

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 15 日現在

機関番号：24201  
 研究種目：基盤研究（C）  
 研究期間：2010～2012  
 課題番号：22500720  
 研究課題名（和文）各種藍草からの安定的かつ効率的なインジゴ生成法の確立と残滓色素の有効利用  
 研究課題名（英文）Establishment of stable and effective methods for formation of indigo from various natural indigo plants and effective utilization of remaining coloring matters after the dyeing with conventional methods.  
 研究代表者  
 道明 美保子（DOUMYOU MIHOKO）  
 滋賀県立大学・人間文化学部・教授  
 研究者番号：60074085

研究成果の概要（和文）：インジゴ生成において、加水分解酵素の活性を促す方法および藍葉の段階での酸化カップリング反応を促進する方法の有効性を、処理藍葉に含まれるインジゴ量から検討した。ドライヤー乾燥、手揉みや叩くなどの処理をすることで藍草に含まれるインジゴ量が増加した。次に乾燥藍葉を沈殿藍やすくもに加工せず、粉碎して直接染色に用いることが可能かどうかを検討した。その結果、この方法が非常に有効で、藍による染色工程を簡略化できることが明らかになった。また、天然藍から沈殿藍を製造後の残滓色素の有効利用について検討し、すくも作製と堆肥としての利用の可能性を見出した。

研究成果の概要（英文）：Effectiveness of the methods for promotion of the activation of hydrolase and for promotion of the oxidative coupling reaction was examined from the amount of indigo included in the leaves of natural indigo plants treated with various means. It was proved that the operations as the dry with a drier, the rubbing together by hand and the beating lead to an increase in indigo in the leaves of natural indigo plants. Next, it was examined whether the direct dyeing by using a crushed dry leaf of natural indigo plants is possible instead of the dyeing with precipitation indigo or sukumo indigo. As a result, it has been confirmed that this simplified method of dyeing was very effective. The residues after the preparation of precipitation indigo from natural indigo plants proved to be applicable to the compost or the preparation of sukumo.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	900,000	270,000	1,170,000
2011年度	800,000	240,000	1,040,000
2012年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
総計	2,200,000	660,000	2,860,000

研究分野：総合領域

科研費の分科・細目：生活科学・生活科学一般

キーワード：藍、酵素活性法、インジゴ含有率、乾燥藍葉、簡便染色法、残滓色素

1. 研究開始当初の背景  
 (1) 研究の全体構想とこれまでの研究成果

私はこれまで、主として染色の基礎理論に関する研究に従事してきた。とりわけ古

来の染色技法と現代の染色科学を融合するために、天然色素の媒染機構や各種天然色素の絹繊維に対する染着機構を熱力学的立場から考察した。その他植物染料を用いて得た成果や知見を日本家政学会、日本繊維製品消費科学会、日本蚕糸学会などで報告し、その一部を著書として出版した。さらに 2000 年から海外（インドネシア、インド、中国、ベトナム、ラオス、台湾）の染織の現状調査を行ない、天然染料を用いた染色技術を継承し、素晴らしい染織物を次世代に引き継ごうとしている地域と合成染料に移行した地域の両方の現状を知り、環境と安全に配慮した天然色素の有効利用方法を研究し、その成果を国内・国外に普及することが重要であると痛感した。

## (2) 本研究の着想経緯

天然染料に関する研究や調査を続ける中で、染色の原点とも言われる「藍」の製造方法は江戸時代を中心に行なわれていた方法が現在も用いられており、それらは天候等、自然の影響を受けやすいという問題点があり、伝統的手法を現代の科学から検証し直し、安定的かつ効果的な新しい製造方法の確立を急ぐ必要があるのではないかと考えるに至った。

藍の研究は武庫川女子大学の牛田氏が精力的に研究されてきた。それらは、すくもに含まれる赤色色素の抽出と分析や生葉染めに関するものである。最近では羽賀氏らが天然藍染めによる綿織物染色の物性変化を合成インジゴによるものと比較検討している。また、川人氏の天然藍（阿波藍）の染色性についての研究報告もある。海外の藍については、グアテマラやエルサルバドルの藍についての児島氏や大井氏らの報告がある。これらの研究は藍を化学的・物理的・染色方法からの視点であり、それらは現代も受け継がれている江戸時代を中心に行なわれていた伝統的手法により得られた色素に対するものであり、現代の染色科学に基づいてすくも藍や沈殿藍の製造方法や残滓色素の有効利用については研究されていない。

## 2. 研究の目的

すくも藍製造での藍草に含まれているインジカンやインジゴに変わる酵素インジカナゼの活性を促す方法は、一般に生葉を天日で乾燥することによりインジゴが葉中に生成すると信じられて、その方法がとられている。しかし、刈り取り直後の生葉および茎は含水率が高いうえ保水力があり、更に多量の葉茎は必然的に積み重ねられて干すことになるため、晴天日が連続した好環境でも容易に乾燥するものではない。曇天や雨天では、乾燥時間が倍増することに

加え、葉茎の放つ発酵熱によりインジゴ前駆体の変質することも多々ある。この重要な「乾燥」作業の良否によりインジゴ生成率の変動や異性体生成による色素変化など悪影響が生じると考えられる。

本研究では、藍草タデアイを対象にして酵素インジカナゼの活性を促す方法を検討し、最も確実なインジゴ生成方法を検討する。得られた方法をタデアイ以外の藍草（琉球藍・ナンバンコマツナギ・ウオード）にも適用し、その有効性を検証する。沈殿藍製造では、発酵の安定と酵素活性の長期維持を可能にする方法および沈殿藍製造後の残滓色素の有効利用法を提示する。

## 3. 研究の方法

(1) 藍草 5 種類（琉球藍・タデアイ・ナンバンコマツナギ・ウオード・ミャンマーのナンバンコマツナギ）を用い、インジカンとインジカナゼの接触（叩く・揉む）、光（天日乾燥・日陰乾燥）、熱（ドライヤー乾燥・アイロン乾燥）の各種処理を行なった。

### (2) 吸収スペクトル曲線

処理藍草を乳鉢で粉碎後、目開き  $125\mu\text{m}$  の篩に通して粒子を微細化して得た粉末  $0.01\text{g}$  に  $\text{N}'\text{-N}$ -ジメチルホルムアミド（DMF と略称） $2\text{ml}$  を加え、攪拌しながら抽出液が透明になるまで繰り返し全量  $50\text{ml}$  とし、インジゴが示す最大吸収  $611\text{nm}$  の吸光度を測定した。

### (3) インジゴ量測定

(2) で測定した吸光度を、合成インジゴと市販インド藍粉末のインジゴ量を 100 とした時のそれらに対する各種藍草の抽出時間による吸光度変化を補正し、合成インジゴと市販インド藍粉末のインジゴ量を 100 とした時のそれらに対する各種藍草のインジゴ含有率 (%) を算出した。

(4) 藍草に含まれるインジゴは泥藍やすくも藍に加工して染色に用いられるが、多くの手間と精巧な技術が必要なため一般には普及し難い。そこで、乾燥藍葉を前述の加工をせず染色に用いる方法について、タデアイ乾燥藍葉および市販インド藍粉末を用いて検討した。試験布には平織綿布を用い、使用する水酸化ナトリウム（以後 NaOH と略記）とヒドロサルファイトナトリウム（以後ヒドロと略記）の適性値、染色時間、浴比、染色温度などを変化し最適染色条件を決定した。染着性の評価は K/S 値および  $a^*b^*$  値により行なった。

(5) 各種処理藍草を用い(4)で得られた最適染色条件で綿布を染色し、その染色効果

を検討した。

#### (6) 染色堅ろう度の測定

染色堅ろう性は JIS による方法と K/S 値およびクロマチネス指数  $a^*b^*$  値から判定した。

##### ①耐光堅ろう度

光に対する染色物の抵抗性の評価は、「紫外線カーボンアーク灯光に対する染色堅ろう度試験方法 (JIS L 0842) 第 5 露光法」に従って行なった。

##### ②洗たく堅ろう度

洗たくに対する染色物の色の抵抗性の評価は「洗濯に対する染色堅ろう度試験方法 (JIS L 0844) A-1 法」に従って行なった。

##### ③摩擦堅ろう度

摩擦に対する染色物の色の抵抗性の評価は「摩擦に対する染色堅ろう度試験方法 (JIS L 0849)」に従い、摩擦試験機 II 型 (学振型) で行った。

(7) 沈殿藍製法を琉球藍葉およびナンバンコマツナギ品種藍葉において沖縄本島と石垣島で調査すると共に沈殿藍製造後の残滓藍葉の活用の可能性等について検討した。

#### 4. 研究成果

(1) タデアイを各種処理をした後、DMF で抽出し、得られた吸収スペクトル曲線を図 1 に示した。

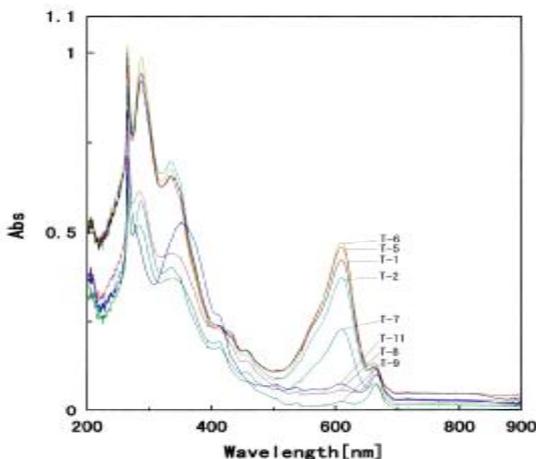


図 1 各種処理タデアイの DMF 抽出液の吸収スペクトル曲線

(T-6: 手揉み, T-5: すりこぎ, T-1: 茎ごと天日乾燥, T-2: 茎ごと日陰乾燥, T-7: ドライヤー乾燥, T-11: 沈殿藍作製後, T-8: アイロン, T-9: 熱湯処理)

すりこぎでたたいた葉と手揉みした葉に多くのインジゴが含まれていた。通常の天日乾燥処理した葉に比べて手揉みした葉からは約 15% も多くインジゴを抽出することができた。一方で、アイロンでプレスした葉と熱湯処理した葉からは沈殿藍作製後の残滓よりも少ないインジゴ量しか得られなかつ

た。酵素は熱に弱く、一般に  $50^{\circ}\text{C} \sim 70^{\circ}\text{C}$  を越えると成分が変化する性質から、酵素インジカーナゼが働かなかつたと考えられる。また、琉球藍やタデアイでは  $611\text{nm}$  にインジゴの高い吸収ピークをみることができ、ナンバンコマツナギではその吸光度は小さく、葉自体のインジゴ量は少ないと判明した。

(2) 各種藍葉を加工処理し、それらのインジゴ量の変化を図 2 に示した。

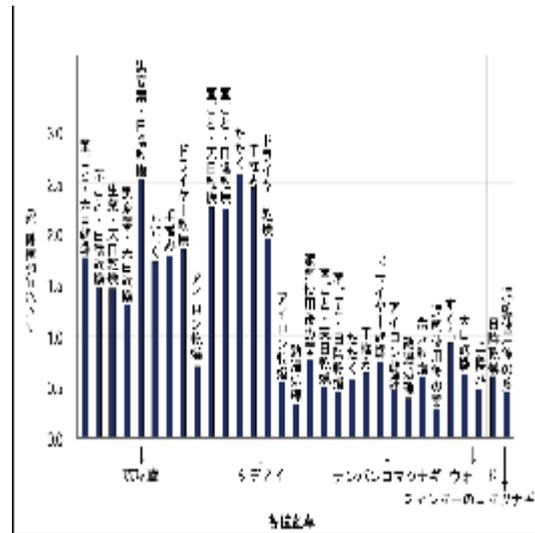


図 2 合成インジゴに対する各種藍草のインジゴ含有率 (%)

各種藍草のインジゴ含有量には差があり、さらに同じ藍草でも処理方法の違いによって、得られるインジゴ量が変わった。ドライヤー乾燥、手揉みやたたくななどの処理をすることで藍草に含まれるインジゴ量は増加した。一方で、アイロンや熱湯処理、 $45^{\circ}\text{C}$  乾燥などは酵素を失活させる原因となりインジゴ量は減少した。

各種藍草のインジゴ含有量には差があり、さらに同じ藍草でも処理方法の違いによって、得られるインジゴ量が変わった。ドライヤー乾燥、手揉みやたたくななどの処理をすることで藍草に含まれるインジゴ量は増加した。一方で、アイロンや熱湯処理、 $45^{\circ}\text{C}$  乾燥などは酵素を失活させる原因となりインジゴ量は減少した。

(3) 藍草を泥藍やすくもに加工せず、微粉して染色に用いる方法を検討した。得られた結果は以下のとおりである。

- ①乾燥藍葉の粉碎粒子の大きさは染着量 K/S 値および染色物の色相に大きな影響を与えないが、微粉末にすることにより扱いやすくなる。
- ②アルカリ・還元浴は NaOH 濃度:  $0.6\text{g/L}$ 、ヒドロ濃度:  $1.5\text{g/L}$  が適切である。
- ③染色時間は 10 分間で染着量はほぼ一定に

- なる。
- ④ 染浴温度は24~60℃では染着量K/S値に大きな影響を及ぼさず、染浴温度の上昇と共に僅かに減少する。
  - ⑤ 別浴で染色すると、染色回数の増加に従い染着量は直線的に増加した。同浴での染色でも、別浴染色に比べ僅かに劣るが同様に増加した。
  - ⑥ 綿布のカチオン化処理により、染着量は約2倍に増加する。
  - ⑦ 市販インド藍粉末を用いた場合の染着量はタデアイの場合の約69%と少ない。

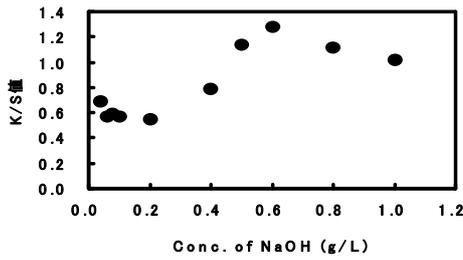


図3 綿布の染色におけるNaOH量が染着量に及ぼす影響

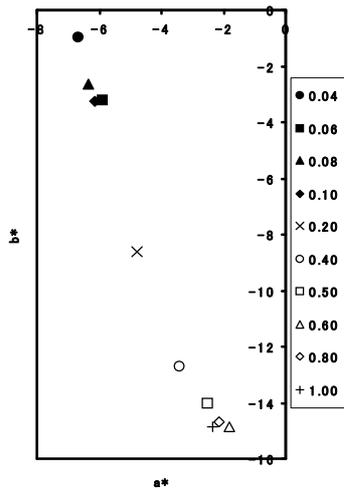


図4 綿布の染色におけるNaOH量が色相に及ぼす影響

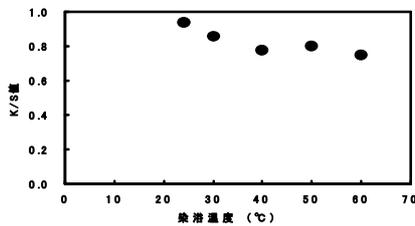


図5 綿布の染色における染浴温度がK/S値に及ぼす影響

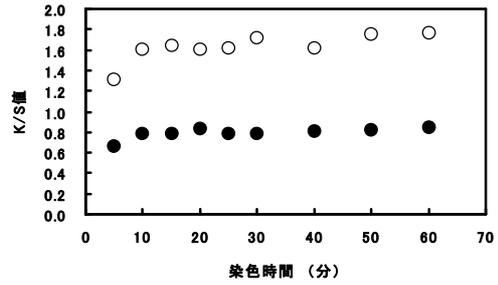


図6 綿布の染色における染色時間がK/S値に及ぼす影響  
(○: カチオン化処理あり、●: カチオン化処理なし)

(4) 最適染色条件により各種処理藍草を用い、綿布を染色しその染着効果を図7に示した。

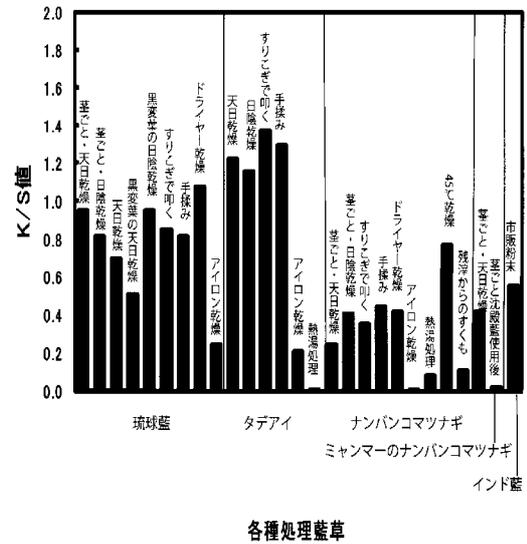


図7 各種藍草による綿布の染色

タデアイは綿布に対する染着量が大きく、次いで琉球藍で、ナンバンコマツナギ藍葉は染着量が少ない結果となった。これらの結果は図2の各種処理藍草のインジゴ含有率と似た結果を示している。しかし、琉球藍ではドライヤー乾燥が、ナンバンコマツナギ藍葉では、インジゴ含有率では飛びぬけて大きな値を示さなかった45℃乾燥の乾燥藍葉による値が大きかった。

このことは、熱風によりすばやく乾燥し、粉末にした藍葉による染色が有効であることを示している。

ナンバンコマツナギによる泥藍製造後の残滓からのすくものインジゴ含有率は高かったのに比し、木綿への染着量は少ない結果となった。また、ミャンマーの沈殿藍製造後の藍葉による染着量も少なかった。これらの結果は残滓有効利用の検討の参考となる。

(5) 染色堅ろう度の結果を表1図(視感法)および図8(K/S値)に示した。

表1 乾燥法による各種染料の堅ろう度

	乾燥タデアイ	各種インジゴ	インド藍粉末	すくも藍
色むら	4級	4級	4級	4級
厚さ	4級	3~4級	3~4級	4~5級
堅性	4~5級	3級	3~4級	4~5級

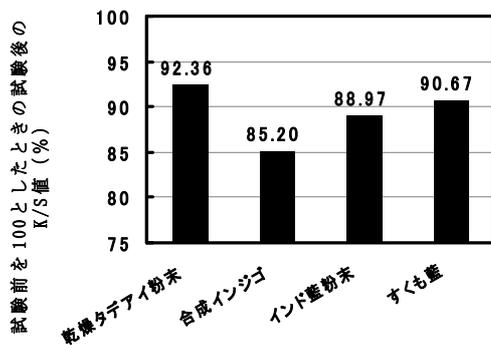


図8 各種堅ろう度試験前を100としたときの試験後のK/S値

乾燥タデアイ粉末を用いた場合の染色物は他の各種藍染料を用いた場合とほぼ同程度の堅ろう度であり、堅ろう性において有効であることがわかった。また、染色堅ろう性の評価にK/S値を加えることにより、より詳細な検討が可能になった。

(6) 沈殿藍製法を琉球藍およびナンバンコマツナギ品種藍葉において沖縄本島と石垣島で調査した。

琉球藍葉の発酵安定のための漬け込み時間はナンバンコマツナギ藍葉に比し長く、気温18~19℃では72時間、気温23~24℃では48時間、気温25℃では36時間、ナンバンコマツナギ藍葉では気温28~30℃では18~19時間であった。

使用するアルカリ剤は消石灰で、藍草の3.5~5%、藍草の品種、栽培地の気温により攪拌方法、静置時間にも大きな差があった。

沈殿藍製造後のナンバンコマツナギからすくも、琉球藍残滓から堆肥を作製し、分光光度計によりインジゴが示す611nm付近の吸収の有無を調べた結果、インジゴが示す611nm付近の吸収が存在した。沈殿藍製造後のナンバンコマツナギ残滓からのスクモ作製は有効であるが、琉球藍残滓からの堆肥中にはクロフィルの存在が多かった。琉球藍残滓は堆肥として活用できるが、本土に比べて温度の高い沖縄ではすぐに腐敗し虫の発生もあり琉球藍残滓からのスクモ作製は解決すべき点が多い。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計1件)

道明美保子、久保田奈純、清水慶昭、乾燥藍葉による綿布の染色、査読無、滋賀県立大学人間文化学部研究報告、33号、2013、13-17

[学会発表] (計2件)

①久保田奈純、道明美保子、北澤勇二、各種藍草に含まれるインジゴの定量、日本繊維製品消費科学会2011年次大会・研究発表要旨pp.54、2011年6月25日、武庫川女子大学

②道明美保子、久保田奈純、乾燥藍葉による綿布の染色、日本家政学会第64回大会研究発表要旨集pp.129、2012年5月12日、大阪市立大学(杉本キャンパス)

[その他]

ホームページ等

<http://www.shc.usp.ac.jp/doumyou/>

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

道明 美保子 (DOUMYOU MIHOKO)

滋賀県立大学・人間文化学部・教授

研究者番号：60074085