

未利用植物染料の色素を利用した染織への応用（第1報）

— 未利用植物の染色材としての調査及び抽出条件の検討 —

杉尾孝一, 仁科勝海, 間世田春作, 向吉郁郎

Application of Newly Vegetable Pigments for Dyeing and Weaving

— New Vegetable ; Research and Extractive Conditions —

Koichi SUGIO, Katsumi NISHINA, Shunsaku MASEDA
and Ikuro MUKOYOSHI

県内の未利用植物を染料として、有効利用するため調査を行った。

- (1)大隅半島にコアラの飼料として栽培されているユーカリの葉, 枝, 皮。
- (2)県の産物であるサツマイモの葉, 茎, イモ。
- (3)県内の葛デンプン工場からでる葛の根。
- (4)屋久杉を製材する時にでるオガクズ。

これらのものが、未利用植物として豊富にあり、入手することが容易であることがわかった。

まず、基礎試験として、それぞれの植物についての発色試験を行い、アルミ、スズ、鉄、銅などの金属塩で媒染することによって、金茶、オリーブ、灰、黒など特長ある色相に発色することがわかった。

また、染色堅ろう度（汗、耐光、摩擦）も良好なものも多く、染料としての利用価値があるものと思われる。

そこで、本年度は、これらの植物から色素を抽出する方法や抽出成分の試験を行い、検討した。

その結果、抽出は、温度：100℃、時間：2時間で行うことが最適であることがわかった。また抽出成分については、ユーカリ、屋久杉にタンニンが含まれていることもわかった。またユーカリ、サツマイモの抽出液のpH、吸光度、全蒸発残留物には、各々相関関係にあることがわかった。

1. はじめに

県内には、植物資源を利用する木材工場、食品工場、農園などが多いが、これらの植物資源の利用の中で、未利用の部分が、大量にあることに着目し、これら未利用の部分から色素を抽出して、植物染料としての有効利用をすることについて、3ヶ年計画で試験研究を行うこととした。

本年度は、まず県内の工場からでる植物残査についての調査及び植物色素の抽出方法や抽出成分の染料としての検討を行ったので²⁾、以下報告する。

2. 調査

県内の未利用植物について調査した結果、次のものが未利用植物として、豊富にあり、入手しやすいことがわかった。

2. 1 ユーカリの葉・枝・皮

大隅半島の海岸縁の傾斜地178,200㎡にコアラの飼料として、ユーカリが植林され、年中、全国のコアラのいる動物園に出荷されている。

しかし、コアラの飼料となるのは、新芽の部分であり、多量の残滓がでている。

○植林されているユーカリの種類（10種）

1. サリグナ

2. プンクタータ
3. ルーデス
4. ミクロコリス
5. カマルドレンシス
6. テレテイコルニス
7. ロプスター
8. ビミナリス
9. オバーター
10. プロピンカ

2. 2 サツマイモの葉・茎・イモ

県の産物であるサツマイモは、県内各地で生産され、生産量約50万トン/年で、デンプン、焼酎の原料となっている。

しかし、葉・茎については、家畜の飼料として用いる以外は、未だ利用されていない。

2. 3 葛の根

垂水を中心に、大隅半島に多く分布する葛の根は、葛デンプンの原料として、昔から利用されている。現在、垂水にあるデンプン工場では、葛の根を粉砕して、水の中にデンプンを沈殿させているが、この時に褐色の色素が多量に抽出される。

2. 4 屋久杉

県内の屋久杉加工業者を数軒調査したところ、屋久杉を製材する時にでるオガクズや小片が多量にあることがわかった。

3. 実験方法

3. 1 供試材料

試験試料は大島紬用絹糸7.6g (171D)を20組及び表1に示したもの

表1 植物試料

記号	植 物 名	水分 (%)
Y	ユーカリの葉 (乾燥)	12.3
S	サツマイモの葉・茎 (乾燥)	13.0
YS	屋久杉のオガクズ	13.3
K	葛の根 (乾燥)	13.2

(注) ユーカリの葉、サツマイモの葉・茎、葛の根は直径1cm以下に細別、均等にして用いた。

3. 2 抽出条件

3. 2. 1 抽出方法

細別した各試料20gを還流冷却器をつけたシリコンゴム栓付ガラス容器にとり、試料重量の20倍の水を加え、湯煎器上に於て100℃で抽出した。抽出後は、綿布カナキン3号にてろ過し、ろ液を試験液とした。(収量: 340ml)

3. 2. 2 抽出時間

色素の抽出時間については表2に示したとおりである。

表2 抽出時間

試料	時間 (min)	30	60	120	180
ユーカリの葉	Y-30	Y-60	Y-120	Y-180	
サツマイモ葉・茎	S-30	S-60	S-120	S-180	
屋久杉のオガクズ	YS-30	YS-60	YS-120	YS-180	
葛の根	K-30	K-60	K-120	K-180	

3. 3 測定

3. 3. 1 pH測定

表2の抽出液のpH及びその経日変化をORION製-SA520 pHメーターを使用して測定した。尚放置は冷蔵庫、測定は抽出1時間後に行った。

3. 3. 2 抽出物質の測定

表2の抽出液について、各々遠心分離した液を105℃で蒸発乾固し、蒸発残留物を測定した。

灰分測定は蒸発残留物を600℃で3hr加熱して行った。

3. 3. 3 吸光度測定

表2の抽出液の吸光度³⁾及びその経日変化をベックマンジャパン(株)製-分光光度計DU-50を使用して測定した。試料は抽出後、冷蔵庫に保存したものをを用いた。

測定条件は次のとおり

○可視部

測定試料: 抽出液を10倍に希釈

○紫外部

測定試料: 抽出液を500倍に希釈

○波長: 200~700nm

3. 3. 4 抽出成分中のタンニンの測定

バニリン塩酸法によって、タンニンを発色させ吸光度を測定した。

測定はベックマンジャパン特製一分光光度計DU-50を用いた。

3.3.5 色系の吸着による増量率の測定

Sn, Al, Cu, Feで処理した絹糸への色素の吸着量を測定して、絹糸の増量率で表わした。

尚増量率は処理前の絹糸の絶乾に対する百分率で表わした。

3.3.6 発色した色相の測定

3.3.5で発色した試料を、スガ試験機の色差計SM-4カラーコンピュータを用い、色相、明度、彩度を測定した。

4. 結果及び考察

植物からの色素の抽出は、特殊な植物を除いては、一般的に煮沸で行われているので¹⁾、今回の実験も温度は100℃で抽出時間を表2のとおり変化させて行った。

また抽出液のpH、抽出物質、吸光度、増量率、色相の測定結果については表3、表4及び図1～図7に示した。

4.1 抽出液のpH

図1から抽出時間とpHについてみると、4試料とも抽出時間が長くなるとpHがさがり、酸性物質が抽出されているものと考えられる。しかし120分を過ぎると、pHの動きも小さくなり、酸性物質の抽出も終りに近づいているものと考えられる。

このことからみると、抽出時間は2時間位が適当と考えられる。

また120分抽出液のpHをみると、ユーカリ4.7、サツマイモ5.4、屋久杉5.2、葛7.6で、この試料の中ではユーカリのpHが最も低く酸性物質が多く抽出されたものと考えられる。

また葛については、他の試料と異り、弱アルカリ性を示した。この成分については今後検討してみたい。

次に図2から抽出後の経時変化をみると、各試料とも14日まではpHの大きな動きはみられな

った。このことから抽出物の腐敗はみられなく、この試験から考察すると、抽出後14日までは保存が出来るものとする。

表3 蒸発残留物に対する灰分比 (%)

抽出時間 試料	ユーカリ	サツマイモ	屋久杉	葛
30 (分)	7.54	2.38	26.82	7.30
60	8.12	2.74	19.07	7.42
120	8.22	2.89	15.02	7.44
180	8.41	3.06	13.39	6.97

4.2 抽出物質

図3から抽出物についてみると、蒸発残留物はユーカリ30分で7500mg/l、60分で9200mg/l、120分で10000mg/l、180分で11000mg/l、又、サツマイモも同じように、7100mg/l、8700mg/l、9600mg/l、10000mg/lと時間と共に同じ様な増加の傾向を示した。しかしユーカリは抽出物の中に有機物が87～88%、灰分が12～13%に対し、サツマイモは有機物58～67%、灰分33～42%と灰分が多く含まれていることがわかった。

屋久杉は他の植物に比べて、抽出物質が約1/8と非常に少ない。

葛についてみると、抽出時間30分で蒸発残留物11000mg/l、60分で12000mg/l、120分で12000mg/lと抽出時間による抽出物の増加はあまりみられなかった。またこの抽出物の86%は有機物であった。

また各抽出液の蒸発残留物に対する灰分比は表3のとおりである。

4.3 吸光度

抽出物の経日変化をみるため、抽出後、1、3、7、14日目の吸光度を測定した。波長280nm付近にピークがあらわれたので、この点を測定した。図4からユーカリ、サツマイモについてみると、抽出時間が長い程、ピーク値も高い。すなわち抽出物質が多いことがわかる。図5から経時変化を

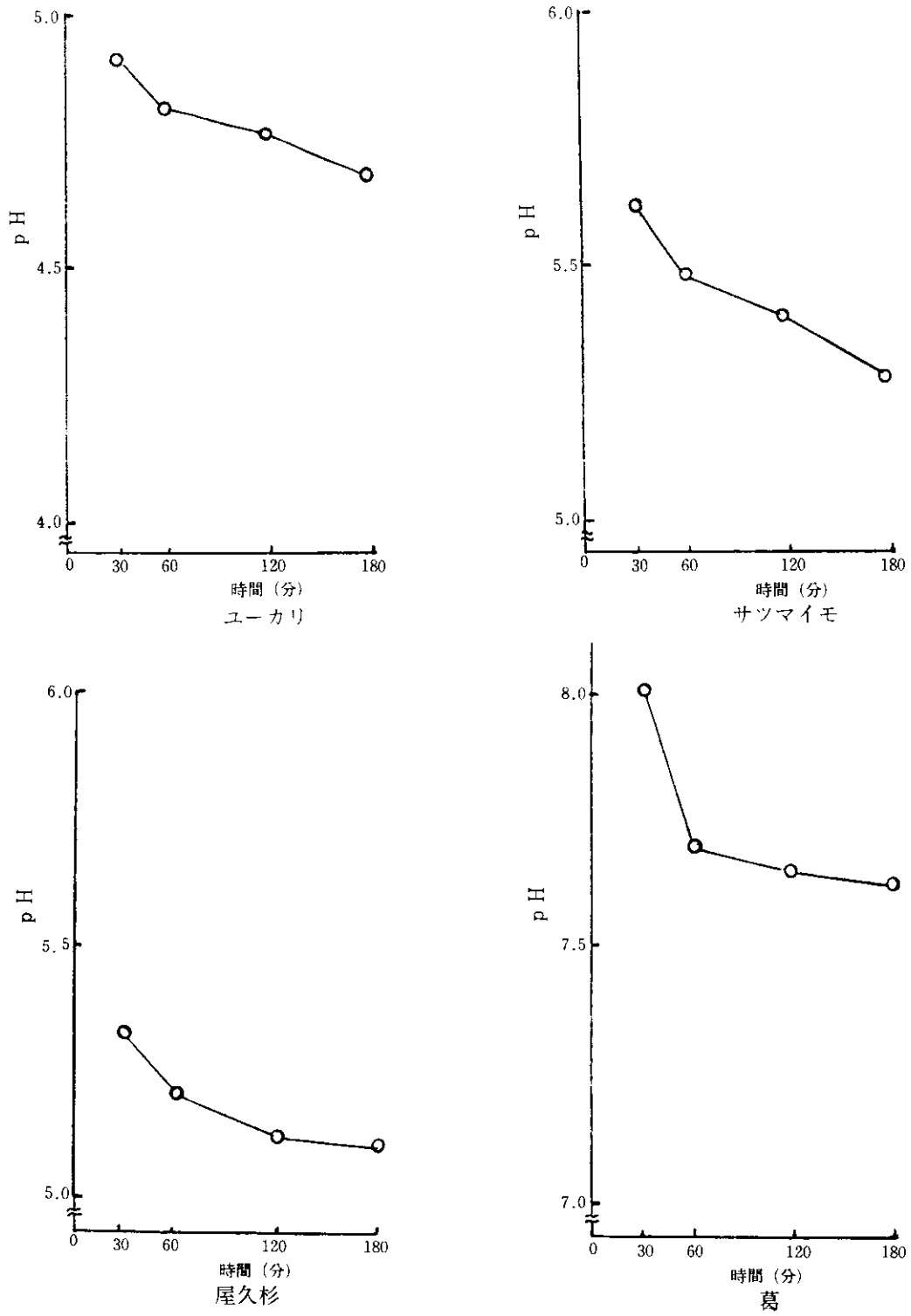


図1 抽出時間とpH

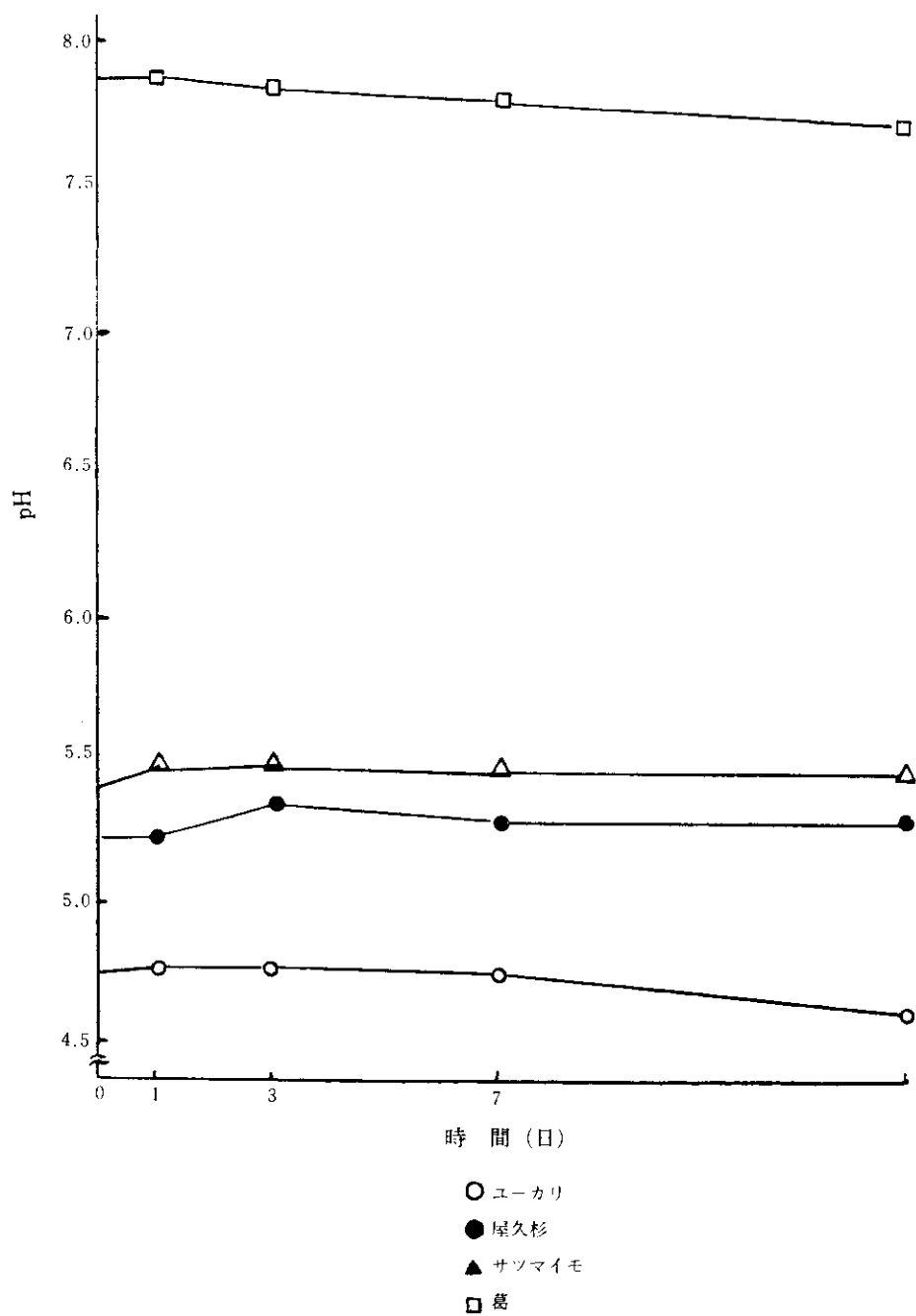


図2 抽出液の経時変化

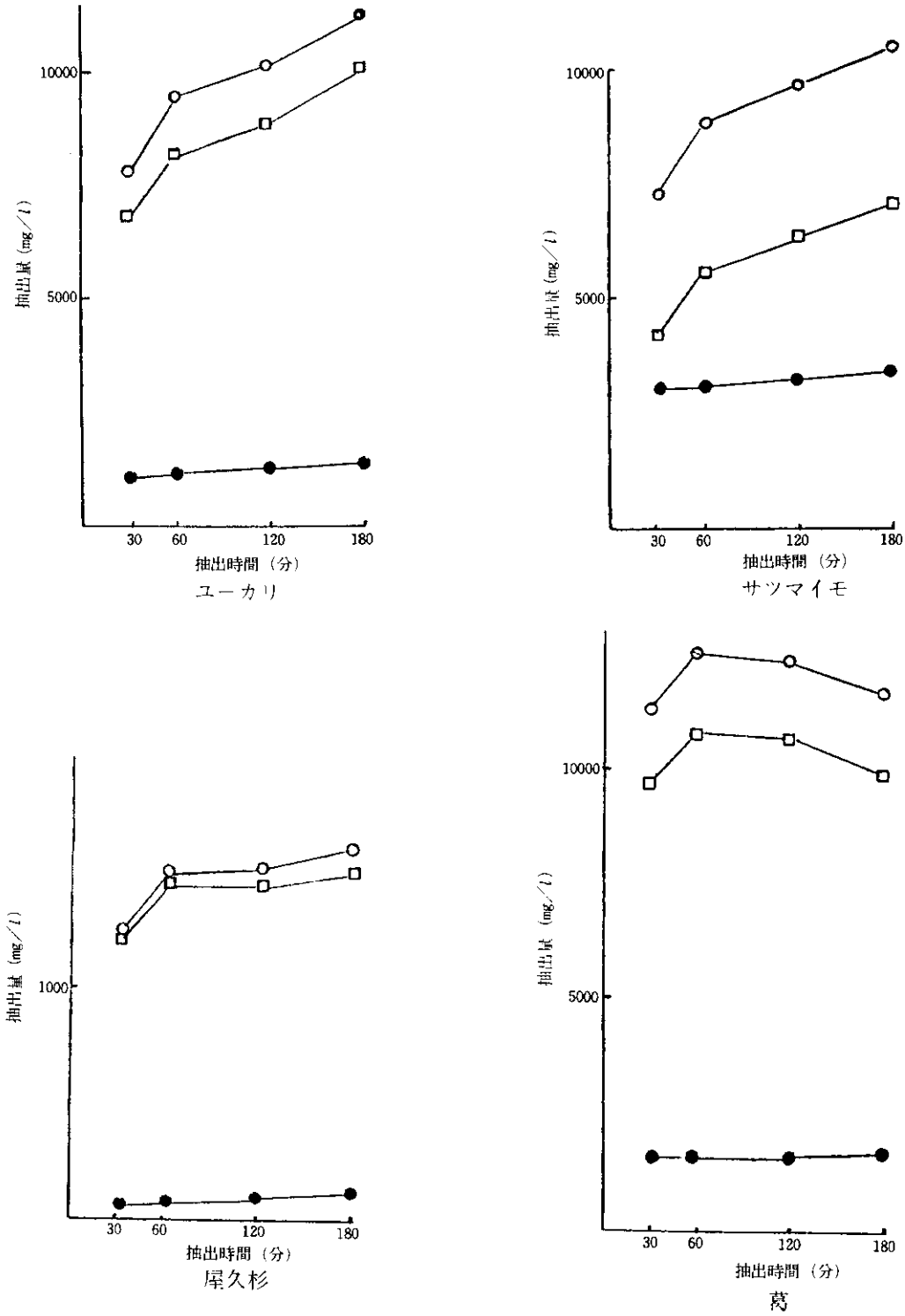


図3 抽出時間と抽出量

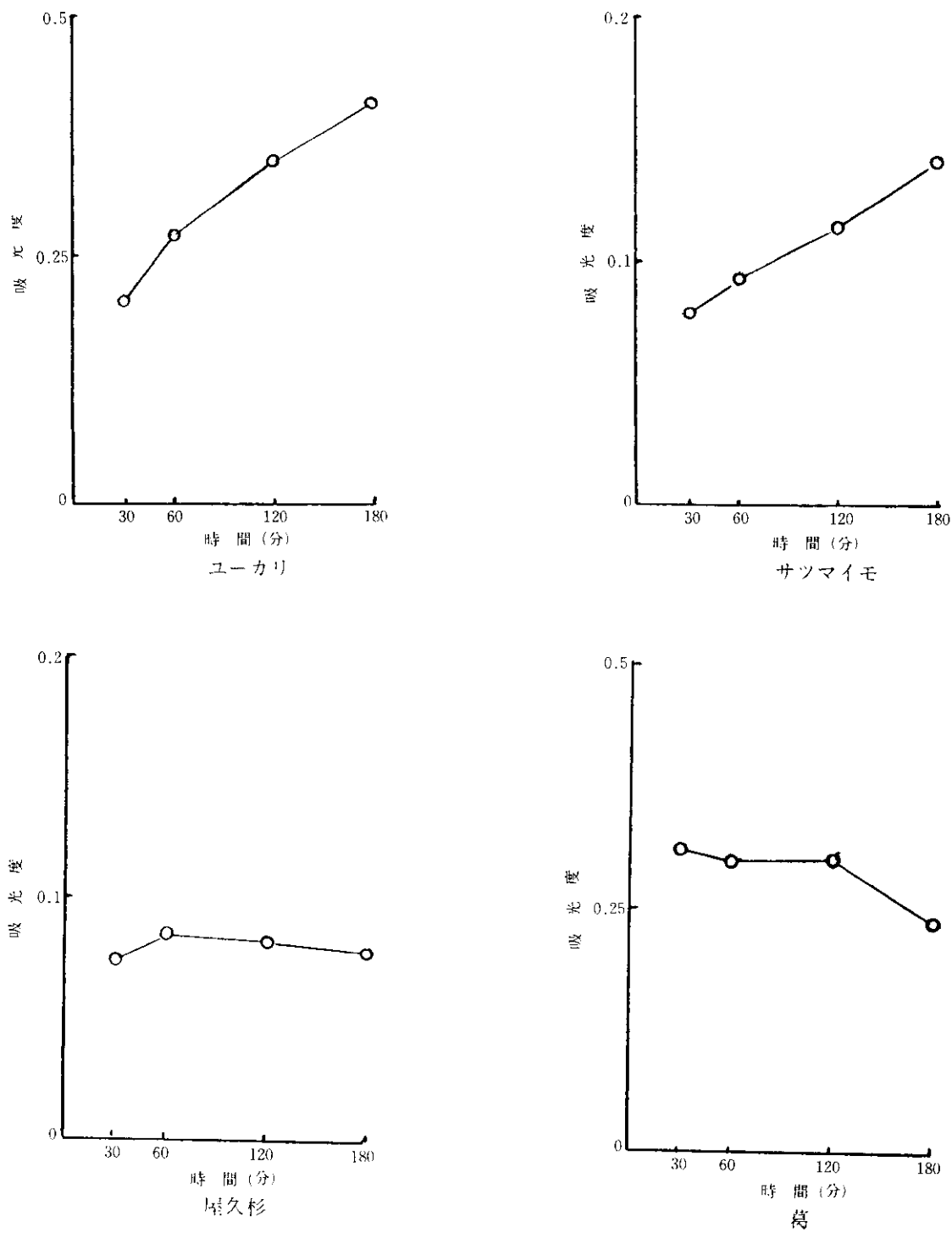


図4 抽出時間と吸光度 (測定波長280nm)

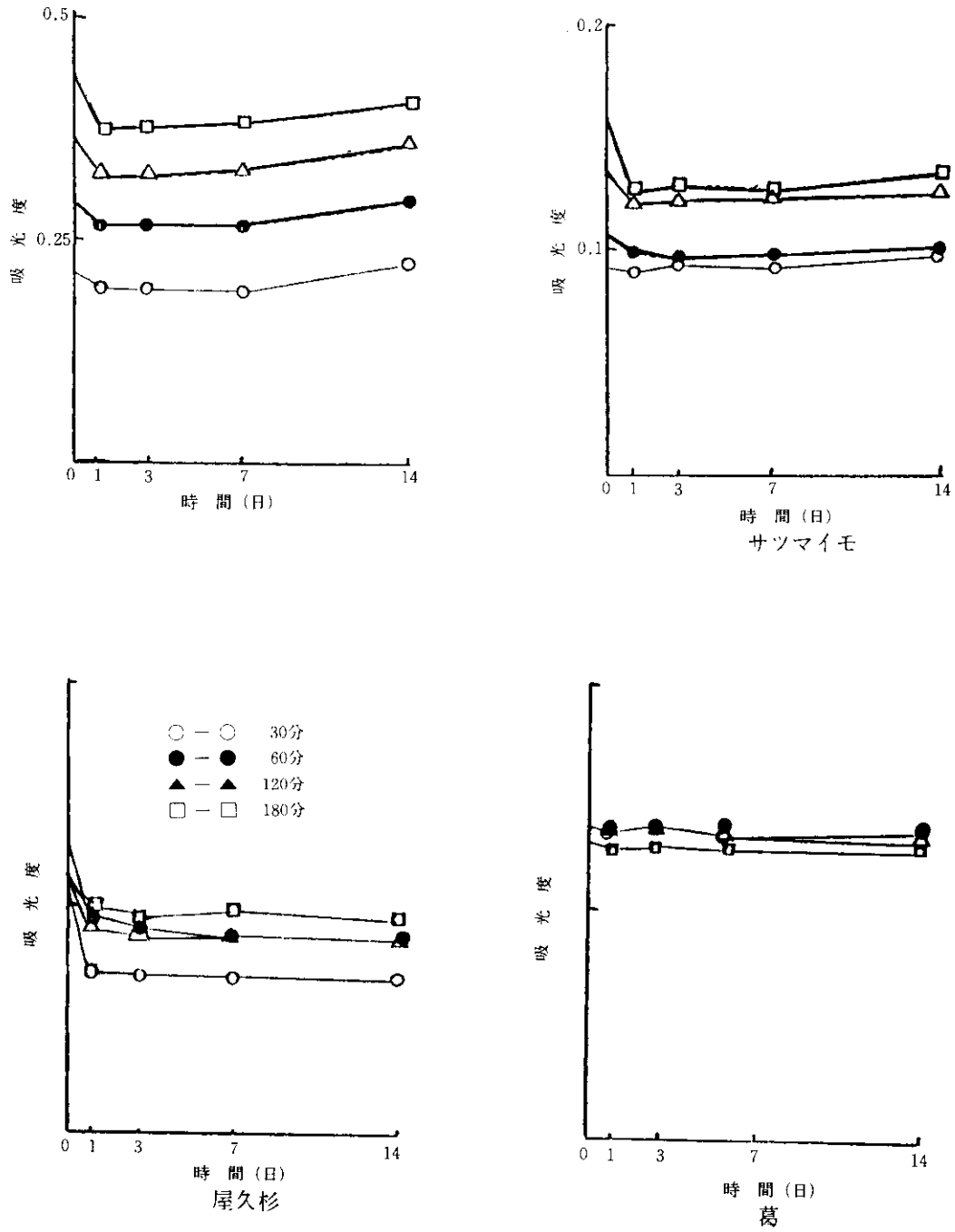


図5 抽出液の吸光度と経時変化 (測定波長280nm)

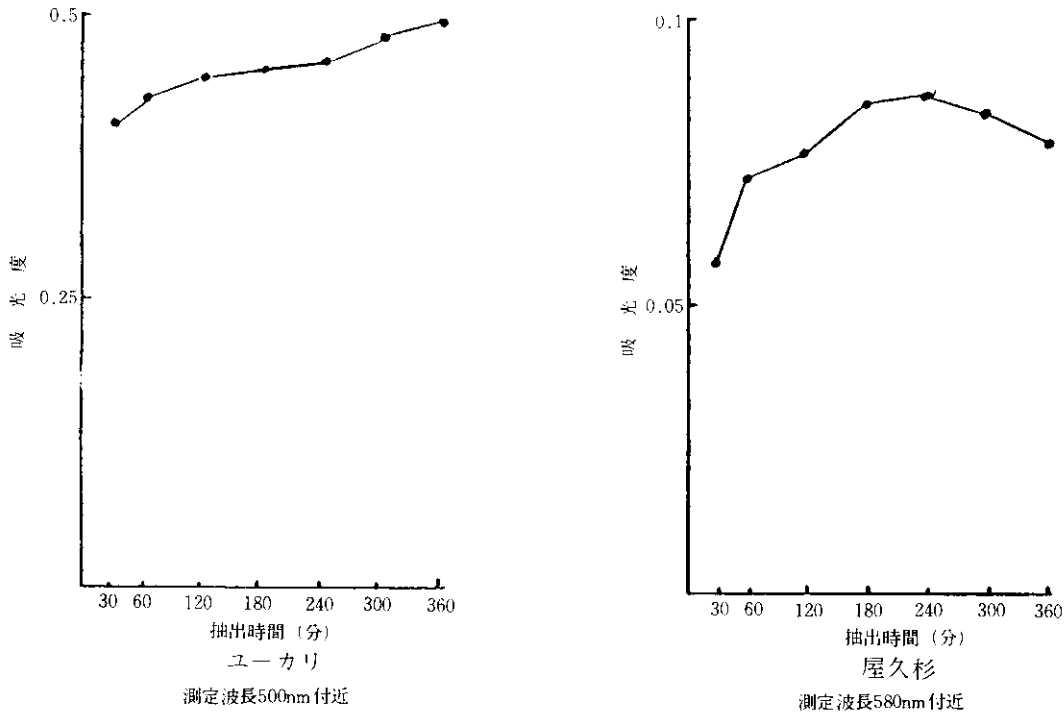


図6 抽出時間とタンニン分の測定

みると1日目は吸光度が少々さがったが、3日目から徐々に、ピーク値があがっていった。

また図1のpHと図4の吸光度を試料ごとに比較すると、ほぼ逆の形をしたグラフになった。

次に屋久杉、葛については、抽出時間を長くしても、抽出物の吸光度の変化はあまりみられなかった。

4.4 タンニンの定量

ユーカリ、屋久杉についてはバニリン塩酸法によってタンニンを発色させ、吸光度を測定した。

尚ユーカリは波長500nm付近、屋久杉は580nm付近で測定した。ユーカリについて図5からみると、抽出時間が長い程、タンニンが多く抽出されていることがわかる。

また屋久杉については抽出時間と共に240分までは増えるが、それ以降は減少している。

サツマイモ、葛については、バニリン塩酸法ではタンニンの発色がみられなかった。

4.5 色素の吸着

図7からみると、ユーカリ、サツマイモでは、2時間抽出したものがAl, Cu, Sn, Feで処理した絹糸への吸着が大きく、絹糸の増量率が最も高くなることがわかった。

屋久杉については、増量率も1%前後と少い。これは図5からみて、抽出物質が他の植物の抽出物に比べて少いことから、増量率も低いものと考えられる。

葛については、抽出時間も30分で十分抽出されており、長い時間かけて抽出したものより、短い時間で抽出したものが、金属塩処理した絹糸への吸着が大きく、増量率が高いことがわかった。

4.6 色相

金属塩Al, Cu, Sn, Feで処理した絹糸に植物色素を吸着させた。これによって発色した色をマンセル記号HV/Cで表4に示した。またマンセルの色相環を図8に示した。

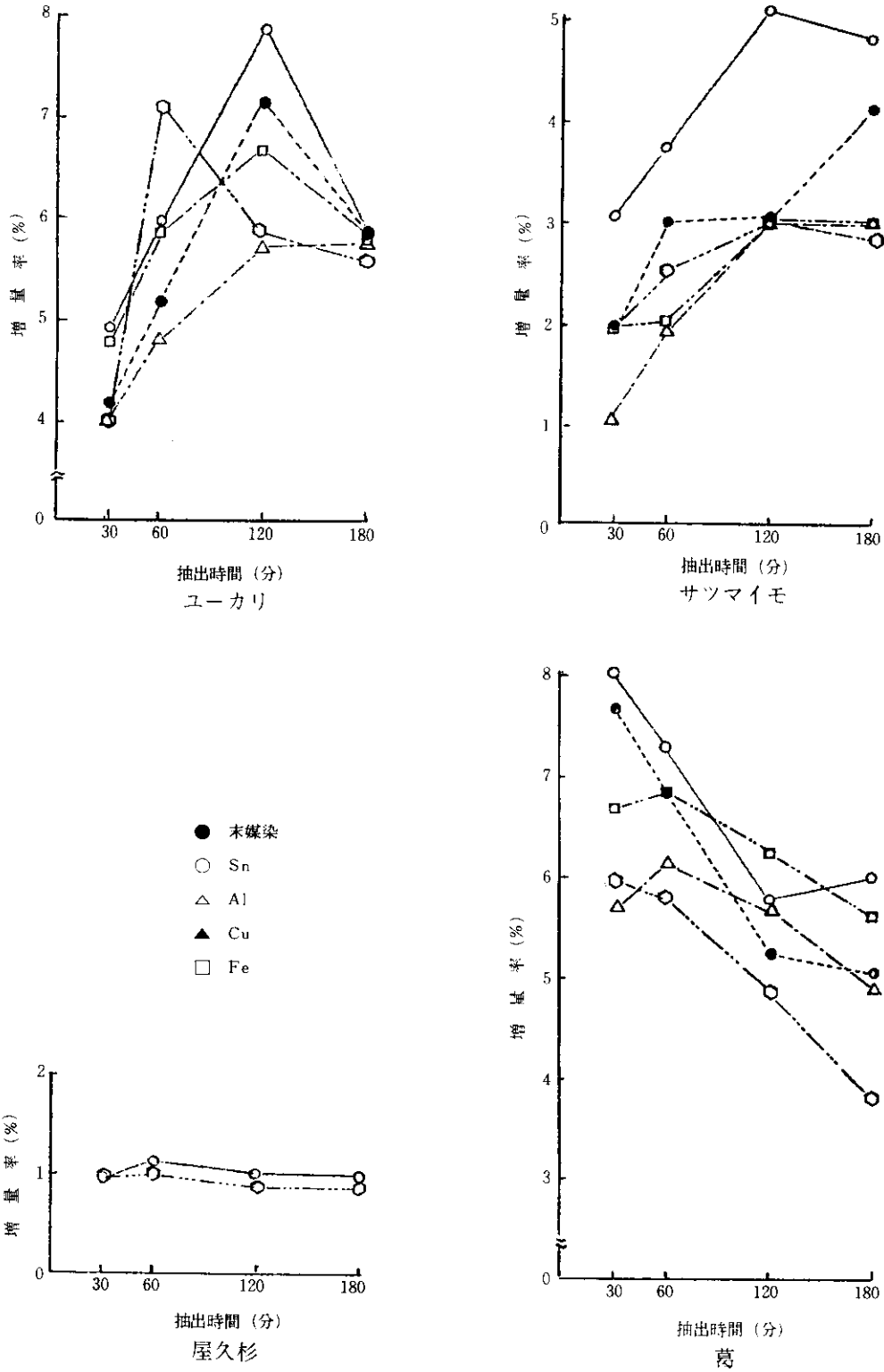


図7 抽出時間と増量率

表4 金属塩処理と色素の発色

ユーカリ

抽出時間	処理	未処理	Sn	Al	Cu	Fe
30 min		8.2Y R $\frac{2.9}{7.5}$	2.6Y $\frac{4.2}{7.9}$	1.4Y $\frac{4.3}{7.4}$	9.3Y R $\frac{4.6}{6.4}$	4.5R $\frac{1.3}{3.9}$
60		8.2Y R $\frac{3.1}{7.4}$	2.5Y $\frac{4.4}{7.8}$	1.4Y $\frac{4.4}{7.2}$	9.4Y R $\frac{4.6}{6.2}$	6 R $\frac{1.5}{3.9}$
120		8.2Y R $\frac{3.5}{7.2}$	2 Y $\frac{4.6}{7.7}$	1 Y $\frac{4.6}{7.1}$	9.5Y R $\frac{4.5}{6}$	8 R $\frac{1.5}{3.8}$
180		8 Y R $\frac{3.5}{7.2}$	1.8Y $\frac{4.6}{7.7}$	0.8Y $\frac{4.6}{7}$	9.6Y R $\frac{4.4}{5.9}$	9 R $\frac{1.5}{3.8}$

サツマイモ

抽出時間	処理	未処理	Sn	Al	Cu	Fe
30 min		8.1Y R $\frac{3}{7.5}$	1 Y $\frac{3.8}{7.6}$	0.7Y $\frac{3.9}{7.1}$	1.2Y $\frac{2.8}{5.9}$	9.2Y R $\frac{1.7}{5}$
60		8.2Y R $\frac{3.1}{7.4}$	1 Y $\frac{3.9}{7.5}$	0.5Y $\frac{3.8}{7}$	1 Y $\frac{2.8}{6}$	9.2Y R $\frac{1.8}{5}$
120		8.3Y R $\frac{3.2}{7.3}$	1 Y $\frac{4}{7.4}$	0.5Y $\frac{3.6}{7}$	1 Y $\frac{2.9}{6}$	9.2Y R $\frac{1.8}{5}$
180		8.5Y R $\frac{3}{7.1}$	1 Y $\frac{4}{7.4}$	0.5Y $\frac{3.6}{7}$	0.6Y $\frac{3}{6}$	9.7Y R $\frac{1.8}{5.3}$

屋久杉

抽出時間	処理	未処理	Sn	Al	Cu	Fe
30 min		5 Y R $\frac{2.5}{7.7}$	8.4Y R $\frac{3.5}{7.7}$	7.5Y R $\frac{3.4}{7.3}$	7.7Y R $\frac{3.1}{5.6}$	8 Y R $\frac{1.8}{5.5}$
60		5.2Y R $\frac{2.7}{7.7}$	9.5Y R $\frac{3.5}{7.6}$	8.2Y R $\frac{3.9}{7.2}$	8.1Y R $\frac{3.3}{5.6}$	8.1Y R $\frac{1.8}{5.3}$
120		5.5Y R $\frac{2.7}{7.7}$	9.6Y R $\frac{4.2}{7.5}$	8.2Y R $\frac{3.9}{7.2}$	8.3Y R $\frac{3.3}{5.6}$	8.1Y R $\frac{1.9}{5.2}$
180		4.7Y R $\frac{2.7}{7.6}$	9.7Y R $\frac{4.4}{7.4}$	8.6Y R $\frac{3.9}{7.2}$	8.3Y R $\frac{3.3}{5.6}$	8.6Y R $\frac{2}{5.2}$

葛

抽出時間	処理	未処理	Sn	Al	Cu	Fe
30 min		7.5Y R $\frac{3.1}{6.9}$	8.1Y R $\frac{3.7}{6}$	8 Y R $\frac{3.5}{6.5}$	8.5Y R $\frac{3.5}{5.7}$	8 Y R $\frac{2.8}{5.5}$
60		8 Y R $\frac{3.3}{6.5}$	8.4Y R $\frac{3.7}{6}$	8.2Y R $\frac{3.7}{6.3}$	8.5Y R $\frac{3.5}{6}$	8.5Y R $\frac{2.8}{5.6}$
120		8.2Y R $\frac{3.4}{6.5}$	8.5Y R $\frac{3.7}{6.2}$	8.4Y R $\frac{3.7}{6.2}$	8.5Y R $\frac{3.5}{6}$	8.5Y R $\frac{2.8}{5.6}$
180		8.2Y R $\frac{3.4}{6.5}$	8.5Y R $\frac{3.8}{6.4}$	8.5Y R $\frac{3.8}{6}$	8.5Y R $\frac{3.5}{6}$	8.5Y R $\frac{2.8}{5.6}$

(注) 色の表示は

H 色相
V 明度
C 彩度

4.7 吸光度, pH, 全蒸発残留物の相関

抽出液の吸光度, pH, 全蒸発残留物, 増量率, タンニン定量の相関について調べた⁵⁾。その結果, ユーカリ, サツマイモでは, 吸光度, pH, 全蒸発残留物の間に高い相関が認められたが, はかものには, 相関が認められなかった。

その結果を図9, 図10に示す。

図9からユーカリのpHと吸光度の相関係数を計算すると, $r = -0.9961$ と高い負の相関が認められ, また全蒸発残留物と吸光度についても, $r = 0.9921$ と高い正の相関にあることがわかった。

図10からサツマイモのpHと吸光度の相関係数を計算すると, $r = -0.9804$ と高い負の相関関係にあることがわかった。

また全蒸発残留物と吸光度についても, $r = 0.9618$ と正の高い相関関係にあることもわかった。

このことから, ユーカリ, サツマイモにおいては, 吸光度の値から, pH, 全蒸発残留物の概略値を推測できることがわかった。

5. おわりに

ユーカリについてはタンニン分や有機物が多く含まれ, また, Al, Sn, Cu, Fe塩との結合によ

て黄, 橙, 黒などに発色することから, 濃厚な色の染料として, 利用価値が高いものと考え。

屋久杉については, 有機物が少いため, 染色物の増量は期待できない。しかし, 染色物は橙系の鮮明な色に発色することから, 淡い色の染料としての利用価値が高いものと考え。

サツマイモについては, ユーカリと同じ位の有機物が含まれており, カーキ色の渋い色素が抽出される。しかし灰分が多く含まれており, 今後, 染色への影響を調べたい。オリーブ色の染色材として期待したい。

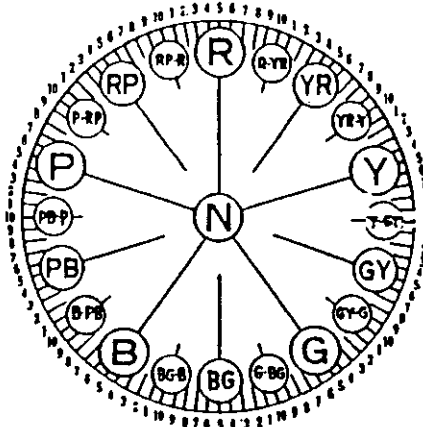


図8 マンセルの色相環

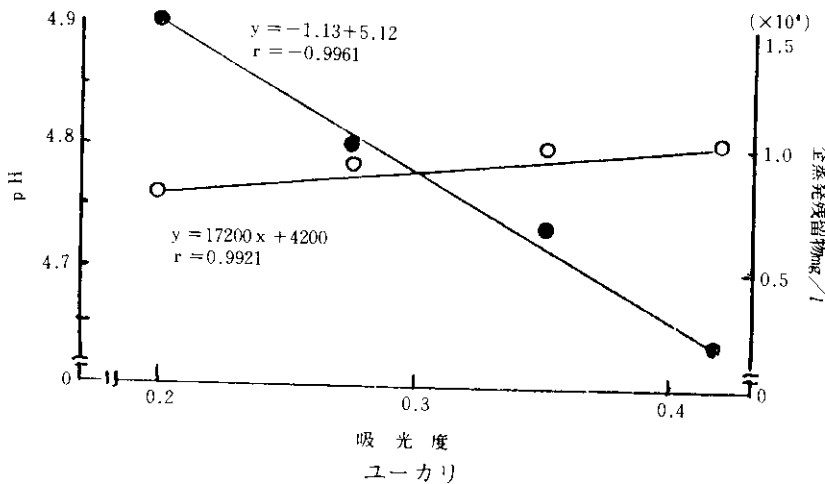


図9 抽出液におけるpH, 吸光度, 全蒸発残留物の相関

- : pH と吸光度
- : 全蒸発残留物と吸光度

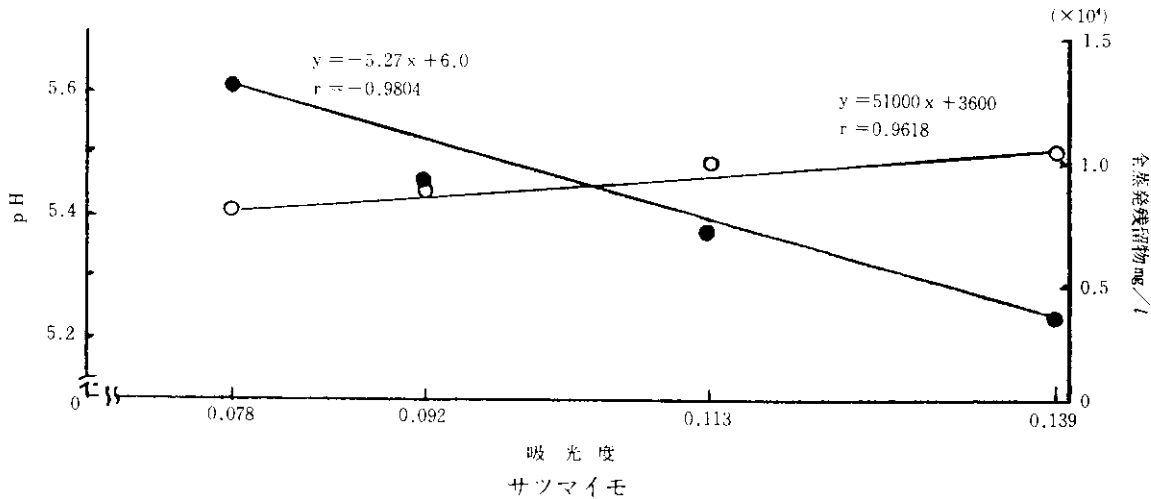


図10 抽出液におけるpH, 吸光度, 全蒸発残留物の相関

● : pHと吸光度

○ : 全蒸発残留物と吸光度

葛については有機物が多く、色素の抽出がしやすい。濃い茶系の色素が抽出され、金属塩との結合によって黄茶、オリブ系の染料として、利用価値が高いものと考えられる。

以上のことから、今後染色材として、年中利用できるよう、保存法についても検討したい。

また抽出物のタンニン定量、薄層クロマトによる定性についても手がけたが、十分な試験も出来なかったため、今後抽出成分と染色の関連について研究をすすめたい。

なお本研究にあたり試料の提供などについて御協力をいただいた錦広八堂の田口社長、大隅開発錦の中野社長、ユーカー園の森紋平氏、また植物色素の分析に協力のあった当所の古川郁子さんに対し深く感謝します。

参考文献

- 1) 山崎青樹著：草木染 (1969) 27
- 2) 杉尾孝一 鹿工試業務報告 26 (1963)
- 3) 貞弘頼子・渡辺敬 山口大学教育学部
研究論叢第22巻 第2部 45 (1972)
- 4) 大智 浩著：デザインの色彩計画 (1970)
59
- 5) 日高 修, 中村照志, 水元弘二, 松久保好太朗 鹿工試年報, 32 111 (1985)