



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公告本

(11)證書號數：TW I868280 B

(45)公告日：中華民國 114 (2025) 年 01 月 01 日

(21)申請案號：109144602 (22)申請日：中華民國 109 (2020) 年 12 月 17 日
(51)Int. Cl. : A61K8/891 (2006.01) A61K8/92 (2006.01)
A61Q19/08 (2006.01)
(30)優先權：2019/12/27 日本 2019-238767
(71)申請人：日商花王股份有限公司 (日本) KAO CORPORATION (JP)
日本
(72)發明人：飯田将行 IIDA, MASAYUKI (JP)；進邦點美 (あゆみ) SHIMPO, AYUMI (JP)；宮
崎志洋 MIYAZAKI, YUKIHIRO (JP)；中嶋亮太 NAKAJIMA, RYOTA (JP)；川本
幸世 KAWAMOTO, SACHIYO (JP)
(74)代理人：賴經臣；宿希成
(56)參考文獻：
CN 102274133A JP 2004026731A
審查人員：徐永任
申請專利範圍項數：7 項 圖式數：2 共 47 頁

(54)名稱

皮膚外用劑組成物

(57)摘要

本發明為一種皮膚外用劑組成物，其含有下述成分(A)、(B)及(C)：

(A)具有聚矽氧構造之聚合物，依既定之方法(1)測定之變形比例為 0.3 以上且 1 以下，且依既定之方法(2)進行之圓柱軸法之耐彎曲性試驗中，於該聚合物膜不發生裂痕之圓柱軸之最小直徑為 2mm 以上且 25mm 以下的聚合物：0.1~30 質量%；

(B)依 1 大氣壓下、40°C、60%R.H.乾燥 30 分鐘後之揮發率為 14%以上的揮發性油；

(C)不揮發性油；

成分(A)相對於成分(C)之質量比例(A)/(C)為 1~150。



I868280

【發明摘要】

【中文發明名稱】 皮膚外用劑組成物

【中文】

本發明為一種皮膚外用劑組成物，其含有下述成分(A)、(B)及(C)：

(A)具有聚矽氧構造之聚合物，依既定之方法(1)測定之變形比例為0.3以上且1以下，且依既定之方法(2)進行之圓柱軸法之耐彎曲性試驗中，於該聚合物膜不發生裂痕之圓柱軸之最小直徑為2mm以上且25mm以下的聚合物：0.1~30質量%；

(B)依1大氣壓下、40℃、60%R.H.乾燥30分鐘後之揮發率為14%以上的揮發性油；

(C)不揮發性油；

成分(A)相對於成分(C)之質量比例(A)/(C)為1~150。

【指定代表圖】 無

【發明說明書】

【中文發明名稱】 皮膚外用劑組成物

【技術領域】

【0001】 本發明係關於皮膚外用劑組成物。

【先前技術】

【0002】 隨著年齡增加，人皮膚之皺紋變多。此係皮膚老化現象之一部分，受到皮膚組織之變化、紫外線曝曬之影響等複數因子所左右。

習知，已研討有用於使皮膚皺紋不明顯的護膚商品等，但其改善效果極低，並無法獲得有皺紋煩惱之女性的滿足度。

另一方面，以提升化妝膜之均勻性或化妝料之持久為目的，已知有調配了膜形成性聚合物的化妝料。例如，專利文獻1記載有一種化妝料，係含有對聚環烯烴聚合體之骨架導入了既定官能基的膜形成性聚合物，該化妝料之持妝及觸感良好。

【0003】 (專利文獻1)日本專利特開2012-17317號公報

【發明內容】

【0004】 本發明係關於一種皮膚外用劑組成物，其含有下述成分(A)、(B)及(C)：

(A)具有聚矽氧構造之聚合物，依下述方法(1)測定之變形比例為0.3以上且1以下，且依下述方法(2)進行之圓柱軸法之耐彎曲性試驗中，於該聚合物膜不發生裂痕之圓柱軸之最小直徑為2mm以上且25mm以下的聚合物：0.1~30質量%；

方法(1)：調製上述聚合物之10質量%六甲基二矽氧烷溶液。將該溶液0.005g，於寬20mm×長100mm×厚0.03mm之聚乙烯片材之單面，由短

邊之一端起朝長度方向塗佈為寬20mm×長50mm之範圍，於設定為40°C之恆溫槽中乾燥10分鐘。將已塗佈上述溶液之部分的聚乙烯片材之長度設為L1、將乾燥後因收縮而變形之部分的聚乙烯片材之長度設為L2，以L2/L1之值作為變形比例。

方法(2)：調製上述聚合物之30質量%六甲基二矽氧烷溶液。將該溶液使用200 μ m之施用器塗佈於寬50mm×長100mm×厚0.1mm之聚對苯二甲酸乙二酯薄膜，於設定為40°C之恆溫槽中乾燥120分鐘而製作試驗片。使用該試驗片，依據JIS K5600-5-1：1999規定之圓柱軸法進行耐彎曲性試驗，求得該試驗片上之聚合物膜不發生裂痕的圓柱軸之最小直徑。

(B)依1大氣壓下、40°C、60%R.H.乾燥30分鐘後之揮發率為14%以上的揮發性油；

(C)不揮發性油；

成分(A)相對於成分(C)之質量比例(A)/(C)為1~150。

【圖式簡單說明】

【0005】

圖1(a)及(b)為由方法(1)進行之聚合物之變形比例(L2/L1)之評價方法的說明圖。

圖2為表示實施例中，評價皺紋改善效果時，塗佈各皮膚外用劑組成物之形態的圖。

【實施方式】

【0006】 習知之含有膜形成性聚合物的化妝料，係皺紋改善效果不足，亦存在塗膜經時性地剝離、自周圍白化、外觀不美觀等課題。

【0007】 本案發明人等發現，藉由於特定之膜形成性聚合物中依特定比例組合使用不揮發性油，可獲得維持高收縮性、改善皺紋，同

時抑制經時性之塗膜剝離或白化、呈現美觀且自然之完妝的皮膚外用劑組成物，遂完成本發明。

【0008】 本發明之皮膚外用劑組成物可改善皮膚皺紋，獲得均勻美觀且自然之完妝，抑制經時性之塗膜剝離或白化。

本說明書中所謂「皮膚皺紋」，意指因皮膚下垂所出現之形狀變化，於皮膚表面出現之凹凸及紋路。皮膚皺紋容易出現於嘴周、眼周、額、頸、身體等。小紋路為小皺紋，大紋路為大皺紋，大皺紋係因法令紋、臉頰等之毛孔分佈而發生。本發明之皮膚外用劑組成物可發揮使各種皺紋均不明顯的效果，尤其即使如法令紋般之大皺紋亦可依非侵入式加以改善。

【0009】

<成分(A)>

本發明所使用之成分(A)係具有聚矽氧構造之聚合物，依上述方法(1)測定之變形比例為0.3以上且1以下，且依上述方法(2)進行之圓柱軸法之耐彎曲性試驗中，於該聚合物膜不發生裂痕之圓柱軸之最小直徑為2mm以上且25mm以下。

藉由使成分(A)滿足依方法(1)測定之上述變形比例，例如在將含有屬於成分(A)之聚合物的組成物塗佈至皺紋周邊部之皮膚等而應用，接著使該組成物乾燥時，隨著含有該聚合物之膜的收縮，密黏於該膜之皮膚表面亦收縮。藉由此作用，由於發生皺紋之部分的皮膚被延伸，故可使皺紋變得不明顯。

【0010】 參照圖1說明依上述方法(1)測定之成分(A)之變形比例(L2/L1)的評價方法。首先，調製組成物所使用成分(A)之10質量%六甲基二矽氧烷溶液。將此溶液0.005g，於圖1(a)所示寬(W)20mm×長

(L0)100mm×厚0.03mm之聚乙烯片材1之單面，由聚乙烯片材1之短邊之一端1a起朝長度方向塗佈為寬20mm×長50mm之範圍(圖1(a)所示2之部分)，於設定為40°C之恆溫槽中乾燥10分鐘。圖1(b)為將塗佈了上述溶液之聚乙烯片材1乾燥後，其一部分因屬於成分(A)之聚合物之收縮而發生變形(彎曲)之聚乙烯片材的概略圖。

於乾燥後之聚乙烯片材(圖1(b))中，將塗佈了溶液之部分的聚乙烯片材之長度設為L1(50mm)、將乾燥後因收縮而變形之部分的聚乙烯片材之長度設為L2，算出L2/L1，以此值作為變形比例。L2設為於聚乙烯片材1之2個長邊上所計測之值的平均值。L2/L1之值越大，表示因乾燥所造成之該聚合物之收縮量越大，L2/L1之上限為1。

【0011】 由延伸皮膚皺紋使其不明顯的觀點而言，成分(A)之依上述方法(1)評價之變形比例L2/L1為0.3以上、較佳為0.5以上、更佳為0.6以上、又更佳為0.7以上、再更佳為0.8以上、又再更佳為0.85以上、特佳為0.9以上、最佳為0.95以上，且上限為1。

該變形比例具體而言可依實施例記載的方法進行評價。

【0012】 又，成分(A)係耐彎曲性優越，依上述方法(2)進行之圓柱軸法之耐彎曲性試驗中，於屬於成分(A)之聚合物之膜不發生裂痕之圓柱軸之最小直徑為2mm以上且25mm以下。藉此，藉由含有成分(A)之組成物所形成的膜不易發生龜裂，且容易依追隨著皮膚形狀的狀態收縮。

上述圓柱軸之最小直徑越小，意味著耐彎曲性越良好。由含有上述聚合物之膜收縮時獲得該膜與皮膚表面間之充分密黏性的觀點而言，該最小直徑為25mm以下、較佳為20mm以下、更佳為12mm以下、又更佳為8mm以下、再更佳為6mm以下、特佳為5mm以下。另一方面，由為了延伸皮膚皺紋使其不明顯而賦予充分之強度及形狀控制效果的觀點而

言，不發生裂痕之圓柱軸之最小直徑為2mm以上、較佳為3mm以上。該圓柱軸之最小直徑之具體範圍為2~25mm、較佳為2~20mm、更佳為2~12mm、又更佳為2~8mm、再更佳為3~6mm、特佳為3~5mm。

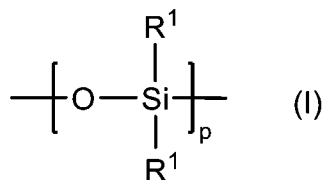
該耐彎曲性可使用JIS K5600-5-1：1999規定之型式1之彎折試驗裝置，具體而言依實施例記載的方法進行評價。

【0013】 又，成分(A)中，依上述方法(1)求得之變形比例相對於依上述方法(2)求得之圓柱軸之最小直徑(mm)的比率[(變形比例)/(圓柱軸之最小直徑)]，係由皮膚之皺紋改善效果的觀點而言，較佳為0.01以上、更佳為0.02以上、又更佳為0.10以上、再更佳為0.15以上，由為了延伸皮膚皺紋使其不明顯而賦予充分之強度及形狀控制效果的觀點而言，較佳為0.5以下、更佳為0.4以下。上述比率之具體範圍較佳為0.01~0.5、更佳為0.02~0.5、又更佳為0.10~0.5、再更佳為0.15~0.5、特佳為0.15~0.4。

【0014】 本發明中，所謂「聚矽氧構造」係指下述一般式(I)所示構造。

【0015】

[化1]



【0016】 一般式(I)中，R¹分別獨立為碳數1以上且12以下之烴基，p為1以上之整數。由應用時延伸皮膚皺紋使其不明顯、獲得充分之皺紋改善效果的觀點(以下亦稱為「皮膚之皺紋改善效果」)及通用性的觀點而言，R¹較佳為碳數1以上且12以下之烷基或碳數6以上且12以下之

芳基，更佳為碳數1以上且12以下之烷基或苯基，又更佳為碳數1以上且3以下之烷基，再更佳為甲基。

【0017】 屬於成分(A)之聚合物若具有聚矽氧構造即可，亦可為僅由聚矽氧構造所構成的聚合物，但由作為具有上述既定特性之聚合物的觀點而言，較佳係一部分具有聚矽氧構造之聚合物。

在一部分具有聚矽氧構造之聚合物的情況，該聚矽氧構造可於聚合物中存在於主鏈、側鏈之任一者，由作為具有上述既定特性之聚合物的觀點而言，較佳係存在於側鏈。

在聚矽氧構造存在於聚合物主鏈的情況，其結合形態並無特別限制，例如，聚矽氧構造可存在於聚合物主鏈之末端，亦可為於聚合物主鏈中使聚矽氧構造依嵌段狀或無規狀鍵結的共聚合聚合物。又，亦可使用藉由具有聚矽氧構造之化合物經接枝改質的聚合物。

【0018】 作為本發明所使用之成分(A)，較佳為聚矽氧改質聚合物，作為其具體例，可舉例如聚矽氧改質聚降萘烯等之含有降萘烷構造的聚矽氧改質聚合物；聚矽氧改質聚三葡萄糖；三烷基矽氧基矽酸、氟改質烷基矽氧基矽酸、苯基改質烷基矽氧基矽酸等含聚矽氧構造之矽酸化合物；聚矽氧樹枝狀聚合物等。

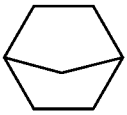
【0019】

(含有降萘烷構造之聚矽氧改質聚合物)

本發明中，所謂降萘烷構造，意指下式所示構造。含有降萘烷構造之聚矽氧改質聚合物若為於聚合物中之任意部位具有該式所示構造的聚矽氧改質聚合物即可。

【0020】

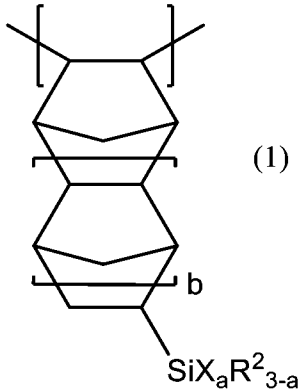
[化2]



【0021】 作為含有降萜烷構造之聚矽氧改質聚合物，可舉例如具有下述一般式(1)或(2)所示重複單位的聚合物。

【0022】

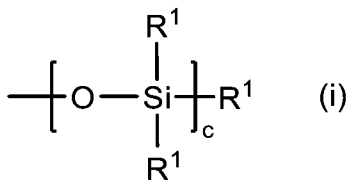
[化3]



【0023】 式中， R^2 分別獨立為碳數1以上且12以下之烷基，X表示下式(i)所示基。 a 為1以上且3以下之整數， b 為0以上且2以下之整數。

【0024】

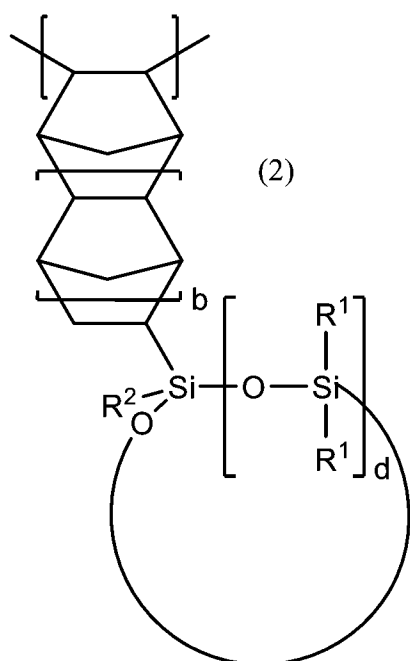
[化4]



【0025】 式中， R^1 係與上述相同， c 為1以上且5以下之整數。

【0026】

[化5]



【0027】 式中， R^1 、 R^2 及 b 係與上述相同， d 為2以上且5以下之整數。

【0028】 上述一般式(1)中， R^2 分別獨立為碳數1以上且12以下之烷基，由皮膚之皺紋改善效果的觀點及通用性的觀點而言，較佳為甲基、乙基、正丙基、丁基或戊基，更佳為甲基。

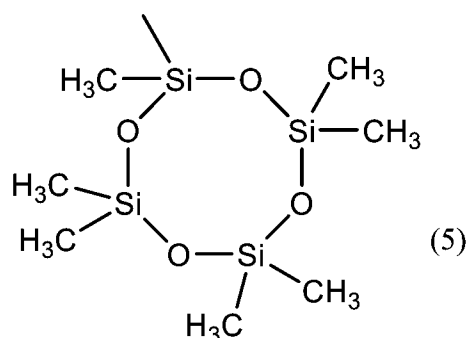
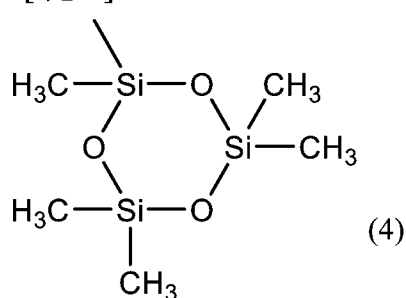
X 為上式(i)所示基，式(i)中， R^1 分別獨立為碳數1以上且12以下之烴基。由皮膚之皺紋改善效果的觀點及通用性的觀點而言， R^1 較佳為碳數1以上且12以下之烷基或碳數6以上且12以下之芳基，更佳為碳數1以上且12以下之烷基或苯基，又更佳為碳數1以上且3以下之烷基，再更佳為甲基。 c 為1以上且5以下之整數，由通用性的觀點而言，較佳係 $c=1$ 。亦即 X 較佳為三甲基矽氧基。

a 為1以上且3以下之整數，例如可為 $a=2$ 之重複單位與 $a=3$ 之重複單位混合存在的聚合體。由通用性的觀點而言， a 較佳為3。 b 為0以上且2以下之整數，由同樣的觀點而言，較佳為0、1或此等之組合，更佳為0。

【0029】 上述一般式(2)中， R^1 、 R^2 及b係與上述相同。d為2以上且5以下之整數，由通用性的觀點而言，較佳係d=2。一般式(2)中之環狀聚矽氧構造，係由同樣觀點而言，較佳係 R^1 及 R^2 為甲基、d為2或3。亦即，一般式(2)中之環狀聚矽氧構造較佳係下式(4)或(5)所示構造。

【0030】

[化6]

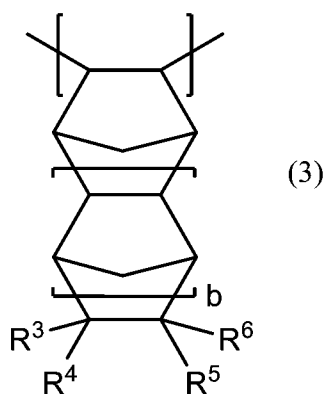


【0031】 由皮膚之皺紋改善效果的觀點而言，含有降萘烷構造之聚矽氧改質聚合物中上述一般式(1)或(2)所示重複單位的比例，係於該聚合物中之總重複單位數中，較佳為10%以上、更佳為30%以上、又更佳為50%以上。又，上限為100%、較佳為95%以下、更佳為90%以下、又更佳為70%以下。含有降萘烷構造之聚矽氧改質聚合物中上述一般式(1)或(2)所示重複單位的具體範圍，係於該聚合物中之總重複單位數中，較佳為10~100%、更佳為10~95%、又更佳為30~90%、再更佳為50~70%。

【0032】 含有降萘烷構造之聚矽氧改質聚合物中，除了上述一般式(1)或(2)所示重複單位之外，亦可具有下述一般式(3)所示重複單位。

【0033】

[化7]



【0034】 式中， $R^3 \sim R^6$ 分別獨立為選自氫原子、鹵素原子、碳數1以上且10以下之烷基、烯基、環烷基、芳基、烷氧基、芳氧基及鹵化烴基的取代基，或氧環丁烷基、烷氧基羰基、聚氧伸烷基、聚甘油基、或烷氧矽基。選自 $R^3 \sim R^6$ 之2個基亦可彼此鍵結形成脂環構造、芳香環構造、碳亞胺基或酸酐基。 b 係與上述相同。

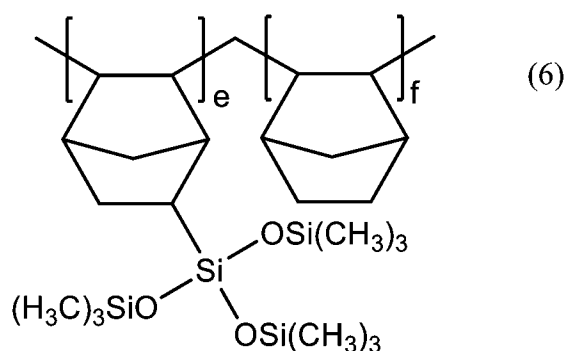
【0035】 含有降萘烷構造之聚矽氧改質聚合物中之上述一般式(3)所示重複單位的比例，係由皮膚之皺紋改善效果的觀點而言，於該聚合物中之總重複單位數中，較佳為90%以下、更佳為70%以下、又更佳為50%以下。又，於含有上述一般式(3)所示重複單位的情況，其比例係於該聚合物中之總重複單位數中，較佳為5%以上、更佳為10%以上、又更佳為30%以上。含有降萘烷構造之聚矽氧改質聚合物中上述一般式(3)所示重複單位數的具體範圍，係於該聚合物中之總重複單位數中，較佳為5~90%、更佳為10~70%、又更佳為30~50%。

含有降萘烷構造之聚矽氧改質聚合物中上述一般式(1)~(3)所示重複單位的比例，可藉由 $^1\text{H-NMR}$ 測定求得。

【0036】 作為含有降萘烷構造之聚矽氧改質聚合物，較佳為聚矽氧改質聚降萘烯，更佳係下式(6)所示之聚矽氧改質聚降萘烯。

【0037】

[化8]



【0038】 式中， e 、 f 為重複單位數，且分別獨立為1以上之整數。

由皮膚之皺紋改善效果的觀點而言，一般式(6)中之 e 與 f 的比例較佳係 $e/f=20/80\sim 90/10$ (mol/mol)、更佳係 $30/70\sim 80/20$ (mol/mol)、又更佳係 $50/50\sim 70/30$ (mol/mol)。

【0039】 含有降萜烷構造之聚矽氧改質聚合物之數量平均分子量 M_n ，係由兼顧收縮性與耐彎曲性的觀點及皮膚之皺紋改善效果的觀點而言，較佳為5萬以上、更佳為10萬以上、又更佳為20萬以上，且較佳為200萬以下、更佳為150萬以下、又更佳為80萬以下、再更佳為60萬以下。含有降萜烷構造之聚矽氧改質聚合物之數量平均分子量 M_n 的具體範圍，較佳為5萬~200萬、更佳為10萬~150萬、又更佳為20萬~80萬、再更佳為20萬~60萬。

該聚合物之數量平均分子量 M_n 可藉由以聚苯乙烯為標準物質之凝膠過濾層析(GPC)法進行測定，具體而言可藉由實施例記載之方法進行測定。

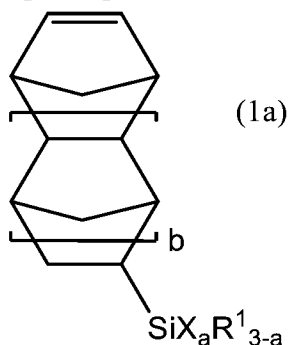
【0040】 含有降萜烷構造之聚矽氧改質聚合物係例如使含有降萜烷構造或可形成降萜烷構造之聚矽氧改質環狀烯烴單體依公知方法加成聚合而獲得。

例如，若為具有上述一般式(1)或(2)所示重複單位之含有降萜烷構造之聚矽氧改質聚合物，則可使下述一般式(1a)或(2a)所示環狀烯烴單

體加成聚合而獲得。再者，亦可使下述一般式(3a)所示環狀烯烴單體進行共聚合。

【0041】

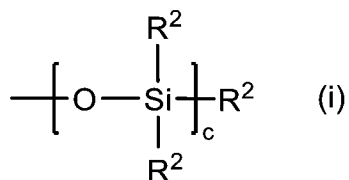
[化9]



【0042】 式中， R^1 分別獨立為碳數1以上且12以下之烷基， X 為下式(i)所示基。 a 為1以上且3以下之整數， b 為0以上且2以下之整數。

【0043】

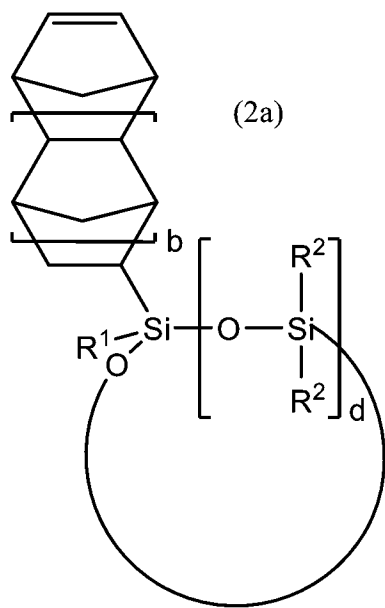
[化10]



【0044】 式中， R^2 分別獨立為碳數1以上且12以下之烴基， c 為1以上且5以下之整數。

【0045】

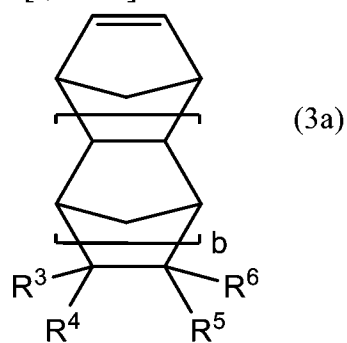
[化11]



【0046】 式中， R^1 、 R^2 及 b 係與上述相同， d 為2以上且5以下之整數。

【0047】

[化12]



【0048】 式中， R^3 ~ R^6 分別獨立為選自氫原子、鹵素原子、碳數1以上且10以下之烷基、烯基、環烷基、芳基、烷氧基、芳氧基及鹵化烴基的取代基，或氧環丁烷基、烷氧基羰基、聚氧伸烷基、聚甘油基、或烷氧矽基。選自 R^3 ~ R^6 之2個基亦可彼此鍵結形成脂環構造、芳香環構造、碳亞胺基或酸酐基。 b 係與上述相同。

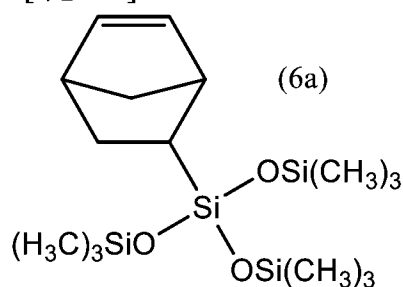
【0049】 在使上述一般式(3a)所示環狀烯烴單體進行共聚合時，其使用量係由皮膚之皺紋改善效果的觀點而言，將聚合所使用之總單體設為100莫耳%時，其較佳為90莫耳%以下、更佳為70莫耳%以下、又更

佳為50莫耳%以下，且較佳為5莫耳%以上、更佳為10莫耳%以上、又更佳為30莫耳%以上。

【0050】 上式(6)所示聚矽氧改質聚降萜烯可使下式(6a)所示參(三甲基矽氧基)矽基降萜烯、與降萜烯進行加成聚合而獲得。

【0051】

[化13]



【0052】 由皮膚之皺紋改善效果的觀點而言，參(三甲基矽氧基)矽基降萜烯、與降萜烯之共聚合比較佳為20/80~90/10(mol/mol)、更佳為30/70~80/20(mol/mol)、又更佳為50/50~70/30(mol/mol)。

【0053】 又，上述一般式(1)~(3)、及上式(6)中所示重複單位，均為表示屬於原料單體之環狀烯烴單體之2,3-加成構造單位者，但亦可包含該環狀烯烴單體之加成聚合所造成的2,7-加成構造單位。

【0054】 作為含有降萜烷構造之聚矽氧改質聚合物，較佳為降萜烯/參(三甲基矽氧基)矽基降萜烯)共聚物，由INCI名(International Cosmetic Ingredient Dictionary and Handbook，第16版，第2卷，2016年，p.2274)：NORBORNENE/TRIS(TRIMETHYLSILOXY)SILYLNORBORNENE COPOLYMER所示化合物。

作為市售之含有降萜烷構造之聚矽氧改質聚合物，可舉例如信越化學工業公司製「NBN-30-ID」(降萜烯/參(三甲基矽氧基)矽基降萜烯)共聚物之異十二烷溶液)等。

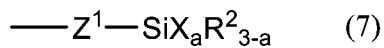
【0055】

(聚矽氧改質聚三葡萄糖)

作為聚矽氧改質聚三葡萄糖，可舉例如於側鏈具有聚矽氧構造之聚三葡萄糖，具體而言，由皮膚之皺紋改善效果的觀點及通用性的觀點而言，較佳係聚三葡萄糖中之OH基之氫原子之至少一部分經下述一般式(7)所示基取代的聚矽氧改質聚三葡萄糖。

【0056】

[化14]

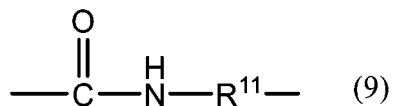
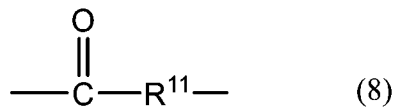


【0057】 式中， Z^1 為單鍵或2價有機基， R^2 、 X 、 a 係與上述相同，由同樣的觀點而言， X 較佳為三甲基矽氧基， a 較佳為3。

【0058】 一般式(7)中，由同樣的觀點而言， Z^1 較佳為2價有機基，更佳為下述一般式(8)或(9)所示2價基，又更佳為下述一般式(9)所示2價基。

【0059】

[化15]



【0060】 式中， R^{11} 為碳數1以上且10以下之伸烷基，可例示亞甲基、伸乙基、三亞甲基、伸丙基、伸丁基等。由同樣的觀點而言，此等之中較佳為伸乙基、三亞甲基、伸丙基，更佳為三亞甲基或伸丙基。

【0061】 作為市售之聚矽氧改質聚三葡萄糖，可舉例如信越化學工業公司製「TSPL-30-ID」(三(三甲基矽氧基)矽基丙基胺甲酸聚三葡萄糖之異十二烷溶液、「TSPL-30-D5」(三(三甲基矽氧基)矽基丙基胺甲酸聚三葡萄糖之環戊矽氧烷溶液)等。

【0062】

(含有聚矽氧構造之矽酸化合物)

作為本發明所使用之含有聚矽氧構造之矽酸化合物，可舉例如於末端具有聚矽氧構造之矽酸酯化合物，可舉例如三烷基矽氧基矽酸、氟改質烷基矽氧基矽酸、苯基改質烷基矽氧基矽酸等。

三烷基矽氧基矽酸中之烷基，係由皮膚之皺紋改善效果的觀點及通用性的觀點而言，較佳為碳數1以上且10以下、更佳為碳數1以上且4以下，又更佳為甲基。作為三烷基矽氧基矽酸之具體例，可舉例如三甲基矽氧基矽酸。

作為氟改質烷基矽氧基矽酸，可舉例如三烷基矽氧基矽酸中烷基之至少一部分之氫原子經取代為氟原子的化合物。作為其具體例，可舉例如三氟丙基二甲基矽氧基矽酸、三氟丙基二甲基/三甲基矽氧基矽酸等。

作為苯基改質烷基矽氧基矽酸，可舉例如苯丙基二甲基矽氧基矽酸、苯丙基二甲基/三甲基矽氧基矽酸等。

【0063】 含有聚矽氧構造之矽酸化合物中，由皮膚之皺紋改善效果的觀點而言，較佳為選自由三烷基矽氧基矽酸及氟改質烷基矽氧基矽酸所構成群之1種以上。

【0064】 作為市售之含有聚矽氧構造之矽酸化合物，可使用信越化學工業公司製「KF-7312J」、「KF-7312K」、「KF-7312T」、「KF-7312L」、「X-21-5249」、「X-21-5250」、「KF-9021」、「X-21-

5595」、「X-21-5616」、「KF-9021L」、「X-21-5249L」、「X-21-5250L」等之三甲基矽氧基矽酸(溶液)、Momentive Performance Materials Japan 合同公司製「XS66-B8226」(三氟丙基二甲基/三甲基矽氧基矽酸之環戊矽氧烷溶液)、「XS66-B8636」(三氟丙基二甲基/三甲基矽氧基矽酸之聚二甲基矽氧烷溶液)、「SilShine151」(苯丙基二甲基矽氧基矽酸)等。

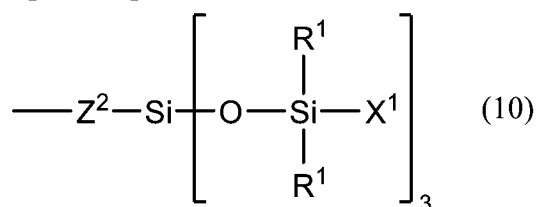
【0065】

(聚矽氧樹枝狀聚合物)

作為聚矽氧樹枝狀聚合物，可舉例如於側鏈具有矽氧烷樹枝狀聚合物構造之乙烯系聚合物。矽氧烷樹枝狀聚合物構造係由皮膚之皺紋改善效果的觀點及通用性的觀點而言，具體而言較佳為下述一般式(10)所示基。

【0066】

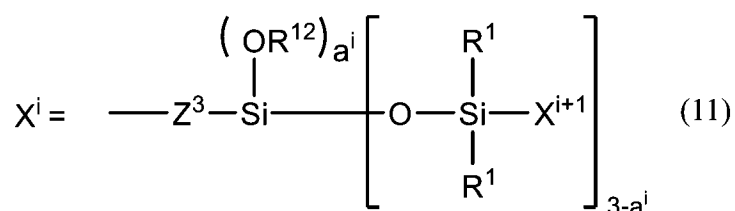
[化16]



【0067】 式中， R^1 係與上述相同， Z^2 為單鍵或2價有機基。 X^1 係 $i=1$ 時之下述一般式(11)所示基， i 為表示該基之階層的1以上且10以下之整數。

【0068】

[化17]

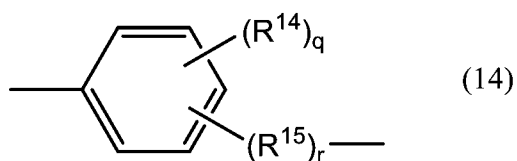
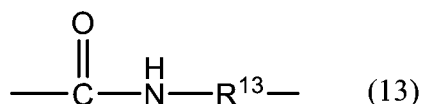
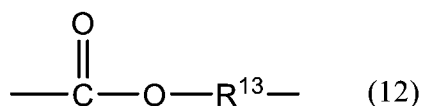


【0069】 式中， R^1 係與上述相同， R^{12} 為碳數1以上且10以下之烷基。 Z^3 為碳數2以上且10以下之伸烷基。 X^{i+1} 為氫原子、碳數1以上且10以下之烷基、芳基或一般式(11)所示基， a^i 為0以上且3以下之整數。

【0070】 一般式(10)中， Z^2 為單鍵或2價有機基，由通用性的觀點而言，較佳為2價有機基，更佳為下述一般式(12)、(13)或(14)所示2價基。

【0071】

[化18]

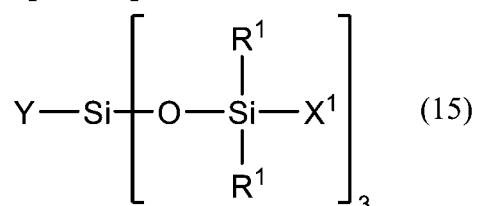


【0072】 式中， R^{13} 為碳數1以上且10以下之伸烷基，可例示亞甲基、伸乙基、三亞甲基、伸丙基、伸丁基等，由通用性的觀點而言，較佳為伸乙基、三亞甲基、或伸丙基。 R^{14} 為碳數1以上且10以下之烷基，可例示甲基、乙基、丙基、丁基，由同樣的觀點而言，較佳為甲基。 R^{15} 為碳數1以上且10以下之伸烷基，可例示亞甲基、伸乙基、三亞甲基、伸丙基、伸丁基等，由同樣的觀點而言，較佳為伸乙基。 q 為0以上且4以下之整數， r 為0或1。

【0073】 作為上述於側鏈具有矽氧烷樹枝狀聚合物構造之乙烯系聚合物(以下亦簡稱為「乙烯系聚合物」)，可舉例如具有來自下述一般式(15)所示單體之重複單位的聚合物。

【0074】

[化19]



【0075】 式中， R^1 及 X^1 係與上述相同。 Y 為含有乙烯鍵之基，可舉例如乙烯基、2-丙烯醯氧基乙基、3-丙烯醯氧基丙基、2-甲基丙烯醯氧基乙基、3-甲基丙烯醯氧基丙基、4-乙烯基苯基、3-乙烯基苯基、4-(2-丙烯基)苯基、3-(2-丙烯基)苯基、2-(4-乙烯基苯基)乙基、2-(3-乙烯基苯基)乙基、烯丙基、5-己烯基。此等之中，由通用性的觀點而言，較佳為(甲基)丙烯醯基或乙烯基，更佳為(甲基)丙烯醯基。

【0076】 該乙烯系聚合物亦可進一步含有來自上述一般式(15)所示單體以外之乙烯系單體的重複單位。作為該乙烯系單體，係具有含乙烯基鍵之基且上述一般式(15)所示單體以外的單體，可舉例如(甲基)丙烯酸、(甲基)丙烯酸烷基酯、(甲基)丙烯酸羥基烷基酯、含芳香環之(甲基)丙烯酸酯、脂肪酸乙烯基酯、(甲基)丙烯醯胺、苯乙烯或其衍生物等，此等可使用1種或2種以上。此等之中，由通用性的觀點而言，較佳為(甲基)丙烯酸、(甲基)丙烯酸烷基酯、(甲基)丙烯酸羥基烷基酯、含芳香環之(甲基)丙烯酸酯等(甲基)丙烯酸系單體。

【0077】 乙烯系聚合物中，來自上述一般式(15)所示單體之重複單位的含量，係由皮膚之皺紋改善效果的觀點而言，相對於該乙烯系

聚合物中之總重複單位，較佳為0.1質量%以上、更佳為10質量%以上、又更佳為20質量%以上。又，上限為100質量%。

【0078】 上述乙烯系聚合物更佳係丙烯酸系聚合物。亦即，作為較佳聚矽氧樹枝狀聚合物，係於側鏈具有矽氧烷樹枝狀聚合物構造的丙烯酸系聚合物(以下亦稱為「丙烯酸聚矽氧樹枝狀聚合物」)。丙烯酸聚矽氧樹枝狀聚合物係具有來自於上述一般式(15)中Y為(甲基)丙烯酸基之單體之重複單位的聚合物，亦可進一步含有來自一般式(15)所示單體以外之(甲基)丙烯酸系單體之重複單位。

【0079】 作為市售之聚矽氧樹枝狀聚合物，可舉例如東麗·道康寧公司製「FA 4001 CM Silicone Acrylate」(丙烯酸酯-聚三甲基矽氧基甲基丙烯酸酯共聚合體的環戊矽氧烷溶液)、「FA 4002 ID Silicone Acrylate」(丙烯酸酯-聚三甲基矽氧基甲基丙烯酸酯共聚合體之異十二烷溶液)等之丙烯酸聚矽氧樹枝狀聚合物。

【0080】 作為成分(A)，上述聚合物中，由皮膚之皺紋改善效果的觀點而言，較佳為選自由聚矽氧改質聚降萘烯、聚矽氧改質聚三葡萄糖、三甲基矽氧基矽酸、三氟丙基二甲基/三甲基矽氧基矽酸、及丙烯酸聚矽氧樹枝狀聚合物所構成群之1種以上，更佳為選自由聚矽氧改質聚降萘烯、聚矽氧改質聚三葡萄糖、三甲基矽氧基矽酸、及三氟丙基二甲基/三甲基矽氧基矽酸所構成群之1種以上；由皮膚之皺紋改善效果及耐彎曲性的觀點而言，又更佳為選自由聚矽氧改質聚降萘烯及聚矽氧改質聚三葡萄糖所構成群之1種以上，再更佳為聚矽氧改質聚降萘烯。

【0081】 成分(A)可使用1種或組合使用2種以上，含量係由皮膚之皺紋改善效果的觀點而言，於總組成中為0.1質量%以上、較佳為1質量%以上、更佳為4質量%以上、又更佳為5質量%以上；且為30質量%以下、

較佳為25質量%以下、更佳為20質量%以下、又更佳為18質量%以下。又，成分(A)的含量係於總組成中為0.1~30質量%、較佳為1~25質量%、更佳為4~20質量%、又更佳為5~18質量%。

【0082】

<成分(B)>

本發明所使用之成分(B)，係依1大氣壓下、40°C、60%R.H.乾燥30分鐘後之揮發率為14%以上的揮發性油。若含有成分(B)，則因含有成分(A)之組成物之乾燥速度提升而於乾燥過程中成分(A)之收縮加速，使皮膚皺紋延伸而變得不明顯的效果更加提升。

由獲得上述效果的觀點而言，成分(B)依1大氣壓下、40°C、60%R.H.乾燥30分鐘後之揮發率較佳為18%以上、更佳為25%以上、又更佳為30%以上、再更佳為45%以上、又再更佳為65%以上、特佳為80%以上、最佳為95%以上。又，上限為100%。

成分(B)之揮發率係將試料0.5g置入直徑40mm之玻璃製培養皿，於1大氣壓下、60%R.H.之環境下，於40°C靜置30分鐘使其乾燥，將乾燥前之試料質量設為 $W_0(g)$ 、乾燥後之試料質量設為 $W_1(g)$ ，以 $\{(W_0-W_1)/W_0\} \times 100$ 之值所求得。此值越大意味著揮發速度越快、越容易乾燥。

又，作為成分(B)亦可使用2種以上之揮發性油。

上述揮發率具體而言可依實施例記載之方法測定。

【0083】 作為成分(B)，由提高皮膚之皺紋改善效果的觀點而言，可舉例如選自烴油及聚矽氧油之1種以上、且揮發率成為上述範圍的油劑。此等之中，較佳係選自由異十二烷(揮發率33%)、六甲基二矽氧烷(揮發率100%)、甲基聚三甲基矽氧烷、及25°C下之動黏度為2cSt以下之

二甲基聚矽氧烷所構成群之1種以上。又，該動黏度例如可使用烏氏黏度計進行測定。

由提高皮膚之皺紋改善效果的觀點而言，成分(B)更佳為選自由異十二烷、六甲基二矽氧烷、及25°C下之動黏度為1.5cSt以下之二甲基聚矽氧烷所構成群之1種以上，又更佳為選自由六甲基二矽氧烷、及25°C下之動黏度為1cSt以下之二甲基聚矽氧烷所構成群之1種以上，再更佳為六甲基二矽氧烷。

【0084】 作為六甲基二矽氧烷及25°C下之動黏度為2cSt以下之二甲基聚矽氧烷之市售物，可舉例如信越化學工業公司製之「KF-96L-0.65cs」(六甲基二矽氧烷)、「TMF1.5」、「KF-96L-1cs」(八甲基三矽氧烷)、「KF-96L-1.5cs」、「KF-96L-2cs」、東麗·道康寧公司製之「SH200C Fluid 1cs」、「SH200C Fluid 1.5cs」、Momentive Performance Materials Japan合同公司製之「TSF451-0.65」、旭化成Wacker Silicone公司製之「BELSILDM0.65」等。

【0085】 成分(B)可使用1種或組合使用2種以上，其含量係由提高皮膚之皺紋改善效果的觀點而言，於總組成中較佳為1質量%以上、更佳為30質量%以上、又更佳為50質量%以上、再更佳為70質量%以上、特佳為75質量%以上，且較佳為99質量%以下、更佳為98質量%以下、又更佳為97質量%以下、再更佳為95質量%以下、特佳為87質量%以下。又，成分(B)之含量係於總組成中較佳為1~99質量%、更佳為30~98質量%、又更佳為50~97質量%、再更佳為70~95質量%、特佳為75~87質量%。

【0086】 本發明中，成分(A)相對於成分(B)之質量比例(A)/(B)係由皮膚之皺紋改善效果的觀點而言，較佳為0.02以上、更佳為0.03以上、又更佳為0.04以上、再更佳為0.05以上、特佳為0.1以上，且較佳為

1以下、更佳為0.7以下、又更佳為0.4以下、再更佳為0.25以下。又，成分(A)相對於成分(B)之質量比例(A)/(B)較佳為0.02~1、更佳為0.03~0.7、又更佳為0.04~0.4、再更佳為0.05~0.25、特佳為0.1~0.25。

【0087】

<成分(C)>

本發明所使用之成分(C)為不揮發性油。所謂不揮發性油係指將油劑1g擴展於直徑48mm之玻璃培養皿，於25℃、常壓下放置24小時後之質量減少率為1%以下者。

作為成分(C)之不揮發性油，若為一般化妝料所使用者則可為任意者，可為液狀、膏狀、固形狀之任一種。可舉例如酯油、烴油、醚油、高級醇、聚矽氧油、固形蠟等。

【0088】 作為酯油，可舉例如異壬酸異壬酯、異壬酸異癸酯、異壬酸異十三酯、三環癸烷異壬酸甲酯、月桂酸己酯、蘋果酸辛基十二酯、2-乙基己酸鯨蠟酯、2-乙基己酸2-己基癸酯、肉荳蔻酸異丙酯、肉荳蔻酸2-己基癸酯、肉荳蔻酸辛基十二酯、棕櫚酸異丙酯、棕櫚酸2-乙基己酯、異硬脂酸乙酯、異硬脂酸異丙酯、異硬脂酸異丁酯、異硬脂酸2-己基癸酯、羥基硬脂酸2-乙基己酯、油酸辛基十二酯、油酸油酯、蓖麻油酸辛基十二酯、對甲氧基桂皮酸辛酯、碳酸仲丙酯等之單酯油；琥珀酸二2-乙基己酯、雙乙氧基二甘醇琥珀酸酯、丙二醇二(辛酸/癸酸)酯、新戊二醇二異壬酸酯、新戊二醇二癸酸酯、二異硬脂酸甘油酯、二異硬脂酸聚甘油酯、丙二醇二異硬脂酸酯、蘋果酸二異硬脂酯、月桂醯基麩胺酸二(植物固醇基/辛基十二基)酯、月桂醯基麩胺酸二(膽固醇基/二十二基/辛基十二基)酯、月桂醯基麩胺酸二(辛基十二基/植固醇基/二十二基)酯、新戊二醇二2-乙基己酸酯、新戊二醇二辛酸酯等之二酯油；三羥甲基丙

第23頁，共43頁(發明說明書)

烷三異硬脂酸酯、三異硬脂酸甘油酯、三異硬脂酸二甘油酯、荷荷芭油、三羥甲基丙烷三2-乙基己酸酯、三2-乙基己酸甘油酯、三(辛酸/癸酸)甘油酯、三辛酸甘油酯、偏苯三甲酸三(十三基)酯、澳洲胡桃油、橄欖油、蓖麻子油、荷荷芭油、酪梨油、葵花油等之三酯油；新戊四醇四辛酸酯、四異硬脂酸二甘油酯、二新戊四醇四異硬脂酸酯、新戊四醇四異硬脂酸酯等。

【0089】 作為烴油，可舉例如角鯊烷、流動烷烴、流動異烷烴、聚丁烯、氫化聚異丁烯、氫化聚癸烯、凡士林等。

作為醚油，可舉例如鯨蠟基二甲基丁基醚、二辛基醚等。

【0090】 作為高級醇，可舉例如具有碳數10~24之直鏈或分枝鏈之烷基或烯基者，可舉例如月桂醇、肉荳蔻醇、異鯨蠟醇、異硬脂醇、2-辛基十二醇、油醇等。

作為聚矽氧油，可舉例如二甲基聚矽氧烷、甲基苯基聚矽氧烷、甲基氫聚矽氧烷、丙烯酸改質聚矽氧、氟改質聚矽氧等。

【0091】 作為固形蠟，可舉例如25°C下呈固體之油性成分，例如堪地里拉蠟、米蠟、向日葵蠟、棕櫚蠟、木蠟等之植物性蠟；蜜蠟、鯨蠟等之動物性蠟；褐煤蠟、地蠟等之礦物系蠟；微晶蠟、烷烴、地蠟精等之石油系蠟；硬化蓖麻油、氫化荷荷芭油、12-羥基硬脂酸、硬脂酸醯胺、酞酸酐醯亞胺、聚矽氧蠟、氟系蠟、聚乙烯蠟、合成蜜蠟等之合成蠟；月桂酸、肉荳蔻酸、棕櫚酸、硬脂酸、二十二酸、羊毛脂脂肪酸等之脂肪酸；鯨蠟醇、硬脂醇、二十二醇、氫化二聚亞油醇等之高級醇等。

【0092】 成分(C)係由可獲得均勻美觀且自然之完妝、抑制白化的觀點而言，較佳係含有酯油、烴油、聚矽氧油，其中，較佳為25°C下液狀之不揮發性油。

【0093】 作為成分(C)，由可獲得均勻美觀且自然之完妝、抑制經時性之塗膜剝離或白化的觀點而言，較佳為含有(C-1)酯油之1種或2種以上，更佳為單酯油、二酯油、三酯油，又更佳為至少含有二酯油，再更佳為含有25°C下液狀之二酯油。

【0094】 成分(C)可使用1種或組合使用2種以上，其含量係由獲得均勻美觀且自然之完妝、抑制經時性之塗膜剝離或白化的觀點而言，於總組成中較佳為0.1質量%以上、更佳為0.2質量%以上、又更佳為0.4質量%以上，且較佳為20質量%以下、更佳為15質量%以下、又更佳為10質量%以下、再更佳為8質量%以下。又，成分(C)之含量係於總組成中較佳為0.1~20質量%、更佳為0.2~15質量%、又更佳為0.2~10質量%、再更佳為0.4~8質量%。

【0095】 本發明中，成分(A)相對於成分(C)之質量比例(A)/(C)係由維持皮膚之皺紋改善效果、並獲得均勻美觀且自然之完妝、抑制經時性之塗膜剝離或白化的觀點而言，為1以上、較佳為1.5以上、更佳為2以上，且為150以下、較佳為100以下、更佳為70以下、又更佳為40以下。又，成分(A)相對於成分(C)之質量比例(A)/(C)為1~150、較佳為1.5~100、更佳為1~100、又更佳為1.5~70、、再更佳為2~40。

【0096】

<其他成分>

本發明之皮膚外用劑組成物可進一步含有界面活性劑，較佳為陰離子界面活性劑、陽離子界面活性劑、非離子界面活性劑、兩性界面活性劑。

作為界面活性劑，若為一般皮膚外用劑所使用者則無限制，由溶解於揮發性油、抑制黏瘡、抑制經時性之塗膜剝離或白化的觀點而言，較佳為非離子界面活性劑。

作為非離子界面活性劑，可舉例如山梨醇酐脂肪酸酯、甘油脂肪酸酯、聚甘油脂肪酸酯、丙二醇脂肪酸酯、聚乙二醇脂肪酸酯、蔗糖脂肪酸酯、聚氧乙烯脂肪酸酯、聚氧乙烯山梨醇酐脂肪酸酯、聚氧乙烯烷基醚、聚氧乙烯山梨醇脂肪酸酯、聚氧乙烯甘油脂肪酸酯、聚氧乙烯丙二醇脂肪酸酯、聚氧乙烯蓖麻油、聚氧乙烯硬化蓖麻油、聚氧乙烯硬化蓖麻油脂肪酸酯、聚氧乙烯植物固烷醇醚、聚氧乙烯植物固醇醚、聚氧乙烯膽固烷醇醚、聚氧乙烯膽固醇醚、烷基甘油醚改質聚矽氧、聚氧伸烷基改質聚矽氧、聚氧伸烷基·烷基共改質聚矽氧、聚氧伸烷基·氟烷基共改質聚矽氧等。

【0097】 此等之中，由提高水及水溶性成分對油中的分散·溶解性的觀點而言，較佳係含有烷基甘油醚改質聚矽氧、聚氧伸烷基改質聚矽氧之1種或2種以上，更佳係含有聚氧伸烷基改質聚矽氧。

作為聚氧伸烷基改質聚矽氧，可使用例如東麗·道康寧公司製之SH3771M、SH3772M、SH3773M、SH3775M、SH3749、DC5200，或信越化學工業公司製之KF-6011、KF-6012、KF-6013、KF-6015、KF-6016、KF-6017、KF-6004等市售物。

【0098】 由提高水及水溶性成分對於油中之分散·溶解性的觀點而言，非離子界面活性劑較佳係HLB值為1以上且7以下，更佳係HLB值為2以上且6以下。

【0099】 於此，HLB(親水性-親油性之均衡(Hydrophilic-Lipophilic Balance))係表示於界面活性劑之總分子量中親水基部分所佔之分子量，針對非離子界面活性劑，係藉由格里芬(Griffin)之式求得。

由2種以上之非離子界面活性劑所構成之混合界面活性劑的HLB，係如下述般求得。混合界面活性劑之HLB係將各非離子界面活性劑之HLB值依其調配比率進行算術平均者。

$$\text{【0100】 混合HLB} = \frac{\sum (\text{HLB}_x \times W_x)}{\sum W_x}$$

HLB_x表示非離子界面活性劑X之HLB值。

W_x係具有HLB_x值之非離子界面活性劑X之重量(g)。

【0101】 非離子界面活性劑可使用1種或組合使用2種以上，其含量係由溶解於揮發性油、抑制黏痞的觀點而言，於總組成中較佳為30質量%以下、更佳為10質量%以下、又更佳為5質量%以下、再更佳為3質量%以下、特佳為1質量%以下。

【0102】 本發明中，水之含量係由維持皮膚之皺紋改善效果、獲得不黏痞之使用感的觀點而言，於總組成中較佳為50質量%以下、更佳為30質量%以下、又更佳為10質量%以下、再更佳為5質量%以下、特佳為1質量%以下。

【0103】 本發明之皮膚外用劑組成物係除了上述成分之外，在不損及本發明效果之範圍內，亦可任意使用通常使用之各種成分。作為此等成分，可舉例如上述以外之油性成分、水溶性高分子、抗氧化劑、紫外線吸收劑、維他命劑、防腐劑、pH調整劑、香料、植物萃取物類、保濕劑、著色劑、冷感劑、制汗劑、殺菌劑、皮膚活性劑等。

【0104】 本發明之皮膚外用劑組成物可應用於可藉由通常方法製造之油性組成物、乳化組成物等任一形態。作為製劑，可作成液狀、乳液狀、膏狀、乳霜狀、凝膠狀、固形狀、片材狀等而應用。

本發明之皮膚外用劑組成物可使用作為化妝品、醫藥部外品、醫藥品用途，可作為化妝水、乳液、乳霜、精華液、分散液、凝膠、軟膏、敷膜、慕絲、氣溶膠、泥罨劑、洗淨料等之護膚化妝料；防曬乳液、防曬乳霜等之紫外線防禦化妝料；妝前劑、粉底、遮瑕劑、腮紅、眼影、睫毛膏、眼線、眉彩、定妝劑、口紅等之彩妝化妝料等而應用。

本發明之皮膚外用劑組成物適合作為皮膚皺紋改善劑之使用。

【0105】 關於上述實施形態，本發明進一步揭示以下組成物。

【0106】 <1>一種皮膚外用劑組成物，其含有下述成分(A)、(B)及(C)：

(A)具有聚矽氧構造之聚合物，依下述方法(1)測定之變形比例為0.3以上且1以下，且依下述方法(2)進行之圓柱軸法之耐彎曲性試驗中，於該聚合物膜不發生裂痕之圓柱軸之最小直徑為2mm以上且25mm以下的聚合物：0.1~30質量%；

方法(1)：調製上述聚合物之10質量%六甲基二矽氧烷溶液。將該溶液0.005g，於寬20mm×長100mm×厚0.03mm之聚乙烯片材之單面，由短邊之一端起朝長度方向塗佈為寬20mm×長50mm之範圍，於設定為40℃之恆溫槽中乾燥10分鐘。將塗佈了上述溶液之部分的聚乙烯片材之長度設為L1、將乾燥後因收縮而變形之部分的聚乙烯片材之長度設為L2，以L2/L1之值作為變形比例。

方法(2)：調製上述聚合物之30質量%六甲基二矽氧烷溶液。將該溶液使用200 μm之施用器塗佈於寬50mm×長100mm×厚0.1mm之聚對苯

二甲酸乙二酯薄膜，於設定為40°C之恆溫槽中乾燥120分鐘而製作試驗片。使用該試驗片，依據JIS K5600-5-1：1999規定之圓柱軸法進行耐彎曲性試驗，求得該試驗片上之聚合物膜不發生裂痕的圓柱軸之最小直徑。

(B)依1大氣壓下、40°C、60%R.H.乾燥30分鐘後之揮發率為14%以上的揮發性油；

(C)不揮發性油；

成分(A)相對於成分(C)之質量比例(A)/(C)為1~150。

【0107】 <2>如上述<1>之皮膚外用劑組成物，其中，成分(A)中，依上述方法(1)評價之變形比例L2/L1較佳為0.5以上、更佳為0.6以上、又更佳為0.7以上、再更佳為0.8以上、又再更佳為0.85以上、特佳為0.9以上、最佳為0.95以上。

<3>如上述<1>或<2>之皮膚外用劑組成物，其中，成分(A)中，依上述方法(2)進行之圓柱軸法之耐彎曲性試驗中，於屬於成分(A)之聚合物之膜不發生裂痕之圓柱軸之最小直徑較佳為20mm以下、更佳為12mm以下、又更佳為8mm以下、再更佳為6mm以下、特佳為5mm以下，且較佳為3mm以上。

<4>如上述<1>至<3>中任一項之皮膚外用劑組成物，其中，成分(A)中，依上述方法(1)求得之變形比例相對於依上述方法(2)求得之圓柱軸之最小直徑(mm)的比率[(變形比例)/(圓柱軸之最小直徑)]，較佳為0.01以上、更佳為0.02以上、又更佳為0.10以上、再更佳為0.15以上，且較佳為0.5以下、更佳為0.4以下。

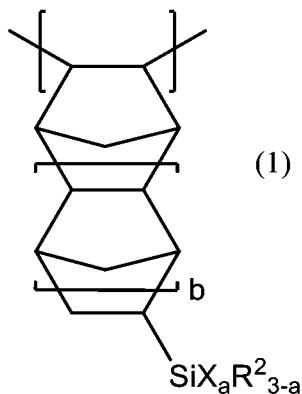
【0108】 <5>如上述<1>至<4>中任一項之皮膚外用劑組成物，其中，成分(A)較佳為聚矽氧改質聚合物，更佳為含有降萜烷構造之聚矽

氧改質聚合物、聚矽氧改質聚三葡萄糖、含聚矽氧構造之矽酸化合物、聚矽氧樹枝狀聚合物。

<6>如上述<1>至<5>中任一項之皮膚外用劑組成物，其中，成分(A)較佳係含有降萜烷構造之聚矽氧改質聚合物，更佳為具有下述一般式(1)或(2)所示重複單位的聚合物；

【0109】

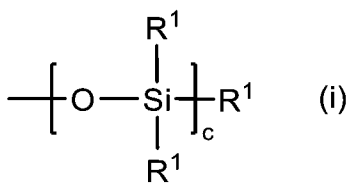
[化20]



【0110】 式中， R^2 分別獨立為碳數1以上且12以下之烷基，X表示下式(i)所示基。 a 為1以上且3以下之整數， b 為0以上且2以下之整數。

【0111】

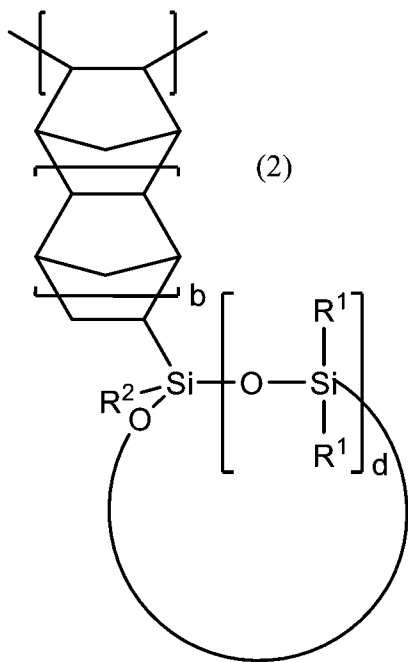
[化21]



【0112】 式中， R^1 係與上述相同， c 為1以上且5以下之整數。

【0113】

[化22]

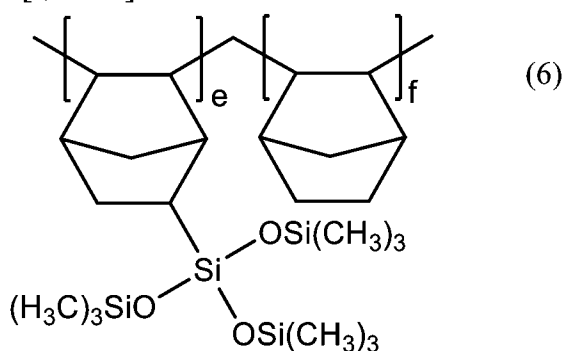


【0114】 式中， R^1 、 R^2 及 b 係與上述相同， d 為2以上且5以下之整數。

【0115】 <7>如上述<1>至<6>中任一項之皮膚外用劑組成物，其中，成分(A)較佳為含有降萜烷構造之聚矽氧改質聚合物，更佳為聚矽氧改質聚降萜烯，又更佳為下式(6)所示聚矽氧改質聚降萜烯。

【0116】

[化23]



【0117】 式中， e 、 f 為重複單位數，且分別獨立為1以上之整數。

【0118】 <8>如上述<7>之皮膚外用劑組成物，其中，一般式(6)中， e 與 f 的比例較佳為 $e/f=20/80\sim90/10$ (mol/mol)、更佳為 $30/70\sim80/20$ (mol/mol)、又更佳為 $50/50\sim70/30$ (mol/mol)。

<9>如上述<1>至<8>中任一項之皮膚外用劑組成物，其中，成分(A)較佳為選自由聚矽氧改質聚降萆烯、聚矽氧改質聚三葡萄糖、三甲基矽氧基矽酸、三氟丙基二甲基/三甲基矽氧基矽酸、及丙烯酸聚矽氧樹枝狀聚合物所構成群之1種以上，更佳為選自由聚矽氧改質聚降萆烯、聚矽氧改質聚三葡萄糖、三甲基矽氧基矽酸及三氟丙基二甲基/三甲基矽氧基矽酸所構成群之1種以上，又更佳為選自由聚矽氧改質聚降萆烯及聚矽氧改質聚三葡萄糖所構成群之1種以上，再更佳為聚矽氧改質聚降萆烯。

<10>如上述<1>至<9>中任一項之皮膚外用劑組成物，其中，成分(A)之含量較佳係於總組成中為1質量%以上、更佳為4質量%以上、又更佳為5質量%以上；且較佳為25質量%以下、更佳為20質量%以下、又更佳為18質量%以下。

【0119】 <11>如上述<1>至<10>中任一項之皮膚外用劑組成物，其中，成分(B)依1大氣壓下、40°C、60%R.H.乾燥30分鐘後之揮發率較佳為18%以上、更佳為25%以上、又更佳為30%以上、再更佳為45%以上、又再更佳為65%以上、特佳為80%以上、最佳為95%以上。

<12>如上述<1>至<11>中任一項之皮膚外用劑組成物，其中，成分(B)較佳為選自烴油及聚矽氧油之1種以上，更佳為選自由異十二烷、六甲基二矽氧烷、甲基聚三甲基矽氧烷、及25°C下之動黏度為2cSt以下之二甲基聚矽氧烷所構成群之1種以上，又更佳為選自由異十二烷、六甲基二矽氧烷、及25°C下之動黏度為1.5cSt以下之二甲基聚矽氧烷所構成群之1種以上，再更佳為選自由六甲基二矽氧烷、及25°C下之動黏度為1cSt以下之二甲基聚矽氧烷所構成群之1種以上，特佳為六甲基二矽氧烷。

【0120】 <13>如上述<1>至<12>中任一項之皮膚外用劑組成物，其中，成分(B)之含量較佳係於總組成中為1質量%以上、更佳為30

質量%以上、又更佳為50質量%以上、再更佳為70質量%以上、特佳為75質量%以上，且較佳為99質量%以下、更佳為98質量%以下、又更佳為97質量%以下、再更佳為95質量%以下、特佳為87質量%以下。

<14>如上述<1>至<13>中任一項之皮膚外用劑組成物，其中，成分(A)相對於成分(B)之質量比例(A)/(B)較佳為0.02以上、更佳為0.03以上、又更佳為0.04以上、再更佳為0.05以上、特佳為0.1以上，且較佳為1以下、更佳為0.7以下、又更佳為0.4以下、再更佳為0.25以下。

【0121】 <15>如上述<1>至<14>中任一項之皮膚外用劑組成物，其中，成分(C)較佳為選自酯油、烴油、醚油、高級醇、聚矽氧油及固形蠟之1種或2種以上，更佳係含有酯油、烴油、聚矽氧油，又更佳為25°C下液狀之不揮發性油。

<16>如上述<1>至<15>中任一項之皮膚外用劑組成物，其中，成分(C)較佳係至少含有(C-1)酯油之1種或2種以上，更佳為單酯油、二酯油、三酯油，又更佳為至少含有二酯油，再更佳為25°C下液狀之二酯油。

【0122】 <17>如上述<1>至<16>中任一項之皮膚外用劑組成物，其中，成分(C)之含量於總組成中較佳為0.1質量%以上、更佳為0.2質量%以上、又更佳為0.4質量%以上，且較佳為20質量%以下、更佳為15質量%以下、又更佳為10質量%以下、再更佳為8質量%以下。

<18>如上述<1>至<17>中任一項之皮膚外用劑組成物，其中，成分(A)相對於成分(C)之質量比例(A)/(C)較佳為1以上、更佳為1.5以上、又更佳為2以上，且為150以下、較佳為100以下、更佳為70以下、又更佳為40以下。

【0123】 <19>一種皮膚外用劑組成物，其含有下述成分(A)、(B)及(C)：

(A)選自由聚矽氧改質聚降萆烯及聚矽氧改質聚三葡萄糖所構成群之1種以上：0.1~30質量%；

(B)依1大氣壓下、40℃、60%R.H.乾燥30分鐘後之揮發率為14%以上的揮發性油：1~99質量%；

(C)不揮發性油：0.1~20質量%；

成分(A)相對於成分(C)之質量比例(A)/(C)為1~150。

<20>一種皮膚外用劑組成物，其含有下述成分(A)、(B)及(C)：

(A)聚矽氧改質聚降萆烯：0.1~30質量%；

(B)依1大氣壓下、40℃、60%R.H.乾燥30分鐘後之揮發率為14%以上的揮發性油：1~99質量%；

(C)不揮發性油：0.1~20質量%；

成分(A)相對於成分(C)之質量比例(A)/(C)為1~150。

【0124】 <21>一種皮膚外用劑組成物，其含有下述成分(A)、(B)及(C)：

(A)選自由聚矽氧改質聚降萆烯及聚矽氧改質聚三葡萄糖所構成群之1種以上：4~20質量%；

(B)依1大氣壓下、40℃、60%R.H.乾燥30分鐘後之揮發率為14%以上的揮發性油：70~95質量%；

(C)不揮發性油：0.2~10質量%；

成分(A)相對於成分(C)之質量比例(A)/(C)為1.5~70。

<22>一種皮膚外用劑組成物，其含有下述成分(A)、(B)及(C)：

(A)聚矽氧改質聚降萆烯：4~20質量%；

(B)依1大氣壓下、40℃、60%R.H.乾燥30分鐘後之揮發率為14%以上的揮發性油：70~95質量%；

(C)不揮發性油：0.2~10質量%；

成分(A)相對於成分(C)之質量比例(A)/(C)為1.5~70。

【0125】 <23>如上述<1>至<22>中任一項之皮膚外用劑組成物，其較佳係進一步含有界面活性劑，更佳係非離子界面活性劑，又更佳係HLB值為1~7之非離子界面活性劑。

<24>如上述<23>之皮膚外用劑組成物，其中，非離子界面活性劑之含量較佳係於總組成中為30質量%以下、更佳為10質量%以下、又更佳為5質量%以下、再更佳為3質量%以下、特佳為1質量%以下。

<25>如上述<1>至<24>中任一項之皮膚外用劑組成物，其中，水之含量較佳係於總組成中為50質量%以下、更佳為30質量%以下、又更佳為10質量%以下、再更佳為5質量%以下、特佳為1質量%以下。

<26>上述<1>至<25>中任一項之皮膚外用劑組成物之作為皮膚皺紋改善劑的使用。

[實施例]

【0126】 以下，藉由實施例說明本發明，但本發明並不限定於實施例之範圍。又，本實施例中，各種測定及評價係藉以下方法進行。

【0127】

(數量平均分子量Mn)

聚合物之數量平均分子量係藉由以聚苯乙烯為標準物質的凝膠過濾層析(GPC)法，依以下條件進行測定。

測定裝置：HLC-8320GPC(東曹公司製)

管柱：K-806L(Shodex製)，2根串聯

檢測器：RI

洗提液：1mmol/L-Farmin DM20(花王公司製)/CHCl₃

第35頁，共43頁(發明說明書)

流量：1.0mL/min

管柱溫度：40℃

【0128】

(變形比例)

調製各組成物所使用之成分(A)之聚合物之10質量%六甲基二矽氧烷溶液。將此溶液0.005g，於圖1(a)所示寬(W)20mm×長(L0)100mm×厚0.03mm之聚乙烯片材1(ENSHU 化成工業公司製「LL film」)之單面，由聚乙烯片材1之短邊之一端1a起朝長度方向塗佈為寬20mm×長50mm之範圍(圖1(a)所示2之部分)，於設定為40℃之恆溫槽中乾燥10分鐘。於乾燥後之聚乙烯片材(圖1(b))中，將塗佈了上述溶液之部分的聚乙烯片材之長度設為L1(50mm)、將乾燥後因收縮而變形(彎曲)之部分的聚乙烯片材之長度設為L2，算出L2/L1，以此值作為聚合物的變形比例。L2設為於聚乙烯片材1之2個長邊上所計測之值的平均值。

【0129】

(耐彎曲性)

調製各組成物所使用之成分(A)之聚合物之30質量%六甲基二矽氧烷溶液。將該溶液使用200 μm之施用器塗佈於寬50mm×長100mm×厚0.1mm之聚對苯二甲酸乙二酯薄膜(東麗公司製「Lumirror 100T60」)，於設定為40℃之恆溫槽中乾燥120分鐘而製作具有聚合物膜之薄膜(試驗片)。

使用所得試驗片，依據JIS K5600-5-1:1999規定之圓柱軸法進行耐彎曲性試驗。使用型式1之彎折試驗裝置(Erichsen公司製彎曲試驗機，Model 266)，以試驗片之聚合物膜側之面為外側，使用直徑32mm、25mm、20mm、16mm、12mm、10mm、8mm、6mm、4mm、3mm及2mm

之圓柱軸，由直徑較大之圓柱軸起依序進行耐彎曲性試驗。以於聚合物膜發生裂痕之時點結束試驗，以未發生裂痕之圓柱軸之最小直徑(mm)作為耐彎曲性之值。此值越小，意味著耐彎曲性越優越。

【0130】

(揮發率)

將試料0.5g置入直徑40mm之玻璃製培養皿，於1大氣壓下、60%R.H.之環境下，於設定為40°C之加熱板上靜置30分鐘使其乾燥。將乾燥前之試料質量設為 $W_0(g)$ 、乾燥後之試料質量設為 $W_1(g)$ ，以 $\{(W_0 - W_1)/W_0\} \times 100$ 之值作為揮發率(%)。此值越大意味著揮發速度越快、越容易乾燥。

【0131】

(皺紋改善效果)

由專門官能檢查員5名，依圖2所示形態，依挾著臉半面之嘴周之法令紋之方式，以手指塗佈各組成物0.2g。於室溫(25°C)乾燥10分鐘後，依以下基準對皺紋改善效果進行官能評價。結果依5名之合計分數表示。

- 5：皺紋變得相當淺。
- 4：皺紋變淺。
- 3：皺紋變稍淺。
- 2：皺紋殘留而不太有變化。
- 1：無變化。

【0132】

(經時性之剝離困難度)

由專門官能檢查員5名，將各組成物塗佈於肌膚並乾燥後，針對經過4小時後之肌膚上之塗膜的剝離容易度，依以下基準進行官能評價。結果依5名之合計分數表示。

- 5：未剝離。
- 4：不太剝離。
- 3：稍有剝離。
- 2：發生剝離。
- 1：明顯剝離。

【0133】

(外觀(未白化))

由專門官能檢查員5名，將各組成物塗佈於肌膚並乾燥後，針對經過4小時後之肌膚上之塗膜外觀，依以下基準進行官能評價。結果依5名之合計分數表示。

- 5：未呈現白化。
- 4：不太呈現白化。
- 3：一部分稍呈現白化。
- 2：部分呈現白化。
- 1：全體呈現白化。

【0134】

(完妝(均勻))

由專門官能檢查員5名，將各組成物塗佈於肌膚並乾燥後，針對經過4小時後之完妝的均勻性，依以下基準進行官能評價。結果依5名之合計分數表示。

- 5：完妝呈現相當均勻。

- 4：完妝呈現均勻。
- 3：完妝呈現稍均勻。
- 2：完妝呈現稍不均。
- 1：完妝呈現不均勻。

【0135】

[實施例1~17、比較例1~2]

製造表1所示組成的皮膚外用劑組成物(液狀)，評價皺紋改善效果、經時性之剝離困難度、外觀(未白化)、完妝(均勻)。結果合併示於表1。

【0136】

(製造方法)

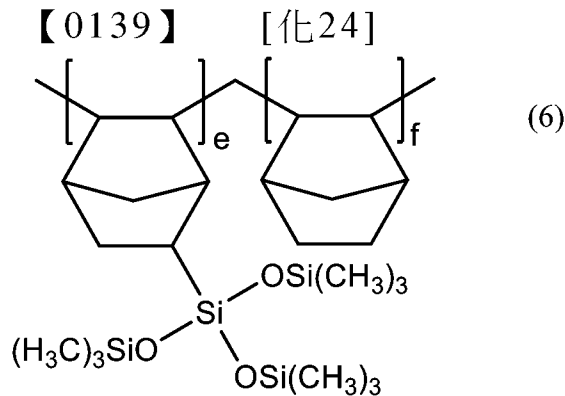
將混合了成分(A)、(B)、(C)之油相成分以分散器進行分散後，以均質混合器進行攪拌，藉此獲得皮膚外用劑組成物。

【0137】 [表1]

成分(質量%)		原料名	實施例																	比較例	
			1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	1	2
成分(A)	(降苄烯/參(三甲基矽氧基)矽基降苄烯)共聚合物 固形份*1	信越化學工業公司製NBN-30-ID	13.0	13.0	13.0	13.0	13.0	5.0	18.0	18.0	13.0	13.0	13.0	13.0	13.0	13.0	13.0			13.0	13.0
	聚矽氧改質聚三葡萄糖固形份*2	信越化學工業公司製TSPL-30-ID																13.0			
	三甲基矽氧基矽酸 固形份*3	信越化學工業公司製X-21-5595																		13.0	
成分(B)	六甲基二矽氧烷	信越化學工業公司製KF-96L-0.65cs	56.5	56.3	55.7	53.7	50.7	82.8	38.5	33.0	55.7	55.7	55.7	55.7	55.7	55.7	55.7	55.7	55.7	56.7	40.7
	異十二烷	丸善石油化學公司製MARUKASOLR	30.3	30.3	30.3	30.3	30.3	11.7	42.0	42.0	30.3	30.3	30.3	30.3	30.3	30.3	30.3	30.3	30.3	30.3	30.3
成分(C)	二異硬脂酸聚甘油酯-2	日清Oilio公司製COSMOL 42V	0.2	0.4	1.0	3.0	6.0	0.5	1.5	7.0								1.0	1.0		16.0
	異壬酸異十三酯	日清Oilio公司製SALACOS913									1.0										
	三(辛酸/癸酸/肉荳蔻酸/硬脂酸)甘油酯	日清Oilio公司製SALACOS334										1.0									
	月桂醯基羧胺酸二(膽固醇基/二十二基/辛基十二基)酯	味之素公司製ELDEW CL-301												1.0							
	月桂醯基羧胺酸二(辛基十二基/植物固醇基/二十二基)酯	味之素公司製ELDEW PS-306													1.0						
	氯化聚異丁烯	日油公司製 PARLEAMEX														1.0					
	凡士林	日清Oilio公司製NOMCORT W															1.0				
	二甲基聚矽氧烷 6cs	信越化學工業公司製 KF-96A-6cs															1.0				
合計			100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0
(A)			13.0	13.0	13.0	13.0	13.0	5.0	18.0	18.0	13.0	13.0	13.0	13.0	13.0	13.0	13.0	13.0	13.0	13.0	13.0
(B)			86.8	86.6	86.0	84.0	81.0	94.5	80.5	75.0	86.0	86.0	86.0	86.0	86.0	86.0	86.0	86.0	86.0	87.0	71.0
(C)			0.2	0.4	1.0	3.0	6.0	0.5	1.5	7.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	-	16.0
(A)(B)			0.15	0.15	0.15	0.15	0.16	0.05	0.22	0.24	0.15	0.15	0.15	0.15	0.15	0.15	0.15	0.15	0.15	0.15	0.18
(A)(C)			65.0	32.5	13.0	4.3	2.2	10.0	12.0	2.6	13.0	13.0	13.0	13.0	13.0	13.0	13.0	13.0	13.0	-	0.81
成分(A)聚合物物性	依方法(1)測定之變形比例		1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	0.9	0.8	1.0	1.0
	依方法(2)所得之耐彎曲性 (於聚合物膜未發生裂痕之圓柱軸之最小直徑：mm)		4	4	4	4	4	4	4	4	4	4	4	4	4	4	4	8	25	4	4
	變形比例/圓柱軸最小直徑		0.250	0.250	0.250	0.250	0.250	0.250	0.250	0.250	0.250	0.250	0.250	0.250	0.250	0.250	0.250	0.113	0.032	0.250	0.250
成分(B)物性	揮發率(%)		82.5	79.6	79.4	78.8	77.6	97.6	64.2	62.5	79.4	79.4	79.4	79.4	79.4	79.4	79.4	79.4	79.4	81.5	79.6
評價	皺紋改善效果		25	25	25	25	24	20	25	23	25	25	25	25	25	25	25	18	14	25	9
	經時性之剝離困難度		22	23	24	25	25	24	24	25	22	23	23	24	22	22	21	18	16	5	24
	外觀(未白化)		22	22	23	23	23	23	23	24	22	22	22	24	21	22	22	19	17	5	23
	完妝(均勻)		22	23	24	23	24	24	20	24	23	23	23	24	20	21	22	18	15	6	11

【0138】 表1中，*1~*3係下述。

*1：將信越化學工業公司製「NBN-30-ID」(下式(6)中， $e/f=60/40(\text{mol/mol})$ ， $M_n=36$ 萬之降萘烯/參(三甲基矽氧烷)矽基降萘烯)共聚物之異十二烷溶液，有效份濃度：30質量%)以 50°C 進行減壓乾燥12小時，使用所得之固形份。



【0140】 *2：將信越化學工業公司製「TSPL-30-ID」(三(三甲基矽氧烷)矽基丙基胺甲酸聚三葡萄糖之異十二烷溶液，有效份濃度：30質量%)以 50°C 進行減壓乾燥12小時，使用所得之固形份。

*3：將信越化學工業公司製「X21-5595」(三甲基矽氧基矽酸之異十二烷溶液，有效份濃度：60質量%)以 50°C 進行減壓乾燥12小時，使用所得之固形份。

【0141】

[施例18~21]

與實施例1~17同樣地，製造表2所示組成之皮膚外用劑組成物。

所得皮膚外用劑組成物均可改善皺紋，獲得均勻、美觀且自然之完妝，並抑制了經時性之塗膜剝離或白化。

【0142】 [表2]

成分(質量%)		原料名	實施例			
			18	19	20	21
成分(A)	(降苊烯/參(三甲基矽氧基)矽基降苊烯)共聚物 固形份*1	信越化學工業公司製NBN-30-ID	13.0	13.0		12.5
	三氟烷基二甲基三甲基矽氧基矽酸 固形份*4	Momentive Performance Materials Japan 合同公司製XS66-B8226			13.0	
成分(B)	六甲基二矽氧烷	信越化學工業公司製KF-96L-0.65cs	40.7	56.6	55.7	40.7
	八甲基三矽氧烷	信越化學工業公司製KF-96L-1cs	15.0			15.0
	異十二烷	丸善石油化學公司製MARUKASOL R	30.3	30.3	30.3	30.3
成分(C)	二異硬脂酸聚甘油酯-2	日清OilIIO公司製COSMOL 42V	1.0	0.1	1.0	1.0
其他成分	聚醚改質聚矽氧	東麗・道康寧公司製SH3775M				0.3
	水					0.2
			100.0	100.0	100.0	100.0
(A)			13.0	13.0	13.0	12.5
(B)			86.0	86.9	86.0	86.0
(C)			1.0	0.1	1.0	1.0
(A)/(B)			0.15	0.15	0.15	0.15
(A)/(C)			13.0	130.0	13.0	12.5
成分(A) 聚合物物性	依方法(1)測定之變形比例		1.0	1.0	0.7	1.0
	依方法(2)所得之耐彎曲性 (於聚合物膜未發生裂痕之圓柱軸之最小直徑：mm)		4	4	25	4
	變形比例/圓柱軸最小直徑		0.250	0.250	0.028	0.250
成分(B)物性	揮發率(%)		46.3	78.6	79.4	46.3

【0143】 表2中，*4係如下述。

*4：將Momentive Performance Materials Japan合同公司製「XS66-B8226」(三氟丙基二甲基/三甲基矽氧基矽酸之環戊矽氧烷溶液，有效份濃度：50質量%)以50℃進行減壓乾燥12小時，使用所得之固形份。

【符號說明】

【0144】

1:聚乙烯片材

1a:聚乙烯片材1之短邊之一端

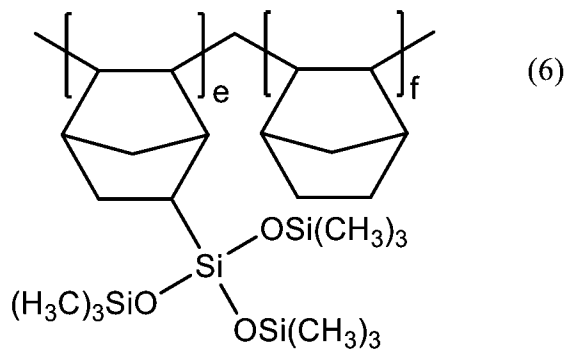
2:塗佈了聚合物溶液之部分

【發明申請專利範圍】

【請求項1】 一種皮膚外用劑組成物，其含有下述成分(A)、(B)及(C)：

(A)下式(6)所示聚矽氧改質聚降萘烯：0.1~30質量%；

[化1]



式中，e、f為重複單位數，且分別獨立為1以上之整數；

(B)依1大氣壓下、40°C、60%R.H.乾燥30分鐘後之揮發率為14%以上的揮發性油；

(C)選自酯油、烴油、醚油、高級醇、聚矽氧油及固形蠟之1種或2種以上的不揮發性油；

成分(A)相對於成分(C)之質量比例(A)/(C)為1~150。

【請求項2】 如請求項1之皮膚外用劑組成物，其中，成分(B)之含量為1~99質量%。

【請求項3】 如請求項1或2之皮膚外用劑組成物，其中，成分(C)之含量為0.1~20質量%。

【請求項4】 如請求項1或2之皮膚外用劑組成物，其中，成分(A)相對於成分(B)之質量比例(A)/(B)為0.02~1。

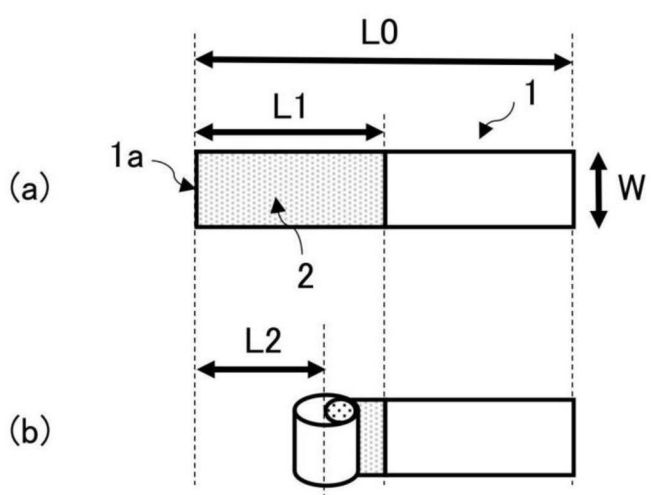
【請求項5】 如請求項1或2之皮膚外用劑組成物，其中，成分(C)係至少含有1種或2種以上(C-1)酯油。

【請求項6】 如請求項1或2之皮膚外用劑組成物，其中，成分(A)係式(6)中e與f的比例為 $e/f=20/80\sim90/10$ (mol/mol)。

【請求項7】 一種請求項1或2之皮膚外用劑組成物之用途，其係作為皮膚皺紋改善劑。

【發明圖式】

【圖1】



【圖2】

