

DOI:10.12403/j.1001-1498.20210091

元宝枫、三角枫及金沙枫叶片柯里拉京含量的变异与季节变化

苏亚静¹, 鲁仪增², 乔谦³, 孙忠奎⁴, 武冲³, 燕语⁵,
程甜甜⁵, 张林⁵, 丰震^{1*}

(1. 山东农业大学林学院, 山东 泰安 271018; 2. 山东省林草种质资源中心, 山东 济南 250102; 3. 山东省果树研究所, 山东 泰安 271000; 4. 泰安时代园林科技开发公司, 山东 泰安 271000; 5. 泰安市泰山林业科学研究院, 山东 泰安 271000)

摘要: [目的] 为进一步开发元宝枫、三角枫和金沙枫的药用价值, 丰富用于提取柯里拉京的植物资源并提升这3种枫树的药用价值以及筛选药赏兼用型品种。[方法] 采用超高效液相色谱法(UPLC)对元宝枫、三角枫和金沙枫叶片中的柯里拉京进行测定, 以XBridge C₁₈ (4.6 × 150 mm, 3.5 μm)为色谱柱, 以0.4%甲酸水溶液和甲醇为流动相, 流速为0.3 mL·min⁻¹, 柱温为25℃, 检测波长270 nm, 进样量2 μL。[结果] 元宝枫、三角枫和金沙枫的叶片中都含有柯里拉京; 不同树种之间柯里拉京含量存在较大差异, 三角枫含量最高, 金沙枫次之, 元宝枫最低; 不同品种之间柯里拉京含量也存在较大差异, 三角枫4个品种中‘兴旺’平均含量最高, 而‘千里红’在10月达到6.888 7 mg·g⁻¹的峰值; 金沙枫‘鲁绿’在6月达最高值2.664 0 mg·g⁻¹; 元宝枫4个品种中, ‘绿宝石’在6月达最高值0.607 9 mg·g⁻¹, 不同采收时间柯里拉京含量也存在较大差异, 三角枫峰值多在10月, 元宝枫和金沙枫最高值多出现在5月和6月。[结论] 首次揭示元宝枫、三角枫和金沙枫叶片中含有柯里拉京, 其中, 三角枫更适合作为提取柯里拉京的原材料, 金沙枫和元宝枫可作为候选资源。

关键词: 柯里拉京; 元宝枫; 三角枫; 金沙枫; 超高效液相色谱法

中图分类号: S718.43

文献标志码: A

文章编号: 1001-1498(2023)01-0031-08

元宝枫 (*Acer truncatum* Bunge)、三角枫 (*A. buergerianum* Miq.) 和金沙枫 (*A. paxii* Franch.) 均为槭树科槭属植物。元宝枫因其翅果形状像中国古代金锭“元宝”而得名, 广布于东北、华北, 西至陕西、四川、湖北, 南达浙江、江西等省, 园林景观应用中常见的秋色叶树种, 也是我国特有树种。元宝枫叶片中含有多种生物活性成分, 如黄酮、强心甙、绿原酸、甾体、鞣质、多糖等, 且有些成分含量较高, 如绿原酸、黄酮等^[1-2], 在食品、医疗、饲料加工方面有着广阔的应用前景。三角枫是我国黄河流域以南自然分布的乡土秋色叶树种之一, 不仅具有较高的观赏价值, 也具有

一定的经济价值与药用价值^[3-4], 根可用于治疗风湿关节痛, 根皮、茎皮可用于清热解毒、消暑, 叶片提取物能够调节血糖。金沙枫则是一种常绿景观树种, 自然分布于我国金沙江流域的四川西南部和云南西北部, 山东地区偶有栽植, 越冬需适当防寒; 金沙枫也具有一定的药用价值, 其根皮及枝、叶含有的化学物质具有祛风除湿的功效^[5]。

柯里拉京 (Corilagin) 是一种水溶性鞣质, 具有多种药理活性, 包括抗肿瘤、抗氧化、抗动脉粥样硬化、抗纤溶、降血压、抑制病毒、抗菌、抗炎等^[6]。特别是在抗肿瘤方面, 已有文献报道其对肝、胆管癌、卵巢癌、宫颈癌以及胃癌等细胞生长

收稿日期: 2021-03-12 修回日期: 2022-11-11

基金项目: 山东省农业良种工程项目: 新型木本油料树种突破性新品种选育 (2020LZGC009); 中央财政林业改革发展资金项目: “元宝枫良种繁育及丰产栽培技术示范”(2020JTG01) 和元宝枫种质资源收集评价及种质挖掘 (2020KJCX01); 泰安农业良种工程“元宝枫新品种定向选育及示范应用”

* 通讯作者: 丰震, 教授, 研究生导师, 主要从事林木遗传育种研究。Tel: 13695389830。E-mail: fengzn408@qq.com

具有显著抑制作用^[7-11],且柯里拉京对人体正常细胞和组织的毒性较低。目前,已在15个科和50种植物中鉴定出了柯里拉京^[8],主要存在于大戟科(19种)、牻牛儿苗科(10种)和使君子科(7种)中,槭属中也有2种鉴定出了柯里拉京,分别是毛果枫(*A. nikoense* Maxim.)和大叶鸡爪枫(*A. amoenum* Hu.)^[12-14],而同为槭属的元宝枫、三角枫和金沙枫是否含有柯里拉京则未见报道。因此,为进一步开发这3种枫树的药用价值,本试验通过UPLC法对这3种枫树叶片中柯里拉京的含量进行测定,旨在丰富用于提取柯里拉京的植物资源并提升这3种枫树的药用价值以及筛选药赏兼用型品种。

1 材料与方法

1.1 采样地概况

采样地点位于山东省泰安市山东农业大学林学院园林实训基地,属温带大陆性半湿润季风气候区,四季分明,寒暑适宜,光温同步,雨热同季。春季干燥多风,夏季炎热多雨,秋季晴和凉爽,冬季寒冷少雪。年平均气温13℃,7月份气温最高,平均26.4℃,1月份最低,平均-2.6℃。年

平均降水量697 mm。

1.2 试验材料

于2019年5月25日、6月25日、7月25日、8月26日、9月26日和10月27日共计采样6次,采集的元宝枫、三角枫和金沙枫各个品种信息见表1。每个品种选取3株长势一致的健康植株(3年生嫁接苗,株高2 m,胸径3~4 cm),在每株树冠中部的枝条中部(长枝上第3、4、5对叶)采集健康无病虫害的成熟叶片30片以上,带回实验室50℃烘至恒质量,人工磨成细粉。

1.3 方法

1.3.1 色谱条件 采用超高效液相色谱(UPLC)法对元宝枫、三角枫和金沙枫叶片中的柯里拉京进行检测,仪器为二维超高效液相色谱仪(美国Waters,型号:ACQUITY UPLC),以XBridge C18(4.6×150 mm,3.5 μm)为色谱柱,以0.4%甲酸水溶液和甲醇为流动相进行梯度洗脱(0.4%甲酸:0~2 min,80%~75%;2~15 min,75%~55%;15~20 min,55%~10%;20~30 min,10%;30~32 min,10%~80%),流速为0.3 mL·min⁻¹,柱温为25℃,检测波长270 nm,进样量2 μL。

表1 3种枫树的品种信息

Table 1 Cultivars information of three Maple species

树种 Species	编号 Number	品种名 Name of cultivars	典型性状 Typical characteristic
元宝枫 <i>A. truncatum</i>	Y-1	'绿宝石' 'Lvbaoshi'	当年生嫩枝黄绿色,春季嫩叶绿色 The current year shoots are yellow green. The tender leaves are green in spring.
	Y-2	'彩蝶翻飞' 'Caidiefanfei'	当年生嫩枝红色,春季嫩叶红色,成熟叶绿色,秋季变红,叶柄弯 The current year shoots are red. The tender leaves are red in spring. Mature leaves are green, turn red in autumn, and the petiole is curved.
	Y-3	'庆典' 'Qingdian'	当年生嫩枝红色,春季嫩叶红色,成熟叶绿色,秋季变红,叶柄直 The current year shoots are red. The tender leaves are red in spring. Mature leaves are green, turn red in autumn, and the petiole is straight.
	Y-4	'红精灵' 'Hongjingling'	当年生嫩枝红色,春季嫩叶红色,成熟叶绿色,秋季变红,叶裂深 The current year shoots are red. The tender leaves are red in spring. Mature leaves are green, turn red in autumn, and the leaf division is deep.
三角枫 <i>A. buergerianum</i> .	S-1	'兴旺' 'Xingwang'	四倍体,速生、叶片革质、角质层厚,秋季落叶前变棕红色 Tetraploid. The growth speed is fast, and the leaves are leathery and the cuticle is thick. The leaves turns brownish red before falling in autumn.
	S-2	'千里红' 'Qianlihong'	生长速度中等,叶片纸质、角质层薄,秋季落叶前变亮棕红色 The growth rate is medium, the leaves are papery and the cuticle is thin. The leaves turns bright brown red before falling in autumn.
	S-3	'齐鲁金' 'Qilujin'	一种黄叶突变体,春季嫩叶橙黄至金黄色,后逐渐转绿 A yellow leaf mutant. The tender leaves are orange yellow to golden yellow in spring, and then turn green gradually.
	S-4	'龙枫' 'Longfeng'	枝条不规则扭曲 The branches twist irregularly.
金沙枫 <i>A. paxii</i>	J-1	'鲁绿' 'Lulv'	枝条直,绿叶期长 The branches are straight and the period of green leaves is long.
	J-2	'丰彩' 'Fengcai'	枝条直,秋叶变红 The branches are straight and the leaves turn red in autumn.

1.3.2 供试样品和对照品溶液的制备

1.3.2.1 对照样品溶液 准确称取柯里拉京标准对照品(上海源叶公司, Lot23094-69-1, 纯度 $\geq 98\%$) 5.00 mg, 于 50 mL 容量瓶中, 用 50% 甲醇溶解并定容至刻度, 摇匀, 即为含 $0.10 \text{ mg}\cdot\text{mL}^{-1}$ 柯里拉京的标准溶液。

1.3.2.2 供试样品溶液 取样品粉末约 1.00 g, 精密称定, 置于 100 mL 锥形瓶中, 精密加入 50% 的乙醇水溶液 50 mL, 采用超声波仪器(成都一科仪器设备有限公司, KH-599B 型)超声(功率 500 W, 频率 40 kHz)提取 30 min, 收集上清液, 用旋转蒸发器(上海亚荣, RE-2000A)蒸发后, 将固体粉末溶解于 50 mL 50% 甲醇中, 过 $0.22 \mu\text{m}$ 滤膜进样待测。

1.3.3 线性关系考察 取对照样品溶液, 用 50% 甲醇稀释, 配置浓度梯度为 0.005、0.01、0.025、0.05、0.10、0.20 $\text{mg}\cdot\text{mL}^{-1}$ 的溶液, 按本文“1.3.1”节色谱条件进样测定。以柯里拉京的浓度为横坐标, 色谱峰面积为纵坐标, 绘制标准曲线并进行回归分析计算。

1.3.4 精密密度试验 取对照样品溶液, 按 1.3.1 节色谱条件连续进样测定 6 次, 记录峰面积, 计算其相对标准偏差(RSD)。

1.3.5 重复性试验 称取供试样品“S-2”样品粉末 6 份, 每份约 1.00 g, 按 1.3.2.2 节方法制备供试溶液, 按 1.3.1 节色谱条件进行分析, 记录峰面积, 计算其 RSD。

1.3.6 稳定性试验 吸取对照品溶液 $2 \mu\text{L}$, 每隔 2 h 进样 1 次, 按“1.3.1”节色谱条件连续进样 5 次, 记录峰面积, 计算其 RSD。

1.3.7 加样回收率试验 精密称取供试样品“S-2”粉末 1 g, 共 5 份, 分别加入柯里拉京标准品 1.410 mg, 按 1.3.2.2 节的方法制备, 在 1.3.1 色谱条件下测定, 记录色谱图并计算加样回收率及其 RSD。

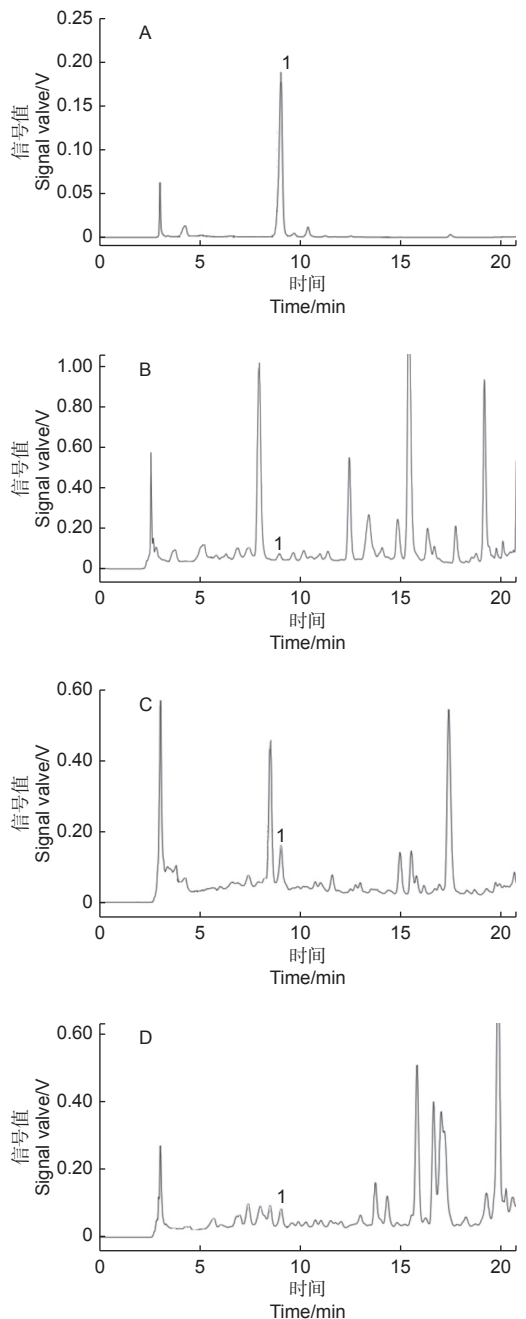
1.3.8 供试样品测定 精密称取元宝枫、三角枫和金沙枫各品种供试样品粉末 3 份, 每份约 1.0 g, 按 1.3.2.2 节的方法制备, 在 1.3.1 节色谱条件下测定其绝对含量。

2 结果与分析

2.1 3 种枫树叶片柯里拉京的测定

通过比较供试样品与柯里拉京标准样品的保留

时间, 可以确定这 3 种枫树叶片中均含柯里拉京(图 1)。



注: 1: 柯里拉京; A: 柯里拉京标准品; B: *A. truncatum* Bunge; C: *A. buergerianum* Miq.; D: *A. paxii* Franch.

Notes: 1: Corilagin; A: Corilagin standard; B: *A. truncatum* Bunge; C: *A. buergerianum* Miq.; D: *A. paxii* Franch.

图 1 样品的 UPLC 图

Fig. 1 UPLC diagram of samples

进一步对方法学进行考察, 结果表明: 标准曲线为 $Y = 5 \times 10^7 X + 28168$, $r = 0.9993$, 线性范围为 $0.005 \sim 0.20 \text{ mg}$; 精密密度、稳定性和重复性试

验的相对标准偏差 (RSD) 分别为 2.12%、0.42%、0.92%; 平均加样回收率为 95.31%, RSD 为 1.45% (表 2)。以上结果表明, 所建立

的 UPLC 方法重复性和稳定性较好, 回收率达到了 95.31%, 可用于元宝枫、三角枫和金沙枫叶片中柯里拉京的测定。

表 2 加样回收率试验

Table 2 Recovery test of sample loading

编号 Number	取样量 Sample quantity/g	样品中柯里拉京含量 Corilagin content/mg	加入量 Addition/mg	测得量 Measured quantity/mg	回收率 Recovery/%	平均回收率 Average recovery/%	相对标准偏差 RSD/%
1	1.109	7.269 4	1.410	8.600 7	94.42		
2	1.112	7.282 3	1.410	8.605 1	93.82		
3	1.105	7.290 8	1.410	8.670 5	97.85	95.31	1.45
4	1.118	7.379 2	1.410	8.725 6	95.49		
5	1.107	7.261 7	1.410	8.601 0	94.98		

2.2 3种枫树叶片中柯里拉京的含量差异及月动态变化

2.2.1 3种枫树叶片柯里拉京含量的比较分析

对元宝枫、三角枫和金沙枫叶片柯里拉京含量进行比较分析, 结果 (图 2) 表明: 3个树种之间含量存在较大差异, 三角枫柯里拉京含量最多, 金沙枫次之, 元宝枫最低。元宝枫、三角枫、金沙枫叶片中柯里拉京含量范围分别为 0.097 6 ~ 0.607 9、1.496 4 ~ 6.888 7、0.062 7 ~ 2.664 0 mg·g⁻¹, 平均分别为 0.244 5、3.311 7、1.179 2 mg·g⁻¹。由上可见, 三角枫更适合作为提取柯里拉京的原材料, 金沙枫和元宝枫可作为候选资源。

(表 3) 表明: 三角枫不同品种叶片的柯里拉京含量在不同月份间均存在较大差异, 5月到10月的变异系数范围为 12.86%~52.58%; 4个品种中, ‘兴旺’的平均含量最高 (4.420 0 mg·g⁻¹), 其次是 ‘千里红’、‘龙枫’, ‘齐鲁金’的含量最低, 仅为 ‘兴旺’含量的一半; 4个品种的月平均含量为 2.479 8~4.778 9 mg·g⁻¹, 10月份较高, 其次是 7、8月份, 5、6、9月份含量较低。

三角枫 4个不同品种叶片柯里拉京含量对比可知: ‘兴旺’在 5、7、8和 9月的含量明显高于其它品种, 具有较大优势, 而在 10月稍低于 ‘千里红’; ‘千里红’9月到 10月含量急剧上升, 达最高值 (6.888 7 mg·g⁻¹); ‘齐鲁金’和 ‘龙枫’9月到 10月含量缓慢上升, 同样在 10月达峰值, 分别为 3.320 4、3.087 6 mg·g⁻¹, 明显低于 ‘兴旺’和 ‘千里红’。总体看, 三角枫 4个品种的柯里拉京含量相比, ‘兴旺’和 ‘千里红’更优, ‘齐鲁金’和 ‘龙枫’次之; 采收时间以 10月份最佳。

2.2.3 金沙枫不同品种叶片柯里拉京的含量差异及月动态变化 表 4 表明: 金沙枫不同品种在不同月份叶片柯里拉京的含量存在显著性差异, 5月到 10月的变异系数范围为 10.17%~90.21%。金沙枫月平均含量介于 0.404 5~1.918 1 mg·g⁻¹, 5—10月月均含量一直呈下降趋势, 5月平均含量最高为 1.918 1 mg·g⁻¹。

金沙枫 2个品种叶片柯里拉京含量对比可看出: ‘鲁绿’为先升后降, 5月到 6月含量升高, 6月达最高值 (2.664 0 mg·g⁻¹), 6月到 10月含量持续降低; ‘丰彩’为先降再升后降, 在 5月含量

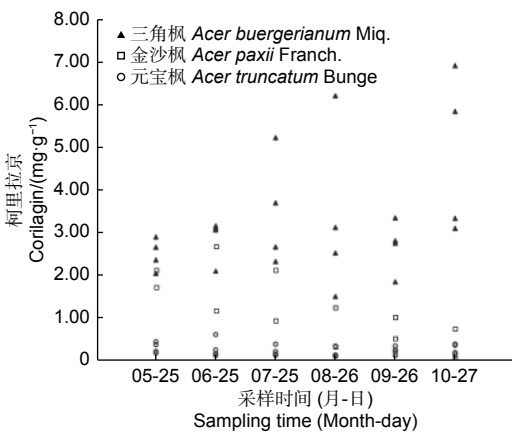


图 2 3种枫树叶片柯里拉京含量月动态分布

Fig. 2 Monthly dynamic distribution of corilagin content in leaves of three Maple species

2.2.2 三角枫不同品种叶片柯里拉京的含量差异及月动态变化 对三角枫 4个不同品种叶片柯里拉京在 5月到 10月的含量进行比较分析, 结果

表 3 三角枫不同品种叶片柯里拉京在不同月份的含量

Table 3 Content of corilagin in leaves of different cultivars of *A. buergerianum* Miq. in different months

树种 Species	编号 Number	品种名 Cultivars	采样时间 (月-日) Sampling time(Month-day)						平均值 Average
			05-25	06-25	07-25	08-26	09-26	10-27	
<i>A. buergerianum</i> Miq.	S-1	‘兴旺’	2.886 0	3.090 5	5.206 1	6.184 9	3.333 7	5.818 7	4.420 0
	S-2	‘千里红’	2.035 8	3.146 4	3.684 3	3.109 5	2.740 2	6.888 7	3.601 0
	S-3	‘齐鲁金’	2.647 0	2.088 1	2.311 8	1.496 4	1.839 1	3.320 4	2.283 8
	S-4	‘龙枫’	2.350 3	3.052 8	2.652 4	2.512 3	2.798 1	3.087 6	2.742 3
	平均值Average		2.479 8	2.844 4	3.763 7	3.325 8	2.677 8	4.778 9	3.311 7
	标准偏差SD		0.318 9	0.438 0	1.125 8	1.748 6	0.536 7	1.621 7	-
	变异系数CV/%		12.86	15.40	32.50	52.58	20.04	33.94	-

表 4 金沙枫不同品种叶片柯里拉京在不同月份的含量

Table 4 Content of corilagin in leaves of different cultivars of *A. paxii* Franch. in different months

树种 Species	编号 Number	品种名 Cultivars	采样时间 (月-日) Sampling time(Month-day)						平均值 Average
			05-25	06-25	07-25	08-26	09-26	10-27	
<i>A. paxii</i> Franch	J-1	‘鲁绿’	2.113 1	2.664 0	2.106 7	0.333 0	0.517 3	0.062 7	1.299 5
	J-2	‘丰彩’	1.723 0	1.158 6	0.940 0	1.246 2	1.004 7	0.746 2	1.136 5
	平均值		1.918 1	1.911 3	1.523 4	0.789 6	0.528 2	0.404 5	1.179 2
	标准偏差SD		0.195 0	0.752 7	0.583 4	0.456 6	0.476 5	0.341 7	-
	变异系数CV/%		10.17	39.38	38.29	57.83	90.21	84.49	-

最高 (1.723 0 mg·g⁻¹), 5月到7月逐步降低, 7月到8月含量有所升高, 8月到10月缓慢降低。2个品种的变化趋势虽有较大差异, 但其5月和6月的含量都高于其他月份。由此可见, 金沙枫‘鲁绿’和‘丰彩’叶片采收时间最好在6月和5月。

2.2.4 元宝枫不同品种叶片柯里拉京的含量差异及月动态变化 表5表明: 元宝枫不同品种在不同

月份的柯里拉京含量均存在较大差异, 4个品种叶片的柯里拉京含量5月到10月的变异系数范围为36.00%~67.74%, 6月份变异系数最大; 4个品种月平均含量介于0.171 7~0.299 4 mg·g⁻¹, 其中, 5、6月份平均含量较高, 其次是10月份, 7、8、9月份含量较低。

表 5 元宝枫不同品种叶片柯里拉京在不同月份的含量

Table 5 Content of corilagin in leaves of different cultivars of *A. truncatum* Bunge in different months

树种 Species	编号 Number	品种名 Cultivars	采样时间 (月-日) Sampling time(Month-day)						平均值 Average
			05-25	06-25	07-25	08-26	09-26	10-27	
<i>A. truncatum</i> Bunge	Y-1	‘绿宝石’	0.370 1	0.607 9	0.383 1	0.337 6	0.340 4	0.383 0	0.403 7
	Y-2	‘彩蝶翻飞’	0.438 0	0.249 6	0.124 6	0.097 6	0.114 5	0.149 8	0.195 7
	Y-3	‘庆典’	0.211 1	0.117 9	0.207 4	0.123 7	0.202 6	0.186 7	0.174 9
	Y-4	‘红精灵’	0.178 4	0.162 3	0.147 1	0.127 8	0.247 1	0.359 8	0.203 8
	平均值		0.299 4	0.284 4	0.215 6	0.171 7	0.226 2	0.269 8	0.244 5
	标准偏差SD		0.108 0	0.192 7	0.101 4	0.096 5	0.081 4	0.102 7	-
	变异系数CV/%		36.07	67.74	47.02	56.17	36.00	38.08	-

元宝枫4个不同品种叶片柯里拉京含量月动态变化趋势: ‘彩蝶翻飞’和‘红精灵’这2个品种的变化趋势一致, 均为先降后升, 即5月到8月含量降低, 8月到10月含量升高, 最高值分别出现在5月 (0.438 0 mg·g⁻¹) 和10月 (0.359 8

mg·g⁻¹); ‘绿宝石’5月到6月含量快速升高, 在6月达峰值 (0.607 9 mg·g⁻¹), 7月到10月含量变化不大; ‘庆典’的变化趋势一直处于波动中, 在5月到10月出现了多次升高和降低, 但幅度都较小, 最高值出现在5月 (0.211 1 mg·g⁻¹)。总

之, 4个品种中‘绿宝石’更适宜用作提取柯里拉京的候选资源, 最佳采叶时间在6月份。

3 讨论

研究发现, 槭属的不同树种之间、同一树种不同品种之间以及不同采收时间叶片柯里拉京含量均存在较大差异。首先, 同为槭属的3种枫树, 三角枫柯里拉京含量要明显高于金沙枫, 金沙枫又高于元宝枫。前人研究表明, 同属不同树种之间柯里拉京含量通常会存在较大差异。如同为叶下珠属 (*Phyllanthus* L.) 的叶下珠 (*Phyllanthus urinaria* L.)、珠子草 (*Phyllanthus niruri* L.) 和蜜柑草 (*Phyllanthus ussuriensis* Rupr. et Maxim.) 地上部分柯里拉京含量分别为 2.288、2.400、0.1613 $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ ^[15-17], 蜜柑草与前二者存在较大差异。同为老鹳草属 (*Geranium*) 的老鹳草 (*Geranium wilfordii* Maxim.)、鼠掌老鹳草 (*Geranium sibiricum* L.) 和野老鹳草 (*Geranium carolinianum* L.) 全株的柯里拉京含量分别为 2.0、0.593 6、4.10 $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ ^[18-19], 三者之间也存在较大差异。牻牛儿苗属的芹叶牻牛儿苗 (*Erodium cicutarium* (L.) L' Herit.) 和牻牛儿苗 (*Erodium stephanianum* Willd.)^[20-21], 榄仁树属的微毛诃子 (*Terminalia chebula* Retz. var. *tomentella* (Kurz) C. B. Clarke)、油榄仁 (*Terminalia bellirica* (Gaertn.) Roxb.) 和榄仁树 (*Terminalia catappa* L.)^[22-23] 同样存在较大差异。

元宝枫不同品种之间叶片柯里拉京含量差异显著。目前, 不同品种之间柯里拉京含量的差异还未见报道, 但不同产地的叶下珠^[15]、余甘子 (*Phyllanthus emblica* L.)^[24] 柯里拉京含量均存在较大差异。3种枫树不同品种之间柯里拉京含量差异较大, 元宝枫品种间变异系数最高为 67.74%, 三角枫为 52.58%, 金沙枫为 90.21%。本文属首次研究不同品种之间柯里拉京含量的差异, 只是研究的品种量不够多, 且所选品种有些较独特, 如三角枫‘兴旺’是天然四倍体植株, ‘齐鲁金’是一种黄叶突变体^[25], 这可能也是导致品种间差异过大的原因。因此, 不同品种之间柯里拉京的含量差异还有待更细致的研究。

3种枫树叶片柯里拉京含量5月到10月的变化趋势不同, 且最佳采收时间也不一致。元宝枫和

金沙枫多在5月和6月柯里拉京含量高, 三角枫则是在10月。据报道, 鼠掌老鹳草在7月达到最高值^[26]; 与鼠掌老鹳草同属的老鹳草柯里拉京含量则在8月达到最高值^[27]。这说明确定某树种叶片最佳采收时间是必要的, 不能直接参照同属植物的研究结果。

植物是动态变化的有机体, 柯里拉京作为多酚中的单宁类, 它在植物中不是固定不变的, 而是受到了多种内在和外因子的影响^[28-29]。内在因子如不同的基因型、关键酶的调控等, 都会导致不同树种、同一树种不同品种的柯里拉京含量存在较大差异; 而外在环境因子如光照、温度、生长发育阶段、产地等都可能造成柯里拉京含量季节变化的不同。柯里拉京的生物合成机制尚未见报道, 影响其含量的关键因子还无从得知, 由此可知, 针对柯里拉京及其资源探索还有太多的研究空间。

4 结论

首次测定并发现元宝枫、三角枫和金沙枫叶片中含有柯里拉京。所建立的 UPLC 法具有良好的重复性、稳定性和精密度, 且平均加样回收率达 95.31%, 可用于3种枫树叶片中柯里拉京的定量分析。槭属的不同树种、同一树种的不同品种之间和不同采收时间叶片柯里拉京的含量均存在显著性差异。元宝枫叶片柯里拉京在5月到10月的含量变化范围为 0.097 6 ~ 0.607 9 $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$, 三角枫的含量变化范围为 1.496 4 ~ 6.888 7 $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$, 金沙枫的含量变化范围为 0.062 7 ~ 2.664 0 $\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$ 。可见, 3种枫树叶片柯里拉京含量相比, 三角枫含量最高, 金沙枫次之, 元宝枫最低。

参考文献:

- [1] 王兰珍, 马希汉, 王妹清, 等. 元宝枫叶营养成分分析[J]. 西北林学院学报, 1997, 12 (4): 63-65.
- [2] 任红剑, 丰震, 安凯, 等. 元宝枫优质叶用品系选育方式的探讨[J]. 林业科学研究, 2017, 30 (6): 977-984.
- [3] 任海青, 刘秀梅, 訾兴中. 三角枫木材材性及用途的研究[J]. 安徽农业大学学报, 1994, 21 (3): 370-374.
- [4] ZHANG L, XU L, YE Y H, et al. Phytochemical profiles and screening of α -glucosidase inhibitors of four *Acer* species leaves with ultra-filtration combined with UPLC-QTOF-MS/MS[J]. Industrial Crops and Products, 2019, 129: 156-168.
- [5] 金颖, 姚贺, 孙博航. 金沙枫化学成分分离与鉴定[J]. 沈阳药科大学学报, 2016, 33 (7): 531-536.

- [6] 陈一燕, 陈崇宏. 柯里拉京药理活性研究进展[J]. 中国现代应用药学, 2010, 27(5): 390-394.
- [7] LI N, LIN Z C, CHEN W, *et al.* Corilagin from longan seed: Identification, quantification, and synergistic cytotoxicity on SKOV3ip and hey cells with ginsenoside Rh2 and 5-fluorouracil[J]. Food and Chemical Toxicology, 2018, 119: 133-140.
- [8] LI Y J, LI Z J, HU H, *et al.* Metal chelating, inhibitory DNA damage, and anti-inflammatory activities of phenolics from rambutan (*Nephelium lappaceum*) peel and the quantifications of geraniin and corilagin[J]. Molecules, 2018, 23(9): 2263-2275.
- [9] HWANG S T, YANG M H, KUMAR A P, *et al.* Corilagin represses epithelial to mesenchymal transition process through modulating Wnt/ β -Catenin signaling cascade[J]. Biomolecules, 2020, 10(10): 1406.
- [10] 徐佳佳, 袁家会, 李小妹, 等. 柯里拉京对宫颈癌Hela细胞增殖与凋亡的影响[J]. 黑龙江科学, 2018, 9(12): 1-4.
- [11] 林志灿, 郑溢, 李旒, 等. 不同植物中柯里拉京的含量测定及其对人胃癌细胞的增殖的抑制作用[J]. 厦门大学学报(自然科学版), 2016, 55(6): 847-852.
- [12] FUJIKI H, SUGANUMA M, KURUSU M, *et al.* New TNF- α releasing inhibitors as cancer preventive agents from traditional herbal medicine and combination cancer prevention study with EGCG and sulindac or tamoxifen[J]. Mutation Research, 2003, 523-524: 119-125.
- [13] HONMA A, KOYAMA T, YAZAWA K. Antihyperglycemic effects of Japanese maple *Acer amoenum* leaf extract and its constituent corilagin[J]. Journal of Wood Science, 2010, 56: 507-512.
- [14] OKABE S, SUGANUMA M, IMAYOSHI Y, *et al.* New TNF- α releasing inhibitors, geraniin and corilagin, in leaves of *Acer nikoense*, *Megusurino-ki*[J]. Biological & Pharmaceutical Bulletin, 2001, 24(10): 1145-1148.
- [15] 范适. 不同产地、不同采收期及不同部位叶下珠药材柯里拉京含量的比较研究[J]. 南华大学学报(自然科学版), 2016, 30(3): 98-102.
- [16] 王信, 李彩东, 潘新波, 等. HPLC法同时测定珠子草中没食子酸、短叶苏木酚、柯里拉京、鞣花酸和芦丁的含量[J]. 药物分析杂志, 2018, 38(9): 1641-1645.
- [17] 龙梦林, 曾振中. HPLC法测定蜜柑草中柯里拉京的含量研究[J]. 中医药导报, 2008, 14(3): 75-76.
- [18] 许敏, 陈颖, 段素敏, 等. HPLC法测定3种老鹳草药材中没食子酸和柯里拉京的含量[J]. 中国野生植物资源, 2013, 32(6): 39-41, 44.
- [19] 王如意, 刘纲勇, 梁晓欣, 等. HPLC法同时测定野老鹳草中5种活性成分的含量[J]. 中国药房, 2016, 27(21): 2972-2975.
- [20] FECKA I, CISOWSKI W. Tannins and flavonoids from the *Erodium cicutarium* herb[J]. Zeitschrift für Naturforschung, 2005, 60: 555-560.
- [21] 赵晓雨, 尹海波. RP-HPLC同时测定牻牛儿苗中4种酚酸类活性成分含量[J]. 中国中药杂志, 2011, 36(22): 3137-3140.
- [22] AVULA B, WANG Y H, WANG M, *et al.* Simultaneous determination and characterization of tannins and triterpene saponins from the fruits of various species of *Terminalia* and *Phyllanthus emblica* using a UHPLC-UV-MS method: application to triphala[J]. Planta Medica, 2013, 79: 181-188.
- [23] KINOSHITA S, INOUE Y, NAKAMA S, *et al.* Antioxidant and hepatoprotective actions of medicinal herb, *Terminalia catappa* L. from Okinawa island and its tannin corilagin[J]. Phytomedicine, 2007, 14(11): 755-762.
- [24] 罗兰, 黄慧, 饶雪娥, 等. UPLC测定余甘子产地、采收时间和炮制对其质量关系影响[J]. 海峡药学, 2020, 32(1): 30-34.
- [25] 褚江涛. 三角枫新品种“齐鲁金”的叶色变异机理研究[D]. 山东泰安: 山东农业大学, 2020.
- [26] 杨雨春, 李吉, 付玉杰, 等. 鼠掌老鹳草抗氧化活性成分季节变化研究[J]. 林产化学与工业, 2013, 33(1): 91-96.
- [27] 李克明, 张永文, 陈玉武. 不同采收月份老鹳草生药中柯里拉京的含量比较[J]. 中成药, 2004(10): 47-49.
- [28] 陈存, 丁昌俊, 黄秦军, 等. 美洲黑杨表型核心种质库构建[J]. 林业科学研究, 2021, 34(2): 1-11.
- [29] 吕锋, 解孝满, 韩彪, 等. 麻栎天然群体种子表型变异分析[J]. 林业科学研究, 2021, 34(2): 174-179.

Variation and Seasonal Difference of Corilagin Content in Leaves of *Acer truncatum*, *Acer buergerianum* and *Acer paxii*

SU Ya-jing¹, LU Yi-zeng², QIAO Qian³, SUN Zhong-ku⁴, WU Chong³, YAN Yu⁵,
CHENG Tian-tian⁵, ZHANG Lin⁵, FENG Zhen¹

(1. Shandong Agricultural University, Taian 271018, Shandong, China; 2. Shandong Provincial Center of Forest and Grass Germplasm Resources, Ji'nan 250102, Shandong, China; 3. Shandong Institute of Pomology, Taian 271000, Shandong, China; 4. Tai'an Times Garden Technology Development Co., Ltd, Taian 271000, Shandong, China; 5. Taishan Forestry Science Institute, Taian 271000, Shandong, China)

Abstract: [Objective] To determine the content of corilagin in leaves of *Acer truncatum* Bunge, *A. buergerianum* Miq. and *A. paxii* Franch. [Methods] The ultra-performance liquid chromatography (UPLC) were used. XBridge C₁₈ (4.6 × 150 mm, 3.5 μm) was used as the chromatographic column, and 0.4% formic acid aqueous solution and methanol as the mobile phase with the flow rate of 0.3 mL·min⁻¹, the column temperature of 25 °C, the detection wavelength of 270 nm, and the injection volume of 2 μL. [Results] The leaves of *A. truncatum* Bunge, *A. buergerianum* Miq. and *A. paxii* Franch. contained corilagin. There were significant differences in the content of corilagin among different tree species. The content in *A. buergerianum* Miq. was the highest, followed by *A. paxii* Franch. and *A. truncatum* Bunge. There were also significant differences in the content of corilagin among different varieties. Among the four varieties of *A. truncatum* Bunge, 'Lvbaoshi' reached the highest value of 0.607 9 mg·g⁻¹, the average content in 'Xingwang' among the four cultivars of *A. buergerianum* Miq. was the highest, and 'Qianlihong' had the highest value (6.888 7 mg·g⁻¹) in October, and the highest value in *A. paxii* Franch. 'Lulv' was 2.664 0 mg·g⁻¹. In addition, there was also a big difference in the content of corilagin at different harvest times. The highest values of *A. truncatum* Bunge and *A. paxii* Franch. mostly appeared in May and June, and the best harvesting time of *A. buergerianum* Miq. was in October. [Conclusion] This is the first time for revealing that there is corilagin in the leaves of *A. truncatum* Bunge, *A. buergerianum* Miq. and *A. paxii* Franch., among which *A. buergerianum* Miq. is more suitable as the raw material for extracting corilagin, and *A. truncatum* Bunge and *A. paxii* Franch. can be used as candidate resources.

Keywords: corilagin; *Acer truncatum* Bunge; *Acer buergerianum* Miq.; *Acer paxii* Franch.; UPLC

(责任编辑: 徐玉秀)