

호도외피를 이용한 천연염색(Ⅰ) - 양모의 염색성 -

¹신윤숙 · 문성인

전남대학교 의류학과
(2002. 1. 7. 접수/2002. 4. 2. 채택)

Natural dyeing with walnut hull(Ⅰ) - Dyeing properties of wool fabric -

¹Younsook Shin and Sungin Moon

Dept. of Clothing & Textiles, Chonnam National University, Kwangju, 500-757, Korea

(Received January 7, 2002/Accepted April 2, 2002)

Abstract—The purpose of this study is to investigate dyeing properties of wool fabric with walnut colorants. Walnut colorants were extracted with water from walnut hull and characterized by FT-IR analysis. Effects of dyeing conditions and mordanting on dyeing properties and colorfastness were studied.

Results obtained were as follows ;

1. Higher K/S value was obtained at higher temperature and longer dyeing time, the highest K/S value was shown at 100°C, 60min.
2. Dye uptake was increased with the increase in colorants concentration up to 2%. Higher K/S value was obtained at acidic condition.
3. Mordanting was not effective for improving dye uptake and colorfastness and for changing color of the dyed fabric.

Keywords : *walnut colorants, dyeing properties, wool fabric, mordanting, colorfastness*

1. 서 론

현재 섬유 염색의 대부분은 색상이 다양하고 간편하며 견뢰도가 좋은 합성염료에 의해 행해지고 있다. 그러나 합성염료는 염색폐수로 인한 환경오염과 합성염료가 갖고 있는 독성 등의 문제를 안고 있다. 천연염료는 견뢰도와 재현성 결여에도 불구하고 인체에 해가 없고 환경친화적이며, 시각을

자극하지 않는 색상과 자연향, 고유의 기능성 등을 지니고 있어 최근 많은 관심을 끌고 있다^[1~2].

본 연구에서 사용한 염재인 호도(학명 : *Juglans sinensis* DODE)는 유럽이 원산이며 아시아를 포함하여 세계 각지에서 재배된다. 우리나라에는 주로 중부 이남에 분포하는 가래나무과의 낙엽 교목^[3]으로 원형에 가까운 핵과(核果)이다. 호도의 종자에는 지방유인 리놀레인(linolein), 단백질, 지질, 당질, 비타민 A 등을 함유하며, 호도외피에는 주글론(juglone, 5-hydroxy-1,4-naphthoquinone), 하이드로주글론(hydrojuglone), 갈릭산(gallic acid), 엘라그산

¹Corresponding author. Tel. : +82-62-530-1343 ; Fax. : +82-62-530-1349 ; e-mail : yshin@chonnam.ac.kr

(ellagic acid), 탄닌(tannin), 익셀신(exelsin), 쿠그론(cugron)을 그리고 잎에는 캠페롤-3-글루코사이드(kaempferol-3-glucoside), 시아니딘(cyanidin), 플라본글리코사이드(flavonglycoside) 등의 성분을 함유하고 있다^{4~6)}. 호도의 열매는 식용으로 쓰이고 나무는 가구용 목재로 쓰인다. 또한 한방에서 과실(果實)과 수피(樹皮)를 진해, 동상, 구충, 요통, 자양, 강장 등의 약재로도 쓰인다⁷⁾. 그 밖에 천연염재료의 응용이 있는데, 터어키 등 서아시아 지역에서 카펫용 모사를 갈색으로 염색하는데 호도 추출물을 사용해왔으며 B.C. 4세기 경 지중해 연안에서 모발 염색에 사용하였다는 기록이 남아 있다^{5~6,8)}. 그러나 국내에서는 염재로서 호도의 사용은 보기 드물며 호도색소의 염색성에 대한 체계적인 연구 또한 찾아보기 힘든 실정이다.

따라서 본 연구에서는 호도외피를 천연염재료의 사용 가능성 검토와 실용화를 위한 기초 연구로서 양모에 대한 염색성을 조사하였다. 호도외피에서 색소를 추출, 건조, 분말화하였으며, FT-IR분석에 의해 그 특성을 검토하였다. 색소농도, 온도, 시간, pH 등의 염색조건이 염착량에 미치는 영향, 매염제가 염착량과 색상에 미치는 효과 등을 조사하고, 염색한 시료의 각종 견뢰도를 측정하여 실용성을 검토하였다.

2. 실험

2.1 시료

시료는 KS K 0905의 표준 모백포를 사용하였다.

2.2 염재

전남 장성에서 7월에 채취한 덜 익은 호도열매로부터 외피를 분리하여 건조시킨 뒤 잘게 분쇄하여 사용하였다.

2.3 시약

매염제로는 황산암모늄알루미늄($\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4 \cdot 24\text{H}_2\text{O}$), 황산제1철($\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$), 황산구리($\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$), 중크롬산칼륨($\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$), 그리고 염화제2주석($\text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$)를 사용하였다.

2.4 색소 추출 및 분말화

호도외피 30 g에 증류수 800 g을 가하여 100 °C에서 60분간 환류시켜 색소를 추출, 여과하였다. 색소 추출액을 동결건조기(FD 5505, II Sin Engineering, Korea)로 건조하여 분말화하였으며,

수율(호도껍질 건조 무게에 대한 추출한 색소분말의 무게의 비율)은 약 30%였다.

2.5 매염 및 염색

매염제 농도 1%(owf), 60°C에서 30분동안 육비 1:50으로 선매염(매염-수세-건조-염색-수세-건조)하였다. 염색은 육비 1:50에서 색소농도 0.5~5%, 온도 40~100°C, 시간 30~120분, pH 3~11로 염색조건을 변화시켜 적외선 고압염색기(Ahiba Nuance, Data Color International, USA)를 사용하여 염색하였다. pH는 아세트산과 수산화나트륨을 사용하여 조정하였다.

2.6 측정 및 분석

2.6.1 흡광도 측정

UV-Vis spectrophotometer(8452A Diode Array Spectrophotometer, Hewlett Packard Asia Ltd., USA)를 이용하여 흡광도를 측정하였다.

2.6.2 FT-IR 분석

색소 추출물의 성분 특성을 조사하기 위해 색소분말을 KBr 펠릿(pellet)법으로 FT-IR 분석(Fourier-transform infrared spectroscopy, Nicolet 520, USA)을 행하였다.

2.6.3 염착량 측정

Colorimeter(Color-Eye 3100, Macbeth, USA)를 이용하여 K/S값을 측정하여 염착량을 비교하였으며, 또한 L^* , a^* , b^* 를 측정하여 이로부터 H V/C 값을 산출하였다.

2.6.4 색차(ΔE)측정

일광에 의한 색변화를 알아보기 위해 colorimeter를 이용하여 다음 CIELAB 색차식에 의하여 구하였다.

$$\Delta E = [(\Delta L^*)^2 + (\Delta a^*)^2 + (\Delta b^*)^2]^{1/2}$$

2.7 염색견뢰도

광퇴색은 Fade-Ometer(Atlas Electric Devices Co., USA)를 사용하여 KS K 0700-1990에 준하여 5, 10, 20, 40시간 광조사한 후에 광조사 전 시료와의 색차(ΔE)를 측정하였고, 20시간과 40시간 광조사한 시료의 일광견뢰도를 평가하였다. 세탁견뢰도는 Launder-Ometer(Type LHD-EF, Atlas Electric Devices Co., USA)를 사용하여 KS K 0430의 A-1법에 따라 측정하였고, 땀견뢰도는 Perspirometer(U.S. Testing Co., USA)를 사용하

여 KS K 0715에 준하여 실험하였으며, 마찰견도는 Crockmeter(Model CM-5, Atlas Electric Devices Co., USA)를 사용하여 AATCC Test Method 116-1989에 준하여 평가하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 호도외피 물추출물의 FT-IR 분석

Fig. 1은 호도외피 물추출물의 전조 분말의 FT-IR 스펙트럼을 나타낸 것이다. 3400cm^{-1} 부근에서 넓은 흡수 피크는 색소 구조에 존재하는 페놀성 -OH기의 신축진동을 나타내고 있으며, 3010cm^{-1} 부근의 흡수피크는 방향족 C-H의 신축진동을, 2900cm^{-1} 부근의 흡수피크는 지방족 C-H의 신축진동을 나타내고 있다. 또한 1710cm^{-1} 부근의 흡수피크는 카르복실산의 C=O 신축진동을 나타내고 있으며, 1640cm^{-1} 부근에서 C=O 기의 신축진동과 $1600\sim1450\text{cm}^{-1}$ 에서는 방향족 고리의 C=C 의 신축진동을 나타내고 있다. 830cm^{-1} 에서 660cm^{-1} 영역에서는 방향족 고리의 비평면 굽힘진동을 보여주고 있다. 이 결과로부터 호도외피의 물추출물에는 카르복시기를 가진 산류, 하이드록시기를 가진 방향족류 등 다양한 성분이 포함되어 있는 것으로 추측된다. 호도외피의 주성분에는 주글론, 탄닌, 엘라그산, 갈릭산 등^{4~6)}이 포함되어 있으며, 이중 탄닌은 가수분해형으로 산에 의해 쉽게 가수분해되어 글루코스나 여러 종류의 페놀산으로 변한다. 엘라그산도 일종의 가수분해형 탄닌으로부터 분리된 것이며, 갈릭산은 탄닌의 하이드록시기가 에스테르화된 것이다⁹⁾.

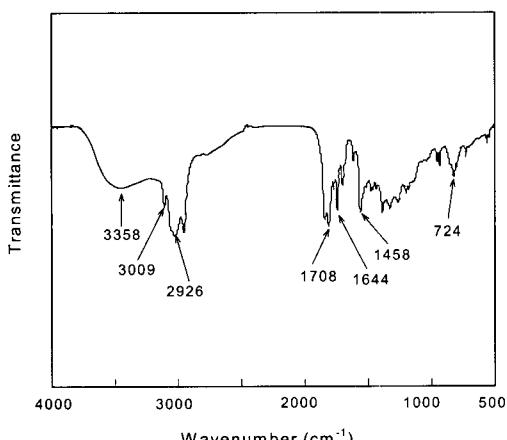


Fig. 1. FT-IR spectrum of walnut colorants extracted at 100°C , 60min.

3.2 염색조건이 염착량과 색상에 미치는 영향

Fig. 2는 추출한 호도색소 용액의 UV-Vis 흡수 스펙트럼을 나타낸 것으로 420 nm 에서 주 흡수파크를 보이고 있는데 Y계열의 색소임을 알 수 있다. 염색시료의 K/S값 측정시 최대흡수파장의 이동은 없었으므로 염착량(K/S값) 측정은 420 nm 에서 행하였다.

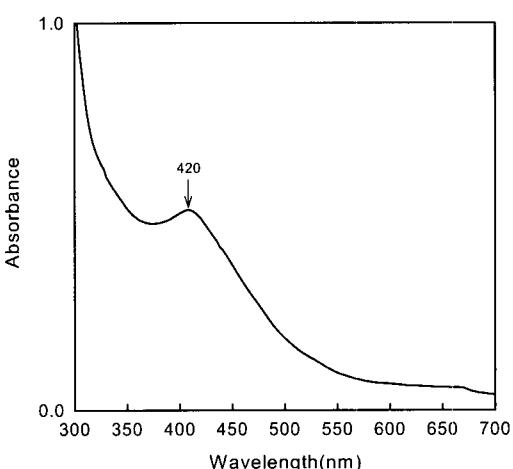


Fig. 2. UV/Vis spectrum of walnut colorants extracted with water at 100°C , 60min.

Fig. 3은 호도색소 농도에 따른 염착량의 변화를 나타낸 것이다. 색소농도가 증가함에 따라 K/S값도 같이 증가하다가 2%(owb) 이상에서는 더 이상 변화하지 않았다. 호도외피 색소 성분의 구조를 고려할 때 이온결합 뿐만 아니라 색소의 하이드록시기와 양모의 아미노기 간의 수소결합, 벤젠환과 양모의 소수기간의 상호작용력¹⁰⁾ 등이 염착에 관여할 것으로 생각된다. 호도색소는 양모에 대한 친화력이 매우 좋은 편으로 농도 0.5%에서도 K/S값이 18.24로써 아주 높은 값을 나타내었으며, 진한 황갈색의 염색물을 얻을 수 있었다.

Fig. 4는 염색온도에 따른 염착량의 변화를 나타낸 것이다. 염색온도가 증가함에 따라 염착량은 급격하게 증가하였다. 염색온도가 높을수록 섬유내부로 색소의 침투와 확산이 용이하여 염착량이 높은 것으로 생각된다^{10,12)}.

Fig. 5에 보이는 바와 같이 염착량은 초기 30분 까지 급격하게 그리고 그 이후 점진적으로 증가하였으며, 60분 이후부터는 거의 변화를 보이지 않고 있다. 이로부터 양모에 대한 호도 색소의 염착 평형은 60분 정도에서 이루어짐을 알 수 있다.

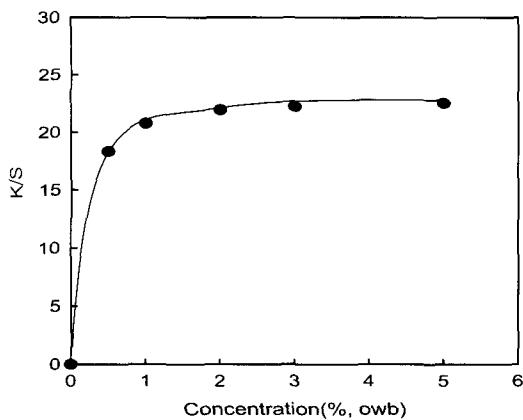


Fig. 3. Effect of dye concentration on the dye uptake of wool fabric(100°C , 60min).

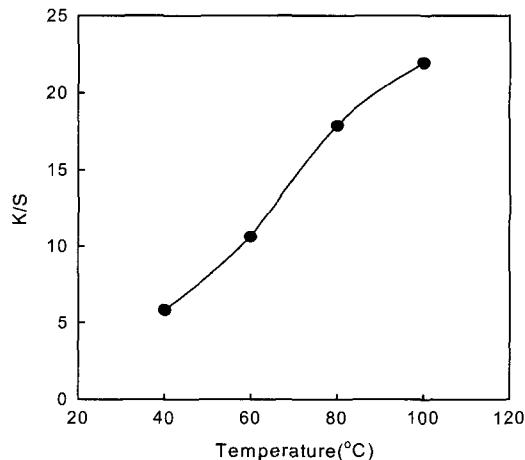


Fig. 4. Effect of dyeing temperature on the dye uptake of wool fabric(2% owb, 60min).

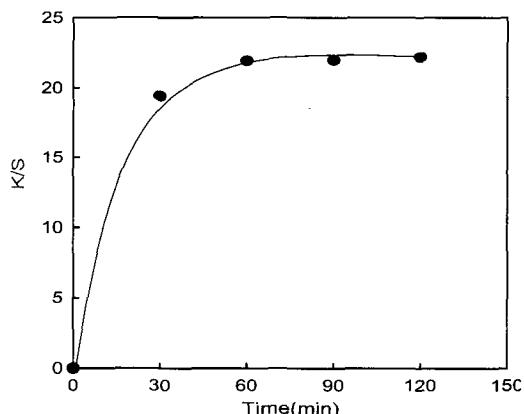


Fig. 5. Effect of dyeing time on the dye uptake of wool fabric(2% owb, 100°C).

Fig. 6은 염액의 pH에 따른 염착량의 변화를 나타낸 결과이다. pH가 낮을수록 염착량이 높게 나타났으며, 알칼리 영역에서는 염착량이 급격히 감소하였다. 이것은 양모의 등전점(pH 5~6) 이하에서 호도 색소의 카르복시기와 양으로 해리된 양모의 아미노기간의 이온결합이나 탄닌의 하이드록시기나 벤젠환과 양모의 아미노기 및 카르복시기 간의 상호작용력 형성에 유리하기 때문에¹⁰⁾ 흡착량이 증가하는 것으로 보인다. 등전점 이상에서는 양모의 카르복시기가 해리되어 셀유표면에 (-)계면전위를 나타내어 색소 음이온과 전기적 반발을 일으켜 염착량이 감소하기 때문으로 생각된다^{11,13)}.

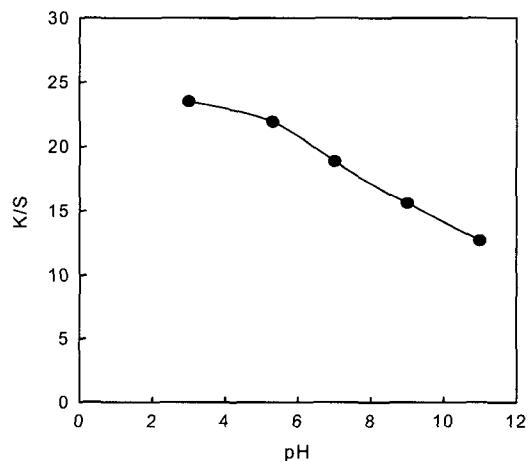


Fig. 6. Effect of pH on the dye uptake of wool fabric(100°C , 60min).

이상의 실험 결과를 바탕으로 이후 염색에서는 최적농도를 2%(owb), 염색온도는 100°C 로, 염색시간 60분으로 하였다. pH 3에서 최대 염착량을 보이지만 큰 차이가 없어서 pH를 조정하지 않고 호도 색소 그대로인 pH 5.3에서 염색하였다.

Table 1은 pH에 따른 색상변화를 나타낸 것이다. pH가 증가함에 따라 염착량의 감소로 L^* 값은 pH 11에서 가장 높게 나타났으며 이는 색상이 밝아졌음을 의미한다. a^* 와 b^* 값은 pH 7까지 증가를 보이다가 그 이상에서는 감소를 보였다. 이는 빨강색과 노랑색의 증가를 의미한다. 먼셀 표색계의 색상은 모두 YR계열로 pH 7에서 빨강색 기미가 강하게 나타났으며, pH가 증가함에 따라 명도도 증가하여 색상이 밝아졌다. 채도의 경우에는 pH 7에서 최대값으로 설명해졌으나 이후에는 감소하여 탁해졌다. pH에 따라 명도와 채도가 다른 적갈색, 황갈색의 다양한 색상을 얻을 수 있다.

Table 1. Effect of pH on L*, a*, b*, & H V/C values of the wool fabrics dyed with walnut colorants

pH	L*	a*	b*	H	V/C
3	22.204	7.668	7.504	3.21YR	2.21/1.96
5.3	27.782	15.254	15.227	2.08YR	2.67/3.90
7	29.315	19.224	17.729	0.34YR	2.82/4.69
9	32.981	18.225	16.930	1.24YR	3.18/4.61
11	33.839	13.765	14.475	2.08YR	3.26/3.53

3.3 매염처리가 염착량과 색상에 미치는 영향

많은 천연염료는 금속수산화물 또는 산화물의 형태인 매염제와 배위결합하여 불용성 착화합물(lake)을 형성할 수 있는 배위자(ligand)를 함유하고 있다. 천연염료자체는 일반적으로 섬유에 대한 친화력이 적어 연하게 염색되는 경우가 많아서 침염에서는 매염처리를 하는 것이 일반적이다¹³⁾.

금속이온은 양모와 배위결합을 하여 색소와 퀄레이트 화합물을 생성하여 색을 나타내는 착체를 형성한다. 이러한 착체형성의 형태는 중심원소가 천이금속인가 아니면 전형금속인가에 따라 내궤도형 착체와 외궤도형 착체로 나누어지며, 착체의 궤도형태는 착체형성에 따른 색의 변화 및 매염염색물의 견뢰성과 관련된다. 알루미늄이온은 전형금속(典型金屬)이온으로 안정한 6배위착체를 형성하지만, 이것은 외궤도형착체(外軌道型錯體)이기 때문에 철이나 크롬이온과 같은 천이금속(遷移金屬)이온이 형성하는 내궤도형착체(內軌道型錯體)보다 결합력이 약해서 매염에 의한 색상변화가 적은 것으로 알려져 있다^{14~15)}.

Table 2는 매염제 종류에 따른 염착량 및 색상

변화를 나타낸 것이다. 최대흡수파장은 매염제의 종류와 관계없이 420nm로 변화가 없었다. 철과 구리 매염제만 염착량이 약간 증가하였고, 알루미늄, 주석, 크롬 매염제의 경우 염착량이 매염하지 않은 경우보다 오히려 낮았다. 일반적으로 천연염색을 할 때 양모와 같은 단백질 섬유는 매염제와 친화성이 크므로 선매염에 의해 염색되나, 본 연구에서는 양모에 선매염처리는 염착량 증진에 효과가 없는 것으로 나타났다.

매염제 종류에 따라 염색한 시료는 모두 YR(Yellow Red) 계열의 색상을 나타내었다. 육안으로 보았을 때 염색한 시료들은 황갈색이며 매염제 종류에 따른 색상변화는 뚜렷하지 않았다. 매염처리한 모든 시료의 ΔL^* 값은 철과 주석으로 매염처리한 경우를 제외하고 (+)값으로 색상이 밝아졌음을 알 수 있다. Δa^* 값은 철과 크롬으로 처리한 경우만 (-)값으로 빨강색의 감소를 보였으나 그 외 다른 매염제 처리의 경우는 (+)값으로 빨강색의 증가를 보였다. Δb^* 값은 철, 주석과 크롬으로 처리한 경우에는 (-)값으로 노랑색의 감소를 이외

Table 2. K/S, L*, a*, b* & H V/C values of the mordanted and dyed wool fabrics

Mordants	K/S value	L* a* b* H V/C						
		ΔL^*	Δa^*	Δb^*	Fade	Stain	Cotton	Wool
Control	21.94	27.782	15.254	15.227	2.08YR	2.67/3.90		
Al	20.93	0.798	1.230	0.284	2.06YR	2.71/3.98		
Fe	25.61	-3.763	-2.389	-2.834	3.21YR	2.26/3.16		
Sn	21.38	-0.325	0.704	-0.560	2.09YR	2.60/3.82		
Cu	22.36	0.797	0.456	0.446	2.52YR	2.71/3.88		
Cr	21.38	0.389	-0.375	-0.365	2.70YR	2.67/3.67		

Table 3. Colorfastness of the wool fabrics dyed with walnut colorants

Mordant	Washing				Perspiration				Rubbing	
	Fade		Stain		Acid		Alkali		Dry	Wet
		Cotton	Wool		Cotton	Wool		Cotton	Wool	
Control	3~4	3~4	4	5	5	5	5	5	5	4~5
Al	3~4	3~4	4	5	5	5	5	5	5	4~5
Fe	3~4	3~4	4	5	5	5	5	5	5	4~5
Sn	3~4	3~4	4	5	5	5	5	5	5	4~5
Cu	3~4	3~4	4	5	5	5	5	5	5	4~5
Cr	3~4	3~4	4	5	5	5	5	5	5	4~5

에는 (+)값으로 노랑색의 증가를 나타내었다. 매염포의 색상은 미매염포의 경우와 마찬가지로 YR 계열을 나타내어 변화가 크지 않았다. 명도는 철과 매염 처리한 시료가 다소 어두워진 반면, 알루미늄과 구리로 매염 처리한 시료는 약간 밝아졌다. 채도는 철로 매염한 경우에 낮아졌으며 그 외는 비슷하였다.

3.4 염색견뢰도

Table 3은 매염처리한 시료나 처리하지 않은 시료 모두 비슷한 정도의 견뢰도를 보이고 있다. 세탁견뢰도 경우에는 매염처리하지 않은 시료나 매염처리한 시료 모두 변색색의 정도는 3~4등급을 가지며 이염의 정도가 3~4등급으로 세탁에 대한 견뢰도가 좋지 않다. 땀견뢰도 경우에는 산성땀액과 알칼리 땀액 모두 높은 등급을 보이고 있다. 마찰에 대한 견뢰도는 건조상태인 경우 5등급, 습윤상태인 경우 4~5등급으로 매우 우수하게 측정되었다. 따라서 호도색소로 염색한 양모직물의 견뢰도는 세탁견뢰도를 제외하고는 매우 우수함을 알 수 있다.

Fig. 7은 일광조사에 따른 염색물의 광퇴색 변화를 나타낸 것이다. 광조사 시간이 증가함에 따라 색차가 증가하였는데, 특히 40시간 광조사시 현저한 증가를 나타내었다. 40시간 광조사 후 색차를 매염처리하지 않은 시료와 비교할 때, 철과 구리, 크롬 매염제는 일광견뢰도를 증진시켰으나 알루미늄과 주석 매염제는 오히려 일광견뢰도를

감소시켰다. 그러나 매염제에 따라 시료간에 색차는 큰 차이가 없어서 Table 4의 일광견뢰도의 등급에는 차이가 별로 없었다. 일광에 의한 변색은 천연염료의 종류나 매염제의 종류에 따라 큰 차이가 있는데, 그 천연염료분자가 아주 높은 회합상태로 존재할 때 일광견뢰도가 좋은 것으로 보고되고 있다¹⁶⁾. 본 연구의 결과에서 매염처리는 견뢰도 증진효과가 거의 없어 매염처리의 필요성은 크지 않은 것으로 보여진다.

Table 4. Lightfastness of the wool fabrics dyed with walnut colorants

Mordant	Irradiation time	
	20 hr	40 hr
Control	4~5	3~4
Al	3~4	3~4
Fe	4~5	3~4
Sn	4~5	3~4
Cu	4~5	3~4
Cr	4~5	3~4

4. 결론

호도외피에서 추출·분말화하여 얻은 색소의 양모에 대한 염색성을 조사하였다. 호도색소의 특성을 조사하기 위해 FT-IR 분석을 하였고, 호도색소의 양모에 대한 염색성을 살펴보기 위해 염색조건이 염착량에 미치는 영향, 매염제가 염착량, 색상 및 견뢰도에 미치는 영향 등을 측정하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. FT-IR 분석결과, 추출한 호도색소에는 카르복시기를 가진 산류, 하이드록시기를 가진 방향족류 등의 성분이 포함되어 있을 것으로 생각된다.
2. 염착량은 염색온도가 높을수록, 염색시간이 길수록 높은 값을 나타냈고 100°C, 60분 염색에서 가장 높았다.
3. 색소농도가 증가함에 따라 염착량이 증가하다가 2%이상에서는 변화하지 않았으며, 산성일수록 염착량이 높게 나타났다.
4. 매염처리에 의한 염착량 증진, 색상 변화, 견뢰도 향상 효과는 없었으며, 따라서 매염처리가 필요하지 않은 것으로 나타났다.

감사의 글

“이 논문은 2000년도 전남대학교 학술연구비 지

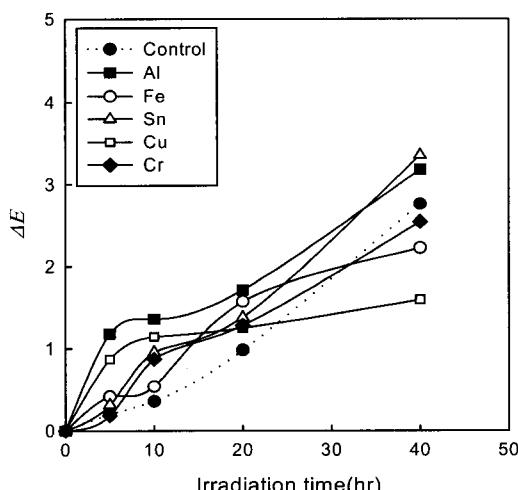


Fig. 7. Effect of irradiation time on the color difference of wool fabric dyed with walnut colorants.

원에 의하여 연구되었음”

참고문헌

1. S. I. Ali, Revival of natural dyes in Asia, *J. Soc. Dyers Colour.*, **109**(1), 13-17(1993).
2. B. Glover and J. H. Pierce, Are natural colorants good for your health?, *J. Soc. Dyers Colour.*, **109**(1), 5-7(1993)
3. M. H. Lee, “Variation in nut characteristics of walnut in Korea”, Master Thesis, Seoul National University, pp.2-4(1985).
4. 호남농업시험장, “원색 구황식물도감”, 한별문화사, pp.52-53(1996).
5. Von L. Roth, K. Kormann, and H. Schweppe, “Färbeplanzen Pflanzenfarbe”, Ecomed, Germany, pp.84-86(1992).
6. H. Schweppe, “Handbuch der Naturfarbstoffe”, Ecomed, Germany, pp.190(1992).
7. 김태정, “한국의 자원식물 I”, 서울대학교 출판부, pp.166-168(1996).
8. 조경래, 문광희, 대안스님, “전통염색의 이해”, 보광출판사, pp.196(2000).
9. M. L. Gulrajani, “Proceedings of Convention on Natural dyes, Delhi”, Vol 1, pp.16-17(1999).
10. H. I. Kim, S. I. Eom, and S. M. Park, A Study on Natural Dyeing(3), *J. Korean Soc. Dyers & Finishers*, **13**, 289-297(2001).
11. M. Seo, *Characteristics and Dyeing Properties of Black Tea Colorants*, Ph. D. Thesis, Chonnam National University, pp. 36-38(1997).
12. E. R. Trotman, “Dyeing and Chemical Technology of Textile Fibers”, 6th Ed., Charles Griffin & Co. Ltd., London, pp. 108-109(1975).
13. H. Choi, *Analysis of Characteristics and Dyeing Properties of Gromwell Colorants*, Ph. D. Thesis, Chonnam National University, pp.37-45(1999).
14. E. K. Hwang, M. S. Kim, D. S. Lee, and K. B. Kim, Color Development of Natural Dyes with Some Mordants, *J. Korean Fiber Soc.*, **35**(8), 490-497(1998).
15. 西久大, “色素の 化學”, 共立出版, pp.89-90 (1989).
16. D. B. Gupta and M. L. Gulrajani, The lightfading mechanism of dyes derived from rhubarb extract, *J. Soc. Dyers Colour.*, **112**(10) 269-272(1996).