

## 論文の内容の要旨

氏 名 景山 元裕

ヘアケア剤のコンディショニング成分は、毛髪表面に吸着することで様々な感触や機能を付与する。しかし、実際の毛髪表面は、個人差や、コンディショニング剤による吸着膜の厚さに比べてはるかに大きい凹凸を持つことなどから、吸脱着挙動や吸着物の構造などに対する分子レベルでの系統的な評価は容易ではなく、この課題を解決するための手法の開発が急務となっている。一方、カラーリングに代表される毛髪の化学的処理では、毛髪表面上に存在する分岐脂肪酸からなるF-layerと呼ばれる疎水性膜が剥離するため、コンディショニング成分の吸着挙動が大きく変わることがわかってきた。これらを踏まえ、本研究では、ナノレベルの平坦性を持つシリコンウエハ基板上に、損傷した毛髪表面に存在する極性官能基からなる領域と、健全毛髪表面に存在するアルキル鎖からなる領域を組み合わせることで、毛髪表面の化学的な特性を模倣し、かつ種々の表面解析・観察法の適用が可能な毛髪表面モデルを作製することを第一の目的としている。また、そのモデル表面を用いて毛髪コンディショニング成分の吸着構造・挙動を明らかにすることを第二の目的としている。

本論文は、全6章から構成され、各章の概要は次の通りである。

第1章は緒論であり、毛髪の構造やこれまでの研究例と課題、その課題を解決するために本研究で用いた有機薄膜の作製法上の分類や特徴、研究の目的などについてまとめている。

第2章では、本研究で用いた表面分析手法の原理やデータの解析法について述べている。

第3章では、実際の毛髪表面に対する形態観察や化学分析の結果と、それを踏まえて作製した毛髪モデル表面の構築法やキャラクタリゼーションの結果についてまとめている。X線光電子分光法や接触角測定、赤外分光法などによる毛髪表面解析から、損傷が促進すると、ペプチド結合の解離によるカルボキシル基やアミノ基、第1級カルボン酸アミド基などの極性官能基が増加し、キューティクルに多量に含まれるシスチン由来のジスルフィド基は酸化物である $\text{SO}_n\text{H}$ に変化することを明らかにしている。特に、カラーリングによるダメージでは、F-Layerの剥離に伴って毛髪表面が親水化し、システイン酸が増加することが示されている。これらの知見をもとに、毛髪表面に存在する官能基を分子内に持つ単分子膜を、ナノレベルで平滑なシリコン基板上に自己組織的に導入することで毛髪表面の再現を試みている。膜物質としてシリコン基板表面の酸化膜と強固に化学結合するシランカップリング剤を用いることで、毛髪表面に存在する各種官能基を固定化することが可能であり、更にUVオゾン法を組み合わせることにより、カルボキシル基や $\text{SO}_n\text{H}$ という酸化表面を表す官能基も導入することができることを実証している。また、展開単分子膜におけるマイクロ相分離現象と自己組織化膜作製法と組み合わせることで、健全毛/損傷毛表面に相当する疎水性/親水性領域からなる毛髪表面モデルを作製できることを示している。

第4章では、ヘアコンディショニング成分として、アミノ変性シリコーンとジメチルシリコーンを取り上げ、それらの毛髪モデル表面に対する吸着特性について評価している。モデル表面上で、アミノ変性シリコーンは水酸基やアミノ基が露出された領域に選択的に吸着し、表面の摩擦係数を低下させることを明らかにしている。これは、アミノ変性シリコーンの吸着膜が形成されることで疎水的に改質され、表面自由エネルギーが低くなったためと考えられる。また、表面水酸基とアミノ変性シリコーンのアミノ基との間に静電相互作用が強

く働くため、アミノ変性シリコーン膜は、アミノ基表面上よりも水酸基表面上で強固に吸着していることを明らかにしている。一方、ジメチルシリコーンを用いた実験では、実際の毛髪に対しては損傷毛表面よりも健全毛表面に多く吸着することが報告されているが、毛髪モデル表面上では親水性領域に優先的に吸着する傾向がみられたことを述べている。

第5章では、前章で述べたジメチルシリコーンの選択的吸着性の結果を受け、毛髪モデル表面の改良と、表面エネルギーに依存したジメチルシリコーンのより詳細な吸着特性の評価を行っている。疎水性アイランド形成物質として、固体表面と化学結合を形成しない長鎖脂肪酸を混合し、アイランド形成後に洗浄除去することで、毛髪モデル表面のマイクロ相分離構造を保ったまま疎水性領域における炭化水素鎖の密度を低下させることが可能であることを示している。また、その分子密度の変化、すなわち表面自由エネルギーの変化によって、ジメチルシリコーンの吸着挙動が大きく変化することを明らかにしている。

第6章では、本本文の内容について総括するとともに、毛髪モデル表面を用いた研究の初来展望について言及している。