

면직물의 젤라틴 전처리에 의한 소목염색의 염색성 향상

이지연 · 장정대[†]

부산대학교 의류학과

Improving the Dyeability of Cotton Fabric with *Caesalpinia sappan* through Pretreatment with Gelatin

Ji Youn Lee and Jeong Dae Jang[†]

Dept. of Clothing and Textiles, Pusan National University, Busan, Korea

Abstract: Cotton fabrics were treated with gelatin to enhance dyeability and color strength when using *Caesalpinia sappan* dye. Gelatin was used as the protein and a pad-dry-cure method was used for the treatment process (2, 4, 6, 8, 10, 12, 14g/l concentration). Pretreated fabrics were mordanted with 10% alum. Fabrics were then dyed with freeze-dried sappan wood water extract powder form. Dyed samples were assessed in regards to dyeing behavior and color fastness. Comparing untreated and gelatin treated samples from the SEM images indicated that the Gelatin treatment (10g/l) resulted in an enhanced surface roughness that was relative to that of untreated cotton. Padding cotton with gelatin at 6g/l concentration afforded dyed fabrics with a 2 times increase in the K/S value over that of untreated fabrics. All dyed samples were red color with a significant enhancement in the sample color strength (K/S) being observed for pretreated samples. pH values favor dye absorption with pH 7 yielding the highest color strength. Dyeing at an elevated temperature resulted in a lower color strength and reddish-dull color. Longer dyeing times created greater color strengths for untreated and gelatin treated cotton. Increased dye concentrations resulted in higher K/S values for both gelatin treated and untreated cotton. As for color fastness, gelatin treated and untreated cotton fabrics dyed with sappan wood extract showed a relatively low rating in washing fastness (color change 1 rating), light fastness (1 rating), and rubbing fastness (wet:1-2, dry:3-4 rating).

Key words : *Caesalpinia sappan* (소목염색소), gelatin (젤라틴), pretreatment (전처리), dyeability (염색성), cotton fabric (면직물)

1. 서 론

근래에 합성염료 사용과 관련된 환경과 건강상 위험에 대한 인식이 증가됨에 따라 천연염료에 대한 새로운 국제적 관심이 일어나고 있다(Baaka et al., 2017; Haddar et al., 2014; Lee, 2007). 직물염색에서 세계적으로 천연염료의 사용이 많아졌다. 천연염료는 합성염료에 비하여 더 좋은 미생물 분해성, 환경친화성을 가지고 있다(Das et al., 2016).

면은 염욕인 물에 들어가면 hydroxyl기의 이온화에 기인한 약한 음이온으로 하전된다. 면에 염색되는 대부분의 염료는 용액에서 음이온으로 하전되므로 섬유와 염료의 정전기적 반발 때문에 염색이 어렵다. 특히 천연염료에서 더욱 그렇다(Janhom

et al., 2006).

면섬유를 양이온기를 가지고 있는 화합물로 개질하여 염료의 흡착을 증가시키는 연구가 많이 이루어져 왔다(Lewis, 1993; Lewis & McIlroy, 1997; Martínez Urreaga & de la Orden, 2007; Xie, 2009). 염색하기 전에 면직물을 개질하는 목적은 염료의 음이온기와 개질된 면의 양이온 사이에 이온반응을 형성하여 음이온 염료의 직접성을 향상시키는 것이다(Haddar et al., 2014). 이와 같은 염색성 개선에 대한 노력은 주로 화학염료에 대한 연구가 대부분이고, 천연염료에 대한 연구는 한정적이다.

천연염료의 염색성과 견뢰도를 높이기 위해 매염제가 사용된다. 매염제의 사용은 환경친화적 염색이라는 목적에 모순되는 점이 있다. Janhom et al.(2004)은 여러 금속매염제는 독성이 있어 환경에 악영향을 줄 수 있으므로 새로운 종류의 매염제를 찾는 것이 필요하다고 하였다. 이에 따라 천연염색에서는 친환경 화학적 매염제로 potash alum(potassium aluminum sulfate), ferrous sulphate를 들고 있다(Chattothy et al., 2013). 이 들보다 더 독성이 있는 Cu, Sn, Cr 금속매염제는 오늘날 공예인들과 예술인들이 전형적으로 많이 사용하는 것은 아니지만 아직까지 천연염색 연구자들은 이들을 사용하는 화학매염제의

[†]Corresponding author; Jeong Dae, Jang

Tel. +82-51-510-2842, Fax. +82-51-583-5975

E-mail: jdjang@pusan.ac.kr

© 2019 (by) the authors. This article is an open access article distributed under the terms and conditions of the Creative Commons Attribution license (<http://creativecommons.org/licenses/by/3.0/>), which permits unrestricted use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

범주에 넣어두고 있는 실정이다. 금속매염제 사용의 대안으로서 Al³⁺이온을 많이 함유하거나 탄닌을 많이 함유하는 식물들로부터 얻은 천연 또는 유기 매염제에 대한 탐구가 이루어지고 있고(İşmal et al., 2014; Kadolph & Casselman, 2004; Vankar et al., 2008), 이러한 대체물질과 방법들을 중심으로 많이 이루어지고 있다.

Lee and Ryu(2013)는 PEI(Polyethylenimine)로 전처리한 면직물이 미처리에 비해 Alizarin과 Curcumin 염료를 많이 흡착함을 확인하였다. 또한 우유단백질인 카제인 나트륨을 돈피에 전처리하여 양파색소의 염색성 향상을 도모한 연구가 있고(Yeo & Shin, 2018), 견직물에 대두단백과 카제인 나트륨을 견직물에 전처리하여 소목염료의 염착성 향상을 도모한 연구가 있다(Hwang & Jang, 2016).

젤라틴은 동물의 뼈 혹은 가죽 등을 구성하는 콜라겐을 부분 가수 분해하여 얻는 천연 biopolymer이다. 18가지의 아미노산으로 구성되어 있으며 수많은 친수성기를 가지고 있다(Mowafi et al., 2018).

Yoon and Im(2005)는 소목 추출색소인 brazilin은 이온성을 띄지 않으며, 수소결합이 가능한 hydroxyl기는 충분하지만 분자자체가 작고 셀룰로오스와 직접성도 부족하여 면직물에는 염착력이 적은 것으로 해석하였다.

본 연구에서는 소목의 면직물에 대한 염착성을 향상시키기 위하여 면을 젤라틴 단백질로 개질하고 소목으로 염색하여 미처리와 처리 시료의 염착성에 대한 개질효과를 검토하였다.

2. 실험

2.1. 염재

효율적인 염액 추출을 위해 pellet 형태로 잘게 분쇄된 중국산 소목(영천생약영농조합법인)을 구입하여 사용하였다.

2.2. 직물 및 시약

본 실험에 사용한 시료는 면직물 100%를 사용하였으며, 직물의 특성은 Table 1과 같다.

매염제로는 Aluminium potassium sulfate 12-water(AlK(SO₄)₂·12H₂O : Junsei Chemical Co., Ltd), 시약 1급을 사용하였다. 단백질 처리제로 사용한 젤라틴은 Gelatin(Daejung Chemicals & Metals Co., Ltd)을 사용하였다. pH 조절을 위한 시약으로는 Buffer solution(Daejung Chemicals & Metals Co., Ltd)을 사용하였다.

2.3. 소목 색소추출 및 분말화

소목염료의 분말제조는 증류수 20l에 Acetic acid를 사용하여 pH4로 조절한 후, 소목 2kg를 첨가한 다음 100°C에서 60분간 가열하여 1회 추출하였다. 추출 후 걸러 낸 소목 추출액은 감압 농축하고, 이를 동결건조기(Freezing Dryer, PVTFD 50R, Ilshin Lab Co. Ltd, Korea)로 동결 건조하여 분말을 제조하였으며, 총 142g의 분말색소를 얻었다. 소목색소 분말 수율은 7.1%였다. 이를 냉동 보관하여 사용하였다.

2.4. 젤라틴 전처리

2, 4, 6, 8, 10, 12, 14g/l의 농도의 젤라틴을 각각 70°C의 물에 20분간 저어주면서 충분히 녹인 다음 각 용액을 50°C가 되게 한 후 각각의 젤라틴 용액에 직물을 10분 동안 침지하고, 픽업률 110%로 직물망글에 통과시켜 패딩하였다. 100°C에서 5분간 건조시킨 후 130°C에서 3분간 큐어링하였다.

2.5. 염색과 매염

Shaking water bath(Dongwon Scientific Co., Korea)를 이용하여 액비 1:100, 염색온도 20~80°C, 염색시간 20~80분, 염료농도 1~9%(o.w.f.), 염욕의 pH 4, 5, 6, 7, 8, 9의 조건으로 염색하였다.

매염은 소목염색에서 적색 발색을 위하여 젤라틴처리 시료와 미처리 시료에 명반 선매염을 행하였다. 농도 10%(o.w.f.), 온도 60°C, 시간 30분 조건으로 매염한 후 수세 건조하였다.

2.6. 표면색 측정

표면색과 색차를 측정하여 발색의 경향을 파악하였다. 색차계 Color Spectrophotometer(Colormate, SCINCO, Co. Ltd, Korea)를 이용하여 명도지수 L*, 색좌표 지수 a*, b*의 값을 측정하고 이들 값으로부터 색차 ΔE 값은 다음 (1)과 같은 식에 의해 산출하였다.

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

2.7. 염착량(K/S) 측정

K/S값은 염색직물에 대한 분광반사율을 Color Spectrophotometer (Colormate, SCINCO, Co. Ltd, Korea)를 이용하여 염색직물의 최대흡수파장에서 표면반사율을 각각 측정하여 측정된 값을 Kubelka-Munk 식에 의하여 값을 구하였으며, K/S값의 식은 다음 (2)와 같다. 측정은 D65광원으로 10°시야로 측정하였다.

$$K/S = (1-R)^2 / 2R \quad (2)$$

K : absorption coefficient

S : scattering coefficient

R : reflectance

2.8. 염색견뢰도

일광견뢰도는 Fade-o-meter(HS-213, Hanwon testing m/c

Table 1. Characteristics of fabric

Fabric	Weave	Fabric counts (threads per inch) (warp/weft)	Thickness (mm)	Weight (g/m ²)
Cotton 100%	Plain	76 /70	0.32	118

Co., Ltd, Korea)를 사용하여 KS K ISO 105-B02:2005 방법에 따라 시험하였으며 20시간 광조사 후 KS K 0911법에 규정된 그레이 스케일을 사용하여 측정하였다.

세탁견뢰도 시험은 Laund-o-meter(ACE Instrument Industry, Korea)를 사용하여 KS K ISO 105-C01: 2007방법에 따라 0.5%의 ISO SOAP 표준세제를 사용하였고, 온도 40±2°C, 시간 30분 조건에서 행하였다.

마찰견뢰도는 Crock meter(Dongwon Scientific Co., Korea)를 사용하여 KS K 0650 : 2011법에 따라 측정하였다.

2.9. 표면형태 관찰

미처리 면과 젤라틴 처리면의 표면 코팅형태를 Scanning electron microscopy(HITACHI S3500N)를 사용하여 관찰하였다. 측정 전에 시료는 금(Au)으로 코팅하였다.

3. 결과 및 논의

3.1. 젤라틴 처리 면직물의 표면 관찰

Fig. 1은 미처리 면직물 (a)와 젤라틴 10g/l로 처리한 면직물 (b)의 표면을 주사전자현미경으로 1,000배 확대, 비교 관찰한 것이다. 미처리면 (a)의 표면이 smooth한데 비하여 처리면 (b)의 표면은 rough한 표면을 나타내고 있어서 젤라틴이 면의 표면에 코팅되어 있음을 알 수 있었다.

3.2. 젤라틴의 처리농도에 따른 염색성

Fig. 2는 젤라틴을 2, 4, 6, 8, 10, 12, 14g/l 농도로 직물에 처리하고 미처리 직물과 함께 예비실험에서 확인된 염착성이 좋고 선명한 적색을 얻는 조건 20°C에서 염액농도 5% (o.w.f.), 60분 염색한 결과를 나타낸 것이다. 젤라틴 처리 농도가 증가할수록 염색성이 증가하고 10g/l의 농도로 처리되었을 때 가장 높은 염착성을 보이고 이후 약간씩 감소하는 경향을 나타내고 있다. 6g/l의 처리농도였을 때의 K/S가 3.37로서 미처리 시료의 2배의 염착성을 보이고 있다. 이는 처리된 젤라틴의 분자 수가 많을수록 염색성이 증가함을 알 수 있고 일정

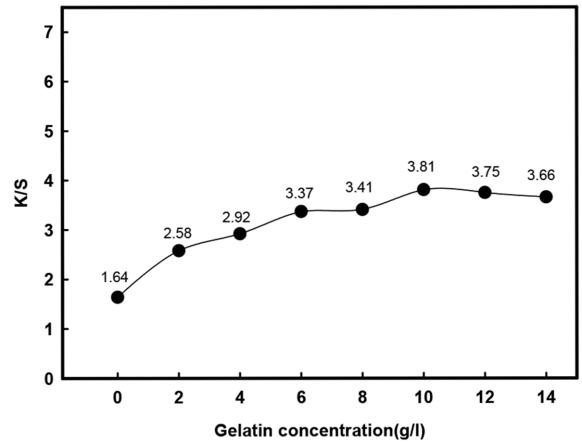


Fig. 2. Dyeability of cotton fabric according to gelatin concentration.

부분 이상이 되면 오히려 감소하는 경향을 보이고 있어서 적정조건은 10g/l로 보았다. 이 후 실험은 이 조건을 적용하였다.

3.3. 염욕 pH에 따른 염색성

Fig. 3은 염색온도 50°C, 염액농도 5%(o.w.f.), 염색시간 40

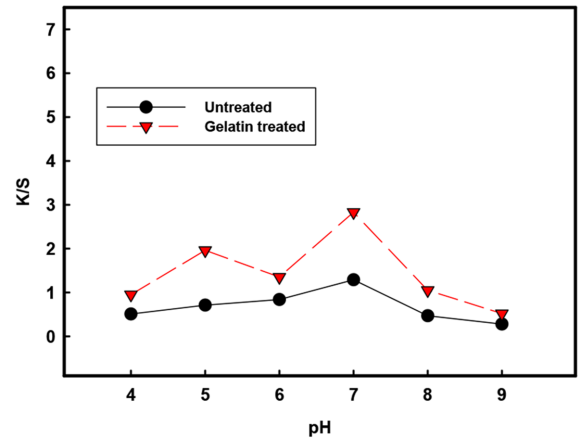
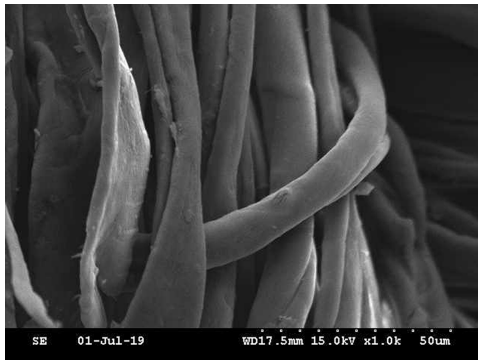


Fig. 3. Effect of pH on the K/S values(gelatin 10g/l, 50°C, 40min., liquor ratio = 1:100).



(a)



(b)

Fig. 1. SEM images of (a): untreated cotton and (b): gelatin treated cotton.

분에서 염욕의 pH를 4, 5, 6, 7, 8, 9의 완충용액을 사용하여 각 pH에서 염색한 면직물의 K/S를 측정하여 나타낸 것이다. 이를 보면 측정 pH범위에서 미처리 면직물에 비하여 젤라틴처리 면직물의 염색성이 향상됨을 알 수 있었다. 양쪽 모두 pH7에서 가장 높은 염색성을 보이고, pH8 이후 염착량이 급격히 감소됨을 알 수 있다. 이는 염색과정에서 면직물이 물에 들어가면 약한 음전하를 띄게 되고, pH8 이상에서 OH기가 이온화되어 표면 음전하가 급격히 증가하게 되므로 면은 일반적으로 음이온 염료와 반발에 의해 친화력이 약하여 염료흡착이 약하게 된다(Janhom et al., 2006)는 것을 알 수 있었다. 특이한 점은 pH5에서 젤라틴처리 면직물의 염착량이 경향성과 달리 증가한 것은 처리된 젤라틴의 등전점이 5주변인 4.85범위에 있기(Hitchcock, 1931) 때문에 염료와 젤라틴간의 반발력이 감소되기 때문으로 생각된다.

소목은 산성영역에서 노란색을 띄고 알칼리 영역에서 적색 또는 자주색을 띤다. 적색을 얻기 위해서는 명반매염을 필수적으로 행하게 된다. 선매염을 해준 면직물에 낮은 pH염욕에서 염색을 하는 경우, 매염제가 용출될 수 있기 때문에 적색으로 발현되는데 문제가 있다. 알칼리 영역에서는 염착력 자체가 약하기 때문에 본 실험의 결과와 같이 pH7에서 좋은 염착력을 가지므로 이후 염색은 pH7에서 행하였다.

3.4. 염색온도에 따른 염색성

Table 2는 염색온도에 따른 염색성을 파악하기 위해 미처리 면직물과 젤라틴처리 면직물을 20, 40, 60, 80°C에서 60분간 염색한 결과를 나타낸 것이고, Fig. 4에는 이들 염색직물의 K/S를 측정한 결과를 나타낸 것이다. 먼저 Fig. 4는 전반적으로

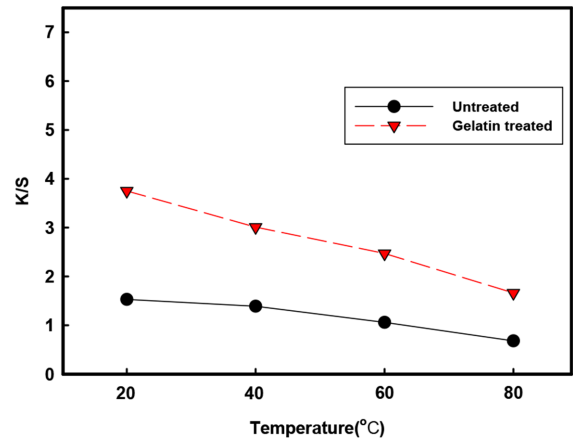


Fig. 4. Dyeability of untreated and gelatin treated cotton according to temperature(gelatin 10g/l, dyeing time=60min, liquor ratio=1:100).

미처리 시료보다 처리 시료의 염색성이 높으나 염색온도가 증가할수록 염착성은 낮아짐을 알 수 있다.

일반적으로 염색온도가 높아지면 염료와 직물의 분자활동이 활발하여 염료를 흡착할 수 있는 기회가 많으므로 염색성이 증가하는 것이 보통인데 비하여, 이 경우에는 반대의 결과를 보이고 있다. 이는 소목분자 자체가 작고 셀룰로오스와의 직접성도 부족하여 면직물에는 염착력이 적은 것으로 해석한 Yoon and Im(2005)의 관점을 지지하는 것으로 생각된다. 이와 같은 경우 염색온도가 높을 때는 염료의 용해도도 높은 상태이기 때문에 염착량이 적게 되고, 60분간 염색 동안에 염착되는 색소보다 염욕으로 탈착되는 색소도 많기 때문으로 생각된다.

Table 2는 L*, a*, b*, C*, h°, ΔE를 나타내었고, 측색 시

Table 2. Color values of untreated and gelatin treated cotton dyed with Caesalpinia sappan according to dyeing temperature

	Dyeing temperature (°C)	Color value parameter					Fabric image	
		L*	a*	b*	C*	h°		ΔE
Untreated	20	59.13	23.83	7.95	25.12	18.45	35.28	
	40	59.86	22.02	7.45	23.24	18.70	33.42	
	60	62.94	18.63	6.42	19.70	19.02	28.75	
	80	67.64	11.87	7.15	13.85	31.07	21.27	
Gelatin-treated	20	47.56	30.88	7.41	31.75	13.49	48.24	
	40	49.83	28.10	6.35	28.81	12.74	44.59	
	60	51.70	23.68	6.90	24.66	16.25	40.50	
	80	56.33	16.91	8.24	18.81	25.98	33.24	

에 측색기로 찍은 Fabric image로 나타내었다. 표에 나타낸 표면색을 염색온도가 증가할 때의 변화 요소들을 살펴보면, 미처리 및 처리 시료 모두 L*값의 변화가 점점 커지고 있어서 명도적으로 밝아지고 있다. a*값은 감소하고 있어서 적색기미가 감소함을 나타낸다. C*값의 채도가 감소하고 있어서 염색온도가 상승함에 따라 점점 색이 탁하여지고 있음을 알 수 있다. h°값도 또한 점점 커지고 있어서 적색이 감소하고 있다. 미염색 면직물에 대한 색차 값도 감소하고 있음을 나타내고 있다. 이상에서와 같이 염색온도가 증가함에 따라 K/S값이 감소하고 적색기미가 줄어들며 채도가 낮아져서 색이 열어지면서 탁하게 되는 결과를 보이고 있다. 이는 직물에 대한 친화력이 작아질 뿐만 아니라 고온에 의한 색의 변색도 동반되는 것으로 생각된다. 따라서 위의 결과를 보면 40°C 이하의 온도에서 염색하는 것이 좋으나 20°C의 상온에서 염색하는 것이 염착성이나 선명한 적색을 얻는데 있어서 유리하다 생각된다. 이와 같은 상온 염색은 에너지 차원에서 장점으로 생각된다. 이후 실험은 20°C에서 행하였다.

3.5. 염색시간에 따른 염색성

Fig. 5는 염색시간을 20, 40, 60, 80분까지 염색하였다. 미처리 시료와 처리 시료 모두 염색시간이 길어질수록 염착성이 더 커지고 있다. 처리 시료의 염착성은 시간이 경과할수록 미처리 시료와의 염착성 차이가 더 크게 나고 있어서 처리 시료의 염색에 있어서 효과적임을 알 수 있다.

3.6. 염액농도에 따른 염색성

Fig. 6은 염료 농도 1, 3, 5, 7, 9%(o.w.f.)의 농도로 60분간 염색한 결과이다. 염료 농도가 증가할수록 미처리 시료나 처리 시료의 염착량은 증가하고 있다. 1%농도에서 미처리의 K/S값이 0.89, 처리 시료 1.27, 3%농도에서 미처리 1.26, 처리 시료 2.46, 5%농도에서 미처리 1.72, 처리 시료 3.77, 7%농도에서 미처리 2.18, 처리 시료 4.68, 9%농도에서 미처리

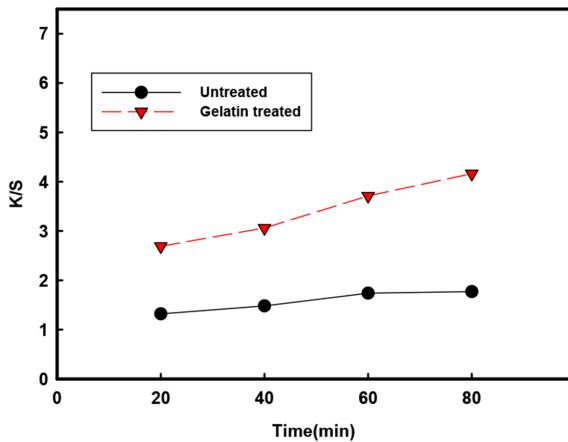


Fig. 5. Dyeability of untreated and gelatin treated cotton according to dyeing time (dyeing temperature=20°C, pH=7, liquor ratio=1:100).

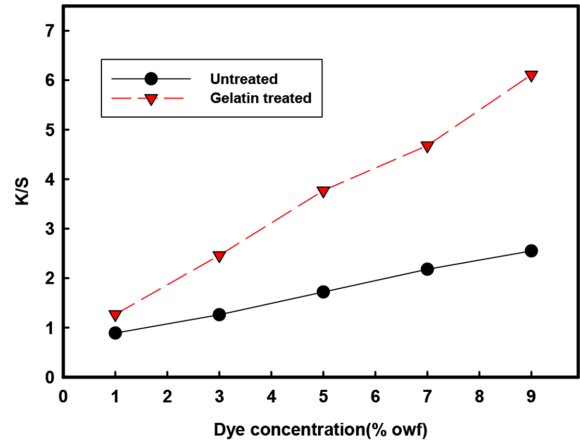


Fig. 6. Dyeability of untreated and gelatin treated cotton according to dye concentration.

Table 3. Colorfastness of gelatin pretreated cotton fabrics dyed with Caesalpinia sappan

Pretreatment	Washing		Rubbing		Light fastness (20hr)
	Color change	Stain Cotton Wool	Dry	Wet	
Untreated	1	5 4-5	3-4	1-2	1
Gelatin treated	1	5 4-5	3-4	1-2	1

2.55, 처리 시료 6.11로 나타나 미처리 시료와 젤라틴 처리 시료의 염착량 증가폭의 차이가 커지고 있어서 염료 농도 증가에 따른 염색성은 젤라틴처리 시료가 효과적임을 알 수 있다.

3.7. 염색견뢰도

Table 3은 미처리 시료와 젤라틴 10g/l 농도를 처리한 시료를 염액농도 5%(o.w.f.), 염색온도 20°C, 액비 1:100, 염색시간 60분 조건에서 염색한 시료의 세탁, 마찰, 일광견뢰도 시험을 실시한 결과를 나타낸 것이다.

세탁견뢰도는 변퇴색에서 1급을 나타내고 오염에서 면은 5급, 양모는 4~5급으로 나타났다. 마찰견뢰도는 건조마찰이 3~4급으로 습윤마찰 1~2급보다 양호하였다. 일광견뢰도는 1급으로 나타났는데 젤라틴처리 시료와 미처리 시료의 염색견뢰도가 동일한 결과를 나타내었다. 이로써 젤라틴 처리가 견뢰도 증진에는 영향을 미치지 않음을 알 수 있었다.

4. 결 론

소목은 매염염료로서 명반에 의해 깨끗한 적색을 얻는다. 그러나 면직물에 대한 친화성이 부족하여 이를 보완하기 위해 젤라틴 단백질을 전처리하고 전처리한 면직물의 염색성 개선을 조사하였다.

젤라틴 처리한 직물의 표면을 SEM으로 관찰한 결과 표면 코팅된 것을 확인하였고, 젤라틴처리 농도는 10g/l까지 K/S값

이 증가한 이후 감소하여 10g/l 농도 처리를 적정 조건임을 확인하였다.

젤라틴 전처리에 의해 미처리 시료에 비해 2배 이상의 염색성 향상을 보였다.

염색의 적정 pH는 미처리 및 처리 시료 모두 pH7에서 가장 좋은 염색성을 보였고, 알칼리 영역에서는 급격하게 감소하였다.

염색온도가 미치는 영향은 온도가 높아질수록 K/S값이 낮아지고 채도가 낮아져서 탁한 색상을 보였다. 따라서 최적 염색온도는 상온인 20°C에서 가장 깨끗한 적색과 높은 색강도를 유지할 수 있었다.

염색시간이 길수록, 염액의 농도가 높을수록 높은 K/S값을 얻었다.

젤라틴처리 시료와 미처리 시료의 염색견뢰도에는 차이가 나타나지 않았다.

References

- Baaka, N., Mahfoudhi, A., Haddar, W., Mhenni, M. F., & Mighri, Z. (2017). Green dyeing process of modified cotton fibres using natural dyes extracted from *Tamarix aphylla* (L.) Karst leaves. *Natural Product Research*, 31(1), 22-31. doi:10.1080/14786419.2016.1207072
- Chattopadhyay, S. N., Pan, N. C., Roy, A. K., Saxena, S., & Khan, A. (2013). Development of natural dyed jute fabric with improved colour yield and UV protection characteristics. *The Journal of the Textile Institute*, 104(8), 808-818. doi:10.1080/00405000.2012.758352
- Das, M. P., Priyanka, R., Zaibunisa, A. M. R., & Sivagami, K. (2016). Eco safe textile coloration using natural dye. *International Journal of Pharmaceutical Sciences Review and Research*, 39(1), 163-166.
- Haddar, W., Ticha, M. B., Guesmi, A., Khoffi, F., & Durand, B. (2014). A novel approach for a natural dyeing process of cotton fabric with *Hibiscus mutabilis* (Gulzuba): Process development and optimization using statistical analysis. *Journal of Cleaner Production*, 68, 114-120. doi:10.1016/j.jclepro.2013.12.066
- Hitchcock, D. I. (1931). The isoelectric point of a standard gelatin preparation. *The Journal of General Physiology*, 14(6), 685-699. doi:10.1085/jgp.14.6.685
- Hwang, S. H., & Jang, J. D. (2016). The effect of the pre-treatment with proteins on dyeing of silk fabric with *Caesalpinia sappan*. *Textile Coloration and Finishing*, 28(3), 208-218. doi:10.5764/TCF.2016.28.3.208
- İşmal, O. E., Yıldırım, L., & Özdoğan, E. (2014). Use of almond shell extracts plus biomordants as effective textile dye. *Journal of Cleaner Production*, 70, 61-67. doi:10.1016/j.jclepro.2014.01.055
- Janhom, S., Griffiths, P., Watanesk, R., & Watanesk, S. (2004). Enhancement of lac dye adsorption on cotton fibres by poly(ethyleneimine). *Dyes and Pigments*, 63(3), 231-237. doi:10.1016/j.dyepig.2004.02.007
- Janhom, S., Watanesk, R., Watanesk, S., Griffiths, P., Arquero, O. A., & Naksata, W. (2006). Comparative study of lac dye adsorption on cotton fibre surface modified by synthetic and natural polymers. *Dyes and Pigments*, 71(3), 188-193. doi:10.1016/j.dyepig.2005.06.018
- Kadolph, S. J., & Casselman, K. D. (2004). In the bag: Contact natural dyes. *Clothing and Textiles Research Journal*, 22(1-2), 15-21. doi:10.1177/0887302X0402200103
- Lee, Y. H. (2007). Dyeing, fastness, and deodorizing properties of cotton, silk, and wool fabrics dyed with coffee sludge (*Coffea arabica* L.) extract. *Journal of Applied Polymer Science*, 103(1), 251-57. doi:10.1002/app.25221
- Lee, B. Y., & Ryu, H. S. (2013). A study on dyeability of PEI-treated cotton fabric with polychromatic natural dyes. *Journal of the Korean Society of Clothing and Textiles*, 37(4), 590-597. doi:10.5850/JKSCT.2013.37.4.590
- Lewis, D. M. (1993). New possibilities to improve cellulosic fibre dyeing processes with fibre-reactive systems. *Journal of the Society Dyers and Colourists Banner*, 109(11), 357-364. doi:10.1111/j.1478-4408.1993.tb01514.x
- Lewis, D. M., & McIlroy, K. A. (1997). Modification of cotton with nicotinoyl thioglycollate to improve its dyeability. *Dyes and Pigments*, 35(1), 69-86. doi:10.1016/S0143-7208(96)00087-3
- Martínez Urreaga, J., & de la Orden, M. U. (2007). Modification of cellulose with amino compounds: A fluorescence study. *Carbohydrate Polymers*, 69, 14-19. doi:10.1016/j.carbpol.2006.08.019
- Mowafi, S., Abou Taleb, M., & El-Sayed, H. (2018). Utilization of proteinic biopolymers: Current status and future prospects. *Journal of Textiles, Coloration and Polymer Science*, 15(1), 15-31. doi:10.21608/JTCPS.2018.5007.1002
- Vankar, P. S., Shanker, R., Mahanta, D., & Tiwari, S. C. (2008). Ecofriendly sonicator dyeing of cotton with *Rubia cordifolia* Linn. using biomordant. *Dyes and Pigments*, 76(1), 207-212. doi:10.1016/j.dyepig.2006.08.023
- Xie, K., Liu, H., & Wang, X. (2009). Surface modification of cellulose with triazine derivative to improve printability with reactive dyes. *Carbohydrate Polymers*, 78, 538-542. doi:10.1016/j.carbpol.2009.05.013
- Yeo, Y. M., & Shin, Y. S. (2018). Eco-friendly leather dyeing using biomass wastes(II): Improving the dyeability of pig leather to onion skin colorant by pre-treatment. *Textile Coloration and Finishing*, 30(4), 294-303. doi:10.5764/TCF.2018.30.4.294
- Yoon, S. H., & Im, Y. J. (2005). Establishment of a stable and reproducible dyeing with natural dyes. *Fiber Technology and Industry*, 9(2), 162-176.

(Received 9 July, 2019; 1st Revised 6 August, 2019;
2nd Revised 7 August, 2019, 3rd Revised 8 August, 2019;
Accepted 9 August, 2019)