

## 微波辅助提取毛杨梅树皮原花色素的工艺研究



WANG Yong-mei

汪咏梅, 陈笏鸿\*, 吴冬梅, 徐曼, 吴在嵩

(中国林业科学研究院林产化学工业研究所; 生物质化学利用国家工程实验室;  
国家林业局林产化学工程重点开放性实验室, 江苏南京 210042)

**摘要:** 以水为提取剂, 在微波辐照下从毛杨梅树皮中提取原花色素, 考察了微波加热温度、加热时间、液固比、提取次数对提取效果的影响。正交试验确定了最佳工艺条件: 微波加热温度 85 °C, 加热时间 30 min, 液固比 10:1 (mL:g), 提取次数 2 次。提取率可达 35.2%, 产物的有效成分含量 64.7%。与常规提取方法相比, 微波辅助提取方法提取毛杨梅树皮原花色素, 具有操作简便, 提取时间短, 效率高, 产品质量好的优点。

**关键词:** 微波辅助提取; 毛杨梅树皮; 原花色素

中图分类号: TQ351.014; TQ941

文献标识码: A

文章编号: 0253-2417(2009)S0-0195-04

## Study on Microwave-assisted Extraction of Proanthocyanidins from *Myrica esculenta* Bark

WANG Yong-mei, CHEN Jia-hong, WU Dong-mei, XU Man, WU Zai-song

(Institute of Chemical Industry of Forest Products, CAF; National Engineering Lab. for Biomass Chemical Utilization; Key and Open Lab. on Forest Chemical Engineering, SFA, Nanjing 210042, China)

**Abstract:** The microwave-radiation technique was researched for extraction of proanthocyanidins from *Myrica esculenta* bark with water. Effects of irradiating temperature, time, liquid/solid ratio and number of extractions on yield were investigated. Optimal conditions obtained from orthogonal test were: microwave heating temperature 85 °C, microwave irradiating time 30 min, liquid/solid ratio 10:1, duplicate extraction. The extraction yield was 35.2%. Proanthocyanidin content of the product was 64.7%. The result indicated that microwave technique for *M. esculenta* bark extraction had some advantages such as: easy to operate, time-saving, efficient and superior in quality of product.

**Key words:** microwave-assisted extraction; *Myrica esculenta* bark; proanthocyanidins

毛杨梅 (*Myrica esculenta* Buch. -Ham) 树皮富含聚原花色素 (polymeric proanthocyanidins), 其主要成分为局部糖酰化的聚原翠雀素 (polymeric prodelfinidins), 具有比原花青素抗氧化活性更强的化学结构特征<sup>[1-2]</sup>。作者从毛杨梅树皮提取以局部糖酰化的原翠雀素为主要成分的低聚原花色素, 产物具有抑制油脂氧化、清除自由基和去除对脂质氧化有催化作用的金属离子的能力, 可望进一步开发成为新型天然抗氧化及自由基清除剂<sup>[3]</sup>。传统提取分离方法为罐组浸提, 提取时间长, 效率低, 操作繁琐。随着科学技术的发展, 一些新技术应运而生, 如超声波辅助萃取、超临界流体萃取和微波辅助提取等。微波辅助提取方法具有选择性高、操作时间短、溶剂消耗量少、有效成分得率高等优点。它与超临界流体萃取、超声波辅助萃取等新型提取方法相比, 也具有很大的优势, 如设备简单、易于操作、投资小、适用面广等。因此微波辅助提取技术在天然植物有效成分提取中有良好的应用前景, 已经成为当前和今后新型提取技术研究的热点之一<sup>[4-5]</sup>。用微波辅助提取法从葡萄籽中提取原花青素<sup>[6-7]</sup>、从马占相思树叶中提取多酚<sup>[8]</sup>、从加勒比松树皮中提取原花青素<sup>[9]</sup>等都有相关的研究报道, 但用微波辅助提取法从毛杨梅树皮

收稿日期: 2009-05-20

基金项目: “十一五” 国家科技支撑计划资助 (2006BAD18B0403)

作者简介: 汪咏梅 (1964-), 女, 浙江义乌人, 副研究员, 从事植物资源化学利用研究; E-mail: njlhwym@163.com

\* 通讯作者: 陈笏鸿, 研究员, 主要从事植物资源化学利用研究; E-mail: chen-jiahong@163.com。

中提取原花色素的研究尚未见报道。本研究以水为提取剂,用微波辅助方法从毛杨梅树皮中提取原花色素生物活性物质。以微波加热温度、加热时间、液固比、提取次数等条件的单因素试验结果为基础进行正交试验,以产物提取率和有效成分含量为考核指标,优选确定了最佳工艺条件。为进一步从毛杨梅树皮提取物开发新型天然抗氧化剂及自由基清除剂打下基础。

## 1 实验

### 1.1 材料、试剂与仪器

材料:毛杨梅树皮由广西武鸣桫桫胶厂提供的风干样,筛去灰土,经植物粉碎机粉碎(过2 mm筛),含原花色素27.2%,水分14%(按LY/T 1083-2008方法测定);铬皮粉:符合LY/T 1639-2005要求,中国林科院林产化学工业研究所南京科技开发总公司制。试剂:壳聚糖、乙酸均为分析纯;水为三级水。

仪器:MAS-II常压微波合成/萃取反应工作站(微波功率随温度自动变频控制;非脉冲微波连续加热;功率自动变化范围为0~1 000 W;实时监测和控制反应温度),上海新仪微波化学科技有限公司;R系列旋转蒸发器,上海申生科技有限公司;FD-1型冷冻干燥机,日本EYELA公司。

### 1.2 提取方法

**1.2.1 单因素试验** 称取50 g毛杨梅树皮粉,加入适量的水;在一定的辐射温度下提取一定时间后,过滤;按设定次数重复进行。合并提取滤液,浓缩至约5°Be';冷冻真空干燥得到产物,计量产物质量。以提取量来评定单因素影响趋势。

**1.2.2 正交试验** 称取80 g毛杨梅树皮粉,在单因素试验基础上,以温度、时间、液固比、提取次数为影响因素,选用 $L_9(3^4)$ 正交表进行提取试验。提取液浓缩至约5°Be',加1%壳聚糖乙酸溶液(壳聚糖量为原料量的0.05%),在3~7℃冷冻沉降24~48 h;清液冷冻真空干燥得到产物。计量产物质量,检测其水分和有效成分含量。

### 1.3 分析方法

产物的有效成分质量按LY/T 1082-2008进行检测。有效成分的提取率按下式计算:

$$\text{提取率} = \frac{\text{产物的有效成分质量}}{\text{原料的有效成分质量}} \times 100\%$$

## 2 结果与讨论

### 2.1 单因素试验

**2.1.1 微波加热温度的影响** 50 g毛杨梅树皮粉,液固比5:1(mL:g,下同),微波加热时间30 min,在微波加热温度分别为60、70、80和90℃下提取1次。微波加热温度对提取效果的影响见图1(a)。由图可知,微波加热温度越高提取量越多。因为原花色素有热敏性,在高温下会使有效成分部分破坏,因此不宜在太高的温度下提取。

**2.1.2 微波加热时间的影响** 50 g毛杨梅树皮粉,微波加热温度80℃、液固比5:1,微波加热时间分别为10、20、30、40 min,提取1次。微波加热时间对提取效果的影响见图1(b)。由图可知,微波加热时间在30 min左右提取量最多。

**2.1.3 液固比的影响** 50 g毛杨梅树皮粉,微波加热温度80℃、微波加热时间30 min,液固比分别为5:1、7:1、9:1、11:1,微波提取1次。液固比对提取效果的影响见图1(c)。由图可知液固比越大提取量越多。但液固比的增大会增加浓缩处理的能耗。

**2.1.4 提取次数的影响** 50 g毛杨梅树皮粉,微波加热温度80℃,微波加热时间30 min,液固比9:1,分别进行1、2、3、4次的微波提取试验,提取次数对提取效果的影响见图1(d)。由图可知,提取次数越多提取量越多,但考虑到增加提取次数,增加生产成本,而且会溶出更多的杂质,提取3次时已基本平衡。

### 2.2 正交试验

根据单因素试验,按照表1正交试验设计表进行试验,用提取率和产物的有效成分含量作为考核指标。从表1可知影响因素为温度>液固比>时间>提取次数,主要影响因素是温度和液固比,其次是时

间,提取次数的影响最小。

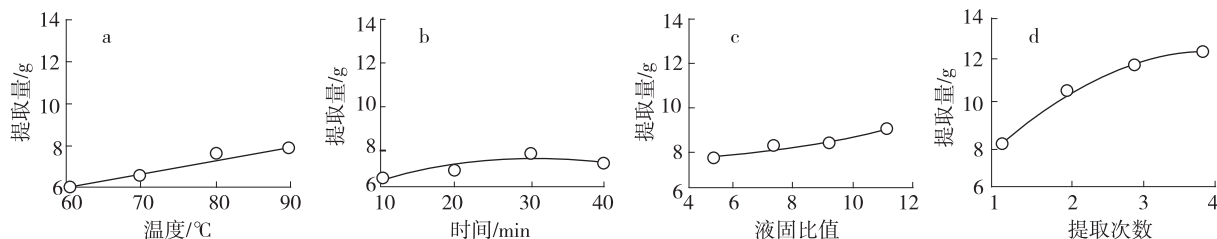


图1 不同反应条件对提取量的影响

Fig. 1 Effects of different reaction conditions on extraction amount

以提取率为考核指标,其影响因素顺序为  $A > C > B > D$ ,最佳组合是  $A_2B_3 (\approx B_2)C_3D_2 (\approx D_3)$ ,其中  $B_3$  与  $B_2$ 、 $D_2$  与  $D_3$  基本相近,可以考虑选择时间和能耗较低的  $B_2$ 、 $D_2$ 。以有效成分含量为考核指标,其影响因素顺序为  $A > C > B > D$ ,最佳组合是  $A_2B_2C_3D_3 (\approx D_2)$ ,其中  $D_2$  与  $D_3$  基本相近,可以考虑选择时间和能耗较低的  $D_2$ 。

综合考虑确定最佳工艺条件为:微波加热温度 85 °C、时间 30 min、固液比 10:1、提取 2 次。

表1 正交试验设计及结果分析

Table 1 Results and analysis of orthogonal test

| 序号<br>No. | A<br>温度/°C<br>temp. | B<br>时间/min<br>time | C<br>液固比 (mL:g)<br>liquid:solid | D<br>提取次数<br>extraction times | 提取率/%<br>extraction yield | 有效成分含量/%<br>proanthocyanidin<br>content |
|-----------|---------------------|---------------------|---------------------------------|-------------------------------|---------------------------|---|
| 1         | 75                  | 25                  | 8:1                             | 1                             | 28.2                      | 60.58                                   |
| 2         | 75                  | 30                  | 9:1                             | 2                             | 31.3                      | 61.14                                   |
| 3         | 75                  | 35                  | 10:1                            | 3                             | 34.0                      | 62.73                                   |
| 4         | 85                  | 25                  | 9:1                             | 3                             | 32.9                      | 62.72                                   |
| 5         | 85                  | 30                  | 10:1                            | 1                             | 36.4                      | 65.52                                   |
| 6         | 85                  | 35                  | 8:1                             | 2                             | 34.9                      | 63.92                                   |
| 7         | 95                  | 25                  | 10:1                            | 2                             | 34.0                      | 62.66                                   |
| 8         | 95                  | 30                  | 8:1                             | 3                             | 32.6                      | 62.73                                   |
| 9         | 95                  | 35                  | 9:1                             | 1                             | 32.0                      | 59.92                                   |
| $k_1$     | 31.2                | 31.7                | 31.9                            | 32.2                          |                           |   |
| $k_2$     | 34.7                | 33.4                | 32.1                            | 33.4                          |                           |   |
| $k_3$     | 32.9                | 33.6                | 34.8                            | 33.2                          |                           |   |
| $R$       | 3.5                 | 1.9                 | 2.9                             | 1.2                           |                           |   |
| $k'_1$    | 61.48               | 61.99               | 62.41                           | 62.04                         |                           |   |
| $k'_2$    | 64.05               | 63.13               | 62.57                           | 62.57                         |                           |   |
| $k'_3$    | 61.77               | 62.19               | 63.64                           | 62.73                         |                           |   |
| $R'$      | 2.57                | 1.14                | 1.23                            | 0.69                          |                           |   |

### 2.3 最佳条件验证实验

80 g 毛杨梅树皮粉在正交优选确定的最佳工艺条件下,进行 3 次验证实验,结果见表 2。

表2 验证实验结果

Table 2 Check-test results

| 序号<br>No.   | 产物绝干质量/g<br>absolute dry mass of product | 有效成分含量/%<br>proanthocyanidin content | 有效成分质量/g<br>proanthocyanidin mass | 提取率/%<br>extraction yield |
|-------------|--|--------------------------------------|-----------------------------------|---------------------------|
| 1           | 10.4                                     | 65.5                                 | 6.8                               | 36.4                      |
| 2           | 10.1                                     | 63.1                                 | 6.4                               | 34.1                      |
| 3           | 10.1                                     | 65.4                                 | 6.6                               | 35.2                      |
| 平均值 average | 10.2                                     | 64.7                                 | 6.6                               | 35.2                      |

### 2.4 与常规提取方法的比较

100 g 毛杨梅树皮粉,液固比 10:1,80 °C,提取 4 次,每次 1 h,后处理过程同微波法。进行 3 次重复

试验,测定、计算含量和提取率的平均值,与微波辅助提取方法进行比较,结果见表3。

表3 微波辅助方法与常规方法的提取效果比较

Table 3 Comparison between microwave-assisted extraction and common extraction

| 方法<br>methods                          | 提取时间/min<br>extraction time | 提取温度/℃<br>temperature | 平均提取率/%<br>average extraction yield | 平均含量/%<br>average content |
|--|-----------------------------|-----------------------|-------------------------------------|---------------------------|
| 常规提取方法 common extraction               | 60 × 4 = 240                | 80                    | 30.3                                | 60.4                      |
| 微波辅助提取方法 microwave-assisted extraction | 30 × 2 = 60                 | 85                    | 35.2                                | 64.7                      |

由表3可知,微波辅助提取方法与常规提取方法相比,具有提取时间短,收率高,产物质量好的优点。

### 3 结论

**3.1** 以水为溶剂,用微波辅助提取毛杨梅树皮原花色素的最佳工艺条件是:提取温度 85 ℃,液固比 10:1 (mL:g),提取时间 30 min,提取次数 2 次。

**3.2** 在最佳条件下,微波辅助提取毛杨梅树皮原花色素的提取率达到 35.2%,产物的有效成分含量 64.7%。

**3.3** 微波辅助提取毛杨梅树皮原花色素,具有操作简便,提取时间短,效率高,产品质量好的优点。

#### 参考文献:

- [1] 孙达旺. 植物单宁化学[M]. 北京:中国林业出版社,1992.
- [2] 石碧,狄莹. 植物多酚[M]. 北京:科学出版社,2000.
- [3] 陈筋鸿,汪咏梅,吴冬梅,等. 毛杨梅树皮提取物抗氧化及清除自由基活性初步研究[J]. 林产化学与工业,2007,27(增刊):1-7.
- [4] 卢樱. 微波辅助萃取在天然植物有效成分提取的应用进展[J]. 陕西农业科学,2007(5):70-73.
- [5] 郭维图. 微波中药提取的研究与开发[J]. 医药工程设计,2008,29(2):57-62.
- [6] 王克亮,白光辉. 微波辅助提取原花青素最佳工艺条件的研究[J]. 兰州理工大学学报,2006,32(1):79-81.
- [7] 李瑞丽,马润宇. 微波辅助提取葡萄籽原花青素的工艺研究[J]. 食品科技,2008,15(1):33-37.
- [8] 陈丛瑾,蒋冬华,胡华宇,等. 马占相思树叶总多酚的微波提取工艺研究[J]. 应用化工,2008,37(7):780-783.
- [9] 杜学禹,章正格,王飞. 加勒比松树皮中原花青素的提取工艺研究[J]. 生物质化学工程,2007,41(6):6-10.