.001質量%以上30質量%以下が好ましく、0.01質量%以上28

質量%以下がより好ましく、0.2質量%以上2.6質量%以下が更に好ましく、2質量%以上2.5質量%以下が特に好ましい。

[0061] また、成分(a1)に対する成分(a3)の含有質量比〔(a3)/(a1)〕は、シワ改善効果等の観点から、好ましくは0.2以上、より好ましくは0.23以上、更に好ましくは0.26以上、特に好ましくは0.3以上であり、また、シワ改善効果等の観点から、好ましくは1.0以下、より好ましくは8以下、更に好ましくは6以下、特に好ましくは5.5以下である。具体的な範囲としては、0.2以上1.0以下が好ましく、0.23以上8以下がより好ましく、0.26以上6以下が更に好ましく、0.3以上5.5以下が特に好ましい。

[0062] (成分(a4))

水の含有量は、シワ改善効果等の観点から、組成物(A)中、好ましくは4.0質量%以上、より好ましくは4.5質量%以上、更に好ましくは5.0質量%以上、特に好ましくは5.5質量%以上であり、また、シワ改善効果等の観点から、組成物(A)中、好ましくは9.0質量%以下、より好ましくは8.5質量%以下、更に好ましくは8.0質量%以下、特に好ましくは7.5質量%以下である。具体的な範囲としては、組成物(A)中、4.0質量%以上9.0質量%以下が好ましく、4.5質量%以上8.5質量%以下がより好ましく、5.0質量%以上8.0質量%以下が更に好ましく、5.5質量%以上7.5質量%以下が特に好ましい。

[0063] 組成物(A)は、化粧品に通常用いられる上記以外の有効成分や添加剤等を含んでいてもよい。このような有効成分や添加剤としては、例えば、水酸化カリウム、水酸化ナトリウム、トリエタノールアミン、炭酸ナトリウム、アルギニン等の塩基；アスコルビン酸、ニコチン酸アミド、ニコチン酸等の水溶性ビタミン類；オウバクエキス、カンゾウエキス、アロエエキス、スギナエキス、茶エキス、キューカンバーエキス、チョウジエキス、ニンジンエキス、ハマメリス抽出液、プラセンタエキス、海藻エキス、マロニエエキス、カミツレエキス、ユズエキス、チョウジエキス、アスナロエキス、アルテ

アエキス、ローヤルゼリーエキス、ユーカリエキス、褐藻エキス、アスナロ抽出液等の動・植物抽出液；防腐剤；pH調整剤；カルボキシビニルポリマー、アルギン酸ナトリウム、カラギーナン、カルボキシメチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、グアーガム、キサントガム、カルボキシメチルキトサン、ヒアルロン酸ナトリウム、オキサゾリン変性シリコーン、N，N-ジメチルアミノエチルメタクリル酸ジエチル硫酸塩・N，N-ジメチルアクリルアミド・ジメタクリル酸ポリエチレングリコール共重合体等の粘度調整剤；粉体；香料等を含んでいてもよい。なお、これらのうち1種のみを単独で使用しても2種以上を組み合わせて使用してもよい。

[0064] 組成物（A）としては、乳化組成物が好ましい。乳化のタイプは特に限定されず、水中油型でも油中水型でもよいが、水中油型乳化組成物が好ましい。組成物（A）の形状は、スキンケア化粧料の通常形状であれば特に限定されるものではなく、例えば、液状、乳液状、ジェル、クリーム等が挙げられる。

組成物（A）は、通常の方法により製造することができる。

[0065] ー工程I Bー

（組成物（B））

組成物（B）は、炭酸ガス（以下、成分（b1）ともいう）を含有するものであるが、繊維を含む堆積物からなる被膜、及び当該被膜が形成される被膜形成用組成物（例えば、後述する組成物X）を除く概念である。

組成物（B）としては、シワ改善効果、血行促進効果等の観点から、炭酸ガスに加えて、（b2）油剤、（b3）多価アルコール、（b4）界面活性剤、（b5）水溶性増粘剤及び（b6）水から選ばれる1種又は2種以上を含有するものが好ましく、成分（b1）、（b2）、（b4）、（b5）及び（b6）を含有するものがより好ましく、成分（b1）～（b6）を含有するものが特に好ましい。

[0066] （成分（b2））

油剤は、25℃で液状の油剤、25℃で液状以外の油剤に大別される。2

5℃で液状以外の油剤としては、25℃で固体状のワックスや固体脂が挙げられる。

25℃で液状の油剤としては、炭化水素油、エステル油、エーテル油及びシリコン油から選ばれる1種又は2種以上が好ましい。炭化水素油としては、流動パラフィン、スクワラン、スクワレン等が挙げられる。エステル油としては、パルミチン酸イソプロピル、ステアリン酸イソプロピル、ステアリン酸ブチル、ミリスチン酸イソプロピル、2-エチルヘキサン酸セチル、パルミチン酸2-エチルヘキシル、ミリスチン酸2-オクチルドデシル、オレイン酸2-オクチルドデシル、トリスステアリン酸グリセリル、イソノナン酸イソトリデシル、安息香酸アルキル(C12-15)等のモノエステル油；アジピン酸ジイソプロピル、アジピン酸ジイソブチル、ジカプリン酸ネオペンチルグリコール、トリ(カプリル/カプリン酸)グリセリル、トリカプリル酸グリセリン、ジエチルヘキサン酸ネオペンチルグリコール、ジ(カプリル酸/カプリン酸)プロパンジオール、リンゴ酸ジイソステアリル、N-ラウロイル-L-グルタミン酸ジ(コレステリル・オクチルドデシル)等のジエステル油又はトリエステル油等が挙げられる。エーテル油としては、ジカプリルエーテル等が挙げられ、シリコン油としては、メチルポリシロキサン、環状ジメチルポリシロキサン、メチルフェニルポリシロキサン、アミノ変性シリコン、カルボキシ変性シリコン、アルコール変性シリコン、アルキル変性シリコン、ポリエーテル変性シリコン、フッ素変性シリコン等が挙げられる。

油剤としては、上記の油を含むツバキ油、ホホバ油、オリーブ油等の植物油、ラノリン等の動物油を用いることができ、同様にユーカリ油、ハッカ油等の精油等も用いることができる。

これらの中でも、シワ改善効果、使用感、組成物中の炭酸保持、炭酸ガスの揮散抑制等の観点から、エステル油、シリコン油が好ましく、モノエステル油、ジエステル油、シリコン油がより好ましく、モノエステル油、シリコン油が更に好ましく、イソノナン酸イソトリデシル、安息香酸アルキ

ル (C12-15)、メチルポリシロキサンが特に好ましい。

[0067] また、上記メチルポリシロキサンの25℃における粘度は、好ましくは6 mPa・s以上5000 mPa・s以下、より好ましくは10 mPa・s以上1000 mPa・s以下、特に好ましくは10 mPa・s以上500 mPa・s以下である。なお、メチルポリシロキサンを2種以上用いる場合は、混合した際の粘度が上記範囲内であればよい。

上記メチルポリシロキサンの粘度は、BM粘度計（東機産業社製）を用いて25℃で測定した値である。

[0068] 成分(b2)は、1種のみを単独で使用しても2種以上を組み合わせで使用してもよい。

[0069] 成分(b2)の含有量は、シワ改善効果等の観点から、組成物(B)中、好ましくは0.1質量%以上、より好ましくは0.5質量%以上、更に好ましくは1質量%以上であり、また、シワ改善効果等の観点から、組成物(B)中、好ましくは20質量%以下、より好ましくは15質量%以下、更に好ましくは7質量%以下である。具体的な範囲としては、組成物(B)中、0.1質量%以上20質量%以下が好ましく、0.5質量%以上15質量%以下がより好ましく、1質量%以上7質量%以下が更に好ましい。

なお、組成物(B)がエアゾール組成物である場合、成分(b2)の含有量は、原液を100質量%としたときの割合を意味する。以下、他の成分についても同様である。

[0070] (成分(b3))

成分(b3)の多価アルコールとしては、例えば、グリコール類、グリセリン類等が挙げられる。グリコール類としては、例えば、エチレングリコール、プロピレングリコール、1,3-プロパンジオール、1,3-ブチレングリコール等のアルキレングリコール；ジエチレングリコール、ジプロピレングリコール等のジアルキレングリコール；ポリエチレングリコール（例えば、ポリエチレングリコール1000、ポリエチレングリコール1540、ポリエチレングリコール2000等）、ポリプロピレングリコール等のポリ

アルキレングリコールが挙げられる。グリセリン類としては、例えば、グリセリン、ジグリセリン、ポリグリセリン等が挙げられる。ポリアルキレングリコールの数平均分子量としては、300以上15000以下が好ましく、400以上10000以下がより好ましく、500以上5000以下が更に好ましく、600以上2500以下が特に好ましい。

これらの多価アルコールの中でも、アルキレングリコール、ジアルキレングリコール、ポリエチレングリコールが好ましく、1,3-プロパンジオール、ジプロピレングリコール、ポリエチレングリコールが特に好ましい。

なお、多価アルコールは、1種のみを単独で使用しても2種以上を組み合わせ使用してもよい。

[0071] 成分(b3)の含有量は、シワ改善効果等の観点から、組成物(B)中、好ましくは1質量%以上、より好ましくは2質量%以上、更に好ましくは3質量%以上であり、また、シワ改善効果等の観点から、組成物(B)中、好ましくは20質量%以下、より好ましくは15質量%以下、更に好ましくは10質量%以下である。具体的な範囲としては、組成物(B)中、1質量%以上20質量%以下が好ましく、2質量%以上15質量%以下がより好ましく、3質量%以上10質量%以下が更に好ましい。

[0072] また、成分(b2)に対する成分(b3)の含有質量比〔(b3)/(b2)〕は、シワ改善効果、皮膚と被膜の密着性を向上させる等の観点から、好ましくは0.05以上、より好ましくは0.1以上、更に好ましくは0.4以上であり、また、シワ改善効果等の観点から、好ましくは200以下、より好ましくは30以下、更に好ましくは10以下である。具体的な範囲としては、0.05以上200以下が好ましく、0.1以上30以下がより好ましく、0.4以上10以下が更に好ましい。

[0073] (成分(b4))

成分(b4)の界面活性剤としては、非イオン界面活性剤、アニオン界面活性剤、両性界面活性剤が挙げられるが、シワ改善効果等の観点から、非イオン界面活性剤が好ましい。なお、アニオン界面活性剤、両性界面活性剤と

しては、成分（a 1 - 3）で挙げたものと同様のものが挙げられる。

[0074] 非イオン界面活性剤のHLBは、好ましくは3以上20以下、より好ましくは4以上18以下、更に好ましくは4.5以上15以下である。

ここで、HLB（親水性-親油性のバランス〈Hydrophilic-Lipophilic Balance〉）は、界面活性剤の全分子量に占める親水基部分の分子量を示すものであり、非イオン界面活性剤については、グリフィン（Griffin）の式により求められるものである。

2種以上の非イオン界面活性剤から構成される混合界面活性剤のHLBは、各非イオン界面活性剤のHLB値をその配合比率に基づいて相加算平均したものである。

[0075] 混合HLB = $\sum (HLB_x \times W_x) / \sum W_x$

HLB_xは、非イオン界面活性剤XのHLB値を示す。

W_xは、HLB_xの値を有する非イオン界面活性剤Xの質量（g）を示す。

[0076] 非イオン界面活性剤としては、例えば、ポリグリセリン脂肪酸エステル、ポリエチレングリコール脂肪酸エステル、ショ糖脂肪酸エステル、ポリオキシエチレン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンソルビトール脂肪酸エステル、ポリオキシエチレングリセリン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンプロピレングリコール脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンヒマシ油、ポリオキシエチレン硬化ヒマシ油、ポリオキシエチレン硬化ヒマシ油脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンフィトスタノールエーテル、ポリオキシエチレンフィトステロースエーテル、ポリオキシエチレンコレスタノールエーテル、ポリオキシエチレンコレステリルエーテル、ポリオキシアルキレン変性オルガノポリシロキサン、ポリオキシアルキレン・アルキル共変性オルガノポリシロキサン、ソルビタン脂肪酸エステル、アルキルグリセリルエーテル、ポリオキシアルキレン変性シリコーン等が挙げられる。

[0077] ソルビタン脂肪酸エステルとしては、例えば、モノパルミチン酸ソルビタ

ン、モノステアリン酸ソルビタン、モノオレイン酸ソルビタン、セスキオレイン酸ソルビタン、ヤシ油脂肪酸ソルビタン、トリステアリン酸ソルビタン等が挙げられる。アルキルグリセリルエーテルとしては、例えば、イソステアリルグリセリルエーテル等が挙げられる。ポリオキシアルキレン変性シリコーンとしては、ポリオキシエチレン・メチルポリシロキサン共重合体、ポリ(オキシエチレン・オキシプロピレン)・メチルポリシロキサン共重合体等が挙げられる。

[0078] 成分(b4)は、1種のみを単独で使用しても2種以上を組み合わせて使用してもよい。

[0079] 成分(b4)の含有量は、シワ改善効果等の観点から、組成物(B)中、好ましくは0.05質量%以上、より好ましくは0.1質量%以上、更に好ましくは0.2質量%以上であり、また、シワ改善効果等の観点から、組成物(B)中、好ましくは16質量%以下、より好ましくは4質量%以下、更に好ましくは2質量%以下である。具体的な範囲としては、組成物(B)中、0.05質量%以上16質量%以下が好ましく、0.1質量%以上4質量%以下がより好ましく、0.2質量%以上2質量%以下が更に好ましい。

[0080] また、成分(b2)に対する成分(b4)の含有質量比〔(b4)/(b2)〕は、シワ改善効果等の観点から、好ましくは0.0025以上、より好ましくは0.006以上、更に好ましくは0.025以上であり、また、シワ改善効果等の観点から、好ましくは160以下、より好ましくは8以下、更に好ましくは2以下である。具体的な範囲としては、0.0025以上160以下が好ましく、0.006以上8以下がより好ましく、0.025以上2以下が更に好ましい。

[0081] (成分(b5))

水溶性増粘剤は、通常の化粧品に用いられるものであればよく、例えば、カラギーナン、デキストリン、メチルセルロース、エチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、ヒドロキシプロピルセルロース、ポリビニルアルコール、ポリアクリル酸、ポリメタクリル酸、カルボキシビニルポリマー、

アクリル酸／アクリル酸アルキルコポリマー、キサンタンガム、カルボキシメチルキチン、キトサン等が挙げられる。

これらの中でも、シワ改善効果、安定性、使用感の観点から、(メタ)アクリル酸系ポリマーが好ましく、カルボキシビニルポリマー、アクリル酸／アクリル酸アルキルコポリマーがより好ましく、(アクリル酸／アクリル酸アルキル(C10-30))コポリマーが特に好ましい。

ここで、(アクリル酸／アクリル酸アルキル(C10-30))コポリマーとは、アクリル酸アルキル(C10-30)とアクリル酸、メタクリル酸又はこれらの低級アルキルエステルとの共重合体を、ショ糖のアリルエーテル又はペンタエリスリトールのアリルエーテルで架橋したものであり、ペムレンTR-1、ペムレンTR-2(以上、Lubrizol製)等の市販品を用いることができる。

[0082] また、ポリアクリル酸、カルボキシビニルポリマー、(アクリル酸／アクリル酸アルキル(C10-30))コポリマーなどの酸型の水溶性増粘剤は、水酸化カリウム、水酸化ナトリウム等のアルカリ金属水酸化物を中和剤として用い、水溶性ないし水分散性の塩として用いてもよい。

[0083] 成分(b5)は、1種のみを単独で使用しても2種以上を組み合わせで使用してもよい。

[0084] 成分(b5)の含有量は、シワ改善効果等の観点から、組成物(B)中、好ましくは0.05質量%以上、より好ましくは0.1質量%以上、更に好ましくは0.2質量%以上であり、また、シワ改善効果等の観点から、組成物(B)中、好ましくは1質量%以下、より好ましくは0.8質量%以下、更に好ましくは0.7質量%以下である。具体的な範囲としては、組成物(B)中、0.05質量%以上1質量%以下が好ましく、0.1質量%以上0.8質量%以下がより好ましく、0.2質量%以上0.7質量%以下が更に好ましい。

[0085] また、成分(b2)に対する成分(b5)の含有質量比[(b5)/(b2)]は、シワ改善効果等の観点から、好ましくは0.0025以上、より

好ましくは0.006以上、更に好ましくは0.025以上であり、また、シワ改善効果等の観点から、好ましくは10以下、より好ましくは2以下、更に好ましくは1以下である。具体的な範囲としては、0.0025以上10以下が好ましく、0.006以上2以下がより好ましく、0.025以上1以下が更に好ましい。

[0086] (成分(b6))

水の含有量は、シワ改善効果等の観点から、組成物(B)中、好ましくは55質量%以上、より好ましくは65質量%以上、更に好ましくは70質量%以上であり、また、シワ改善効果等の観点から、組成物(B)中、好ましくは99質量%以下、より好ましくは95質量%以下、更に好ましくは90質量%以下である。具体的な範囲としては、組成物(B)中、55質量%以上99質量%以下が好ましく、65質量%以上95質量%以下がより好ましく、70質量%以上90質量%以下が更に好ましい。

[0087] 組成物(B)は、化粧品に通常用いられる上記以外の有効成分や添加剤等を含んでいてもよい。このような有効成分や添加剤としては、例えば、水溶性ビタミン類、金属封鎖剤、エタノール、防腐剤、酸化防止剤、色素、pH調整剤、香料、紫外線吸収剤、保湿剤、血行促進剤、冷感剤、制汗剤、殺菌剤、美白剤、抗炎症剤、皮膚賦活剤等を含んでいてもよい。なお、これらのうち1種のみを単独で使用しても2種以上を組み合わせで使用してもよい。

[0088] ここで、本発明において「炭酸ガスを含有する」とは、炭酸ガスを皮膚上に供給できることをいい、例えば、炭酸ガスが溶解している液状組成物、原液と噴射剤とが耐圧容器に充填されており、噴射剤として炭酸ガスを含有するエアゾール組成物(特開2014-129306号公報、特開2017-125003号公報等)、水分と反応して炭酸ガスを発生する炭酸ガス発生剤を含有する発泡性組成物、上記炭酸ガス発生剤を含有する不織布シート(特開2015-105451号公報)、上記炭酸ガス発生剤を含有するパッド(特開2006-249025号公報等)が挙げられる。炭酸ガス発生剤としては、酸と炭酸塩との組み合わせが挙げられる。

このような形態の中でも、シワ改善効果や使用感等の観点から、原液と噴射剤とが耐圧容器に充填されており、噴射剤として炭酸ガスを含むエアゾール組成物が好ましい。このようなエアゾール組成物としては、スプレータイプ、フォームタイプが挙げられるが、フォームタイプが好ましい。

[0089] 組成物（B）がエアゾール組成物である場合、原液と炭酸ガスとの質量比（原液／炭酸ガス）は、好ましくは $94/6$ 以上、より好ましくは $95/5$ 以上、特に好ましくは $96.5/3.5$ 以上であり、また、好ましくは $99.5/0.5$ 以下、より好ましくは $99/1$ 以下、特に好ましくは $98.5/1.5$ 以下である。具体的な範囲としては、 $94/6$ 以上 $99.5/0.5$ 以下が好ましく、 $95/5$ 以上 $99/1$ 以下がより好ましく、 $96.5/3.5$ 以上 $98.5/1.5$ 以下が特に好ましい。

[0090] 上記エアゾール組成物は、炭酸ガスに加えて、通常のエアゾール化粧料に用いられる噴射剤を含んでいてもよい。噴射剤としては、液化石油ガス、圧縮ガス等が挙げられる。噴射剤合計に対する炭酸ガスの含有量は、好ましくは $90\sim 100$ 質量%、より好ましくは $95\sim 100$ 質量%、特に好ましくは $98\sim 100$ 質量%である。

[0091] 組成物（B）（エアゾール組成物の場合は原液）の 25°C におけるpHは、好ましくは $6.0\sim 7.5$ 、より好ましくは $6.3\sim 7.4$ 、特に好ましくは $6.5\sim 7.3$ である。

[0092] また、組成物（B）（エアゾール組成物の場合は原液）の 25°C における粘度は、安定性、吐出性等の観点から、好ましくは $500\text{ mPa}\cdot\text{s}$ 以上 $20000\text{ mPa}\cdot\text{s}$ 以下、より好ましくは $1000\text{ mPa}\cdot\text{s}$ 以上 $10000\text{ mPa}\cdot\text{s}$ 以下、特に好ましくは $1500\text{ mPa}\cdot\text{s}$ 以上 $7000\text{ mPa}\cdot\text{s}$ 以下である。

上記粘度は、BM粘度計（東機産業社製）を用いて 25°C で測定した値である。

[0093] 組成物（B）は、通常の方法により製造することができる。エアゾール組成物の場合は、原液を調製し、得られた原液を噴射剤とともに耐圧容器に充

填すればよい。

[0094] 工程 I（工程 I A、工程 I B）における「適用」は、工程 I（工程 I A、工程 I B）で用いる組成物の種類に応じた通常の塗布手段で行えばよく、例えば、指や手のひら、専用の道具で伸び広げたり、おさえるなどして塗布する手段が挙げられる。

[0095] 工程 I は、組成物（A）及び組成物（B）から選ばれる 1 種又は 2 種の組成物を皮膚上に適用する工程であるが、工程 I においては、シワ改善効果等の観点から、組成物（A）と組成物（B）の両方を適用するのが好ましく、組成物（B）、組成物（A）の順で適用するのがより好ましい。

[0096] 工程 I A で用いる組成物（A）の適用量としては、 0.1 mg/cm^2 以上 4 mg/cm^2 以下が好ましく、 0.2 mg/cm^2 以上 3.5 mg/cm^2 以下が特に好ましい。

工程 I B で用いる組成物（B）の適用量としては、 0.1 mg/cm^2 以上 5.5 mg/cm^2 以下が好ましく、 0.2 mg/cm^2 以上 5 mg/cm^2 以下が特に好ましい。

工程 I A と工程 I B を行う場合において、組成物（A）と組成物（B）の合計適用量としては、 0.1 mg/cm^2 以上 7 mg/cm^2 以下が好ましく、 0.2 mg/cm^2 以上 6 mg/cm^2 以下が特に好ましい。

[0097] ー工程 II ー

工程 II は、繊維を含む堆積物からなる被膜を皮膚上に適用する工程である。

[0098] ここで、本発明のシワ改善方法において、工程 I と工程 II は、この順で又は逆の順で行われ、組成物（A）及び組成物（B）から選ばれる 1 種又は 2 種の組成物と繊維を含む堆積物からなる被膜とを、皮膚の同一部位上に積層させるようにして適用すればよい。

すなわち、工程 I を行い、次いで工程 I で組成物が適用された皮膚上に、繊維を含む堆積物からなる被膜を適用する工程を行ってもよく、また、工程 II を行い、次いで工程 II で繊維を含む堆積物からなる被膜が適用された

皮膚上に、組成物（A）及び組成物（B）から選ばれる1種又は2種の組成物を適用する工程を行ってもよい。さらに、工程ⅠAと工程ⅠBを行う場合においては、工程ⅠA、工程ⅠB、工程ⅠⅠの順、工程ⅠA、工程ⅠⅠ、工程ⅠBの順、工程ⅠB、工程ⅠA、工程ⅠⅠの順、工程ⅠB、工程ⅠⅠ、工程ⅠAの順、工程ⅠⅠ、工程ⅠA、工程ⅠBの順、工程ⅠⅠ、工程ⅠB、工程ⅠAの順のいずれでもよい。

これらのシワ改善方法の中では、シワ改善効果等の観点から、工程Ⅰを行い、次いで工程Ⅰで組成物が適用された皮膚上に、繊維を含む堆積物からなる被膜を適用する工程を行うことが好ましく、工程ⅠB、工程ⅠA、工程ⅠⅠの順に行うことがより好ましい。

また、組成物（A）及び組成物（B）から選ばれる1種又は2種の組成物と繊維を含む堆積物からなる被膜とが皮膚上で接触する（具体的には積層される）限りにおいて、工程Ⅰと工程ⅠⅠの間や、組成物（A）と組成物（B）を併用する場合には組成物（A）の適用と組成物（B）の適用の間に、他の化粧品や乳液を更に適用してもよい。また、工程Ⅰに次いで工程ⅠⅠを行う場合、工程ⅠⅠで被膜が適用された皮膚上に、水、ポリオール及び25℃で液状の油から選ばれる1種又は2種以上を含有する液剤を、静電スプレー以外の手段で皮膚に施す液剤適用工程を行ってもよい。

[0099] また、本発明の被膜製造方法において、工程ⅠBと工程ⅠⅠは、この順で又は逆の順で行われ、組成物（B）と繊維を含む堆積物からなる被膜とを、皮膚の同一部位上に積層させるようにして適用すればよい。

すなわち、工程ⅠBを行い、次いで工程ⅠBで組成物（B）が適用された皮膚上に、繊維を含む堆積物からなる被膜を適用する工程を行ってもよく、また、工程ⅠⅠを行い、次いで工程ⅠⅠで繊維を含む堆積物からなる被膜が適用された皮膚上に、組成物（B）を適用する工程を行ってもよい。

また、本発明の被膜製造方法としては、シワ改善効果等の観点から、工程ⅠB及び工程ⅠⅠに加えて、さらに工程ⅠAを具備するものが好ましい。工程ⅠAを行う場合においては、工程ⅠA、工程ⅠB、工程ⅠⅠの順、工程Ⅰ

A、工程ⅠⅠ、工程ⅠBの順、工程ⅠB、工程ⅠA、工程ⅠⅠの順、工程ⅠB、工程ⅠⅠ、工程ⅠAの順、工程ⅠⅠ、工程ⅠA、工程ⅠBの順、工程ⅠⅠ、工程ⅠB、工程ⅠAの順のいずれでもよい。

これらの被膜製造方法の中では、シワ改善効果等の観点から、工程ⅠBを行い、次いで工程ⅠBで組成物（B）が適用された皮膚上に、繊維を含む堆積物からなる被膜を適用する工程を行うことが好ましく、工程ⅠB、工程ⅠA、工程ⅠⅠの順に行うことがより好ましい。

また、組成物（B）と繊維を含む堆積物からなる被膜とが皮膚上で接触する（具体的には積層される）限りにおいて、工程ⅠBと工程ⅠⅠの間や、組成物（A）と組成物（B）を併用する場合には組成物（A）の適用と組成物（B）の適用の間に、他の化粧品や乳液を更に適用してもよい。また、工程ⅠBに次いで工程ⅠⅠを行う場合、工程ⅠⅠで被膜が適用された皮膚上に、水、ポリオール及び25℃で液状の油から選ばれる1種又は2種以上を含有する液剤を、静電スプレー以外の手段で皮膚に施す液剤適用工程を行ってもよい。

[0100] また、繊維を含む堆積物からなる被膜としては、下記成分（c1）及び成分（c2）を含有する組成物Xを静電スプレーしてできたものが好ましく、組成物Xをエレクトロスピンニングしてできたものがより好ましい。なお、堆積物は、繊維以外のもの（例えば繊維周囲に存在する液状物）を含むものでもよい。また、繊維を含む堆積物からなる被膜としては、成分（c2）による繊維を含む堆積物からなる被膜が好ましい。例えば、成分（c2）として、被膜形成能を有する水不溶性ポリマーを用いた場合、水不溶性ポリマーの繊維を含む堆積物からなる被膜が得られる。

（c1）水、アルコール及びケトンから選ばれる1種又は2種以上の揮発性物質

（c2）被膜形成能を有するポリマー

[0101] 組成物Xは、静電スプレーにより被膜を形成するための組成物（噴霧用組成物）である。

[0102] 成分(c1)の揮発性物質は、液体の状態において揮発性を有する物質である。組成物Xにおいて成分(c1)は、電界内に置かれた場合に組成物Xを十分に帯電させ、ノズル先端から噴霧対象に向かって吐出され、成分(c1)が蒸発していくと、組成物Xの電荷密度が過剰となり、クーロン反発によって微細化しながら成分(c1)がさらに蒸発していき、最終的に乾いた被膜を形成させる目的で配合される。この目的のために、成分(c1)の揮発性物質は、その蒸気圧が20℃において、0.01kPa以上106.66kPa以下であることが好ましく、0.13kPa以上66.66kPa以下であることがより好ましく、0.67kPa以上40.00kPa以下であることがさらに好ましく、1.33kPa以上40.00kPa以下であることがさらに好ましく、2.40kPa以上40.00kPa以下であることが特に好ましい。

[0103] 成分(c1)の揮発性物質のうち、アルコールとしては、例えば、一価の鎖式脂肪族アルコール、一価の環式脂肪族アルコール、一価の芳香族アルコールが挙げられる。

一価の鎖式脂肪族アルコールとしては、炭素数が1~6の直鎖または分岐鎖のアルコール、一価の環式脂肪族アルコールとしては、炭素数が4~6の環式脂肪族アルコール、一価の芳香族アルコールとしては、ベンジルアルコール、フェニルエチルアルコール等がそれぞれ挙げられる。それらの具体例としては、メタノール、エタノール、イソプロピルアルコール、n-プロピルアルコール、n-ブチルアルコール、2-ブチルアルコール、イソブチルアルコール、2-メチル-2-プロピルアルコール、n-ペンタノール、2-ペンタノール、3-ペンタノール、2-メチル-1-ブチルアルコール、2-メチル-2-ブチルアルコール、3-メチル-1-ブチルアルコール、3-メチル-2-ブチルアルコール、ネオペンチルアルコール、n-ヘキサノール、2-ヘキサノール、3-ヘキサノール、2-メチル-1-ペンタノール、3-メチル-1-ペンタノール、4-メチル-1-ペンタノール、2-メチル-2-ペンタノール、3-メチル-2-ペンタノール、4-メチル

− 2 −ペンタノール、 2 −メチル− 3 −ペンタノール、 3 −メチル− 3 −ペンタノール、 2, 2 −ジメチル− 1 −ブタノール、 2, 3 −ジメチル− 1 −ブタノール、 3, 3 −ジメチル− 1 −ブタノール、 2, 3 −ジメチル− 2 −ブタノール、 3, 3 −ジメチル− 2 −ブタノール、 2 −エチル− 1 −ブタノール、 シクロブタノール、 シクロペンタノール、 シクロヘキサノール、 ベンジルアルコール、 フェニルエチルアルコールなどが挙げられる。これらのアルコールは、これらから選ばれる 1 種又は 2 種以上を組み合わせる用いることができる。

[0104] 成分 (c 1) の揮発性物質のうち、ケトンとしては、炭素数が 1 ~ 4 のアルキル基を 2 つ有するケトン、例えばアセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトンなどが挙げられる。これらのケトンは 1 種又は 2 種以上を組み合わせる用いることができる。

[0105] 成分 (c 1) としては、ノズルの詰まりを抑制する観点から、水、アルコール又はこれらの混液が好ましく、繊維形成性の観点から、水、エタノール、イソプロピルアルコール及び n −ブチルアルコールから選ばれる 1 種又は 2 種以上がより好ましく、水とエタノール、イソプロピルアルコール及び n −ブチルアルコールから選ばれる 1 種又は 2 種以上との組み合わせが更に好ましく、水とエタノールの組み合わせが特に好ましい。また、成分 (c 1) 中の水の含有量は、繊維形成性の観点から、0. 1 質量%以上 1 5 質量%以下であることが好ましく、0. 2 質量%以上 5 質量%以下であることがより好ましい。

[0106] 成分 (c 1) は、1 種のみを単独で使用しても 2 種以上を組み合わせる用いてもよい。

[0107] 組成物 X における成分 (c 1) の含有量は、繊維形成性の観点から、4 5 質量%以上であることが好ましく、5 0 質量%以上であることがより好ましく、5 5 質量%以上であることがさらに好ましく、6 0 質量%以上であることが特に好ましく、また、9 5 質量%以下であることが好ましく、9 3 質量%以下であることがより好ましく、9 0 質量%以下であることがさらに好ま

しく、88質量%以下であることが特に好ましい。同様の観点から、組成物Xにおける成分(c1)の含有量は、45質量%以上95質量%以下であることが好ましく、50質量%以上93質量%以下であることがより好ましく、55質量%以上90質量%以下であることがさらに好ましく、60質量%以上88質量%以下であることが特に好ましい。この割合で組成物X中に成分(c1)を含有させることで、目的とする被膜を効率的に形成することができ、かつ繊維で形成された被膜を安定して形成させることができる。また、この割合で組成物X中に成分(c1)を含有させることで、静電スプレー法を行うときに組成物X中から成分(c1)を効率的に、かつ十分に揮発させることができる。

[0108] 成分(c2)である被膜形成能を有するポリマーは、一般に、成分(c1)の揮発性物質に溶解することが可能な物質である。ここで、「溶解する」とは、成分(c1)と成分(c2)を混合した際に、成分(c1)中に成分(c2)が20℃において分散状態にあり、その分散状態が目視で均一な状態、好ましくは目視で透明又は半透明な状態であることをいう。本発明における被膜形成能は、好ましくは繊維形成能である。

[0109] 被膜形成能を有するポリマーとしては、成分(c1)の揮発性物質の性質に応じて適切なものが用いられる。具体的には、被膜形成能を有するポリマーは水溶性ポリマーと水不溶性ポリマーとに大別される。本明細書において「水溶性ポリマー」とは、1気圧・23℃の環境下において、ポリマー1gを秤量したのちに、10gのイオン交換水に浸漬し、24時間経過後、浸漬したポリマーの0.5g以上が水に溶解する性質を有するものをいう。一方、本明細書において「水不溶性ポリマー」とは、1気圧・23℃の環境下において、ポリマー1gを秤量したのちに、10gのイオン交換水に浸漬し、24時間経過後、浸漬したポリマーの0.5g未満しか水に溶解しない性質を有するものをいう。

[0110] 水溶性である被膜形成能を有するポリマーとしては、例えばプルラン、ヒアルロン酸、コンドロイチン硫酸、ポリ-γ-グルタミン酸、変性コーンス

ターチ、 β -グルカン、グルコオリゴ糖、ヘパリン、ケラト硫酸等のムコ多糖、セルロース、ペクチン、キシラン、リグニン、グルコマンナン、ガラクトロン酸、サイリウムシードガム、タマリンド種子ガム、アラビアガム、トラガントガム、大豆水溶性多糖、アルギン酸、カラギーナン、ラミナラン、寒天（アガロース）、フコイダン、メチルセルロース、ヒドロキシプロピルセルロース、ヒドロキシプロピルメチルセルロース等の天然高分子、部分鹼化ポリビニルアルコール（架橋剤と併用しない場合）、低鹼化ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン（PVP）、ポリエチレンオキサイド、ポリアクリル酸ナトリウム等の合成高分子などが挙げられる。これらの水溶性ポリマーは1種又は2種以上を組み合わせる用いることができる。これらの水溶性ポリマーのうち、被膜の製造が容易である観点から、プルラン、部分鹼化ポリビニルアルコール、低鹼化ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン及びポリエチレンオキサイド等の合成高分子を用いることが好ましい。水溶性ポリマーとしてポリエチレンオキサイドを用いる場合、その数平均分子量は、5万以上300万以下であることが好ましく、10万以上250万以下であることがより好ましい。

[0111] 一方、水不溶性である被膜形成能を有するポリマーとしては、例えば、被膜形成後に不溶化処理できる完全鹼化ポリビニルアルコール、架橋剤と併用することで被膜形成後に架橋処理できる部分鹼化ポリビニルアルコール、ポリ（N-プロパノイルエチレンイミン）グラフト-ジメチルシロキサン/γ-アミノプロピルメチルシロキサン共重合体等のオキサゾリン変性シリコーン、ポリビニルアセタールジエチルアミノアセテート、ツエイン（とうもろこし蛋白質の主要成分）、ポリ乳酸（PLA）等のポリエステル樹脂、ポリアクリロニトリル樹脂、ポリメタクリル酸樹脂等のアクリル樹脂、ポリスチレン樹脂、ポリビニルブチラール樹脂、ポリエチレンテレフタレート樹脂、ポリブチレンテレフタレート樹脂、ポリウレタン樹脂、ポリアミド樹脂、ポリイミド樹脂、ポリアミドイミド樹脂などが挙げられる。これらの水不溶性ポリマーは1種又は2種以上を組み合わせる用いることができる。

これらの水不溶性ポリマーのうち、被膜形成後に不溶化処理できる完全鹼化ポリビニルアルコール、架橋剤と併用することで被膜形成後に架橋処理できる部分鹼化ポリビニルアルコール、ポリビニルブチラール樹脂、ポリウレタン樹脂、ポリ（N-プロパノイルエチレンイミン）グラフトジメチルシロキサン／ γ -アミノプロピルメチルシロキサン共重合体等のオキサゾリン変性シリコン、ポリビニルアセタールジエチルアミノアセテート、ツエイン等を用いることが好ましい。

[0112] 組成物Xにおける成分（c2）の含有量は、4質量%以上であることが好ましく、6質量%以上であることがより好ましく、8質量%以上であることがさらに好ましい。また35質量%以下であることが好ましく、30質量%以下であることがより好ましく、25質量%以下であることがさらに好ましく、20質量%以下であることが殊更に好ましい。組成物Xにおける成分（c2）の含有量は、4質量%以上35質量%以下であることが好ましく、4質量%以上30質量%以下であることがより好ましく、6質量%以上25質量%以下であることがさらに好ましく、8質量%以上20質量%以下であることが殊更に好ましい。この割合で組成物X中に成分（c2）を含有させることで、目的とする被膜を効率的に形成することができ、かつ繊維で形成された被膜を安定して形成させることができる。

[0113] 組成物X中の成分（c1）と成分（c2）の含有量の質量比率（（c1）／（c2））は、静電スプレー法を行うときに成分（c1）を十分に揮発させることができる観点から、0.5以上40以下が好ましく、1以上30以下がより好ましく、2以上25以下がさらに好ましい。

また、組成物X中のエタノールと成分（c2）の含有量の質量比率（（c1）／（c2））は、静電スプレー法を行うときに成分（c1）を十分に揮発させることができる観点から、0.5以上40以下が好ましく、1以上30以下がより好ましく、2以上25以下がさらに好ましい。

[0114] 組成物Xとしては、成分（c1）及び成分（c2）に加えて、（c3）グリコール類及び（c4）導電率制御剤から選ばれる1種又は2種を含有する

ものが好ましい。

グリコール類としては、エチレングリコール、プロピレングリコール、ブチレングリコール、ジエチレングリコール、ジプロピレングリコール、ポリプロピレングリコール等が挙げられる。

組成物Xにおける成分(c3)の含有量は、0.001質量%以上10質量%以下が好ましく、0.01質量%以上5質量%以下がより好ましい。

[0115] 導電率制御剤としては、アルカリ金属塩、アンモニウム塩が挙げられる。

組成物Xにおける成分(c4)の含有量は、0.01質量%以上10質量%以下が好ましく、0.05質量%以上6質量%以下がより好ましく、0.1質量%以上2.5質量%以下がさらに好ましい。

[0116] 組成物Xは、上記各成分の他に、例えば、ラウロイルグルタミン酸ジ(フィトステリル/オクチルドデシル)等の油剤、粉体、UV防御剤、香料、忌避剤、酸化防止剤、安定剤、防腐剤、制汗剤、各種ビタミン等を含んでもよい。なお、これらのうち1種のみを単独で使用しても2種以上を組み合わせ使用してもよい。これら他の成分の含有量は、組成物X中、好ましくは20質量%以下、より好ましくは10質量%以下である。

[0117] ここで、本明細書において、「静電スプレーしてできた被膜を皮膚上に適用する」には、組成物Xを基剤上に静電スプレーして被膜を予め形成させておき、得られた被膜(フィルム、パッチ等のシート)を皮膚に貼り付ける態様、及び静電スプレーにより直接皮膚上に繊維で被膜を形成させる態様が包含される。

[0118] 静電スプレー法を行う場合、組成物Xとして、その粘度が、25℃において、好ましくは1mPa・s以上、より好ましくは10mPa・s以上、更に好ましくは50mPa・s以上であるものを用いる。また粘度が、25℃において、好ましくは2000mPa・s以下、より好ましくは1500mPa・s以下、更に好ましくは1200mPa・s以下であるものを用いる。組成物Xの粘度は、25℃において、好ましくは1mPa・s以上2000mPa・s以下であり、より好ましくは10mPa・s以上1500mPa

a · s 以下であり、更に好ましくは 50 mPa · s 以上 1200 mPa · s 以下である。この範囲の粘度を有する組成物 X を用いることで、静電スプレー法によって被膜、特に繊維の堆積物からなる多孔性被膜を首尾よく形成することができる。多孔性被膜の形成は、皮膚の蒸れ防止等を向上させる観点、被膜の皮膚への密着性を向上させる観点、皮膚から被膜を剥がす際に、容易、かつ綺麗に剥がすことができる等の観点から有利なものである。組成物 X の粘度は、E 型粘度計を用いて 25 °C で測定される。E 型粘度計としては例えば、例えば東京計器株式会社製の E 型粘度計を用いることができる。その場合のローターとしては、ローター No. 43 を用いることができる。

[0119] 組成物 X は静電スプレー法によって、基剤上又はヒトの皮膚に直接噴霧される。静電スプレー法は、静電スプレー工程において、静電スプレー装置を用いて、基剤上又は皮膚に組成物 X を静電スプレーして、被膜を形成する工程を含む。該静電スプレー装置は、組成物 X を収容する容器と、組成物 X を吐出するノズルと、容器中に収容されている組成物 X をノズルに供給する供給装置と、ノズルに電圧を印加する電源とを備える。図 1 には、本発明で好適に用いられる静電スプレー装置の構成を示す概略図が示されている。図 1 に示す静電スプレー装置 10 は、低電圧電源 11 を備えている。低電圧電源 11 は、数 V から十数 V の電圧を発生させ得るものである。静電スプレー装置 10 の可搬性を高める目的で、低電圧電源 11 は 1 個又は 2 個以上の電池からなることが好ましい。また、低電圧電源 11 として電池を用いることで、必要に応じ取り替えを容易に行えるという利点もある。電池に代えて、AC アダプタ等を低電圧電源 11 として用いることもできる。

[0120] 静電スプレー装置 10 は、高電圧電源 12 も備えている。高電圧電源 12 は、低電圧電源 11 と接続されており、低電圧電源 11 で発生した電圧を高電圧に昇圧する電子回路（図示せず）を備えている。昇圧電子回路は一般にトランス、キャパシタ及び半導体素子等から構成されている。

[0121] 静電スプレー装置 10 は、補助的電気回路 13 を更に備えている。補助的電気回路 13 は、上述した低電圧電源 11 と高電圧電源 12 との間に介在し

、低電圧電源 11 の電圧を調整して高電圧電源 12 を安定的に動作させる機能を有する。更に補助的電気回路 13 は、後述するマイクロギャポンプ 14 に備えられているモータの回転数を制御する機能を有する。モータの回転数を制御することで、後述する組成物 X の容器 15 からマイクロギャポンプ 14 への組成物 X の供給量が制御される。補助的電気回路 13 と低電圧電源 11 との間にはスイッチ SW が取り付けられており、スイッチ SW の入り切りによって、静電スプレー装置 10 を運転／停止できるようになっている。

なお、組成物 X の供給量の制御は、マイクロギャポンプ 14 以外に、組成物 X を収容している容器 15 が例えば筒状の側壁を有し、該側壁内を摺動して容積を減少させるピストンを駆動するポンプであってもよい。

[0122] 静電スプレー装置 10 は、ノズル 16 を更に備えている。ノズル 16 は、金属を初めとする各種の導電体や、プラスチック、ゴム、セラミックなどの非導電体からなり、その先端から組成物 X の吐出が可能な形状をしている。ノズル 16 内には組成物 X が流通する微小空間が、該ノズル 16 の長手方向に沿って形成されている。この微小空間の横断面の大きさは、直径で表して $100\ \mu\text{m}$ 以上 $1000\ \mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。ノズル 16 は、管路 17 を介してマイクロギャポンプ 14 と連通している。管路 17 は導電体でもよく、あるいは非導電体でもよい。また、ノズル 16 は、高電圧電源 12 と電氣的に接続されている。これによって、ノズル 16 に高電圧を印加することが可能になっている。この場合、ノズル 16 に人体が直接接触した場合に過大な電流が流れることを防止するために、ノズル 16 と高電圧電源 12 とは、電流制限抵抗 19 を介して電氣的に接続されている。

[0123] 管路 17 を介してノズル 16 と連通しているマイクロギャポンプ 14 は、容器 15 中に収容されている組成物 X をノズル 16 に供給する供給装置として機能する。マイクロギャポンプ 14 は、低電圧電源 11 から電源の供給を受けて動作する。また、マイクロギャポンプ 14 は、補助的電気回路 13 による制御を受けて所定量の組成物 X をノズル 16 に供給するように構成されている。

- [0124] マイクロギャポンプ 14 には、フレキシブル管路 18 を介して容器 15 が接続されている。容器 15 中には組成物 X が収容されている。容器 15 は、カートリッジ式の交換可能な形態をしていることが好ましい。
- [0125] 以上の構成を有する静電スプレー装置 10 は、例えば図 2 に示すように使用することができる。図 2 には、片手で把持できる寸法を有するハンディタイプの静電スプレー装置 10 が示されている。同図に示す静電スプレー装置 10 は、図 1 に示す構成図の部材のすべてが円筒形の筐体 20 内に収容されている。筐体 20 の長手方向の一端 10a には、ノズル（図示せず）が配置されている。ノズルは、その組成物の吹き出し方向を、筐体 20 の縦方向と一致させて、被膜形成対象物である肌側に向かい凸状になるように該筐体 20 に配置されている。ノズル先端が筐体 20 の縦方向において被膜形成対象物に向かい凸状になるように配置されていることによって、筐体に組成物 X が付着しにくくなり、安定的に被膜を形成することができる。
- [0126] 被膜形成対象皮膚が使用者の自身の皮膚である場合、静電スプレー装置 10 を動作させるときには、使用者、すなわち静電スプレーによって自己の皮膚に被膜を形成する者が該装置 10 を手で把持し、ノズル（図示せず）が配置されている該装置 10 の一端 10a を、静電スプレーを行う対象部位に向ける。図 2 では、使用者の前腕部内側に静電スプレー装置 10 の一端 10a を向けている状態が示されている。この状態下に、装置 10 のスイッチをオンにして静電スプレー法を行う。装置 10 に電源が入ることで、ノズルと皮膚との間には電界が生じる。図 2 に示す実施形態では、ノズルに正の高電圧が印加され、皮膚が負極となる。ノズルと皮膚との間に電界が生じると、ノズル先端部の組成物 X は、静電誘導によって分極してその先端部分がコーン状になり、コーン先端から帯電した組成物 X の液滴が電界に沿って、皮膚に向かって空中に吐出される。空間に吐出され且つ帯電した組成物 X から溶媒である成分 (c1) が蒸発していくと、組成物 X 表面の電荷密度が過剰となり、クーロン反発力によって微細化を繰り返しながら空間に広がり、皮膚に到達する。この場合、組成物 X の粘度を適切に調整することで、噴霧された

該組成物Xを液滴の状態で皮膚に到達させることができる。あるいは、空間に吐出されている間に、溶媒である揮発性物質の成分(c1)を該組成物Xから揮発させ、溶質である被膜形成能を有するポリマーを固化させつつ、電位差によって伸長変形させながら繊維を形成し、その繊維を皮膚の表面に堆積させることもできる。例えば、組成物Xの粘度を高めると、該組成物を繊維の形態で皮膚の表面に堆積させやすい。これによって、繊維の堆積物からなる被膜が皮膚の表面に形成される。繊維の堆積物からなる被膜は、ノズルと皮膚との間の距離や、ノズルに印加する電圧を調整することでも形成することが可能である。

[0127] 静電スプレー法を行っている間は、被膜形成対象物である皮膚とノズルとの間に高い電位差が生じている。しかし、インピーダンスが非常に大きいので、人体を流れる電流は極めて微小である。例えば通常の生活下において生じる静電気によって人体に流れる電流よりも、静電スプレー法を行っている間に人体に流れる電流の方が数桁小さいことを、本発明者は確認している。

[0128] 静電スプレー法によって繊維を含む堆積物を形成する場合、該繊維の太さは、円相当直径で表した場合、10nm以上であることが好ましく、50nm以上であることがより好ましい。また、3000nm以下であることが好ましく、2000nm以下であることがより好ましく、1000nm以下であることが更に好ましい。繊維の太さは、例えば走査型電子顕微鏡(SEM)観察によって、繊維を10000倍に拡大して観察し、その二次元画像から欠陥(繊維の塊、繊維の交差部分、液滴)を除き、繊維を任意に10本選び出し、繊維の長手方向に直交する線を引き、繊維径を直接読み取ることで測定することができる。

[0129] 上記繊維は、製造の原理上は無限長の連続繊維となるが、少なくとも繊維の太さの100倍以上の長さを有することが好ましい。本明細書においては、繊維の太さの100倍以上の長さを有する繊維のことを「連続繊維」と定義する。そして、静電スプレー法によって製造される被膜は、連続繊維の堆積物からなる多孔性の不連続被膜であることが好ましい。このような形態の

被膜は、集合体として1枚のシートとして扱えるだけでなく、非常に柔らかい特徴を持っており、それに剪断力が加わってもばらばらになりやすく、身体の動きへの追従性に優れるという利点がある。また、皮膚から生じた汗の放散性に優れるという利点もある。更に、被膜の剥離が容易であるという利点もある。

[0130] 繊維状となった組成物Xは、帯電した状態で皮膚に到達する。先に述べたとおり皮膚も帯電しているので、繊維は静電力によって皮膚に密着する。皮膚の表面には肌理等の微細な凹凸が形成されているので、その凹凸によるアンカー効果と相まって繊維は皮膚の表面に一層密着すると考えられる。このようにして静電スプレーが完了したら、静電スプレー装置10の電源を切る。これによってノズルと皮膚との間の電界が消失し、皮膚の表面は電荷が固定化される。その結果、被膜の密着性が一層発現する。

[0131] 以上の説明は、被膜が繊維の堆積物からなる多孔性被膜の場合についてのものであったが、被膜の形態はこれに限られず、細孔を有さない連続被膜を形成してもよく、繊維の堆積物以外の形態を有する多孔性被膜、例えば連続被膜に不規則に又は規則的に複数の貫通孔が形成されてなる多孔性被膜、すなわち不連続被膜を形成してもよい。上述のとおり、組成物Xの粘度、ノズルと皮膚との間の距離、及びノズルに印加する電圧などを制御することで任意の形状の被膜を形成することができる。

[0132] ノズルと皮膚との間の距離は、ノズルに印加する電圧にも依存するが、50mm以上150mm以下であることが、被膜を首尾よく形成する上で好ましい。ノズルと皮膚との間の距離は、一般的に用いられる非接触式センサ等で測定することができる。

[0133] 静電スプレー法によって形成された被膜が多孔性のものであるか否かを問わず、被膜の坪量は、 0.1 g/m^2 以上であることが好ましく、 1 g/m^2 以上であることがより好ましい。また 40 g/m^2 以下であることが好ましく、 30 g/m^2 以下であることがより好ましい。具体的には、被膜の坪量は、 0.1 g/m^2 以上 40 g/m^2 以下であることが好ましく、 1 g/m^2 以上 30 g

／ m^2 以下であることがより好ましい。被膜の坪量をこのようにすることで、被膜の密着性を向上させることができる。なお、ここで説明した皮膚に組成物を直接に静電スプレーして被膜を形成する静電スプレー工程とは、皮膚に静電スプレーして、被膜を形成する工程を意味する。

[0134] 組成物Xを予め基剤上に静電スプレーして形成された被膜を皮膚上に適用する場合には、基剤上に組成物Xを静電スプレーして繊維を含む堆積物からなるシートを作製し、そのシートを皮膚に適用する。ここで基剤としては、樹脂や金属の板状基剤、化粧用のパフ、手などが挙げられる。静電スプレー法は、前記と同様である。得られた繊維を含む堆積物からなるシートを、適用したい部位の形状、例えば目元と目尻のみを覆う形状に切断して貼付するのが好ましい。

[0135] また、繊維を含む堆積物からなる被膜の保持時間としては、4～20時間が好ましく、シワ改善効果の観点から、6～12時間がより好ましく、8～10時間がさらに好ましい。

[0136] 以上、本発明のシワ改善方法、被膜製造方法を、好ましい実施形態に基づき説明したが、本発明は前記実施形態に制限されない。例えば、前記実施形態においては、自己の皮膚に被膜を形成させたい者が静電スプレー装置10を把持し、該装置10のノズルとその者の皮膚との間に電界を生じさせたが、両者間に電界が生じる限り、自己の皮膚に被膜を形成させたい者が静電スプレー装置10を把持する必要はない。

[0137] そして、本発明のシワ改善方法は、皮膚のシワを改善する効果に優れる。また、本発明の被膜製造方法によれば、皮膚のシワを改善する効果に優れた被膜を皮膚上に形成させることができる。

ここで、被膜が形成される「皮膚」としては、好ましくは顔、首及び手足から選ばれる1種以上の部位の皮膚であり、より好ましくは顔の皮膚であり、更に好ましくは目尻、目の下、口元、額、瞼及び眉間から選ばれる1種以上の部位の皮膚であり、特に好ましくは目尻及び目の下から選ばれる1種以上の部位の皮膚である。また、本発明のシワ改善方法、被膜製造方法は、皮

膚のシワ部位上への適用に適し、顔の皮膚のシワ部位上への適用により適し、目尻及び目の下から選ばれる1種以上の部位の皮膚のシワ部位上への適用に特に適する。

[0138] ここで、「シワ」としては、大ジワ (coarse lines)、小ジワ (fine lines) 等が挙げられる。大ジワとは、皮膚を引っ張った場合でも目視で確認できる程度の深いシワであり、小ジワとは、一般的に皮膚を引っ張った場合に目視で確認できなくなる程度の浅い表面的なシワである。これらどちらのシワに対しても本発明は改善効果を有する。例えば、太さ0.15~0.47mmのシワの改善に有効であり、太さ0.28~0.47mmのシワの改善に特に有効である。また、検出されるシワの線の総計で示される面積が小さくなった場合やシワが目立たなくなった場合には、シワが改善されたといえるが、そのシワの面積を10~30%減とすることが好ましく、シワの面積を15~25%減とすることがより好ましい。また、抗シワ機能評価試験ガイドライン (日本香粧品学会誌 Vol. 30, No. 4, pp. 316-332 (2006)) 記載のシワグレード1~7のシワの改善に有効であり、特に3~5のシワの改善に有効である。

なお、繊維を含む堆積物からなる被膜を1日あたり4~20時間 (好適には6~12時間、より好適には8~10時間) 保持してから剥離する場合には、3~24週間連用することが好ましく、3~16週間連用することがより好ましく、3~6週間連用することが特に好ましい。

[0139] [被膜形成用キット、被膜]

本発明の被膜形成用キットは、上記組成物 (B) と、繊維を含む堆積物からなる被膜又は当該被膜を形成するための被膜形成用組成物とを備えるものである。

本発明の被膜形成用キットとしては、シワ改善効果の観点から、さらに上記組成物 (A) を備えるものが好ましい。また、上記被膜形成用組成物 (例えば、上記組成物 X) を備える場合、本発明の被膜形成用キットとしては、更に上記静電スプレー装置を備えるものが好ましい。また、被膜形成用キッ

トが備える繊維を含む堆積物からなる被膜としては、上記の繊維を含む堆積物からなるシートが好ましい。

本発明の皮膚上に適用するための被膜は、繊維を含む堆積物と、炭酸ガスとを含有するものである。本発明の皮膚上に適用するための被膜としては、シワ改善効果の観点から、さらに両親媒性分子を含有するものが好ましい。また被膜は、組成物（A）、（B）の各成分を含んでいてもよい。

本発明の被膜形成用キット、被膜における各種文言の意義、各成分の含有量及びその比率等は、本発明のシワ改善方法、被膜製造方法について説明した各種文言の意義、各成分の含有量及びその比率等と同様であるが、本発明の被膜としては、上記繊維の繊維間及び繊維表面から選ばれる1種又は2種に炭酸ガスを含有するものが好ましく、両親媒性分子及び炭酸ガスから選ばれる1種又は2種の成分を、上記繊維の繊維間及び繊維表面から選ばれる1種又は2種に含有するものがより好ましい。

[0140] 本発明の皮膚上に適用するための被膜において、繊維を含む堆積物1 m²あたりの繊維の質量（ α ）に対する炭酸ガス1 m²あたりの質量（ γ ）の含有質量比〔（ γ ）／（ α ）〕は、皮膚と被膜の密着性を向上させる等の観点から、好ましくは1以上、より好ましくは5以上、更に好ましくは10以上、特に好ましくは15以上であり、また、皮膚と被膜の密着性を向上させる観点等の観点から、好ましくは45以下、より好ましくは40以下、更に好ましくは35以下、特に好ましくは30以下である。具体的な範囲としては、1以上45以下が好ましく、5以上40以下がより好ましく、10以上35以下が更に好ましく、15以上30以下が特に好ましい。

本発明の皮膚上に適用するための被膜において、繊維を含む堆積物1 m²あたりの繊維の質量（ α ）に対する両親媒性分子1 m²あたりの質量（ β ）の含有質量比〔（ β ）／（ α ）〕は、皮膚と被膜の密着性を向上させる、及び透明性を向上させる等の観点から、好ましくは0.1以上、より好ましくは0.5以上、更に好ましくは1以上、特に好ましくは2以上であり、また、皮膚と被膜の密着性を向上させる観点、及び透明性を向上させる等の観点から

、好ましくは30以下、より好ましくは20以下、更に好ましくは17以下、特に好ましくは15以下である。具体的な範囲としては、0.1以上30以下が好ましく、0.5以上20以下がより好ましく、1以上17以下が更に好ましく、2以上15以下が特に好ましい。

なお、本明細書において、繊維を含む堆積物1 m²あたりの繊維の質量とは、(c2)被膜形成能を有するポリマーの質量を意味する。

本発明の皮膚上に適用するための被膜は、本発明の被膜製造方法によって、又は本発明の被膜形成用キットを用いることによって製造できる。

[0141] なお、本明細書において、皮膚シワ改善のための使用は、美容目的での使用等の非治療的使用が好ましい。「非治療的」とは、医療行為を含まない、すなわち人間を手術、治療又は診断する方法を含まない、より具体的には医師、又は医療従事者もしくは医師の指示を受けた者が人間に対して手術、治療又は診断を実施する方法を含まない概念である。

[0142] 上述の実施形態に関し、本発明はさらに以下の実施態様を開示する。

<1> (工程I B) 下記組成物(B)を皮膚上に適用する工程と、(工程I I) 繊維を含む堆積物からなる被膜を皮膚上に適用する工程とを、この順で又は逆の順で具備する、皮膚上への被膜の製造方法。

組成物(B)：炭酸ガスを含有する組成物。

<2> (工程I B) 下記組成物(B)を皮膚上に適用する工程と、(工程I I) 工程I Bで組成物(B)が適用された皮膚上に、繊維を含む堆積物からなる被膜を適用する工程とを具備する、皮膚上への被膜の製造方法。

組成物(B)：炭酸ガスを含有する組成物。

<3> さらに(工程I A) 下記組成物(A)を皮膚上に適用する工程を具備する、<1>又は<2>に記載の皮膚上への被膜の製造方法。

組成物(A)：両親媒性分子を含有し、且つラメラ構造を有する組成物。

[0143] <4> 前記両親媒性分子が、(a1-1)セラミド類、(a1-2)ヒドロキシ基を分子内に有する多価アルコール脂肪酸エステル類、(a1-3)界面活性剤、及び(a1-4)高級アルコールから選ばれる1種又は2種

以上である、＜3＞に記載の皮膚上への被膜の製造方法。

＜5＞ 成分（a 1-2）が、グリセリンモノ脂肪酸エステル、グリセリンジ脂肪酸エステル、ソルビタンモノ脂肪酸エステル、ソルビタンジ脂肪酸エステル、及びジグリセリンジ脂肪酸エステルから選ばれる1種又は2種以上である、＜4＞に記載の皮膚上への被膜の製造方法。

＜6＞ 成分（a 1-3）が、イオン性界面活性剤である、＜4＞又は＜5＞に記載の皮膚上への被膜の製造方法。

＜7＞ 成分（a 1-4）が、炭素数10～24の1価アルコールである、＜4＞～＜6＞のいずれかに記載の皮膚上への被膜の製造方法。

＜8＞ 組成物（A）が、更に（a 2）成分（a 1）以外の油性成分、（a 3）多価アルコール及び（a 4）水から選ばれる1種又は2種以上を含有する、＜3＞～＜7＞のいずれかに記載の皮膚上への被膜の製造方法。

[0144] ＜9＞ 組成物（B）が、更に（b 2）油剤、（b 3）多価アルコール、（b 4）界面活性剤、（b 5）水溶性増粘剤及び（b 6）水から選ばれる1種又は2種以上を含有する、＜1＞～＜8＞のいずれかに記載の皮膚上への被膜の製造方法。

＜10＞ 成分（b 4）が、HLB3以上20以下の非イオン界面活性剤である、＜9＞に記載の皮膚上への被膜の製造方法。

＜11＞ 成分（b 5）が、（メタ）アクリル酸系ポリマーである、＜9＞又は＜10＞に記載の皮膚上への被膜の製造方法。

＜12＞ 組成物（B）が、原液と噴射剤とが耐圧容器に充填されており、噴射剤として炭酸ガスを含むエアゾール組成物である、＜1＞～＜11＞のいずれかに記載の皮膚上への被膜の製造方法。

[0145] ＜13＞ 前記繊維を含む堆積物からなる被膜が、下記成分（c 1）及び成分（c 2）を含有する組成物Xを静電スプレーしてできた被膜である、＜1＞～＜12＞のいずれかに記載の皮膚上への被膜の製造方法。

（c 1）水、アルコール及びケトンから選ばれる1種又は2種以上の揮発性物質

(c2) 被膜形成能を有するポリマー

<14> 前記繊維を含む堆積物からなる被膜が、水不溶性ポリマーの繊維を含む堆積物からなる被膜である、<1>~<13>のいずれかに記載の皮膚上への被膜の製造方法。

<15> 前記繊維の太さが、円相当直径で10nm以上3000nm以下である、<1>~<14>のいずれかに記載の皮膚上への被膜の製造方法。

<16> 工程11が、繊維を含む堆積物からなる被膜シートを皮膚に貼り付ける工程、又は繊維を含む堆積物からなる被膜を静電スプレーにより直接皮膚上に形成させる工程である、<1>~<15>のいずれかに記載の皮膚上への被膜の製造方法。

[0146] <17> 顔の皮膚上への被膜の製造方法である、<1>~<16>のいずれかに記載の皮膚上への被膜の製造方法。

<18> 皮膚のシワ部位上への被膜の製造方法である、<1>~<17>のいずれかに記載の皮膚上への被膜の製造方法。

[0147] <19> 繊維を含む堆積物と、炭酸ガスとを含有する、皮膚上に適用するための被膜。

<20> さらに両親媒性分子を含有する、<19>に記載の被膜。

<21> 両親媒性分子及び炭酸ガスから選ばれる1種又は2種の成分を、繊維の繊維間及び繊維表面から選ばれる1種又は2種に含有する、<20>に記載の被膜。

<22> 繊維を含む堆積物1m²あたりの繊維の質量(α)に対する両親媒性分子1m²あたりの質量(β)の含有質量比〔(β)/(α)〕が、0.1以上30以下である、<20>又は<21>に記載の被膜。

<23> 前記繊維を含む堆積物が、水不溶性ポリマーの繊維を含む堆積物である、<19>~<22>のいずれかに記載の被膜。

<24> 前記繊維の太さが、円相当直径で10nm以上3000nm以下である、<19>~<23>のいずれかに記載の被膜。

<25> 繊維を含む堆積物 1 m²あたりの繊維の質量 (α) に対する炭酸ガス 1 m²あたりの質量 (γ) の含有質量比 $[(\gamma) / (\alpha)]$ が、1 以上 4.5 以下である、<19>~<24>のいずれかに記載の被膜。

[0148] <26> 下記組成物 (B) と、繊維を含む堆積物からなる被膜又は当該被膜を形成するための被膜形成用組成物とを備える、被膜形成用キット。

組成物 (B) : 炭酸ガスを含む組成物。

<27> さらに下記組成物 (A) を備える、<26>に記載の被膜形成用キット。

組成物 (A) : 両親媒性分子を含む、且つラメラ構造を有する組成物。

<28> <26>又は<27>に記載のキットの、皮膚シワ改善のための使用。

[0149] <29> (工程 I) 下記組成物 (A) 及び組成物 (B) から選ばれる 1 種又は 2 種の組成物を皮膚上に適用する工程と、(工程 II) 繊維を含む堆積物からなる被膜を皮膚上に適用する工程とを、この順で又は逆の順で具備する、皮膚のシワを改善する方法。

組成物 (A) : 両親媒性分子を含む、且つラメラ構造を有する組成物。

組成物 (B) : 炭酸ガスを含む組成物。

<30> 工程 II が、繊維を含む堆積物からなる被膜を 1 日あたり 4 ~ 20 時間皮膚上で保持してから剥離する工程である、<29>に記載の皮膚のシワを改善する方法。

<31> 3 ~ 24 週間連用する、<29>又は<30>に記載の皮膚のシワを改善する方法。

<32> 前記両親媒性分子が、(a1-1) セラミド類、(a1-2) ヒドロキシ基を分子内に有する多価アルコール脂肪酸エステル類、(a1-3) 界面活性剤、及び (a1-4) 高級アルコールから選ばれる 1 種又は 2 種以上である、<29>~<31>のいずれかに記載の皮膚のシワを改善する方法。

<33> 成分 (a1-2) が、グリセリンモノ脂肪酸エステル、グリセ

リンジ脂肪酸エステル、ソルビタンモノ脂肪酸エステル、ソルビタンジ脂肪酸エステル、及びジグリセリンジ脂肪酸エステルから選ばれる1種又は2種以上である、〈32〉に記載の皮膚のシワを改善する方法。

〈34〉 成分(a1-3)が、イオン性界面活性剤である、〈32〉又は〈33〉に記載の皮膚のシワを改善する方法。

〈35〉 成分(a1-4)が、炭素数10~24の1価アルコールである、〈32〉~〈34〉のいずれかに記載の皮膚のシワを改善する方法。

〈36〉 組成物(A)が、更に(a2)成分(a1)以外の油性成分、(a3)多価アルコール及び(a4)水から選ばれる1種又は2種以上を含有する、〈29〉~〈35〉のいずれかに記載の皮膚のシワを改善する方法。

[0150] 〈37〉 組成物(B)が、更に(b2)油剤、(b3)多価アルコール、(b4)界面活性剤、(b5)水溶性増粘剤及び(b6)水から選ばれる1種又は2種以上を含有する、〈29〉~〈36〉のいずれかに記載の皮膚のシワを改善する方法。

〈38〉 成分(b4)が、HLB3以上20以下の非イオン界面活性剤である、〈37〉に記載の皮膚のシワを改善する方法。

〈39〉 成分(b5)が、(メタ)アクリル酸系ポリマーである、〈37〉又は〈38〉に記載の皮膚のシワを改善する方法。

〈40〉 組成物(B)が、原液と噴射剤とが耐圧容器に充填されており、噴射剤として炭酸ガスを含有するエアゾール組成物である、〈29〉~〈39〉のいずれかに記載の皮膚のシワを改善する方法。

[0151] 〈41〉 前記繊維を含む堆積物からなる被膜が、下記成分(c1)及び成分(c2)を含有する組成物Xを静電スプレーしてできた被膜である、〈29〉~〈40〉のいずれかに記載の皮膚のシワを改善する方法。

(c1) 水、アルコール及びケトンから選ばれる1種又は2種以上の揮発性物質

(c2) 被膜形成能を有するポリマー

<42> 前記繊維を含む堆積物からなる被膜が、水不溶性ポリマーの繊維を含む堆積物からなる被膜である、<29>~<41>のいずれかに記載の皮膚のシワを改善する方法。

<43> 前記繊維の太さが、円相当直径で10nm以上3000nm以下である、<29>~<42>のいずれかに記載の皮膚のシワを改善する方法。

<44> 工程11が、繊維を含む堆積物からなる被膜シートを皮膚に貼り付ける工程、又は繊維を含む堆積物からなる被膜を静電スプレーにより直接皮膚上に形成させる工程である、<29>~<43>のいずれかに記載の皮膚のシワを改善する方法。

<45> 大ジワ (coarse lines) 及び小ジワ (fine lines) から選ばれる1種又は2種のシワの面積を10~30%減とする、<29>~<44>のいずれかに記載の皮膚のシワを改善する方法。

[0152] <46> 下記組成物(A)及び組成物(B)から選ばれる1種又は2種の組成物と、繊維を含む堆積物からなる被膜又は当該被膜を形成するための被膜形成用組成物との組み合わせの、皮膚シワ改善のための使用。

組成物(A)：両親媒性分子を含有し、且つラメラ構造を有する組成物。

組成物(B)：炭酸ガスを含有する組成物。

実施例

[0153] 以下、実施例を挙げて本発明を詳細に説明するが、本発明はこれら実施例に限定されるものではない。

[0154] [調製例1 ラメラローション(O/W型乳化化粧料)]

表1に示す処方に従って常法によりラメラローションを調製した。調製したローションの乾燥塗膜を小角X線回折測定することにより、ラメラ構造に特徴的な繰り返しの回折ピークを観察することでラメラ構造を有することを確認した。

[0155]

[表1]

成分 (質量%)	調製例1
a1-1 N-(ヘキサデシロキシヒドロキシプロピル)-N-ヒドロキシエチルヘキサデカナミド	1.9
a1-2 モノヘン酸グリセリル * 1	1.1
a1-2 ジソステアリン酸ポリグリセリル-2	0.33
a1-3 N-ステアロイル-L-グルタミン酸	0.59
a1-4 セタノール	0.9
a2 α-オレフィンオリゴマー * 2	2.5
a2 ワセリン * 3	1
a2 ジカブリン酸ネオペンチルグリコール	2
a2 オリブ油 * 4	1
a2 メチルポリシロキサン * 5	1
a2 メチルポリシロキサン * 6	5
a2 メチルポリシロキサン・架橋型メチルポリシロキサン混合物 * 7	0.3
パラオキシ安息香酸メチル	0.4
パラオキシ安息香酸エチル	0.05
L-アルギニン	0.345
水酸化カリウム	0.11
a3 グリセリン	16
a3 1,3-ブチレングリコール	5
a3 ポリエチレングリコール1540	3
カルボキシビニルポリマー	0.18
キサンタンガム	0.05
a4 精製水	57.245
合計 (質量%)	100

[0156] 表1中の記号は、それぞれ以下を示す。

*1 : サンソフト No. 8100-CK (太陽化学株式会社製)

*2 : SILKFLO 364 (Vantage Specialty Chemicals製)

*3 : スーパーホワイトプロトペット (Sonneborn, LLC製)

*4 : クロピュア OL-LQ-(JP) (クロージャパン株式会社製)

*5 : KF-96A-10CS (信越化学工業株式会社製)

*6 : KF-96A-50CS (信越化学工業株式会社製)

*7 : シリコーン KSG-16 (信越化学工業株式会社製)

[0157] [調製例2 エアゾール化粧品(噴射剤:炭酸ガス)]

表2に示す原液成分のうち、成分(b2)~(b6)を混合し、60℃で均一になるまで攪拌した。得られた液に、残りの原液成分を加え、均一になるまで攪拌した後、30℃に冷却することで、エアゾール化粧品の原液を得た。また、ガラス容器に原液100gを充填し、BM粘度計(東機産業社製)により(ローター:NO.3、回転数:12rpm、測定時間:1分間)、25℃における原液の粘度を測定した。25℃における原液の粘度を表2に示す。

次いで、耐圧容器内の圧力が0.8MPa(25℃)となるように、上記で得られた原液と噴射剤(炭酸ガス)を、エアゾール用耐圧容器(ステム:SM-S74(穴径φ0.3mm)三谷バルブ社製、ハウジング:HG-S7008(穴径φ0.4mm)三谷バルブ社製、スパウト:金冠付き肩カバー組付けスパウト(吉野工業所社製))に充填することで、エアゾール化粧品(フォームタイプ)を得た。

[0158]

[表2]

成分 (質量%)	調製例2
b2 イソノナン酸イソトリデシル	2
b2 メチルポリシロキサン *8	2.02
b2 メチルポリシロキサン *9	2
b2 メチルポリシロキサン *10	0.5
b3 ポリエチレングリコール1540	1
b3 ジブropilengリコール	5
b3 1,3-プロパンジオール	2
b4 ポリオキシエチレン硬化ヒマシ油(HLB:14) *11	0.5
b4 ポリオキシエチレン・メチルポリシロキサン共重合体(HLB:4.5) *12	0.5
b5 (アクリル酸/アクリル酸アルキル(C10-30))コポリマー *13	0.4
メタクリル酸ラウリル・ジメタクリル酸エチレングリコール・メタクリル酸ナトリウム共重合体水分分散液 *14	1.25
パラオキシ安息香酸メチル	0.2
フェノキシエタノール	0.35
ニコチン酸アミド	0.0001
リン酸二水素カリウム	0.23
48質量%水酸化カリウム液	0.57
エト酸二ナトリウム	0.05
香料	0.1
b6 精製水	81.3299
原液合計 (質量%)	100
原液	97.6
b1 炭酸ガス	2.4
原液と炭酸ガスの合計 (質量%)	100
25°Cにおける原液の粘度 (mPa·s)	4350
25°Cにおける原液のpH	6.9

[0159] 表2中の記号は、それぞれ以下を示す。

- * 8 : KF-96A-10CS (信越化学工業株式会社製)
- * 9 : KF-96A-50CS (信越化学工業株式会社製)
- * 10 : KF-96A-100CS (信越化学工業株式会社製)
- * 11 : エマノン CH-60K (花王株式会社製)
- * 12 : KF-6015 (信越化学工業株式会社製)
- * 13 : PEMULEN TR-1 (Lubrizol製)
- * 14 : ソフケア ST-G (花王株式会社製)

[0160] [調製例3 目元用被膜パッチ]

表3に示す各成分をビーカーに秤取り、プロペラミキサーを用いて常温で約12時間攪拌することで、繊維被膜形成用組成物を製造した。この繊維被膜形成用組成物を用いて、特開2020-90097号公報の記載に準じて静電スプレー法で被膜を形成させ、目の下から目尻までを覆うのに適したサイズ及び大きさに裁断することで、繊維の堆積物からなる目元用被膜パッチを調製した。目元用被膜パッチの繊維の太さ(円相当直径)は700nm、坪量は1.3g/m²、繊維量1.08g/m²である。

[0161] [表3]

成分 (質量%)		調製例3
c2	ポリビニルブチラール *15	12.0
c4	ジステアリルジモニウムクロリド *16	0.5
c3	1,3-ブチレングリコール	2.0
c1	99.5質量%エタノール水溶液	85.5
合計 (質量%)		100.0

[0162] 表3中の記号は、それぞれ以下を示す。

- * 15 : エスレックB BM-1 (積水化学工業株式会社製)
- * 16 : Varisoft TA100 (エポニックジャパン株式会社製)

[0163] [試験例1]

毎夕の洗顔後に以下の手順1)~手順2)を行い、翌朝に目元用被膜パッチを剥離するという一連の操作を、39~65歳の女性被験者9名に3週間継続してもらった。

手順1) 調製例1のラメラローション 約0.4 mLを顔全体と首に伸ばすようにして均一に塗擦する。

手順2) 手順1)の後、右目の下から右目の目尻にかけて(右眼輪筋の下半分)、又は左目の下から左目の目尻にかけて(左眼輪筋の下半分)のみに、調製例1のラメラローション 約0.2 mLを伸ばしきらないように塗布し、その上から、繊維の堆積物が皮膚と接触するようにして調製例3の目元用被膜パッチを貼り付ける。目元用被膜パッチの中央から端に向かって、15~30秒間優しく指でタップしながら転写させ、パッチに予め積層してある剥離フィルムをパッチから剥がす。

[0164] そして、手順1)のみを行った方の目の下から目尻にかけての部位、手順1)~手順2)を行った方の目の下から目尻にかけての部位それぞれについて、VISIA-CR (Canfield Scientific製)とMirror softwareを用いて撮影を行った。この撮影は、右45度、左45度、真正面の角度についてそれぞれStandard1、Standard2、parallel polarized lighting、cross-polarized lightingのモードで行い、取得した画像からシワの線の総計で示される面積を求めた。また、検出されたシワのうち、太さ0.28 mm以上のシワ、太さ0.28~0.34 mmのシワそれぞれについて、シワの線の総計で示される面積を記録した。これらの測定値と、試験開始前に予め測定しておいたシワの線の総計で示される面積(測定法は上記と同様)を用いて、試験開始前のシワの面積を基準とする試験開始から3週間経過後のシワ面積の変化を評価した。

検出された全シワの線の総計で示される面積の変化(縦軸の単位: mm²)を図3に、太さ0.28 mm以上のシワの線の総計で示される面積の変化(縦軸の単位: mm²)を図4に、太さ0.28~0.34 mmのシワの線の総計で示される面積の変化(縦軸の単位: mm²)を図5に、それぞれ示す。なお、図3~5中の実施例1は、手順1)~手順2)を行った方の目の下から目尻にかけての部位についての結果であり、比較例1は、手順1)のみを行

った方の目の下から目尻にかけての部位についての結果である。p値は、ANCOVAの検定を用いて算出した。

[0165] 〔試験例2〕

毎夕の洗顔後に以下の手順2-1)～手順2-2)を行い、翌朝に目元用被膜パッチを剥離するという一連の操作を、40～63歳の女性被験者12名に6週間継続してもらった。

手順2-1) 調製例2のエアゾール化粧品 約1gを顔全体と首に伸ばすようにして均一に塗擦する。

手順2-2) 手順2-1)の後、右目の下から右目の目尻にかけて(右眼輪筋の下半分)、又は左目の下から左目の目尻にかけて(左眼輪筋の下半分)のみに、調製例1のラメラローション 約0.2gを伸ばしきらないように塗布し、その上から、繊維の堆積物が皮膚と接触するようにして調製例3の目元用被膜パッチを貼り付ける。目元用被膜パッチの中央から端に向かって、15～30秒間優しく指でタップしながら転写させ、パッチに予め積層してある剥離フィルムをパッチから剥がす。

[0166] 試験開始前に、各被験者の目の下から目尻にかけての小ジワ(fine lines)の状態と大ジワ(coarse lines)の状態のそれぞれについて、シワが確認されない場合を「0」、シワが最も目立つ場合を「9」とする10段階の目視評価を専門パネルに行ってもらった。小ジワ(fine lines)の状態と大ジワ(coarse lines)の状態いずれについても試験開始前のスコアが3～6の範囲内であった被験者を選抜し、左目側、右目側それぞれについて選抜被験者の小ジワ状態の平均スコアを求めた。試験開始から1週間経過後、2週間経過後、3週間経過後、5週間経過後、6週間経過後に、選抜被験者の手順2-1)のみを行った方の目の下から目尻にかけての部位、選抜被験者の手順2-1)～手順2-2)を行った方の目の下から目尻にかけての部位それぞれについて、試験開始前と同様の評価を行った。試験開始前の小ジワ状態の平均スコアと試験開始後の小ジワ状態の平均スコアを用いて、試験開始前の平均スコアを基準とする

小ジワ状態のスコアの変化を評価した。

[0167] 小ジワ状態のスコアの変化を図6に示す。なお、図6中の実施例2は、手順2-1)～手順2-2)を行った方の目の下から目尻にかけての部位についての結果であり、比較例2は、手順2-1)のみを行った方の目の下から目尻にかけての部位についての結果である。p値は、Signed Rankの検定を用いて算出した。

[0168] [調製例4 繊維被膜形成用組成物]

前掲の表3に示す各成分をビーカーに秤取り、プロペラミキサーを用いて常温で約12時間攪拌することで、繊維被膜形成用組成物を製造した。

[0169] [試験例3]

毎夕の洗顔後に以下の手順3-1)～手順3-2)を行い、翌朝に繊維被膜を剥離してから朝の洗顔後に調製例2のエアゾール化粧品、市販の化粧水及び市販の乳液で肌を整えるという一連の操作を、35～64歳の女性被験者24名に13週間継続してもらった。

手順3-1) 調製例2のエアゾール化粧品 約1gを顔全体と首に伸ばすようにして均一に塗擦した後、市販の化粧水及び市販の乳液を同じように顔全体と首に塗擦する。

手順3-2) 手順3-1)の後、顔の右半分のみ調製例1のラメラローション 約0.4gを伸ばしきらないように塗布し、その上から、図1に示す構成を有し、図2に示す外観を有する静電スプレー装置10を用いて調製例4の繊維被膜形成用組成物を静電スプレーした。静電スプレーの条件は以下に示すとおりである。繊維被膜の繊維の太さ(円相当直径)は1000nm、坪量は28g/m²、繊維量23.2g/m²である。

[0170] (静電スプレー条件)

- ・適用部位：顔の右半分
- ・適用時間：30秒間
- ・印加電圧：10kV
- ・ノズルと適用対象物との距離：約80mm

- ・吐出速度：0.1 g/min
- ・適用環境：20℃、50%RH

[0171] 試験開始前に、各被験者の両目の目尻のシワの状態について、日本化粧品学会誌 Vol. 30, No. 4, pp. 316-332 (2006)に記載の抗シワ機能評価試験ガイドライン「2-7-5-2. 写真評価」に準じた写真評価を専門パネルに行ってもらった（シワがない場合を「0」、著しく深いシワが認められる場合を「7」とする8段階評価であるが、ガイドラインに記載のシワグレード標準写真に当てはまるものがない場合は、その中間値あるいは1/4値のスコアの導入も可とした）。試験開始前のスコアが3~5の範囲内であった被験者を選抜し、左目尻、右目尻それぞれについて選抜被験者の平均スコアを求めた。試験開始から13週間経過後に、選抜被験者の手順3-1)のみを行った左目の目尻、選抜被験者の手順3-1)~手順3-2)を行った右目の目尻それぞれについて、試験開始前と同様の評価を行った。

[0172] 手順3-1)~手順3-2)を行った右目の目尻（実施例3）についての結果を図7に、手順3-1)のみを行った左目の目尻（比較例3）についての結果を図8に、それぞれ示す。p値は、Wilcoxon符号付順位和検定を用いて算出した。

符号の説明

- [0173] 10 静電スプレー装置
- 11 低電圧電源
 - 12 高電圧電源
 - 13 補助的電気回路
 - 14 マイクロギヤポンプ
 - 15 容器
 - 16 ノズル
 - 17 管路
 - 18 フレキシブル管路

19 電流制限抵抗

20 筐体

請求の範囲

[請求項1] (工程 I B) 下記組成物 (B) を皮膚上に適用する工程と、(工程 I I) 繊維を含む堆積物からなる被膜を皮膚上に適用する工程とを、この順で又は逆の順で具備する、皮膚上への被膜の製造方法。

組成物 (B) : 炭酸ガスを含有する組成物。

[請求項2] (工程 I B) 下記組成物 (B) を皮膚上に適用する工程と、(工程 I I) 工程 I B で組成物 (B) が適用された皮膚上に、繊維を含む堆積物からなる被膜を適用する工程とを具備する、皮膚上への被膜の製造方法。

組成物 (B) : 炭酸ガスを含有する組成物。

[請求項3] さらに(工程 I A) 下記組成物 (A) を皮膚上に適用する工程を具備する、請求項 1 又は 2 に記載の皮膚上への被膜の製造方法。

組成物 (A) : 両親媒性分子を含有し、且つラメラ構造を有する組成物。

[請求項4] 前記両親媒性分子が、(a 1-1) セラミド類、(a 1-2) ヒドロキシ基を分子内に有する多価アルコール脂肪酸エステル類、(a 1-3) 界面活性剤、及び(a 1-4) 高級アルコールから選ばれる 1 種又は 2 種以上である、請求項 3 に記載の皮膚上への被膜の製造方法。

[請求項5] 組成物 (B) が、更に(b 2) 油剤、(b 3) 多価アルコール、(b 4) 界面活性剤、(b 5) 水溶性増粘剤及び(b 6) 水から選ばれる 1 種又は 2 種以上を含有する、請求項 1 ~ 4 のいずれか 1 項に記載の皮膚上への被膜の製造方法。

[請求項6] 組成物 (B) が、原液と噴射剤とが耐圧容器に充填されており、噴射剤として炭酸ガスを含有するエアゾール組成物である、請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 項に記載の皮膚上への被膜の製造方法。

[請求項7] 前記繊維を含む堆積物からなる被膜が、下記成分(c 1) 及び成分(c 2) を含有する組成物 X を静電スプレーしてできた被膜である、

請求項 1 ～ 6 のいずれか 1 項に記載の皮膚上への被膜の製造方法。

(c 1) 水、アルコール及びケトンから選ばれる 1 種又は 2 種以上の揮発性物質

(c 2) 被膜形成能を有するポリマー

[請求項 8] 工程 11 が、繊維を含む堆積物からなる被膜シートを皮膚に貼り付ける工程、又は繊維を含む堆積物からなる被膜を静電スプレーにより直接皮膚上に形成させる工程である、請求項 1 ～ 7 のいずれか 1 項に記載の皮膚上への被膜の製造方法。

[請求項 9] 繊維を含む堆積物と、炭酸ガスとを含有する、皮膚上に適用するための被膜。

[請求項 10] さらに両親媒性分子を含有する、請求項 9 に記載の被膜。

[請求項 11] 両親媒性分子及び炭酸ガスから選ばれる 1 種又は 2 種の成分を、繊維の繊維間及び繊維表面から選ばれる 1 種又は 2 種に含有する、請求項 10 に記載の被膜。

[請求項 12] 下記組成物 (B) と、繊維を含む堆積物からなる被膜又は当該被膜を形成するための被膜形成用組成物とを備える、被膜形成用キット。

組成物 (B) : 炭酸ガスを含有する組成物。

[請求項 13] さらに下記組成物 (A) を備える、請求項 12 に記載の被膜形成用キット。

組成物 (A) : 両親媒性分子を含有し、且つラメラ構造を有する組成物。

[請求項 14] 請求項 12 又は 13 に記載のキットの、皮膚シワ改善のための使用。

[請求項 15] (工程 1) 下記組成物 (A) 及び組成物 (B) から選ばれる 1 種又は 2 種の組成物を皮膚上に適用する工程と、(工程 11) 繊維を含む堆積物からなる被膜を皮膚上に適用する工程とを、この順で又は逆の順で具備する、皮膚のシワを改善する方法。

組成物 (A) : 両親媒性分子を含有し、且つラメラ構造を有する組

成物。

組成物（B）：炭酸ガスを含有する組成物。

[請求項16] 工程11が、繊維を含む堆積物からなる被膜を1日あたり4～20時間皮膚上で保持してから剥離する工程である、請求項15に記載の皮膚のシワを改善する方法。

[請求項17] 3～24週間連用する、請求項15又は16に記載の皮膚のシワを改善する方法。

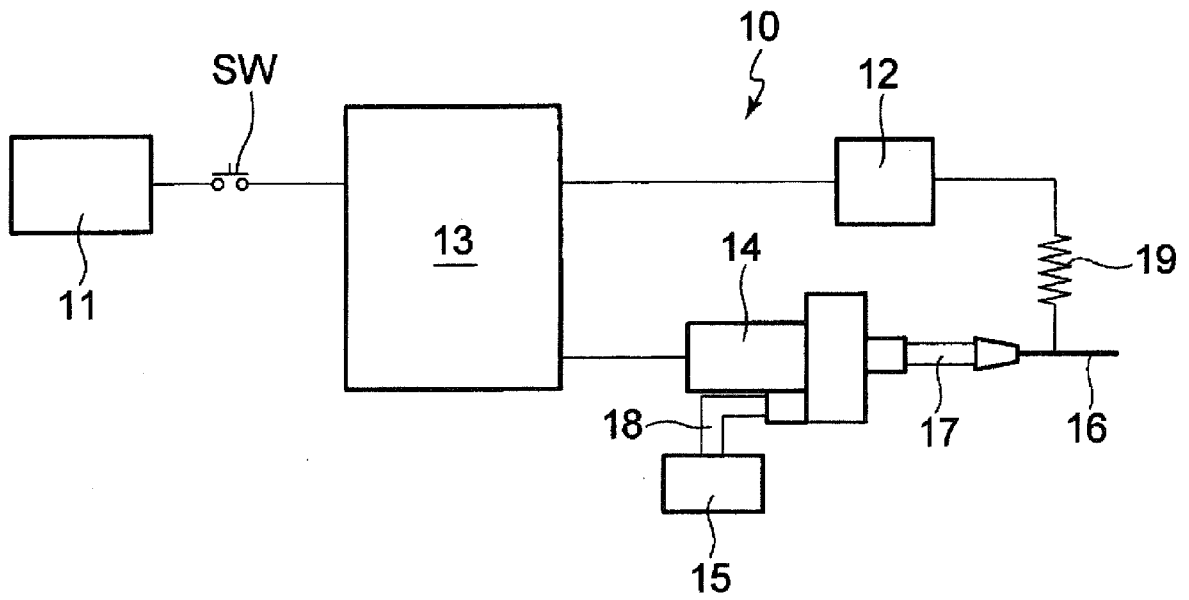
[請求項18] 大ジワ（*coarse lines*）及び小ジワ（*fine lines*）から選ばれる1種又は2種のシワの面積を10～30%減とする、請求項15～17のいずれか1項に記載の皮膚のシワを改善する方法。

[請求項19] 下記組成物（A）及び組成物（B）から選ばれる1種又は2種の組成物と、繊維を含む堆積物からなる被膜又は当該被膜を形成するための被膜形成用組成物との組み合わせの、皮膚シワ改善のための使用。

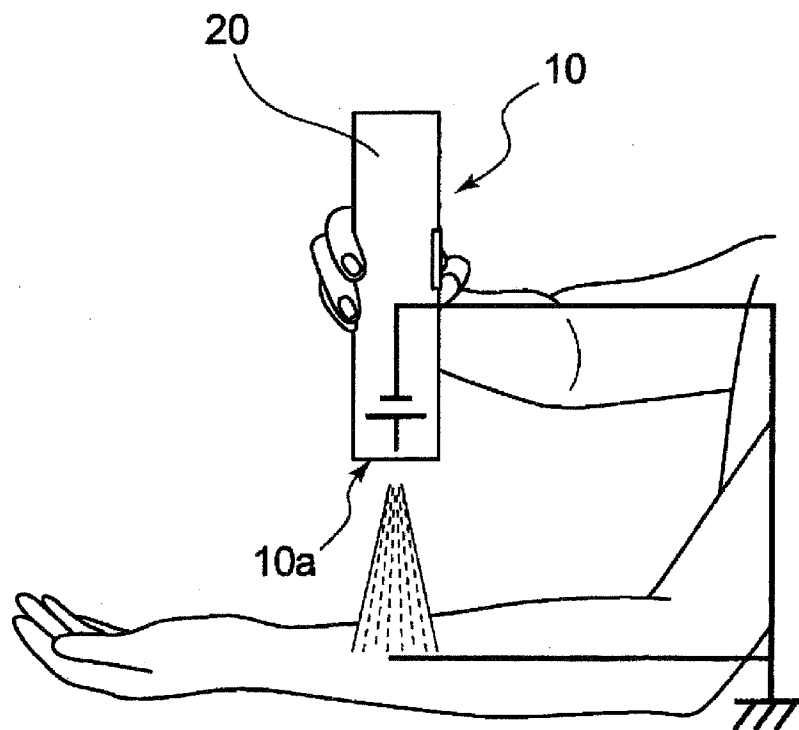
組成物（A）：両親媒性分子を含有し、且つラメラ構造を有する組成物。

組成物（B）：炭酸ガスを含有する組成物。

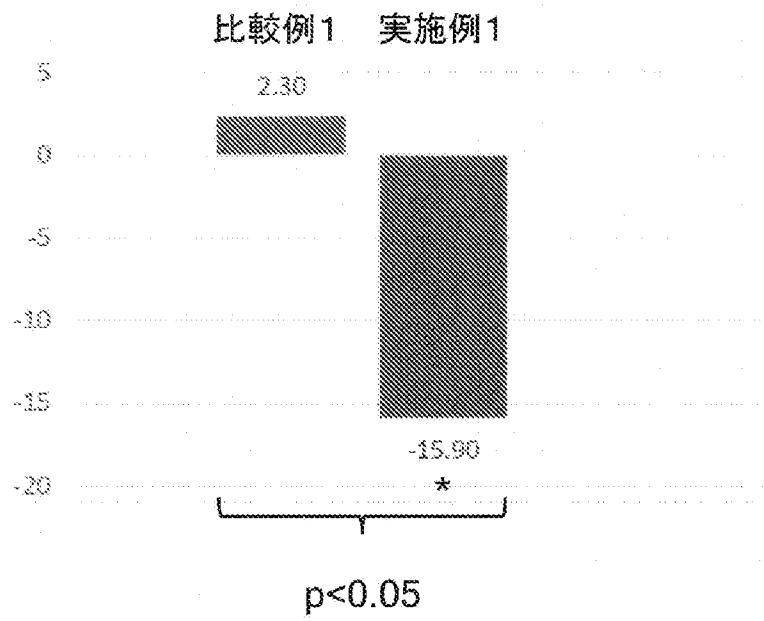
[図1]



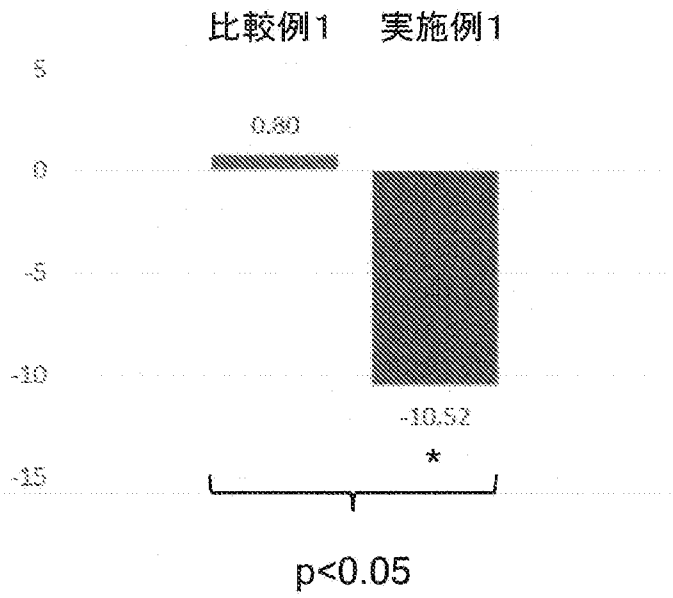
[図2]



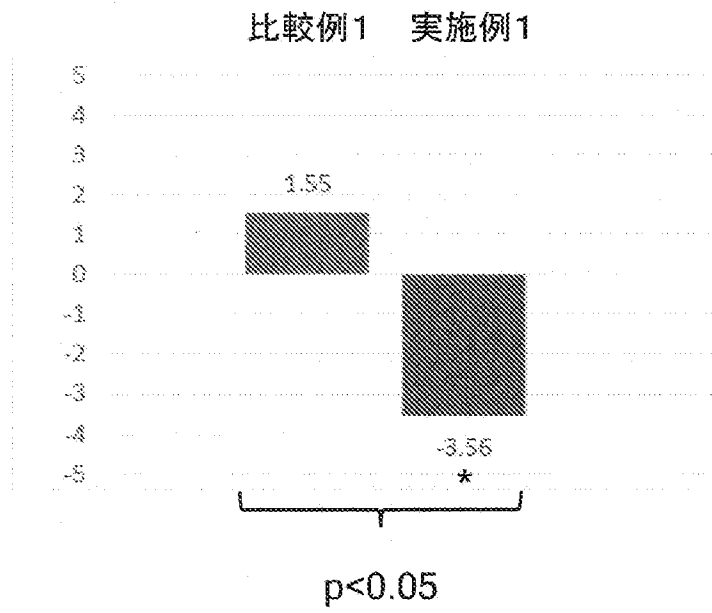
[図3]



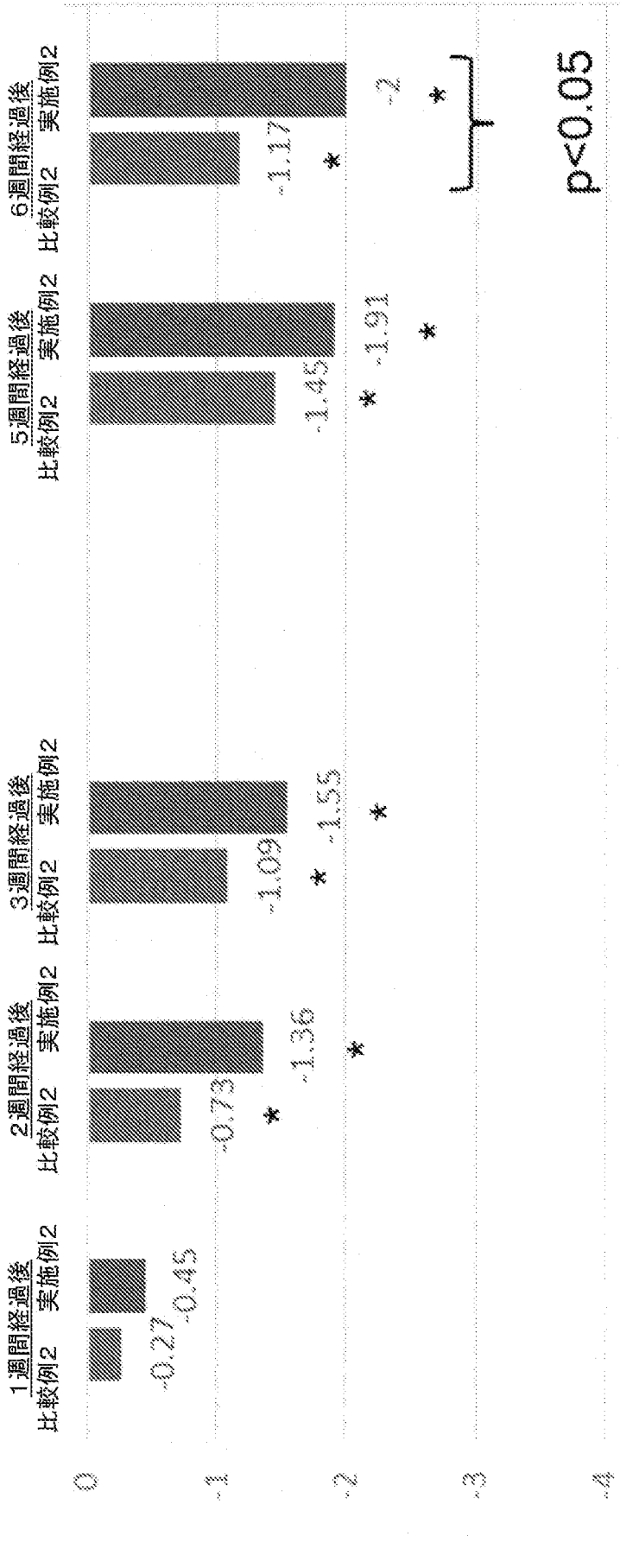
[図4]



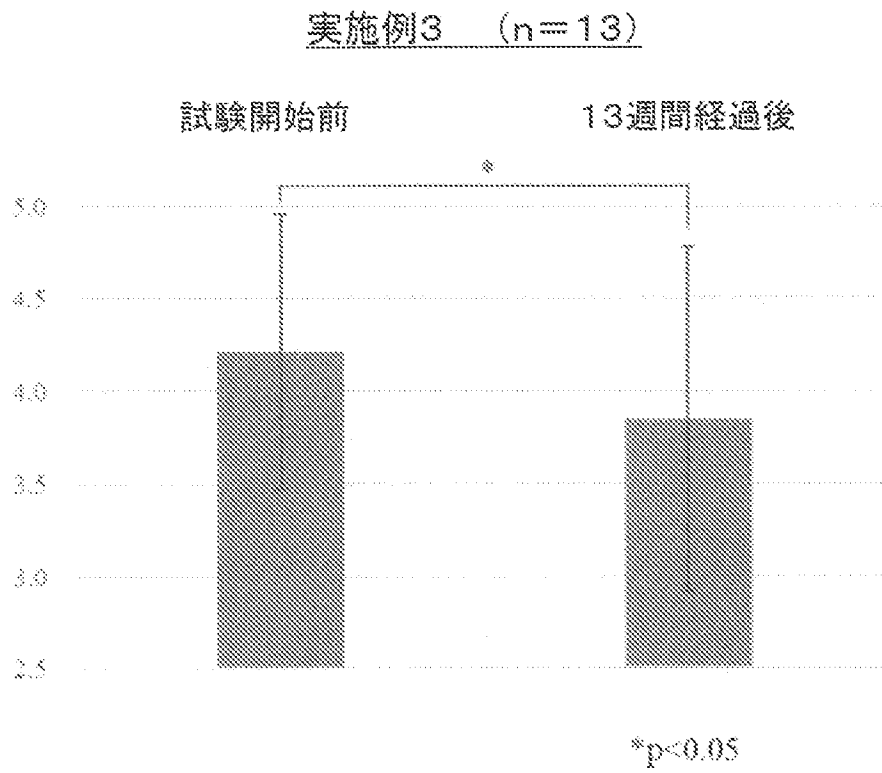
[図5]



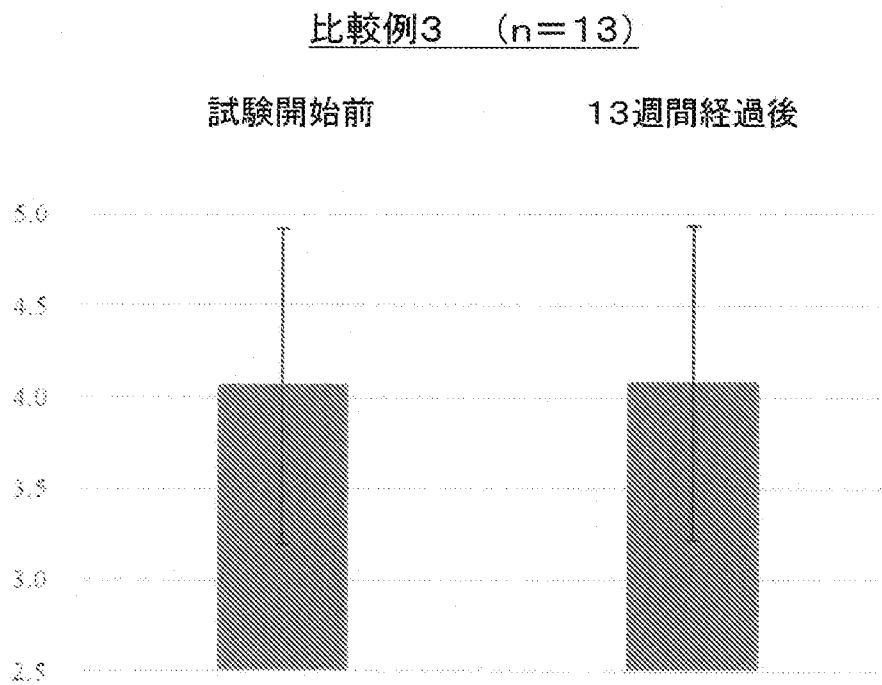
[図6]



[図7]



[図8]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2021/029753

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
<p><i>A61Q 19/00</i>(2006.01)i; <i>A61Q 19/08</i>(2006.01)i; <i>A61K 8/02</i>(2006.01)i; <i>A61K 8/19</i>(2006.01)i; <i>A61K 8/34</i>(2006.01)i; <i>A61K 8/35</i>(2006.01)i; <i>A61K 8/81</i>(2006.01)i FI: A61K8/19; A61K8/34; A61K8/35; A61K8/81; A61K8/02; A61Q19/00; A61Q19/08</p> <p>According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC</p>		
B. FIELDS SEARCHED		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) A61Q19/00; A61Q19/08; A61K8/02; A61K8/19; A61K8/34; A61K8/35; A61K8/81		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Published examined utility model applications of Japan 1922-1996 Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2021 Registered utility model specifications of Japan 1996-2021 Published registered utility model applications of Japan 1994-2021		
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.
Y	WO 2019/156146 A1 (KAO CORP.) 15 August 2019 (2019-08-15) claim 1, test example 1	1-19
Y	JP 2016-188199 A (NAGOYA AEROSOL KK) 04 November 2016 (2016-11-04) claims 1, 4	1-19
Y	JP 2012-171958 A (KIKOH CORP.) 10 September 2012 (2012-09-10) claims 1, 7, paragraph [0010]	14-19
A	WO 2017/069079 A1 (KAO CORP.) 27 April 2017 (2017-04-27) entire text	1-19
A	JP 2016-527218 A (THE PROCTER & GAMBLE CO.) 08 September 2016 (2016-09-08) entire text	1-19
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.		
<p>* Special categories of cited documents:</p> <p>“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date</p> <p>“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)</p> <p>“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p> <p>“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</p> <p>“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</p> <p>“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</p> <p>“&” document member of the same patent family</p>		
Date of the actual completion of the international search 16 September 2021		Date of mailing of the international search report 05 October 2021
Name and mailing address of the ISA/JP Japan Patent Office (ISA/JP) 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915 Japan		Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2021/029753

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
WO	2019/156146	A1	15 August 2019	US 2021/0038530 A1 claim 1, test example 1	
				TW 201936159 A	
JP	2016-188199	A	04 November 2016	(Family: none)	
JP	2012-171958	A	10 September 2012	(Family: none)	
WO	2017/069079	A1	27 April 2017	US 2019/0053602 A1	
				EP 3366270 A1	
				CN 108135789 A	
				KR 10-2018-0051670 A	
JP	2016-527218	A	08 September 2016	US 2015/0037380 A1	
				WO 2015/009694 A1	
				EP 3021818 A1	
				CN 105377219 A	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） A61Q 19/00(2006.01)i; A61Q 19/08(2006.01)i; A61K 8/02(2006.01)i; A61K 8/19(2006.01)i; A61K 8/34(2006.01)i; A61K 8/35(2006.01)i; A61K 8/81(2006.01)i FI: A61K8/19; A61K8/34; A61K8/35; A61K8/81; A61K8/02; A61Q19/00; A61Q19/08		
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）） A61Q19/00; A61Q19/08; A61K8/02; A61K8/19; A61K8/34; A61K8/35; A61K8/81 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2021年 日本国実用新案登録公報 1996-2021年 日本国登録実用新案公報 1994-2021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
Y	WO 2019/156146 A1 (花王株式会社) 15.08.2019 (2019-08-15) 請求項1, 試験例1	1-19
Y	JP 2016-188199 A (名古屋エアゾール株式会社) 04.11.2016 (2016-11-04) 請求項1, 4	1-19
Y	JP 2012-171958 A (株式会社キコーコーポレーション) 10.09.2012 (2012-09-10) 請求項1, 7, [0010]	14-19
A	WO 2017/069079 A1 (花王株式会社) 27.04.2017 (2017-04-27) 全文	1-19
A	JP 2016-527218 A (ザ プロクター アンド ギャンブル カンパニー) 08.09.2016 (2016-09-08) 全文	1-19
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" 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、一般的な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抵触するものではなく、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	国際調査報告の発送日	
16.09.2021	05.10.2021	
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	権限のある職員（特許庁審査官） 長谷部 智寿 4D 1586 電話番号 03-3581-1101 内線 3421	

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2021/029753

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
WO	2019/156146	A1	15.08.2019	US	2021/0038530	A1	
					請求項1, 試験例1		
				TW	201936159	A	
JP	2016-188199	A	04.11.2016	(ファミリーなし)			
JP	2012-171958	A	10.09.2012	(ファミリーなし)			
WO	2017/069079	A1	27.04.2017	US	2019/0053602	A1	
				EP	3366270	A1	
				CN	108135789	A	
				KR	10-2018-0051670	A	
JP	2016-527218	A	08.09.2016	US	2015/0037380	A1	
				WO	2015/009694	A1	
				EP	3021818	A1	
				CN	105377219	A	