



不同传统香型及产地的上部复烤烟叶中 多酚类成分含量比较分析

谢媛媛¹, 冯燕燕¹, 苏加坤², 罗娟敏², 王义明³, 郭磊², 蔡继宝², 罗国安¹

1 清华大学化学系, 北京 100084;

2 江西中烟工业有限责任公司, 江西南昌 330096;

3 珠海清大弘瑞生物科技有限公司, 广东珠海 519085

摘要: 【目的】明确不同传统香型及不同产地上部复烤烟叶中多酚类成分含量差异。【方法】采用高效液相色谱 (HPLC-DAD)、离子阱多级质谱 (Trap-MSⁿ) 和飞行时间质谱 (TOF-MS) 技术建立烟叶多酚类成分的定性、定量分析方法, 测定了 133 批不同传统香型、不同产地烟叶样本中新绿原酸、绿原酸、隐绿原酸、芦丁等 4 种成分的含量, 并比较它们在不同产地、不同传统香型烟叶中的分布规律。【结果】按照传统香型划分, 清香型烟叶中 4 种多酚类成分总含量 (26.19 ± 4.07 mg/g) > 中间香型 (25.43 ± 3.09 mg/g) > 浓香型 (22.23 ± 3.75 mg/g)。新绿原酸在清香型烟叶中含量 (2.39 ± 0.46 mg/g) > 中间香型 (2.25 ± 0.40 mg/g) > 浓香型 (1.84 ± 0.39 mg/g); 芦丁在清香型烟叶中含量 (8.74 ± 1.41 mg/g) > 中间香型 (8.25 ± 1.52 mg/g) > 浓香型 (5.99 ± 1.40 mg/g)。新绿原酸和芦丁的含量与传统香型关系更为密切。【结论】烟叶种植地的生态环境 (产地) 对烟叶中多酚类成分含量影响较大, 而多酚类成分在烟叶香型的判别中并非决定要素。

关键词: 多酚类; 高效液相色谱; 离子阱多级质谱; 飞行时间质谱; 烤烟香型; 含量测定

引用本文: 谢媛媛, 冯燕燕, 苏加坤, 等. 不同传统香型及产地的上部复烤烟叶中多酚类成分含量比较分析 [J]. 中国烟草学报, 2018, 24 (3)

烟草是重要的经济作物, 人类在吸烟过程中享受卷烟燃吸带来的令人愉悦的香味, 以满足心理、生理需求, 故烟草香味是评价烟叶品质的重要影响因素, 而烟叶的品质最终由化学成分决定^[1]。

我国烟草种植区域辽阔, 生态环境复杂多样, 不同生态区烟叶的香气风格存在较大差异。长期以来, 我国烤烟香型可分为清香型、中间香型和浓香型 3 类^[2]。烟叶对生态环境十分敏感, 产区的生态条件决定和影响烟叶的品质和香型风格, 因此我国烤烟香型风格分布也显示了明显的地域特征。传统清香型烤烟香气清雅飘逸, 烟味较淡, 杂气较轻, 主要分布于云南、四川、福建等省; 传统浓香型烤烟香气浓馥沉溢, 烟味浓厚, 吃味干净, 分布于广东、江西、湖南、河南、安徽、山东等地区; 传统中间香型烟叶介于清香型与浓香型之间, 兼有两者的香味特征, 以

湖南、山东、黑龙江、贵州、陕西、湖北、重庆等地区为代表^[3]。

然而随着烟叶生产、卷烟加工等技术水平的提升, 3 大香型的划分早已无法充分彰显各产区烟叶的特色, 特别是“非浓非清即为中”的简单界定方法, 导致中间香型内涵不清、特征不明。长期以来, 我国主要依靠专业人员通过感官评吸来确立烟叶香型风格, 受人为主观因素影响较大, 缺乏统一的客观标准^[4]。烟草中的化学成分是决定烤烟外观质量、内在质量、物理特性、烟气特性及香型风格的主要内在因素, 因此, 使用现代分析技术, 探讨建立评价烤烟香气或香型风格的量化指标成为烟草科技工作者研究的热点问题之一^[5-9]。2011 年启动的中国烟草总公司特色优质烟叶开发重大专项从生态、感官、化学、代谢 4 个维度对全国烤烟烟叶香型风格进行评价、分析与交叉验

基金项目: 中国烟草总公司重大专项项目, 项目编号: 110201401025 (JH-03)

作者简介: 谢媛媛 (1980—), 高级工程师, 主要从事复杂物质体系分析, Tel: 010-62772264, Email: yuanyuan_sy@tsinghua.edu.cn

通讯作者: 王义明 (1945—), 教授, 主要从事生命分析化学研究 Tel: 0371-63558128, Email: wangyiming1688@163.com

收稿日期: 2017-01-18; **网络出版日期:** 2018-05-22

证, 将全国烤烟烟叶产区划分为 8 大生态区, 相应的把烟叶风格划分为 8 种香型, 突破了传统浓、中、清 3 大香型的传统划分^[10]。

多酚是烟草重要的次生代谢产物和香气物质前体, 以葡萄糖苷和酯的形式存在, 对烟草的生长发育、调制特性、烟叶色泽以及烟气香味和生理强度等方面均起重要作用, 是衡量烟草品质的一个重要因素^[11-14]。烟草中多酚类物质主要有咖啡单宁类(绿原酸)、香豆素类(茛菪亭, 茛菪灵)和黄酮醇类(芸香苷, 山柰酚糖苷)等, 其中绿原酸和芸香苷(即芦丁)是烟叶中主要的多酚类物质, 占烟叶中多酚类物质的 90% 以上^[15-16]。部分烟草多酚化合物的含量还可能与烟草的品质呈正相关关系^[17-20]。

本研究采用 HPLC-Trap/MSⁿ 和 HPLC-TOF/MS 联用技术鉴别解析烟叶中 5 种主要多酚类化合物, 采用 HPLC-UV 法建立了 5 种烟叶多酚类化合物含量测定分析方法, 测定了来源于不同产区、3 种主要传统香型烟叶样本中多酚类化合物的含量。从传统香型划分(清香型、中间香型和浓香型)、《中国烟草种植区划》将中国划分为 5 大烟叶产区(西南产区、东南产区、长江中上游产区、黄淮产区和东北产区)以及 2017 年 6 月发布的《全国烤烟烟叶香型风格区划》将全国烤烟烟叶产区划分为 8 大生态区 3 个角度比较了 4 种多酚类成分的分布情况, 比较它们在不同产地、不同香型烟叶中的分布规律, 为从化学成分维度对全国烤烟烟叶香型风格进行评价、分析提供基础研究数据, 以明晰不同香型区域定位以及化学特征。

1 材料与amp;方法

1.1 供试材料

收集了 2011 年来源于不同产区、不同香型的烟叶样品 133 个: 其中浓香型烟叶 43 个, 产于广东、江西、湖南、河南、安徽、山东 6 个省份; 中间香型烟叶 41 个, 产于湖南、山东、黑龙江、贵州、山西、湖北、重庆 7 个省份; 清香型烟叶 49 个, 分别产于云南、福建、四川和贵州 4 个省份, 所有烟叶样本均为上部叶, 经上海烟草集团有限责任公司技术中心收集, 并统一复烤后制成烟丝, 40℃ 下烘干, 用植物粉碎机粉碎, 过 60 目筛, 用塑料罐密封, 置于低温冰箱(-20℃)中保存, 为避免烟叶中潜香物质因储藏不当而发生化学成分的变化, 并在收样当年即进行样品测定。

1.2 主要仪器与试剂

仪器: 岛津高效液相色谱仪 SIL-20A (包括低压

二元梯度泵, 二极管阵列检测器(DAD), 柱温箱, Chemstation 化学工作站, 日本 SHIMADZU); Agilent 1100 series LC/MSD 液质联用系统(包括 Agilent SL 型多级离子阱质谱仪、低压二元梯度泵、二极管阵列检测器(DAD)、柱温箱、Chemstation 化学工作站); Agilent 1200 series MSD/TOF-MS 质谱仪(包括 Agilent SL 型多级 TOF 质谱仪、低压二元梯度泵、二极管阵列检测器(DAD)、柱温箱、Chemstation 化学工作站); Milli-Q Synthesis 超纯水纯化系统; Mikro 22R 离心机(德国 Hettich 公司); XP205 型电子天平(十万分之一, 瑞士 METTLER TOLEDO)。

试剂: 甲醇(分析纯), 乙腈(J.T.Baker, 色谱纯), 88% 甲酸(北京第二化工厂, 分析纯), 乙酸(J.T.Baker, 色谱纯), MilliQ-超纯水。绿原酸和芦丁购于四川维克奇生物科技有限公司, 纯度大于 98%。

1.3 供试品溶液制备

取 0.3 g 烟叶粉末, 精密称定, 加入 5 mL 50% 甲醇水提取溶剂, 涡旋提取 2 min, 5000 rpm 离心 5 min, 取上清液, 残渣再次加入 5 mL 50% 甲醇水提取溶剂, 涡旋提取 2 min, 5000 rpm 离心 5 min, 取上清液, 合并两次上清液, 定容至 10 mL。

1.4 对照品溶液制备

取绿原酸和芦丁标准品各 25 mg, 加入甲醇溶解并定容, 摇匀, 得到混合对照品储备溶液, 放入 4℃ 冰箱备用。取各储备液适量, 用 50% 甲醇水溶液配置系列混合对照品溶液。

1.5 色谱条件

色谱柱: Phenomenex Luna C₁₈ 柱(250 mm×4.6 mm, 5 μm); 流动相: A-0.3% 甲酸水, B-乙腈; 梯度洗脱: 0~10 min (11%~13%), 10~20 min (13%~28%), 20~30 min (28%~75%), 30~35 min (75%~95%), 35~40 min (95%~11%); 柱温: 30℃; 流速: 1.0 min/mL; 进样量: 10 μL; 检测波长: 325 nm、354 nm。

1.6 质谱条件

Ion trap-MSⁿ: 采用正负离子扫描(±), 分流比为 2: 1; 自动记录 2 级总离子流(TIC)图, 扫描质量范围 50~1000 amu, 干燥气流速 7 L/min, 干燥气温度 350℃, 雾化气压 25 psi。质谱检测设置时间程序, 前 40 min 采集。

TOF-MS: 负离子全扫描, 分流比设为 2: 1; 自动记录三级总离子流图(TIC), 扫描质量范围 50~1500 amu; 干燥气温度 350℃; 干燥气流速 7 L/min; 雾化气压 30 psig; 毛细管电压 3500 V; 碎裂电

压 175 V; Skimmer: 60 V; 八级杆射频电压 250 V。

1.7 系统适用性试验

1.7.1 线性关系考察

取一定量绿原酸和芦丁标准对照品, 精密称定, 并稀释成不同浓度的混合对照品溶液, 以浓度为横坐标, 各浓度点对应的峰面积为纵坐标, 绘制标准曲线。新绿原酸和隐绿原酸为绿原酸的同分异构体, 它们具有相同的紫外吸收, 故本研究中新绿原酸和隐绿原酸的含量采用绿原酸的标准曲线进行计算。

1.7.2 定量限、检测限的测定

采用信噪比法检测绿原酸、芦丁的检测线及定量限。以信噪比为 3:1 时相应浓度确定检测限, 以信噪比为 10:1 时相应浓度确定定量限。

1.7.3 精密度试验

取 2011 年批号为 180 的烟草粉末样品, 制备供试品溶液, 在上述色谱条件下, 连续进样 6 次。计算新绿原酸、绿原酸、隐绿原酸、芦丁和山柰酚-3-O-芸香糖苷的保留时间和峰面积的相对标准偏差 (RSD)。

1.7.4 稳定性试验

取 2011 年批号为 180 的烟草粉末样品, 制备供试品溶液, 分别在 0、2、4、8、12、24 h 进样。计算新绿原酸、绿原酸、隐绿原酸、芦丁和山柰酚-3-O-芸香糖苷的保留时间和峰面积的相对标准偏差 (RSD)。

1.7.5 重复性试验

取 2011 年批号为 180 的烟草粉末样品, 平行制备 6 份供试品溶液, 进样分析。计算新绿原酸、绿原酸、隐绿原酸、芦丁和山柰酚-3-O-芸香糖苷的保留时间和峰面积的相对标准偏差 (RSD)。

1.7.6 加样回收率试验

取 2011 年批号为 180 的烟草粉末样品 0.15g, 6 份, 精密称定, 每份分别加入与样品中各成分含量相近的混合对照品溶液, 按 1.3 项下供试品溶液制备方法制备供

试品溶液, 并根据测定量、加入量和原含量计算回收率。

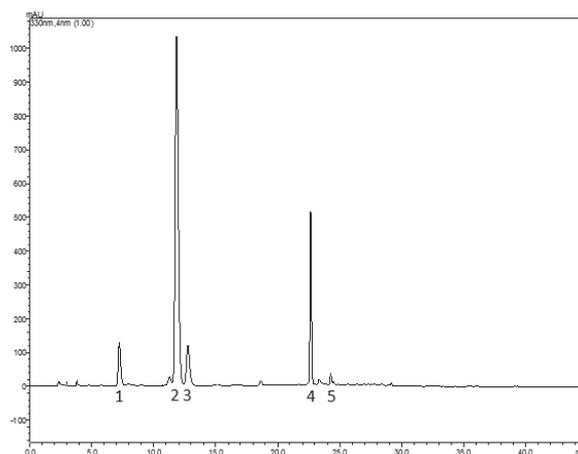
1.7.7 样品测定

取 133 批来源于不同产区、不同香型的烟叶, 采用“1.3”项下供试品溶液制备方法制备供试品溶液, 采用“1.5”项下色谱条件进行测定, 采用外标法计算不同产区、不同香型的烟叶中绿原酸、新绿原酸、隐绿原酸和芦丁的含量。

2 结果与分析

2.1 烟叶质谱定性结果

利用高效液相色谱-离子阱多级质谱碎片分析和飞行时间质谱分析烟叶样本, 结果表明 (图 1) 5 个主要多酚类化合物分别为新绿原酸、绿原酸、隐绿原酸、芦丁、山柰酚-3-O-芸香糖苷。质谱分析结果如表 1 所示。



注: 1. 新绿原酸; 2. 绿原酸; 3. 隐绿原酸; 4. 芦丁; 5. 山柰酚-3-O-芸香糖苷。

Note: 1. neochlorogenic acid; 2. chlorogenic acid; 3. caffeoylquinic acid; 4. rutin; 5. kaempferol-3-O-β-rutinoside.

图 1 烟草 HPLC 指纹图谱 (检测波长: 325nm)

Fig. 1 HPLC/DAD Fingerprint of Tobacco (Wavelength: 325nm)

表 1 烟草香味成分 HPLC-Trap/MSⁿ 解析及 HPLC-TOF/MS 相对分子质量匹配

Tab.1 LC-Trap/MSⁿ analysis of tobacco and TOF/MS matching results of relative molecular mass

峰号	保留时间 / min	化合物	TOF/[M-H]			Trap/[M-H]	
			分子式	相对分子质量 / (m/z)	DBE	MS/ (m/z)	MS ² ~MS ³ / (m/z)
1	7.3	新绿原酸	C ₁₆ H ₁₇ O ₉	353.073	8.5	353.1[M-H]	190.9[M-H-caffeoyl]
						707.4[2M-H]	178.9[caffeic acid-H]
							135[caffeic acid-H-CO ₂]

续表 1

峰号	保留时间 / min	化合物	TOF/[M-H]			Trap/[M-H]	
			分子式	相对分子质量 / (m/z)	DBE	MS/ (m/z)	MS ² ~MS ³ / (m/z)
2	11.7	绿原酸	C ₁₆ H ₁₇ O ₉	353.073	8.5	353.1[M-H] ⁺	191.0[M-H-caffeoyl] ⁺
						707.3[2M-H] ⁺	173.0[191-H ₂ O] ⁺
							127.0[173-CO-H ₂ O] ⁺
3	12.2	隐绿原酸	C ₁₆ H ₁₇ O ₉	353.0945	8.5	353.2[M-H] ⁺	191.0[M-H-caffeoyl] ⁺
						707.3[2M-H] ⁺	178.9[caffeic acid-H] ⁺
							134.9[caffeic acid-H-CO ₂] ⁺
4	21	芦丁	C ₂₇ H ₂₉ O ₁₆	609.1468	2.5	609.4[M-H] ⁺	301[M-C ₂ H ₂ O-C ₆ H ₁₀ O ₃ H] ⁺
5	22.8	山柰酚 -3-O- 芸香糖苷	C ₂₇ H ₃₀ O ₁₅	593.165	13.5	593.4[M-H] ⁺	285.0[M-C ₂ H ₂ O-C ₆ H ₁₀ O ₃ H] ⁺

2.2 系统适用性试验

2.2.1 线性关系考察及定量限和检测限

各指标成分的回归方程、线性范围、相关系数见

表 2。4 种指标成分得到较好的分离, 在线性范围内线性关系良好。绿原酸和芦丁的检测限分别为 0.14、0.14 μg, 定量限分别为: 0.30、0.30 μg。

表 2 线性回归方程

Tab. 2 Result of standard curve method

化合物名称	线性回归方程	线性范围/(mg/mL)	R
绿原酸	$y = 29333936.6271x - 134412.9445$	0.0071-0.7080	0.9999
芦丁	$y = 19353536.8627x - 21681.7425$	0.0055-0.4416	0.9999

2.2.2 精密度试验

在上述色谱条件下, 连续进样 6 次进行精密度试验。新绿原酸、绿原酸、隐绿原酸、芦丁和山柰酚 -3-O- 芸香糖苷的保留时间 RSD 分别为 0.884%、0.494%、0.514%、0.014%、0.015%, 峰面积 RSD 分别为 1.305%、0.575%、0.152%、0.251%、2.49%。各指标成分的保留时间 RSD 在 0.01%~0.8% 之间, 峰面积 RSD 处于 0.15%~3.8% 之间, 表明方法所采用的 HPLC 仪器及整体系统精密度良好。

2.2.3 稳定性试验

取供试品溶液分别在 0、2、4、8、12、24 h 进样分析考察供试品溶液的稳定性。新绿原酸、绿原酸、隐绿原酸、芦丁和山柰酚 -3-O- 芸香糖苷的保留时间 RSD 分别 0.130%、0.108%、0.106%、0.022%、

0.027%, 峰面积 RSD 分别 0.367%、2.014%、0.226%、0.361%、3.668%。各指标成分的保留时间 RSD 在 0.02%~0.13% 之间, 峰面积 RSD 处于 0.2%~3.7% 之间, 表明经制备的样品在常温实验条件下稳定性较好, 24 h 内能保证实验结果的科学可靠。

2.2.4 重复性试验

取 2011 年批号为 180 的烟草粉末样品, 平行制备 6 份供试品溶液, 进样分析。测得新绿原酸、绿原酸、隐绿原酸、芦丁和山柰酚 -3-O- 芸香糖苷保留时间 RSD 分别为 0.106%、0.120%、0.124%、0.024%、0.024%, 峰面积 RSD 分别为 0.931%、1.963%、0.987%、2.423%、1.645%。各指标成分的保留时间 RSD 在 0.02%~0.12% 之间, 峰面积处于 0.9%~2.4% 之间, 表明该方法的重复性较好。

2.2.5 加样回收率试验

加样回收率结果如表 3 所示, 绿原酸和芦丁的加样回收率分别是 97.92% 和 101.63% 之间, 说明方法准确度良好。

2.3 不同香型烤烟多酚类成分含量测定结果

133 批不同产区、不同传统香型的上部烤烟叶中绿原酸、新绿原酸、隐绿原酸和芦丁的含量测定结果如表 4 所示。

表 3 加样回收率结果
Tab. 3 Result of recovery test

化合物	样品含量 /mg	加入量 /mg	测得值 /mg	回收率 /%	平均回收率 /%	RSD/%
绿原酸	2.123	2.110	4.181	97.55	97.92	0.26
	2.123	2.110	4.191	98.02		
	2.123	2.110	4.191	98.03		
	2.123	2.110	4.183	97.66		
	2.123	2.110	4.194	98.17		
	2.123	2.110	4.192	98.08		
芦丁	1.474	1.430	2.968	104.48	101.63	3.46
	1.474	1.430	2.874	97.92		
	1.474	1.430	2.966	104.31		
	1.474	1.430	2.908	100.24		
	1.474	1.430	2.869	97.51		
	1.474	1.430	2.981	105.35		

表 4 不同产区、不同香型的烟叶中绿原酸、新绿原酸、隐绿原酸和芦丁的含量
Tab.4 Contents of 4 polyphenols determined in tobacco samples of different flavor

样品编号	批号	产地	传统香型	生态区	新绿原酸	绿原酸	隐绿原酸	芦丁	总含量	
1	T2011FYNA001	云南	昆明宜良	清	西南高原 - 清甜香	2.40	11.98	2.86	9.12	26.35
2	T2011FYNA002	云南	昆明宜良	清	西南高原 - 清甜香	2.60	11.00	2.71	10.22	26.53
3	T2011FYNA003	云南	昆明宜良	清	西南高原 - 清甜香	1.54	10.63	1.89	7.95	22.02
4	T2011FYNA004	云南	昆明宜良	清	西南高原 - 清甜香	2.31	17.29	2.61	8.73	30.94
5	T2011FYNA005	云南	昆明宜良	清	西南高原 - 清甜香	2.39	11.52	2.91	9.42	26.24
6	T2011FYNA006	云南	玉溪江川	清	西南高原 - 清甜香	2.57	14.15	3.24	11.16	31.12
7	T2011FYNA007	云南	玉溪江川	清	西南高原 - 清甜香	1.55	8.01	1.86	7.74	19.16
8	T2011FYNA008	云南	玉溪江川	清	西南高原 - 清甜香	2.26	12.03	2.71	7.96	24.96
9	T2011FYNA009	云南	玉溪江川	清	西南高原 - 清甜香	2.19	13.75	2.84	9.35	28.13
10	T2011FYNA010	云南	玉溪江川	清	西南高原 - 清甜香	1.65	11.44	2.01	7.82	22.92

续表 4

样品 编号	批号	产地	传统 香型	生态区	新绿原酸	绿原酸	隐绿原酸	芦丁	总含量	
11	T2011FYNA011	云南	曲靖师宗	清	西南高原 - 清甜香	2.09	12.50	2.41	10.53	27.53
12	T2011FYNA012	云南	曲靖师宗	清	西南高原 - 清甜香	2.45	11.64	2.95	8.06	25.10
13	T2011FYNA013	云南	曲靖师宗	清	西南高原 - 清甜香	2.43	11.40	2.90	9.02	25.75
14	T2011FYNA014	云南	曲靖师宗	清	西南高原 - 清甜香	2.28	12.98	2.62	11.02	28.90
15	T2011FYNA015	云南	曲靖师宗	清	西南高原 - 清甜香	2.18	11.22	2.66	8.76	24.82
16	T2011FYNA016	云南	红河建水	清	西南高原 - 清甜香	3.17	16.76	3.47	9.35	32.75
17	T2011FYNA017	云南	红河建水	清	西南高原 - 清甜香	2.12	10.24	2.43	8.47	23.25
18	T2011FYNA018	云南	红河建水	清	西南高原 - 清甜香	2.20	14.15	2.37	11.30	30.02
19	T2011FYNA019	云南	红河建水	清	西南高原 - 清甜香	2.04	9.79	2.03	8.65	22.51
20	T2011FYNA020	云南	普洱宁洱	清	西南高原 - 清甜香	2.55	11.46	2.36	8.41	24.78
21	T2011FYNA021	云南	普洱宁洱	清	西南高原 - 清甜香	2.38	9.36	2.13	7.97	21.84
22	T2011FYNA022	云南	普洱宁洱	清	西南高原 - 清甜香	3.14	15.26	3.02	10.49	31.91
23	T2011FYNA023	云南	普洱宁洱	清	西南高原 - 清甜香	2.60	11.97	2.33	6.70	23.60
24	T2011FYNA024	云南	普洱宁洱	清	西南高原 - 清甜香	2.41	9.89	2.16	8.79	23.25
25	T2011FYNA025	云南	大理祥云	清	西南高原 - 清甜香	2.22	9.10	2.40	8.73	22.45
26	T2011FYNA026	云南	大理祥云	清	西南高原 - 清甜香	3.18	17.67	3.49	8.81	33.14
27	T2011FYNA027	云南	大理祥云	清	西南高原 - 清甜香	2.01	9.52	2.14	8.42	22.10
28	T2011FYNA028	云南	大理祥云	清	西南高原 - 清甜香	1.74	10.06	1.87	10.01	23.69
29	T2011FYNA029	云南	大理祥云	清	西南高原 - 清甜香	1.78	9.19	1.80	7.94	20.71
30	T2011FFJA001	福建	龙岩永定	清	武夷丘陵 - 清甜蜜甜香	2.13	11.61	2.18	6.80	22.72
31	T2011FFJA002	福建	龙岩永定	清	武夷丘陵 - 清甜蜜甜香	2.36	12.08	2.56	5.38	22.38
32	T2011FFJA003	福建	龙岩永定	清	武夷丘陵 - 清甜蜜甜香	2.28	10.19	2.27	6.26	21.00
33	T2011FFJA004	福建	龙岩永定	清	武夷丘陵 - 清甜蜜甜香	2.62	11.85	2.83	7.04	24.34
34	T2011FFJA005	福建	龙岩永定	清	武夷丘陵 - 清甜蜜甜香	2.32	9.78	2.09	6.52	20.70
35	T2011FFJA006	福建	三明宁化	清	武夷丘陵 - 清甜蜜甜香	3.70	15.77	3.47	6.32	29.26
36	T2011FFJA007	福建	三明宁化	清	武夷丘陵 - 清甜蜜甜香	3.01	18.64	3.45	7.41	32.50
37	T2011FFJA008	福建	三明宁化	清	武夷丘陵 - 清甜蜜甜香	3.06	18.99	3.48	7.09	32.62
38	T2011FFJA009	福建	三明宁化	清	武夷丘陵 - 清甜蜜甜香	3.48	21.88	4.11	8.26	37.73

续表 4

样品 编号	批号	产地	传统 香型	生态区	新绿原酸	绿原酸	隐绿原酸	芦丁	总含量	
39	T2011FFJA010	福建	三明宁化	清	武夷丘陵 - 清甜蜜甜香	3.19	19.88	3.59	7.33	33.99
40	T2011MGZA001	贵州	黔西南兴仁	清	西南高原 - 清甜香	2.31	12.36	2.78	9.62	27.08
41	T2011MGZA002	贵州	黔西南兴仁	清	西南高原 - 清甜香	2.38	12.18	2.90	9.41	26.86
42	T2011MGZA003	贵州	黔西南兴仁	清	西南高原 - 清甜香	2.30	11.73	2.75	9.81	26.59
43	T2011MGZA004	贵州	黔西南兴仁	清	西南高原 - 清甜香	2.26	12.30	2.79	10.47	27.82
44	T2011MGZA005	贵州	黔西南兴仁	清	西南高原 - 清甜香	2.36	12.61	2.83	9.93	27.73
45	T2011FSCA001	四川	凉山会理	清	西南高原 - 清甜香	2.12	10.35	2.19	9.61	24.27
46	T2011FSCA002	四川	凉山会理	清	西南高原 - 清甜香	2.26	10.05	2.34	9.52	24.17
47	T2011FSCA003	四川	凉山会理	清	西南高原 - 清甜香	2.15	10.82	2.19	9.76	24.92
48	T2011FSCA004	四川	凉山会理	清	西南高原 - 清甜香	2.27	10.00	2.23	9.96	24.46
49	T2011FSCA005	四川	凉山会理	清	西南高原 - 清甜香	2.31	10.59	2.23	10.79	25.92
50	T2011SHNA001	河南	许昌襄县	浓	黄淮平原 - 焦甜焦香	2.46	16.1	3.299	6.619	28.48
51	T2011SHNA002	河南	许昌襄县	浓	黄淮平原 - 焦甜焦香	1.53	19.02	1.917	9.998	32.47
52	T2011SHNA003	河南	许昌襄县	浓	黄淮平原 - 焦甜焦香	1.63	16.49	2.198	6.593	26.91
53	T2011SHNA004	河南	许昌襄县	浓	黄淮平原 - 焦甜焦香	1.68	17.38	2.322	7.309	28.69
54	T2011SHNA005	河南	许昌襄县	浓	黄淮平原 - 焦甜焦香	1.63	16	1.996	7.85	27.48
55	T2011SHNA006	河南	南阳内乡	浓	黄淮平原 - 焦甜焦香	1.63	11.42	2.001	4.984	20.03
56	T2011SHNA007	河南	南阳内乡	浓	黄淮平原 - 焦甜焦香	1.75	11.39	1.882	5.036	20.06
57	T2011SHNA008	河南	南阳内乡	浓	黄淮平原 - 焦甜焦香	1.37	7.09	1.743	4.218	14.42
58	T2011SHNA009	河南	南阳内乡	浓	黄淮平原 - 焦甜焦香	1.59	9.07	2.028	4.375	17.07
59	T2011SHNA010	河南	南阳内乡	浓	黄淮平原 - 焦甜焦香	1.65	10.74	2.001	5.161	19.55
60	T2011SHNA011	河南	驻马店确山	浓	黄淮平原 - 焦甜焦香	1.86	12.31	2.212	4.753	21.13
61	T2011SHNA012	河南	驻马店确山	浓	黄淮平原 - 焦甜焦香	1.66	13.21	2.042	5.627	22.54
62	T2011SHNA013	河南	驻马店确山	浓	黄淮平原 - 焦甜焦香	1.59	12.92	1.887	5.713	22.11
63	T2011SHNA014	河南	驻马店确山	浓	黄淮平原 - 焦甜焦香	1.71	12.44	2	5.825	21.98
64	T2011SHNA015	河南	驻马店确山	浓	黄淮平原 - 焦甜焦香	1.74	12.07	2.071	4.761	20.64
65	T2011SGDA001	广东	韶关南雄	浓	南岭丘陵 - 焦甜醇甜香	2.21	11.28	2.748	4.58	20.82
66	T2011SGDA002	广东	韶关南雄	浓	南岭丘陵 - 焦甜醇甜香	2.24	11.81	2.726	5.077	21.86

续表 4

样品 编号	批号	产地	传统 香型	生态区	新绿原酸	绿原酸	隐绿原酸	芦丁	总含量	
67	T2011SGDA003	广东	韶关南雄	浓	南岭丘陵 - 焦甜醇甜香	2.21	11.21	2.65	5.051	21.12
68	T2011SGDA004	广东	韶关南雄	浓	南岭丘陵 - 焦甜醇甜香	2.4	12	2.884	5.613	22.89
69	T2011SGDA005	广东	韶关南雄	浓	南岭丘陵 - 焦甜醇甜香	2.35	11.8	2.874	5.235	22.25
70	T2011SAHA001	安徽	皖南宣州	浓	南岭丘陵 - 焦甜醇甜香	1.65	11.57	1.714	7.303	22.23
71	T2011SAHA002	安徽	皖南宣州	浓	南岭丘陵 - 焦甜醇甜香	1.6	10.64	1.672	5.984	19.89
72	T2011SAHA003	安徽	皖南宣州	浓	南岭丘陵 - 焦甜醇甜香	1.94	14.99	2.006	6.275	25.21
73	T2011SAHA004	安徽	皖南宣州	浓	南岭丘陵 - 焦甜醇甜香	1.8	8.85	1.458	5.39	17.5
74	T2011SAHA005	安徽	皖南宣州	浓	南岭丘陵 - 焦甜醇甜香	2.03	13.38	2.125	6.016	23.56
75	T2011SHNA016	湖南	郴州桂阳	浓	南岭丘陵 - 焦甜醇甜香	1.82	8.92	2.052	5.686	18.48
76	T2011SHNA017	湖南	郴州桂阳	浓	南岭丘陵 - 焦甜醇甜香	1.98	11.06	2.264	8.131	23.43
77	T2011SHNA018	湖南	郴州桂阳	浓	南岭丘陵 - 焦甜醇甜香	2.19	12.89	2.699	7.115	24.9
78	T2011SHNA019	湖南	郴州桂阳	浓	南岭丘陵 - 焦甜醇甜香	2.35	13.65	2.809	7.173	25.98
79	T2011SHNA020	湖南	永州江华	浓	南岭丘陵 - 焦甜醇甜香	2.09	12.7	2.539	8.064	25.39
80	T2011SHNA021	湖南	永州江华	浓	南岭丘陵 - 焦甜醇甜香	1.82	12.11	2.222	7.63	23.78
81	T2011SHNA022	湖南	永州江华	浓	南岭丘陵 - 焦甜醇甜香	2.03	12.11	2.424	8.19	24.75
82	T2011SHNA023	湖南	永州江华	浓	南岭丘陵 - 焦甜醇甜香	2	12.54	2.398	8.688	25.63
83	T2011SJXA001	江西	赣州信丰	浓	南岭丘陵 - 焦甜醇甜香	1.76	9.59	2.128	6.011	19.49
84	T2011SJXA002	江西	赣州信丰	浓	南岭丘陵 - 焦甜醇甜香	2.29	11.8	2.83	6.62	23.54
85	T2011SJXA003	江西	赣州信丰	浓	南岭丘陵 - 焦甜醇甜香	2.76	13.86	3.157	5.432	25.21
86	T2011SJXA004	江西	赣州信丰	浓	南岭丘陵 - 焦甜醇甜香	2.19	12.14	2.651	4.418	21.4
87	T2011SSDA001	山东	潍坊诸城	浓	沂蒙丘陵 - 蜜甜焦香	1.56	12.53	1.886	5.111	21.09
88	T2011SSDA002	山东	潍坊诸城	浓	沂蒙丘陵 - 蜜甜焦香	1.27	11	1.456	4.82	18.55
89	T2011SSDA003	山东	潍坊诸城	浓	沂蒙丘陵 - 蜜甜焦香	1	8.87	1.197	3.62	14.69
90	T2011SSDA004	山东	潍坊诸城	浓	沂蒙丘陵 - 蜜甜焦香	1.32	10.89	1.601	4.898	18.71
91	T2011SSDA005	山东	潍坊诸城	浓	沂蒙丘陵 - 蜜甜焦香	0.81	10.83	1.126	4.872	17.64
92	T2011MSXA001	陕西	商洛洛南	中	黄淮平原 - 焦甜焦香	1.84	9.14	2.269	6.537	19.79
93	T2011MSXA002	陕西	商洛洛南	中	黄淮平原 - 焦甜焦香	2.06	10.86	2.67	7.77	23.36
94	T2011MSXA003	陕西	商洛洛南	中	黄淮平原 - 焦甜焦香	2.11	10.29	2.541	7.698	22.64

续表 4

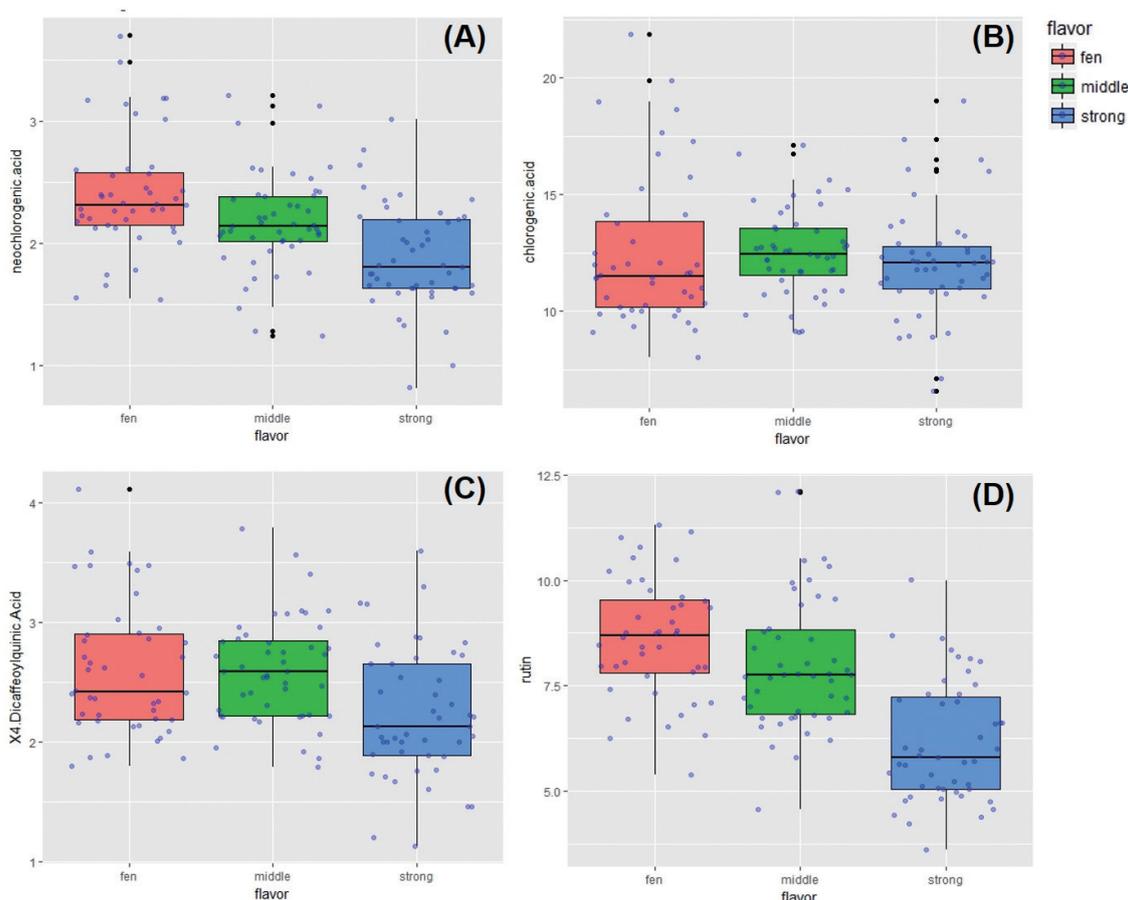
样品 编号	批号	产地	传统 香型	生态区	新绿原酸	绿原酸	隐绿原酸	芦丁	总含量
95	T2011MSXA004	陕西 商洛洛南	中	黄淮平原 - 焦甜焦香	1.73	10.81	2.218	7.626	22.39
96	T2011MSXA005	陕西 商洛洛南	中	黄淮平原 - 焦甜焦香	2.17	12.16	2.524	8.629	25.48
97	T2011MGZA010	贵州 遵义	中	黔桂山地 - 蜜甜香	2.02	12.69	2.47	6.864	24.044
98	T2011MGZA011	贵州 遵义	中	黔桂山地 - 蜜甜香	2.21	12.45	2.592	7.381	24.63
99	T2011MGZA012	贵州 遵义	中	黔桂山地 - 蜜甜香	2.15	11.81	2.536	7.219	23.72
100	T2011MGZA013	贵州 遵义	中	黔桂山地 - 蜜甜香	1.97	11.71	2.401	6.787	22.87
101	T2011MGZA014	贵州 遵义	中	黔桂山地 - 蜜甜香	2.43	12.58	2.749	6.745	24.51
102	T2011MGZA015	贵州 黔南贵定	中	黔桂山地 - 蜜甜香	2.09	10.58	2.487	8.613	23.77
103	T2011MGZA016	贵州 黔南贵定	中	黔桂山地 - 蜜甜香	2.02	9.14	2.064	8.793	22.01
104	T2011MGZA017	贵州 黔南贵定	中	黔桂山地 - 蜜甜香	2.09	9.11	2.213	8.643	22.05
105	T2011MGZA018	贵州 黔南贵定	中	黔桂山地 - 蜜甜香	1.88	10.69	2.206	8.846	23.63
106	T2011MGZA019	贵州 黔南贵定	中	黔桂山地 - 蜜甜香	2.17	12.22	2.721	7.768	24.88
107	T2011MGZA006	贵州 铜仁德江	中	黔桂山地 - 蜜甜香	2.24	12.69	2.86	7.767	25.56
108	T2011MGZA007	贵州 铜仁德江	中	黔桂山地 - 蜜甜香	2.14	12.38	2.562	7.215	24.29
109	T2011MGZA008	贵州 铜仁德江	中	黔桂山地 - 蜜甜香	2.15	13.6	2.838	8.097	26.69
110	T2011MGZA009	贵州 铜仁德江	中	黔桂山地 - 蜜甜香	2.10	11.77	2.631	7.26	23.76
111	T2011MHBA001	湖北 恩施咸丰	中	武陵秦巴 - 醇甜香	1.76	9.86	1.953	6.737	20.31
112	T2011MHBA002	湖北 恩施咸丰	中	武陵秦巴 - 醇甜香	1.93	11.33	2.166	7.719	23.15
113	T2011MHBA003	湖北 恩施咸丰	中	武陵秦巴 - 醇甜香	2.07	11.76	2.217	7.861	23.91
114	T2011MCQA001	重庆 彭水	中	武陵秦巴 - 醇甜香	2.04	12.82	2.215	8.389	25.47
115	T2011MCQA002	重庆 彭水	中	武陵秦巴 - 醇甜香	2.09	12.75	2.307	7.75	24.9
116	T2011MCQA003	重庆 彭水	中	武陵秦巴 - 醇甜香	2.12	11.7	2.408	8.016	24.25
117	T2011MCQA004	重庆 巫山	中	武陵秦巴 - 醇甜香	2.42	12.8	2.961	7.01	25.19
118	T2011MCQA005	重庆 巫山	中	武陵秦巴 - 醇甜香	3.21	13	3.556	12.1	31.87
119	T2011MCQA006	重庆 巫山	中	武陵秦巴 - 醇甜香	2.38	14.77	3.09	9.557	29.8
120	T2011MCQA007	重庆 巫山	中	武陵秦巴 - 醇甜香	2.57	15.23	3.073	12.094	32.96
121	T2011MCQA008	重庆 巫山	中	武陵秦巴 - 醇甜香	2.62	12.72	2.965	10.514	28.81

续表 4

样品编号	批号	产地	传统香型	生态区	新绿原酸	绿原酸	隐绿原酸	芦丁	总含量	
122	T2011MHNA001	湖南	张家界桑植	中	武陵秦巴 - 醇甜香	2.6	13.74	3.095	6.375	25.81
123	T2011MHNA002	湖南	张家界桑植	中	武陵秦巴 - 醇甜香	2.53	14.49	3.069	6.741	26.83
124	T2011MHNA003	湖南	张家界桑植	中	武陵秦巴 - 醇甜香	2.62	13.51	3.081	6.732	25.94
125	T2011MHNA004	湖南	张家界桑植	中	武陵秦巴 - 醇甜香	3.12	14.6	3.789	7.995	29.5
126	T2011MSDA001	山东	临沂蒙阴	中	沂蒙丘陵 - 蜜甜焦香	2.01	13.44	2.445	4.574	22.47
127	T2011MSDA002	山东	临沂蒙阴	中	沂蒙丘陵 - 蜜甜焦香	2.40	17.11	2.731	6.894	29.13
128	T2011MSDA003	山东	临沂蒙阴	中	沂蒙丘陵 - 蜜甜焦香	2.21	16.74	2.589	5.79	27.33
130	T2011MLJA001	黑龙江	牡丹江宁安	中	东北平原 - 木香蜜甜香	1.62	14.24	1.917	10.011	27.79
131	T2011MLJA002	黑龙江	牡丹江宁安	中	东北平原 - 木香蜜甜香	1.24	10.86	1.786	6.591	20.48
132	T2011MLJA003	黑龙江	牡丹江宁安	中	东北平原 - 木香蜜甜香	1.47	15.63	2.221	7.689	27.01
133	T2011MLJA004	黑龙江	牡丹江宁安	中	东北平原 - 木香蜜甜香	1.28	9.75	1.857	6.05	18.94
134	T2011MLJA005	黑龙江	牡丹江宁安	中	东北平原 - 木香蜜甜香	1.71	14.99	2.188	10.316	29.21
清香型					2.39±0.46	12.44±3.07	2.62±0.53	8.74±1.41	26.19±4.07	
中间香型					2.25±0.40	12.36±1.96	2.57±0.44	8.25±1.52	25.43±3.09	
浓香型					1.84±0.39	12.21±2.36	2.19±0.50	5.99±1.40	22.23±3.75	
西南高原 - 清甜香					2.29±0.37	11.77±2.21	2.52±0.43	9.23±1.08	25.80±3.32	
黔桂山地 - 蜜甜香					2.12±0.13	11.67±1.34	2.52±0.24	7.71±0.76	24.03±1.26	
武陵秦巴 - 醇甜香					2.41±0.41	13.01±1.46	2.80±0.55	8.37±1.87	26.58±3.41	
黄淮平原 - 焦甜焦香					1.77±0.25	12.55±3.05	2.19±0.35	6.35±1.57	22.86±4.31	
南岭丘陵 - 焦甜醇甜香					2.08±0.31	11.86±2.36	2.41±0.42	6.35±1.40	22.70±3.41	
武夷丘陵 - 清甜蜜甜香					2.82±0.55	15.07±4.49	3.00±0.71	6.84±0.78	27.72±6.22	
沂蒙丘陵 - 蜜甜焦香型					1.57±0.58	12.68±2.94	1.88±0.64	5.07±0.95	21.20±4.93	
东北平原 - 木香蜜甜香					1.46±0.21	13.09±2.62	1.99±0.20	8.13±1.95	24.69±4.64	

不同传统香型烟叶中 4 种多酚类成分含量的比较结果如图 2 所示。结果表明, 清香型烟叶中 4 种多酚类成分总含量 ($26.19 \pm 4.07 \text{ mg/g}$) > 中间香型 ($25.43 \pm 3.09 \text{ mg/g}$) > 浓香型 ($22.23 \pm 3.75 \text{ mg/g}$)。新绿原酸在清香型烟叶中含量 ($2.39 \pm 0.46 \text{ mg/g}$) > 中间香型 ($2.25 \pm 0.40 \text{ mg/g}$) > 浓香型 ($1.84 \pm 0.39 \text{ mg/g}$); 芦丁在清香型烟叶中含量 ($8.74 \pm 1.41 \text{ mg/g}$) > 中间香型 ($8.25 \pm 1.52 \text{ mg/g}$) > 浓香型 ($5.99 \pm 1.40 \text{ mg/g}$)。新绿原酸和芦丁

含量在不同香型的烟叶样本中具有显著性差异, 而绿原酸和隐绿原酸在不同香型烟叶中平均含量差异不具有统计学意义。以上研究结果提示新绿原酸和芦丁的含量与香型关系更为密切。而同一香型样品中 4 种主要多酚类成分含量差异较大, 推测与同一香型烟叶样品基因型不同, 来源产地不同, 土壤和气候条件等因素可影响烟叶中多酚类成分含量有关^[19-20]。



注: (A) 新绿原酸; (B) 绿原酸; (C) 隐绿原酸; (D) 芦丁。

Note: (A)neochlorogenic acid; (B) chlorogenic acid; (C) 4-caffeoylquinic acid; (D) rutin.

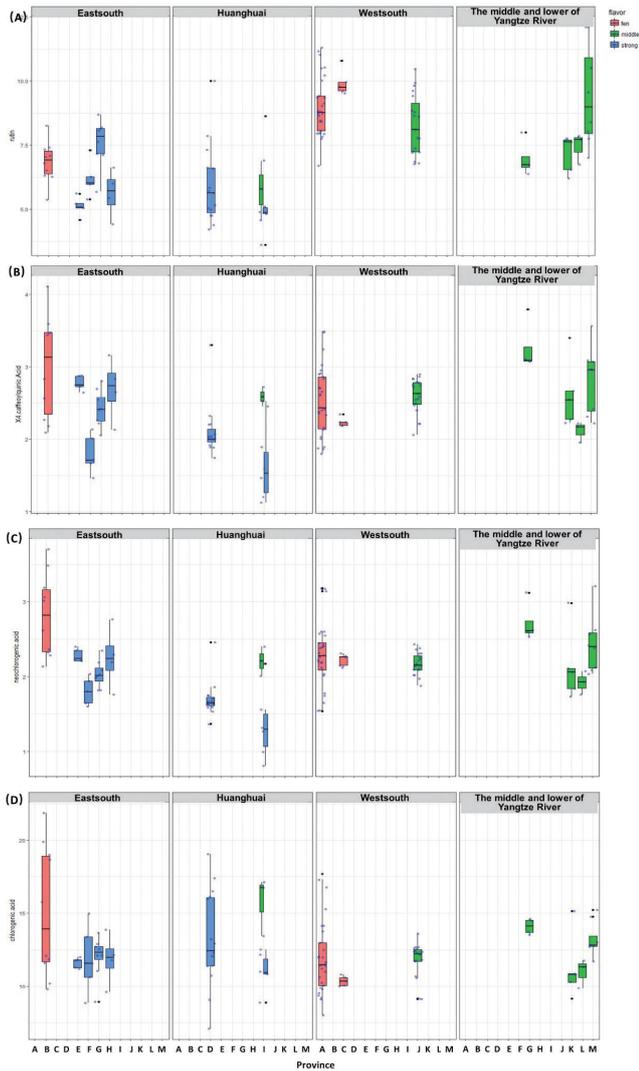
图 2 4 种多酚类成分在不同香型烟叶药材中含量比较

Fig. 2 Comparison of 4 polyphenols determined in tobacco samples of different flavor

参考《中国烟草种植区划》，将中国划分为 5 大烟叶产区，其中西南产区包括云南、贵州和四川；东南产区包括湖南郴州和永州、广东韶关、福建、安徽和江西；长江中上游产区包括湖北、重庆、湖南张家界和陕西；黄淮产区包括河南和山东；东北产区包括黑龙江。本研究比较了 4 种多酚类成分在不同烟叶产区的分布规律，结果如图 3 所示。其中长江中上游产区的烟叶总多酚含量最高 (25.73 ± 3.55 mg/g)，西南产区烟叶次之 (25.73 ± 3.01 mg/g)，黄淮产区烟叶中总多酚含量最低 (22.44 ± 4.81 mg/g)。新绿原酸、隐绿原酸和芦丁的含量在不同烟叶产区的烟叶样本中差异较为显著，相对标准偏差分别为 20.25%，14.31% 和 17.13%，而绿原酸含量在 11.74 ± 2.01 mg/g (西南产区) ~ 13.09 ± 2.22 mg/g (东北产区) 之间，在 5 个产区之间的含量变化相对标准偏差为 4.28%，并不显著。

中国烟草总公司于 2017 年 6 月发布了《全国烤烟烟叶香型风格区划》^[10]，从生态、感官、化学、代谢 4 个维度对全国烤烟烟叶香型风格进行评价、分析与交叉验证，将全国烤烟烟叶产区划分为 8 大生态区，包括西南高原生态区 - 清甜香型，黔桂山地生态区 - 蜜甜香型，武陵秦巴生态区 - 醇甜香型，黄淮平原生态区 - 焦甜焦香型，南岭丘陵生态区 - 焦甜醇甜香型，武夷丘陵生态区 - 清甜蜜甜香型，沂蒙丘陵生态区 - 蜜甜焦香型，东北平原生态区 - 木香蜜甜香型。图 4 所示为 4 种多酚类成分按照《全国烤烟烟叶香型风格区划》不同香型风格区划烟叶样品中的分布情况进行统计分析。绿原酸是烟叶中含量最高的多酚类成分，其在不同香型风格区划的烟叶中含量在 11.67 ± 1.34 ~ 15.07 ± 4.49 mg/g 之间，含量变化差异不大 (相对标准偏差 RSD 为 8.67%)。其中武夷丘陵生态区 - 清甜蜜甜香型烟叶中总多酚含量最高

(27.72 ± 6.22 mg/g)，沂蒙丘陵生态区 - 蜜甜焦香型烟叶中总多酚含量最低 (21.20 ± 4.93 mg/g)。其中，绿原酸 (15.07 ± 4.49 mg/g)、新绿原酸 (2.82 ± 0.55 mg/g) 和隐绿原酸 (3.00 ± 0.71 mg/g) 等 3 个咖啡酰基奎宁酸类成分的含量在武夷丘陵生态区 - 清甜蜜甜香型烟叶中最高，黄酮类化合物芦丁 (9.23 ± 1.08 mg/g) 在西南高原生态区 - 清甜香型烟叶中含量最高。

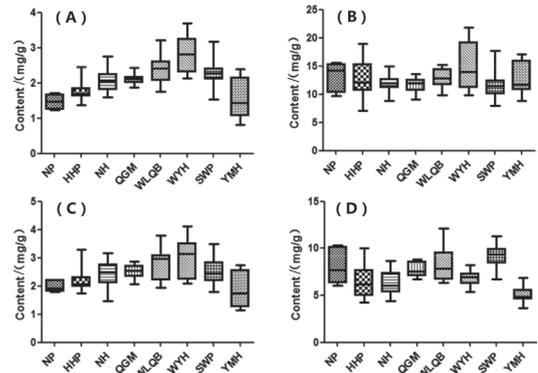


注: (A) 芦丁; (B) 隐绿原酸; (C) 新绿原酸; (D) 绿原酸; Eastsouth, 东南产区; Huanghuai, 黄淮产区; Westsouth, 西南产区; The middle and lower of Yangtze River, 长江中上游产区; A. 云南; B. 福建; C. 四川; D. 河南; E. 广东; F. 安徽; G. 湖南; H. 江西; I. 山东; J. 贵州; K. 陕西; L. 湖北; M. 重庆。

Note: (A) rutin; (B) 4-caffeoylquinic acid; (C) neochlorogenic acid; (D) chlorogenic acid; A.Yunnan; B.Fujian; C.Sichuan; D.Henan; E.Guangdong; F.Anhui; G.Hunan; H.Jiangxi; I.Shandong; J.Guizhou; K.Shanxi; L.Hubei; M.Chongqing.

图 3 不同产区烟叶样本中 4 种多酚类成分含量比较

Fig.3 Comparison of 4 polyphenols determined in tobacco samples of different product region



注: (A) 新绿原酸; (B) 绿原酸; (C) 隐绿原酸; (D) 芦丁。SWP: 西南高原生态区; QGM: 黔桂山地生态区; WLQB: 武陵秦巴生态区; HHP: 黄淮平原生态区; NH: 南岭丘陵生态区; WYH: 武夷丘陵生态区; YMH: 沂蒙丘陵生态区; NP: 东北平原生态区。

Note: (A)neochlorogenic acid; (B) chlorogenic acid; (C) 4-caffeoylquinic acid; (D) rutin. SWP: South-west plateau ecological region; QGM: Qian-gui mountain ecological region; WLQB: Wuling-Qinba ecological region; HHP: Huang-huan plain ecological region; NH: Nanling hill ecological region; WYH: Wuyi hill ecological region; YMH: Yiming hill ecological region; NP: North-east ecological region.

图 4 4 种多酚类成分在不同香型风格区划烟叶药材中含量比较

Fig.4 Comparison of 4 polyphenols determined in tobacco samples of different flavor and regionalization

3 讨论

烟叶成熟期气温和成熟期日照时数是影响烟叶清香型风格形成的关键气象因子^[21]。清香型烟叶主要产于西南产区的云南和四川，以及东南产区的福建省。云南和四川清香型烟叶产区移栽期气温较高，成熟期气温较低，全生育期气温变化幅度较小；在烟叶移栽期至团棵期的日照时数较高，累计达 400 h 以上；降雨量集中在旺长至成熟前期；而福建清香型产区在温光水的匹配协调上具有气候独特性：烟叶全生育期热量偏低，日照时数偏低，气温直线上升，降雨集中在成熟中期。而从不同烟叶光合同化能力比较来看，清香型烟叶具有“高光合、低呼吸、高积累”的碳代谢特征^[22-25]。四川和云南产的清香型烟叶中光合作用主要代谢物黄酮苷类成分（芦丁）的含量显著高于福建产烟叶，与西南产区光照时间较长，光照强度大等密切相关；福建产清香型烟叶中绿原酸、新绿原酸和隐绿原酸等咖啡酰基奎宁酸类成分的含量则显著高于西南产区。湖南郴州和永州是浓香型烟叶的主要产地（东南产区），而湖南张家界属长江中上游中间香型烟叶的主要产地；湖南郴州和永州与张家界产烟叶样本中多酚类成分含量显著不同。其中郴州和永

州产的浓香型烟叶中绿原酸 (2.26 ± 0.29 mg/g)、新绿原酸 (12.69 ± 1.57 mg/g) 和隐绿原酸 (2.70 ± 0.49 mg/g) 等咖啡酰基奎宁酸类成分的含量则显著低于张家界的中间香型烟叶 (绿原酸、新绿原酸和隐绿原酸的含量分别为 2.72 ± 0.27 mg/g, 14.08 ± 0.54 mg/g 和 3.26 ± 0.35 mg/g); 而郴州产浓香型烟叶芦丁含量 (7.38 ± 0.89 mg/g) 则略高于张家界的中间香型烟叶 (6.91 ± 0.71 mg/g)。贵州是中间香型烟叶的典型产区, 其气候条件、光照时间、海拔高度和降雨水平与云南 (清香型烟叶主产区) 较为相近。比较贵州和云南两地的烟叶中多酚类成分含量, 结果表明, 云南产清香型烟叶中四种酚酸类成分含量 (新绿原酸 2.29 ± 0.42 mg/g, 绿原酸 11.93 ± 2.49 mg/g, 隐绿原酸 2.52 ± 0.47 mg/g, 芦丁 9.00 ± 1.14 mg/g) 与贵州产中间香型烟叶 (新绿原酸 2.17 ± 0.15 mg/g, 绿原酸 11.82 ± 1.17 mg/g, 隐绿原酸 2.60 ± 0.24 mg/g, 芦丁 8.28 ± 1.18 mg/g) 无显著性差异。以上结果提示, 烟叶种植地的生态环境 (产地) 对烟叶中多酚类成分含量影响较大, 而多酚类成分在烟叶香型的判别中并非决定要素。

4 结论

新绿原酸和芦丁的含量与烟叶传统香型 (清香型、中间香型和浓香型) 密切相关; 烟叶种植地的生态环境 (产地) 对烟叶中多酚类成分含量影响较大, 而多酚类成分在烟叶香型的判别中并非决定要素。多酚类成分在《全国烤烟烟叶香型风格区划》划分的 8 大生态区之间的差异更为显著, 提示这种产区划分方式比传统的 3 大香型和五大产区的划分方式更为合理。多酚类化合物仅是烟叶复杂化学物质体系中的一种, 判别烟叶香型的标志成分及含量范围仍需结合其他化学物质及烟区的气候因子、降雨、光照时间、海拔高度、土壤条件等多方面因素进行关联分析。

参考文献

- [1] 李军萍. 影响烤烟香气物质综合因素的研究进展 [J]. 河北农业科学, 2009, 13(12): 56-59.
LI Junping. Research progress on comprehensive factors influencing the aroma matter in flue-cured tobacco [J]. Journal of Hebei Agricultural Sciences, 2009, 13(12): 56-59.
- [2] 李章海, 王能如, 王东胜, 等. 不同生态尺度烟区烤烟香型风格的初步研究 [J]. 中国烟草科学, 2009, 30(5): 67-70, 76.
LI Zhanghai, WANG Nengru, WANG Dongsheng, et al. Preliminary study of aroma type styles of flue-cured tobacco in different ecological scale regions [J]. Chinese Tobacco Science, 2009, 30(5): 67-70, 76.
- [3] 唐远驹. 关于烤烟香型问题的探讨 [J]. 中国烟草科学, 2011, 32(3): 1-7.
TANG Yuanju. On aroma type of flue-cured tobacco [J]. Chinese Tobacco Science, 2011, 32(3): 1-7.
- [4] 李章海, 王能如, 王东胜, 等. 烤烟香型的重要影响因子及香型指数模型的构建初探 [J]. 安徽农业科学, 2009, 37(5): 2055-2057.
LI Zhanghai, WANG Nengru, WANG Dongsheng, et al. Preliminary study on important factors on aroma type of flue-cured tobacco and construction of aromas index model [J]. Journal of Anhui Agricultural Sciences, 2009, 37(5): 2055-2057.
- [5] 席元肖, 魏春阳, 宋纪真, 等. 不同香型烤烟化学成分含量的差异 [J]. 烟草科技, 2011 (05): 29-33, 65.
XI Yuanxiao, WEI Chunyang, SONG Jizhen, et al. Content variance of some chemical components in flue-cured tobacco of different flavor styles [J]. Tobacco Science & Technology, 2011 (05): 29-33, 65.
- [6] 周泽弘, 曹淋海, 王昌全, 等. 基于 RBF 神经网络建立库存烟叶香型的预测模型 [J]. 中国烟草科学, 2016, 37(2): 65-70.
ZHOU Zehong, CAO Linhai, WANG Changquan, et al. The establishment of prediction model of inventory tobacco flavor based on RBF neural network [J]. Chinese Tobacco Science, 2016, 37(2): 65-70.
- [7] 李志刚. 烤烟不同香型烟叶质量特点及判别分析 [D]. 郑州: 河南农业大学, 2011.
LI Zhigang. Analysis on characteristics and discriminant of aroma types of flue-cured tobacco [D]. Zhengzhou: Henan Agricultural University, 2011.
- [8] 许永, 张涛, 杨光宇, 等. 烤烟香型与产区及品种的关系研究 [J]. 江西农业学报, 2015, 27(8): 84-87.
XU Yong, ZHANG Tao, YANG Guangyu, et al. Study on relationships of aroma type with producing area and variety of flue-cured tobacco [J]. Acta Agriculturae Jiangxi, 2015, 27(8): 84-87.
- [9] 姜慧娟. 浓香型产区烟叶品质评价与区域分布研究 [D]. 郑州: 河南农业大学, 2014.
JIANG Huijuan. Research of quality evaluation and regional distribution of tobacco leaves from strong aroma tobacco production areas [D]. Zhengzhou: Henan Agricultural University, 2014.
- [10] 周茹. 以“特”为魂 香型“定盘”——解读《全国烤烟烟叶香型风格区划》 [J]. 中国烟草, 2017, 15: 40-42.
ZHOU Ru. Special as soul, flavor as fixing—Interpreting the national style of flue-cured tobacco scent regional distribution [J]. China Tobacco, 2017, 15: 40-42.
- [11] 孔光辉, 李勇, 逢涛, 等. 超高效液相色谱-串联质谱法定量分析烟叶中的 18 种多酚 [J]. 分析化学, 2015, 43(12): 1913-1919.
KONG Guanghui, LI Yong, FENG Tao, et al. Quantitation of 18 Polyphenols in tobacco leaf using ultra high performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry [J]. Chinese Journal of Analytical Chemistry, 2015, 43(12): 1913-1919.
- [12] 杨慧芹, 王莎莎, 金云峰, 等. 生长温度对不同生育期烟草多酚物质代谢的影响 [J]. 基因组学与应用生物学, 2015, 34(9): 1957-

- 1974.
- YANG Huiqin, WANG Shasha, JIN Yunfeng, et al. Effects of different growth temperature on polyphenols metabolism in tobacco (*Nicotiana tabacum* L.) leaves at different growth stages [J]. *Genomics and Applied Biology*, 2015, 34(9): 1957-1974.
- [13] 徐安传. 烟叶不同区位多酚主要组分的分布特征研究 [J]. *云南农业大学学报*, 2013, 28(6): 819-824.
- XU Anchuan. Distribution characteristics of polyphenol components in different leaf positions of flue-cured tobacco [J]. *Journal of Yunnan Agricultural University*, 2013, 28(6): 819-824.
- [14] 吴德喜, 何洁, 向丽红, 等. 云南不同烟区红花大金元烟叶中多酚含量的差异性研究 [J]. *安徽农业科学*, 2014, 42(22): 7561-7562, 7591.
- WU Dexi, HE jie, XIANG Lihong, et al. Studies on the difference of the content of polyphenol for flue-cured tobacco honghuadajinyuan from different tobacco-growing areas in Yunnan [J]. *Journal of Anhui Agricultural Sciences*, 2014, 42(22): 7561-7562, 7591.
- [15] 李力, 杨涓, 戴亚, 等. 烤烟中绿原酸、萜萜亭和芸香苷的分布研究 [J]. *中国烟草学报*, 2008, 14(4): 13-17.
- LI li, YANG Juan, DAI Ya, et al. Study on distribution of chlorogenic acid, scopletin, and rutin in flue-cured tobacco [J]. *Acta Tabacaria Sinica*, 2008, 14(4): 13-17.
- [16] 刘阳, 尹启生, 宋纪真, 等. 不同品种烤烟多酚含量和组成的差异分析 [J]. *烟草科技*, 2007, (8): 32-34, 42.
- LIU Yang, YIN Qisheng, SONG Jizhen, et al. Different varieties of flue-cured tobacco polyphenols content and variance analysis [J]. *Tobacco Science & Technology*, 2007, (8): 32-34, 42.
- [17] 冉霞, 徐光军, 牟兰, 等. 贵州不同产区烤烟多酚类物质的分析 [J]. *贵州农业科学*, 2012, 40(12): 40-44.
- RAN Xia, XU Guangjun, MOU Lan, et al. Analysis on polyphenols in flue-cured tobacco from different producing area in Guizhou [J]. *Guizhou Agricultural Sciences*, 2012, 40(12): 40-44.
- [18] 宗浩, 杨程, 陈刚, 等. 不同烤烟品种香型风格与多酚类物质含量差异分析 [J]. *中国农学通报*, 2011, 27(30): 241-245.
- ZONG Hao, YANG Cheng, CHEN Gang, et al. The analysis of difference of aroma type and polyphenol content in different flue-cured tobacco varieties [J]. *Chinese Agricultural Science Bulletin*, 2011, 27(30): 241-245.
- [19] 周小红, 刘国顺, 贾方方, 等. 不同香型和基因型烤烟多酚类物质含量分布研究 [J]. *西南农业学报*, 2015, 28(3): 1328-1333.
- ZHOU Xiaohong, LIU Guoshun, JIA Fangfang, et al. Study on polyphenols distribution in flue-cured tobacco of different flavors and genotypes [J]. *Southwest China Journal of Agricultural Sciences*, 2015, 28(3): 1328-1333.
- [20] 余小芬, 谢燕, 郑波, 等. 高效液相色谱法测定烟草中多酚类物质 [J]. *西南农业学报*, 2013, 26(2): 531-534.
- YU Xiaofeng, XIE Yang, ZHENG Bo, et al. HPLC Determination of Polyphenols in Tobacco [J]. *Southwest China Journal of Agricultural Sciences*, 2013, 26(2): 531-534.
- [21] 宗浩. 云南大理特色优质烤烟品质差异化及区划研究 [D]. 北京: 中国农业科学院, 2012.
- ZONG Hao. Studies on the quality differences and division of characteristic and high-quality flue-cured tobacco in Dali, Yunnan Province [D]. Beijing: Chinese Academy of Agricultural Sciences, 2012.
- [22] 李志宏. 烤烟清香型风格形成的生态基础 [M]. 北京: 科学出版社, 2015.
- LI Zhihong. Ecological mechanisms for the formation of the fragrance style of flue-cured tobacco [M]. Beijing: Science Press, 2015.
- [23] 徐宜民, 王程栋. 中国优质特色烤烟典型产区生态条件 [M]. 北京: 科学出版社, 2016.
- XU Yimin, WANG Chengdong. China quality flue-cured tobacco characteristics typical region ecological conditions [M]. Beijing: Science Press, 2016.
- [24] 赵杰宏, 吴春. 烤烟化学成分和适应性的遗传调控基础及品种评价 [M]. 成都: 四川科学技术出版社, 2016.
- ZHAO Jiehong, WU Chun. Flue-cured tobacco chemical composition and based adaptive genetic manipulation, and the evaluation of the varieties [M]. Chengdu: Sichuan Science and Technology Press, 2016.
- [25] 陈宗瑜, 王毅. 烤烟种植生态适应评价 [M]. 北京: 科学出版社, 2018.
- CHEN Zongyu, WANG Yi. Ecological adaptation evaluation of flue-cured tobacco [M]. Beijing: Science Press, 2018.
- [26] 王红瑞, 谢媛媛, 梁琼麟, 等. 高效液相色谱-串联质谱法同时测定烟草中 5 种 Amadori 化合物 [J]. *色谱*, 2013, 31(12): 1189-1193.
- WANG Hongrui, XIE Yuanyuan, LIANG Qionglin, et al. Simultaneous determination of five amadori compounds in tobacco by high performance liquid chromatography-mass spectrometry [J]. *Chinese Journal of Chromatography*, 2013, 31(12): 1189-1193.
- [27] 胡晓妹, 谢媛媛, 王义明, 等. 基于 PTV-GC-MS 的烟草中结合态糖苷定量分析方法研究 [C]// 中国化学会首届全国质谱分析学术研讨会会议论文集. 2014.
- HU Xiaomei, XIE Yuanyuan, WANG Yiming, et al. Simultaneous determination of eight bound aroma precursors of glucoside in tobacco by PTV-Gas chromatography tandem Mass Spectrometry [C]// The Chinese chemical society 1st national conference on mass spectrometry conference proceedings. 2014.
- [28] 谢媛媛, 曹便利, 胡晓妹, 等. 基于质谱技术的烟叶中重要香味中间体和潜香物质分析研究 [C]// 中国化学会第二届全国质谱分析学术报告会会议摘要集, 2015.
- XIE Yuanyuan, CAO Bianli, HU Xiaomei, et al. Determination of key flavor aroma precursors in tobacco on the basis of Mass Spectrometry [C]// The Chinese chemical society 2nd national conference on mass spectrometry conference proceedings. 2015.

Comparative analysis of polyphenols in redried upper tobacco leaves with different flavor styles and from different production areas

XIE Yuanyuan¹, FENG Yanyan¹, SU Jiakun², LUO Juanmin², WANG Yiming^{3*}, GUO Lei², CAI Jibao², LUO Guoan¹

1 Department of Chemistry, Tsinghua University, Beijing 100084, China;

2 China Tobacco Jiangxi Industrial Co., Ltd., Nanchang 330096, China;

3 Zhuhai Qingda Hongrui Biotechnology Co., Ltd., Zhuhai 519085, Guangdong, China

Abstract: In order to study flue-cured tobacco flavor styles and evaluate quality of tobacco, high performance liquid chromatography (HPLC), ion trap tandem mass spectrometer (Trap-MSⁿ) and time-of-flight spectrometer (TOF-MS) were used to establish a qualitative and quantitative method for the determination of polyphenols in tobacco. Contents of neochlorogenic acid, chlorogenic acid, 4-caffeoylquinic acid and rutin in 133 tobacco leaves of different flavor styles collected from different production regions and areas were determined. Results indicated that total content of polyphenols in light flavored tobacco (26.19 ± 4.07 mg/g) was approximately equal to that in medium flavored tobacco (25.43 ± 3.09 mg/g), while significantly higher than that in strong flavored tobacco (22.23 ± 3.75 mg/g). Content of neochlorogenic acid in light flavored tobacco (2.39 ± 0.46 mg/g) was higher than that in medium flavored tobacco (2.25 ± 0.40 mg/g), and both higher than that in strong flavored tobacco (1.84 ± 0.39 mg/g). Content of rutin in light flavored tobacco (8.74 ± 1.41 mg/g) was higher than that in medium flavored tobacco (8.25 ± 1.52 mg/g), and both higher than that in strong flavored tobacco (5.99 ± 1.40 mg/g). Content of neochlorogenic acid and rutin showed better relevancy with flavor styles of tobacco than chlorogenic acid and 4-caffeoylquinic acid. However, the contents of four main polyphenols ingredient in tobacco samples of same flavor styles were significantly different. It is likely that producing area of same flavor styles tobacco samples were different. Composition of polyphenols was not a deciding factor for determining tobacco flavor styles, and ecology environment of the corresponding production area, including soil and climate conditions could affect the composition of polyphenols content in tobacco leaves.

Keywords: polyphenols; HPLC; Trap-MSⁿ; TOF-MS; flavor styles; quantitative analysis

Citation: XIE Yuanyuan, FENG Yanyan, SU Jiakun, et al. Comparative analysis of polyphenols in redried upper tobacco leaves with different flavor styles and from different production areas [J]. Acta Tabacaria Sinica, 2018, 24(3)

*Corresponding author. Email: wangyiming1688@163.com

《中国烟草科学》2018年第2期目次

• 遗传育种

干旱胁迫下烟草脯氨酸杂种优势及相关基因差异表达分析
..... 孟军, 吴迪, 夏志林, 等
烟草 Hsp70 基因家族的鉴定及 *NtHsp70Chl* 基因的表达分析
..... 陈二龙, 范志勇, 王松峰, 等

• 生理生态

烤烟不同生长发育时期叶片保水力变化特征
..... 许志文, 张小全, 胡育玮, 等
闽西北霜期时空变化对烤烟移栽期的影响
..... 杨希, 杨可辉, 卜银军, 等

• 栽培营养

小麦秸秆还田对烤烟叶片发育及产质量的影响
..... 王毅, 宋文静, 吴元华, 等
不同有机物料对烤烟根际土壤碳库、酶活性及根系活力的影响
..... 张璐, 任天宝, 阎海涛, 等

• 植物保护

利用废弃烟梗发酵生产白僵菌的响应面优化
..... 陈辰, 朱润琪, 臧晓静, 等

生物有机肥对烟草青枯病的防效及对土壤细菌群落的影响

..... 施河丽, 孙立广, 谭军, 等
烟粉虱 MED 隐种对不同烟草品种的适合度比较

..... 李萌, 李小娟, 梁栋, 等
延边烟区烟草菌核病原菌鉴定及抗性种质筛选

..... 高崇, 吴国贺, 李佰霖, 等
茉莉酸浸种对云烟 87 斜纹夜蛾抗性的影响

..... 马灿容, 燕飞虹, 杨飞, 等
四个国家雪茄外包烟叶表面细菌分离与活性测定

..... 张鸽, 梁开朝, 辛玉华
烘烤湿球温度对皖南烟叶焦甜香风格的影响

..... 刘要旭, 卢晓华, 蔡宪杰, 等

• 品质化学

我国不同生态区云烟 87 烟叶主要化学成分及感官风格差异
..... 杜坚, 王珂清, 张建强, 等