การสกัดสารแอนทราควิโนนส์จากรากของต้นยอโดยการใช้คลื่นเหนือเสียงและคลื่นไมโครเวฟ

นายสุรศักดิ์ เหมวิมล

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

วิทยานิพนธ์นี้เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญาวิศวกรรมศาสตรมหาบัณฑิต
สาขาวิชาวิศวกรรมเคมี ภาควิชาวิศวกรรมเคมี
คณะวิศวกรรมศาสตร์ จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
ปีการศึกษา 2547
ISBN 974-53-1917-1
ลิขสิทธิ์ของจุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

I4104877

EXTRACTION OF ANTHRAQUINONES FROM ROOTS OF *MORINDA CITRIFOLIA* USING ULTRASOUND AND MICROWAVE

Mr. Surasak Hemwimon

A Thesis Submitted in Partial Fulfillment of the Requirements
for the Degree of Master of Engineering in Chemical Engineering
Department of Chemical Engineering
Faculty of Engineering
Chulalongkorn University
Academic Year 2004

ISBN 974-53-1917-1

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

Thesis Title	EXTRACTION OF ANTHRAQUINONES FROM ROOTS OF *MORINDA CITRIFOLIA* USING ULTRASOUND AND MICROWAVE
By	Mr. Surasak Hemwimon
Field of Study	Chemical Engineering
Thesis Advisor	Assistant Professor Artiwan Shotipruk, Ph.D.

Accepted by the Faculty of Engineering, Chulalongkorn University in Partial Fulfillment of the Requirements for the Master's Degree

..... Dean of the Faculty of Engineering
(Professor Direk Lavansiri, Ph.D.)

THESIS COMMITTEE

..... Chairman
(Assistant Professor Seeroong Prichanont, Ph.D.)

..... Thesis Advisor
(Assistant Professor Artiwan Shotipruk, Ph.D.)

..... Member
(Associate Professor Prasert Pavasant, Ph.D.)

..... Member
(Associate Professor Suttichai Assabumrungrat, Ph.D.)

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

สุรศักดิ์ เหมวิมล : การสกัดสารแอนทราควิโนนส์จากรากของต้นยอโดยการใช้คลื่นเหนือเสียงและคลื่นไมโครเวฟ. (EXTRACTION OF ANTHRAQUINONES FROM ROOTS OF *MORINDA CITRIFOLIA* USING ULTRASOUND AND MICROWAVE) อ. ที่ปรึกษา: ผศ. ดร. อาทิวรรณ โชติพฤกษ์, 78 หน้า. ISBN 974-53-1917-1.

งานวิจัยนี้เป็นศึกษาเกี่ยวกับการนำคลื่นอัลตราซาวด์และคลื่นไมโครเวฟมาช่วยในการสกัดกลุ่มสารแอนตี้ออกซิแดนต์ที่เรียกว่าแอนทราควินโนนจากรากของต้นยอเนื่องจากวิธีการนี้สามารถเพิ่มประสิทธิภาพในการสกัดได้ดีมากขึ้นกว่าวิธีการดั้งเดิม เช่น การแช่ยุ่ยและวิธีการซอกต์เลต รวมทั้งดูผลกระทบในสภาวะต่างๆ ที่นำมาใช้ในการสกัดที่มาจากอุณหภูมิ พลังงานของคลื่นอัลตราซาวด์ ตัวทำละลายเอทานอลกับน้ำ ชนิดของตัวทำละลาย ซึ่งผลการทดลองพบว่าปริมาณการสกัดสารแอนทราควินโนนโดยการใช้เอทานอลเป็นตัวทำละลายจะเพิ่มขึ้นตามเวลาและอุณหภูมิที่ใช้และเพิ่มขึ้นเมื่อใช้อะซิโตนเป็นตัวทำละลายในการสกัดโดยใช้คลื่นอัลตราซาวด์ ส่วนไมโครเวฟตัวทำละลายเมทานอลจะสกัดได้ดีที่สุด นอกจากนี้ พบว่า ตัวทำละลายเอทานอลกับน้ำ สามารถเพิ่มประสิทธิภาพในการสกัดได้มากขึ้นเนื่องจากตัวรากเกิดการพองตัวขึ้นเนื่องจากน้ำทำให้ตัวทำละลายสามารถเข้าไปสกัดได้ดียิ่งขึ้น โดยที่ปริมาณการสกัดใกล้เคียงกันพบว่าการใช้วิธีการแช่ยุ่ยและวิธีการซอกต์เลต จะใช้เวลาในการสกัดมากกว่าการใช้คลื่นอัลตราซาวด์และคลื่นไมโครเวฟ เมื่อเปรียบเทียบระหว่างการใช้คลื่นอัลตราซาวด์กับคลื่นไมโครเวฟพบว่าการใช้คลื่นไมโครเวฟจะใช้เวลาน้อยกว่าในการสกัด รวมทั้งประสิทธิภาพในการต่อต้านอนุมูลอิสระโดยการใช้คลื่นไมโครเวฟก็จะดีกว่าการใช้คลื่นอัลตราซาวด์และการแช่ยุ่ยด้วย ดังนั้นการใช้คลื่นไมโครเวฟมาช่วยในการสกัดนอกจากจะทำให้ช่วยร่นระยะเวลาในการสกัดแล้ว ยังพบว่าสารที่สกัดได้ยังมีความสามารถในการต่อต้านอนุมูลอิสระที่ดีอีกด้วย

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

ภาควิชา.....วิศวกรรมเคมี..... ลายมือชื่อนิสิต.....สุรศักดิ์ เหมวิมล.....
สาขาวิชา.....วิศวกรรมเคมี..... ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา.....อาทิวรรณ โชติพฤกษ์.....
ปีการศึกษา.....2547.....

4670572821 : MAJOR CHEMICAL ENGINEERING DEPARTMENT
KEY WORD: *MORINDA CITRIFOLIA* / ANTHRAQUINONES / ULTRASOUND / MICROWAVE / ANTIOXIDANT

SURASAK HEMWIMON: EXTRACTION OF ANTHRAQUINONES FROM ROOTS OF *MORINDA CITRIFOLIA* USING ULTRASOUND AND MICROWAVE. THESIS ADVISOR: ASST. ARTIWAN SHOTIPRUK, Ph.D., 78 pp. ISBN 974-53-1917-1.

This study investigated the use of ultrasound and microwave-assisted solvent extraction to improve the extraction efficiency of the classical techniques such as maceration and soxhlet extraction.to extract antioxidant activity compounds, anthaquinones from the root of *Morinda citrifolia*. The effects of different extraction conditions were determined, i.e., temperature of (25, 45, 60 °C), power in the case of ultrasound assisted extraction, ethanol compositions, and types of solvents. The results show yield increase with increasing extraction times and extraction temperatures. The percent recovery of anthraquinones using ultrasound and microwave was found to be highly dependent on the type of solvents (acetone > acetonitrile > methanol > ethanol in ultrasonic extraction and methanol > acetone > acetonitrile > ethanol in microwave extraction). Furthermore, use of ethanol- water solution as extraction solvent increased the yield of anthraquinones due to the swelling of plant tissue matrix by water. To achieve the same recovery as that achieved by ultrasound and microwave assisted extraction, use of soxhlet extraction and maceration require much longer time. Compared with ultrasonic extraction at the same extraction temperature, microwave assisted extraction could achieved the same recovery in half the time required for ultrasound assisted extraction. Other than the quantity, the antioxidant activity of extracts was tested using a DPPH method. It was found that the antioxidant activities of the extracts obtained with microwave assisted extraction and soxhlet extraction were better than those of the extracts obtained with ultrasound assisted extraction and maceration. The results of this study support the use microwave assisted extraction as the most suitable alternative for the improved extraction of *Morinda citrifolia*.

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

Department.....Chemical Engineering.....Student's signature. Surasak Hemwimon
Field of study.....Chemical Engineering.....Advisor's signature. ARTIWAN SHOTIPRUK
Academic year.....2004.....

ACKNOWLEDGMENTS

I would like to express my sincere gratitude to my advisor Assist. Prof. Dr. Artiwan Shotipruk for her encouragement and guidance throughout my work.

Thanks to all my thesis committee, Assist. Prof. Seeroong Prichanont, Assoc. Prof. Prasert Pavasant, Assoc. Prof. Suttichai Assabumrungrat for their kind advice on my work.

My thanks also go to the staff of Analytical Laboratory of Chemical Engineering, Chulalongkorn University, for assistance in analytical work.

Sincere thanks are given to all members of the Biochemical Engineering Research Laboratory and all my friends in the Department of Chemical Engineering for their any assistance and warm collaborations.

Finally, I would like to express the highest gratitude to my parents, everyone in my family, and all of my friends for their help, their unfailing understanding and affectionate encouragements.

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

CONTENTS

Page

ABSTRACT IN THAI iv

ABSTRACT IN ENGLISH v

ACKNOWLEDGEMENTS vi

LIST OF TABLES x

LIST OF FIGURES xi

CHAPTER I Introduction

1.1 Rationale 1

1.2 Objectives 2

1.3 Expected benefits 3

1.4 Working scopes 3

CHAPTER II Backgrounds and Literature Reviews

2.1 *Morinda citrifolia* 4

2.2 Anthraquinones 5

2.3 Mechanism of extraction 6

2.3.1 Solubility 6

2.4 Methods of Extraction

2.4.1 Conventional solvent extraction

2.4.1.1 Maceration in organic solvent 9

2.4.1.2 Soxhlet extraction 9

2.4.2 Accelerated solvent extraction

2.4.2.1 Pressurized solvent extraction 10

2.4.2.2 Ultrasonic extraction 11

2.4.2.3 Microwave extraction 16

Literature reviews 19

CHAPTER III Materials and Methods

3.1 Plant materials 26

3.2 Conventional Extraction 26

LIST OF TABLES

Page

Table 2.1: Properties of alizarin.....6
Table 2.2: Dielectric constant of some common solvent.....18
Table 2.3: Review of previous investigation of ultrasonic extraction of plant materials.....20
Table 2.4: Review of previous work on the environmental and plant materials applications of microwave-assisted extraction.....23
Table 3.1: Parameter condition in experiment..... 28
Table 4.1: Type of solvents properties (at 25 °C).....35
Table 4.2: Percent increase in anthraquinones recovery by ultrasound assisted extraction.....36
Table 4.3: Dielectric constant and dissipation factor of solvents.....42
Table 4.4: Ethanol compositions properties.....44
Table 4.5: Comparison of percent recovery and extraction times for each method.....44

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

3.2.1 Solvent Extraction.....26
3.2.2 Soxhlet Extraction.....26
3.2.3 Ultrasonic Extraction.....27
3.2.4 Microwave Assisted Extraction.....28
3.3 Measurement of anthraquinones concentration.....29
3.4 Antioxidant activity measurement.....29

CHAPTER IV Results and Discussion

4.1 Ultrasound assisted extraction.....31
Effect of ultrasonication and its duration on extraction.....31
Effect of extraction temperature.....32
Effect of type of solvents.....33
Effect of ultrasonic power.....36
Effect of ethanol-water compositions.....36

4.2 Microwave assisted extraction.....38
Effect of extraction times.....38
Effect of extraction temperatures.....39
Effect of type of solvents.....40
Effect of ethanol-water compositions.....42

4.3 Comparison of ultrasound and microwave with classical methods.....44
4.4 Antioxidant activity.....45

CHAPTER V Conclusions and Recommendations

5.1 Conclusions.....47
5.2 Recommendations.....48

REFERENCES.....49
APPENDICES.....53
Appendix A (Data Analysis).....54
Appendix B (Calibration curves).....56

Appendix C (Experimental data)..... 70
VITA.....78

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

LIST OF FIGURES

Page

Figure 2.1: *Morinda citrifolia* plant.....4
Figure 2.2: Basis structures of anthraquinones:.....5
Figure 2.3: Anthraquinones. derivatives.....6
Figure 2.4: Path independence thermodynamic properties.....7
Figure 2.5: Characteristic of ultrasound.....11
Figure 2.6: Cavitation and implosion:.....13
Figure 2.7:Formation of a liquid microjet during bubble collapse near an extended surface:.....14
Figure 2.8: Diagram of ultrasound instruments.....16
Figure 2.9: Resultant polarization and electric field.....17

Figure 3.1: Dried roots and grinded roots of *Morinda citrifolia*.....26
Figure 3.2: Soxhlet apparatus.....27
Figure 3.3: Microwave apparatus (MARS 5).....28
Figure 3.4: Spectrophotometer.....29
Figure 4.1: Effect of ultrasonication and its duration on extraction at 25 °C.....32
Figure 4.2: Effect of extraction temperature for ultrasonic extraction in ethanol at power 15.7 W.....33
Figure 4.3: Effect of type of solvents on maceration and ultrasound extraction at ambient temperature.....33
Figure 4.4: Effect of ultrasonic power at 25 °C for 45 minutes duration.....36
Figure 4.5: Effect of ethanol compositions on extraction efficiency of maceration and ultrasound extraction.....37
Figure 4.6: Effect of extraction times at power 15.7 W of ultrasound.....39
Figure 4.7: Effect of extraction temperature.....40
Figure 4.8: Effect of solvent types on efficiency of microwave extraction at 60 °C at 15 minutes.....41
Figure 4.9: Effect of ethanol compositions on efficiency of microwave extraction at 60 °C at 15 minutes.....42

Figure 4.10: Antioxidant activities of anthraquinones in various methods at maximum conditions.....46

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย