

## การเตรียมสารสีจากหมากเพื่อใช้ในเครื่องสำอาง

### Preparation of Pigment from Areca Nut for Cosmetic Utilization

วันวิษา รัตนปนัดดา

อีเมล: asivnaw@hotmail.com

หลักสูตรปริญญาวิทยาศาสตรมหาบัณฑิตสาขาวิชาวิทยาศาสตร์เครื่องสำอาง

สำนักวิชาวิทยาศาสตร์เครื่องสำอางมหาวิทยาลัยแม่ฟ้าหลวง

ผู้ช่วยศาสตราจารย์ ดร. มยุรี กัลยาวัฒนกุล

อีเมล: mayuree@mfu.ac.th

สำนักวิชาวิทยาศาสตร์เครื่องสำอางมหาวิทยาลัยแม่ฟ้าหลวง

#### บทคัดย่อ

สารสกัดสีจากหมากที่สกัดด้วยเอทานอลร้อยละ 95 (AC\_EtOH) ได้ของแข็งสีน้ำตาลเข้ม มีร้อยละผลผลิต ( $31.0640 \pm 1.8840$ ) มากกว่าสารสกัดสีจากหมากที่สกัดด้วยน้ำ (AC\_W) ( $31.1033 \pm 0.9270$ ) ซึ่งเป็นของแข็งสีน้ำตาลอ่อน อย่างไม่มีนัยสำคัญทางสถิติ ( $p$  value = 0.976) สารสกัด AC\_EtOH มีปริมาณแทนนินชนิดที่ละลายตัวได้ ( $1,261.90 \pm 86.54$  mg TAE/g) ไม่แตกต่างทางสถิติ ( $p$  value = 0.605) กับสารสกัด AC\_W ( $1,221.90 \pm 88.17$  mg TAE/g) แต่พบว่ามีปริมาณแทนนินชนิดรวมตัวแน่นและกรดแทนนิก ( $3,915.56 \pm 128.12$  mg CE/g และ  $377.92 \pm 3.78$  mg TAE/g ตามลำดับ) มากกว่าสารสกัด AC\_W ( $3,306.67 \pm 104.14$  mg CE/g และ  $227.78 \pm 7.05$  mg TAE/g ตามลำดับ) อย่างมีนัยสำคัญทางสถิติ ( $p$  value = 0.003 และ  $p$  value < 0.001 ตามลำดับ) นอกจากนี้การตกตะกอนสารสีของสารสกัดสีจากหมาก AC\_EtOH ด้วยเกลือ  $\text{FeCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$  และ  $\text{ZnCl}_2$  เหมาะสมที่สุด โดยสารสีทั้งสองไม่พบการคายสีและมีความคงตัวหลังการทดสอบภายใต้สภาวะเร่ง ( $\Delta E^* = 0.60 \pm 0.04$  และ  $0.30 \pm 0.01$  ตามลำดับ)

**คำสำคัญ:** หมาก/ สารสี/ กรดแทนนิก/ แทนนินชนิดละลายตัวได้/ แทนนินชนิดรวมตัวแน่น

#### Abstract

The 95% ethanolic dye extract of areca nut (AC\_EtOH) that was dark brown solid was insignificantly ( $p$  value = 0.976) higher in yield ( $31.0640 \pm 1.8840$  %) than the water extract (AC\_W) which was light brown solid ( $31.1033 \pm 0.9270$  %). The AC\_EtOH extract was insignificantly ( $p$  value = 0.605) higher in hydrolysable tannin content ( $1,261.90 \pm 86.54$  mg TAE/g) than the AC\_W extract ( $1,221.90 \pm 88.17$  mg TAE/g). However, the ethanolic extract

was significantly ( $p$  value = 0.003 and  $< 0.001$ , respectively) higher in condensed tannin and tannic acid contents ( $3,915.56 \pm 128.12$  mg CE/g and  $377.92 \pm 3.78$  mg TAE/g) than the water one ( $3,306.67 \pm 104.14$  mg CE/g and  $227.78 \pm 7.05$  mg TAE/g). Furthermore, pigment precipitation of the AC\_EtOH extract with  $\text{FeCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$  and  $\text{ZnCl}_2$  salts, was shown to be suitable. Both pigments did not show bleeding effect and were stable under accelerated storage test ( $\Delta E^* = 0.60 \pm 0.04$  and  $0.30 \pm 0.01$ , respectively).

**Keywords:** Areca Nut/ Pigment/ Tannic Acid/ Hydrolysable Tannins/ Condensed Tannins

## บทนำ

สีเป็นองค์ประกอบสำคัญในผลิตภัณฑ์เครื่องสำอาง เนื่องจากเป็นปัจจัยหนึ่งที่ดึงดูดความสนใจแก่ผู้ใช้ รวมไปถึงการใช้กลบสีที่ไม่พึงประสงค์ในผลิตภัณฑ์เครื่องสำอางนั้น (Zollinger, 2003) รวมถึงในอุตสาหกรรมเครื่องสำอาง มีการนำสีจากธรรมชาติ (natural dye) คือ สารให้สีที่ละลายในน้ำหรือน้ำมันหรือตัวทำละลายหนึ่งๆ โดยสารสี (pigment) คือ สารให้สีที่ไม่ละลายในตัวกลางใดๆ ด้วยการจับกับโลหะ เช่น aluminium hydrate ได้สีเลค (lake) ที่มีความคงตัวมากขึ้นใช้เป็นสารแต่งสีในผลิตภัณฑ์

หมาก หรือ *Areca catechu* Linn. เป็นพืชในวงศ์ Palmae หรือ Areaceae (Peng, Liu, Wua, Sun, He & Gao, 2015) มีสารแทนนินชนิดรวมตัวแน่น (condensed tannins) และแทนนินชนิดที่สลายตัวได้ (hydrolysable tannins) (Sangthong, Pintathong, Thongyai & Chaiwut, 2012) เป็นพืชที่ให้สีย้อมธรรมชาติในโทนเหลืองน้ำตาลจากสารแกลโลแทนนิน (gallotannin) จึงน่าจะนำมาตกตะกอนด้วยเกลือของโลหะเพื่อให้สารสีได้เช่นกัน ผู้วิจัยจึงมีความสนใจที่จะนำผลหมากมาสกัดสีย้อม เพื่อเตรียมสารสีโดยศึกษาชนิดของเกลือ อัตราส่วนของเกลือ และอุณหภูมิที่มีผลต่อการเกิดสารสี รวมทั้งศึกษาสภาวะความคงตัวของสารสีเพื่อนำมาประยุกต์ใช้ในเครื่องสำอางต่อไป

## วัตถุประสงค์ของการวิจัย

1. เพื่อศึกษาวิธีการเตรียมสารสีจากผลหมาก
2. เพื่อศึกษาความคงตัวของสารสีจากสารสกัดผลหมาก

## ขอบเขตการวิจัย

เตรียมสารสีจากสารสกัดผลหมาก โดยการศึกษาชนิดของเกลือ อัตราส่วนของเกลือ และความเป็นกรด-ด่างที่มีผลต่อการเกิดสารสี และศึกษาสภาวะความคงตัวของสารสีจากสารสกัดผลหมาก

### การทบทวนวรรณกรรม

สีที่พบในเมล็ดหมาก คือ กรดแกลโลแทนนิก (gallotannic acid) (Murugakoothan, Ananth, Vivek & Arumanayagam, 2014) มีชื่อเรียกอื่น คือ กรดแทนนิก (tannic acid) แกลโลแทนนิน ให้สีเหลืองน้ำตาลถึงแดงน้ำตาล สามารถละลายในน้ำ แอลกอฮอล์ (Rathod, Shivaprasad & Rajshekhar, 2015)

การแบ่งประเภทสีที่ใช้ในเครื่องสำอาง แบ่งตามแหล่งที่เกิดและคุณสมบัติ แบ่งได้ 5 ประเภท (อรัญญา มโนสร้อย, 2529)

1. Natural soluble dyes ปัจจุบันใช้น้อยเพราะราคาแพง และไม่ทนทานต่อแสง ให้สีอ่อนกว่าสีสังเคราะห์ สีได้จากเปลือกไม้ ตัวแมลง ทำให้เกิดการแพ้บ่อยกว่าสีสังเคราะห์ จำแนกเป็น คลอโรฟิลล์ แคโรทีนอยด์ ควิโนน ฟลาโวนอยด์

แทนนินเป็นสารมีโครงสร้างเป็นสารเชิงซ้อนมักพบในรูปสารผสมของโพลีฟีนอล พบในพืชเกือบทุกชนิด มีคุณสมบัติตกตะกอนโลหะหนัก โดยสารแทนนิน แบ่งได้เป็น 2 กลุ่มใหญ่ คือ

1) แทนนินแท้จริง (true tannins) มีน้ำหนักโมเลกุล 1000-5000 แบ่งได้ 2 กลุ่ม คือ

ก. แทนนินชนิดที่สลายตัวได้เกิดจากประกอบพวกโพลีไฮดรอกซิล เช่น กรดแกลลิก หรือ กรดเอลลาจิกจับกันเป็น โมเลกุลใหญ่ สามารถถูกย่อยสลายได้ด้วยกรดหรือเอนไซม์แทนเนส ตัวอย่างพืชได้แก่ ผลและเปลือกทับทิม ใบยูคาลิปตัส และกลีบกุหลาบ เป็นต้น

ข. แทนนินชนิดรวมตัวแน่น ไม่ถูกย่อยสลายด้วยน้ำ แต่เมื่อถูกกรดหรือเอนไซม์จะสลายให้สารสีแดงที่ไม่ละลายน้ำ เรียกว่า phlobaphenes ตัวอย่างพืชได้แก่ เปลือกอบเชย เปลือกสีเสียด ใบชา และเมล็ดหมาก เป็นต้น

2) แทนนินเสมือน (pseudo tannins) มีน้ำหนักต่ำกว่า 1,000 โดยมากเป็นสารประกอบพีนอลเชิงเดี่ยว เป็นสารซึ่งมีคุณสมบัติบางอย่างคล้ายแทนนินแท้จริงมักพบเกิดอยู่ร่วมกับแทนนินแท้จริง เช่น กรดแกลลิก คาเทชิน คลอโรเจนิก เอลลาจิก เป็นต้น

2. Synthetic soluble dyes แบ่งสีในกลุ่มนี้เป็น 3 ประเภท FD&C, D&C และ Ext. D&C

3. Natural pigments สีได้จากธรรมชาติ เช่น aluminium silicate

4. Synthetic pigments สีสังเคราะห์ใช้แทน natural pigments มีหลายชนิดสี เช่น สีขาวได้แก่ zinc oxide, titanium dioxide และ bismuth carbonate

5. Natural and synthetic lakes เตรียมโดยการตกตะกอน สีที่ละลายน้ำจะได้เป็นสีที่ไม่ละลายในน้ำ น้ำมัน หรือ ตัวทำละลายอื่นๆ

## วิธีดำเนินการวิจัย

1. เตรียมสารสกัดสีข้อมจากผลหมาก โดยนำผลหมากแห้งมาบดเป็นผงแล้วแช่สกัดด้วยน้ำกลั่น หรือ 95% ethanol แล้วนำสารละลายผลหมากไปทำให้แห้ง สารสกัดจากน้ำ (สารสกัด AC\_W) และสารสกัดจาก 95% ethanol ได้ (สารสกัด AC\_EtOH) จากนั้นคำนวณร้อยละผลผลิตเฉลี่ยที่ได้ (Vanimakhal & Balasubramanian, 2016)

2. เตรียมสารละลายมาตรฐาน เตรียมสารละลายสารสกัดสีข้อมจากผลหมาก หาปริมาณแทนนินชนิดที่สลายตัวได้ แทนนินชนิดรวมตัวแน่น และปริมาณกรดแทนนิกของสารสกัดสีข้อมจากผลหมาก (ชลธิชา นิवासประภคฤติ, ไมตรี มัณยานนท, ยามาระตี จัยสิน และปิยานี รัตนชานอง, 2556; Karamac, 2009; Falcao & Araujo, 2013; Gupta & Garg, 2014)

3. คัดเลือกและวัดสีสารสกัดสีข้อมจากผลหมากที่มีปริมาณกรดแทนนิกมากที่สุด

4. ศึกษาการเตรียมสารสีจากสารสกัดผลหมากโดยใช้สารสกัดผลหมากเข้มข้นทำการตกตะกอนกับเกลือชนิดต่างๆ ได้แก่ Aluminum potassium sulfate dodecahydrate ( $\text{AlK}(\text{SO}_4)_2 \cdot 12\text{H}_2\text{O}$ ), Ferrous chloride tetrahydrate ( $\text{FeCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ ), Cupric sulfate pentahydrate ( $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ ) และ Zinc chloride ( $\text{ZnCl}_2$ ) ศึกษาผลของความเข้มข้นของเกลือ เวลา อัตราส่วนของสารสกัดผลหมากต่อเกลือ ความเป็นกรด-ด่าง และทำการคัดเลือกสารสีที่ดีที่สุด

5. ประเมินคุณลักษณะทางเคมีกายภาพของสารสีที่เตรียมขึ้น (American society for testing and materials international, 2002)

6. ศึกษาความคงตัวของสารสีจากสารสกัดผลหมาก โดยการเก็บในตู้เย็นที่มีอุณหภูมิ  $4^\circ\text{C}$  นาน 24 ชั่วโมง จากนั้นนำเข้าตู้อบที่มีอุณหภูมิ  $45^\circ\text{C}$  นาน 24 ชั่วโมง (นับเป็น 1 รอบ) โดยทำทั้งสิ้นจำนวน 7 รอบ (Mamah et al., 2017)

7. สรุปผลการทดลอง

## ผลการวิจัย

1. ผลการเตรียมสารสกัดสีข้อมจากผลหมาก มีร้อยละผลผลิตของสารสกัด AC\_EtOH เท่ากับ  $31.0640 \pm 1.8840$  และ AC\_W เท่ากับ  $31.1033 \pm 0.9270$  ซึ่งพบว่าปริมาณร้อยละผลผลิตไม่แตกต่างกันทางสถิติ (p value = 0.976)

2. ผลการวิเคราะห์หาปริมาณแทนนินชนิดที่สลายตัวได้ของสารสกัดสีข้อมจากผลหมาก พบว่า สารสกัด AC\_EtOH มีปริมาณแทนนินชนิดที่สลายตัว ( $1,261.90 \pm 86.54$  mg TAE/g crude extract) มากกว่าสารสกัด AC\_W ( $1,221.90 \pm 88.17$  mg TAE/g crude extract) อย่างไรก็ตามไม่มีนัยสำคัญทางสถิติ (p value = 0.605) ซึ่งสอดคล้องกับงานวิจัยที่ผ่านมา (Baldosano et al., 2015)

3. ผลการวิเคราะห์หาปริมาณแทนนินชนิดรวมตัวแน่นของสารสกัดสีข้อมจากผลหมาก พบว่า สารสกัด AC\_EtOH มีปริมาณแทนนินชนิดรวมตัวแน่น ( $3,915.56 \pm 128.12$  mg CE/g crude extract) มากกว่า สารสกัด AC\_W ( $3,306.67 \pm 104.14$  mg CE/g crude extract) อย่างมีนัยสำคัญทางสถิติ ( $p$  value = 0.003) ซึ่งสอดคล้องกับงานวิจัยที่ผ่านมา (Kallithraka et al., 1995)

4. ผลการวิเคราะห์หาปริมาณกรดแทนนิกของสารสกัดสีข้อมจากผลหมาก พบว่า สารสกัด AC\_EtOH มีปริมาณกรดแทนนิก ( $377.92 \pm 3.78$  mg TAE/g crude extract) มากกว่า สารสกัด AC\_W ( $227.78 \pm 7.05$  mg TAE/g crude extract) อย่างมีนัยสำคัญทางสถิติ ( $p$  value < 0.001)

5. ผลการคัดเลือกสารสีจากสารสกัด ได้คัดเลือกสารสกัด AC\_EtOH เนื่องจากมีร้อยละผลผลิตไม่แตกต่างจากสารสกัด AC\_W สามารถทำให้แห้งด้วยการใช้ด้วยเครื่องระเหยสารแบบหมุนซึ่งจะมีต้นทุนต่ำกว่า นอกจากนี้ยังพบปริมาณแทนนินชนิดที่ละลายตัวได้ซึ่งมีกรดแกลโล-แทนนิก (Murugakoothan et al., 2014) ให้สีเหลืองน้ำตาลถึงแดงน้ำตาลมากกว่า ปริมาณแทนนินชนิดรวมตัวแน่นของสารสกัดสีข้อมจากผลหมากซึ่งมีสารสีแดงที่ไม่ละลายน้ำ (phlobaphenes) (Rathod et al., 2015) และปริมาณกรดแทนนิก มากกว่าอย่างมีนัยสำคัญทางสถิติ ( $p$  value = 0.003 และ < 0.001 ตามลำดับ)

6. ผลการวัดค่าสีสารสกัด AC\_EtOH ซึ่งลักษณะภายนอก คือ สีน้ำตาลเข้มสอดคล้องกับการวัดค่าสี โดยค่า  $L^*$  เท่ากับ  $27.47 \pm 0.58$  แสดงว่าสารสกัดมีความสว่างน้อย ค่า  $a^*$  เท่ากับ  $7.12 \pm 0.35$  มีค่าเป็น + แสดงว่าสารสกัดมีสีไปในทิศทางสีแดง และค่า  $b^*$  เท่ากับ  $7.83 \pm 0.49$  มีค่าเป็น + แสดงว่าสารสกัดมีสีไปในทิศทางสีเหลือง

7. ผลการเตรียมสารสีจากสารสกัด AC\_EtOH ทำปฏิกิริยากับเกลือที่ความเข้มข้นต่างๆ ดังตารางที่ 1 พบว่า ความเข้มข้นของเกลือที่เหมาะสม ดังนี้ เกลือ  $AlK(SO_4)_2 \cdot 12H_2O$  ที่ความเข้มข้น 30 mg/ml เกลือ  $CuSO_4 \cdot 5H_2O$  ที่ความเข้มข้น 3 mg/ml เกลือ  $FeCl_2 \cdot 4H_2O$  และ  $ZnCl_2$  ที่ความเข้มข้น 6 mg/ml โดยสารสีเกิดจากสารประกอบเชิงซ้อนระหว่างโลหะกับแทนนิน เช่น วงแหวนฟลาโวนอยด์ตำแหน่ง *ortho*-dihydroxyl (Hemingway & Laks, 1992) กรดแทนนิกบริเวณ 1, 2, 3-trihydroxybenzoic acid (Iffat et al., 2005)

8. ผลการเตรียมสารสีจากสารสกัด AC\_EtOH ทำปฏิกิริยากับเกลือที่ความเข้มข้นที่เลือกไว้ในช่วงเวลาต่างๆกัน ดังตารางที่ 2 พบว่า เวลาที่น้อยที่สุดใช้ในการเกิดสารสีของเกลือแต่ละชนิดคือ เกลือ  $CuSO_4 \cdot 5H_2O$  เกลือ  $FeCl_2 \cdot 4H_2O$  และเกลือ  $ZnCl_2$  ใช้เวลา 24 ชั่วโมง ส่วนเกลือ  $AlK(SO_4)_2 \cdot 12H_2O$  ใช้เวลา 3 ชั่วโมง

ตารางที่ 1 ปริมาณและโทนสีของสารสีจากความเข้มข้นต่างๆ ของเกลือต่างชนิด

ความเข้มข้นของ เกลือ (mg/ml)	น้ำหนักสารสีเฉลี่ย (g) และโทนสีของสารสี			
	$\text{AlK}(\text{SO}_4)_2 \cdot 12\text{H}_2\text{O}$	$\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$	$\text{FeCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$	$\text{ZnCl}_2$
-	-	-	-	-
1.5	$0.0050 \pm 0.0001$	$0.0083 \pm 0.0003$	$0.0031 \pm 0.0005$	$0.0014 \pm 0.0004$
2	$0.0064 \pm 0.0003$	$0.0096 \pm 0.0004$	$0.0048 \pm 0.0005$	$0.0022 \pm 0.0004$
3	$0.0074 \pm 0.0004$	$0.0127 \pm 0.0003$	$0.0064 \pm 0.0006$	$0.0052 \pm 0.0008$
6	$0.0087 \pm 0.0003$	$0.0177 \pm 0.0012$	$0.0258 \pm 0.0019$	$0.0123 \pm 0.0003$
30	$0.0244 \pm 0.0009$	$0.0281 \pm 0.0007$	$0.0972 \pm 0.0011$	$0.0182 \pm 0.0011$

ตารางที่ 2 ปริมาณและโทนสีของสารสีในช่วงเวลาต่างๆ

เวลา (ชั่วโมง)	น้ำหนักสารสีเฉลี่ย (g) และโทนสีของสารสี			
	$\text{AlK}(\text{SO}_4)_2 \cdot 12\text{H}_2\text{O}$	$\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$	$\text{FeCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$	$\text{ZnCl}_2$
-	-	-	-	-
3	$0.0232 \pm 0.0007$	$0.0109 \pm 0.0002^*$	$0.0049 \pm 0.0003^*$	$0.0092 \pm 0.0002^*$
12	$0.0233 \pm 0.0006$	$0.0115 \pm 0.0003^*$	$0.0055 \pm 0.0007^*$	$0.0104 \pm 0.0005^*$
24	$0.0235 \pm 0.0012$	$0.0127 \pm 0.0004$	$0.0256 \pm 0.0010$	$0.0125 \pm 0.0006$
48	$0.0239 \pm 0.0007$	$0.0128 \pm 0.0004$	$0.0257 \pm 0.0009$	$0.0125 \pm 0.0004$
72	$0.0240 \pm 0.0004$	$0.0129 \pm 0.0004$	$0.0259 \pm 0.0015$	$0.0128 \pm 0.0003$

หมายเหตุ. \* แสดงถึงความแตกต่างอย่างมีนัยสำคัญทางสถิติเปรียบเทียบในช่วงเวลาต่างๆ ของเกลือชนิดเดียวกัน

9. ผลการเตรียมสารสีจากสารสกัด AC\_EtOH ทำปฏิกิริยากับเกลือที่ความเข้มข้นและเวลาที่เลือกไว้ พบอัตราส่วนของสารสกัดต่อเกลือที่ทำให้เกิดปริมาณสารสีเหมาะสมที่สุดที่พบปริมาณสารสีที่เกิดขึ้น ดังตารางที่ 3 คือ อัตราส่วนของสารสกัด AC\_EtOH ทำปฏิกิริยากับเกลือ

$\text{AlK}(\text{SO}_4)_2 \cdot 12\text{H}_2\text{O}$  เกลือ  $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  เกลือ  $\text{FeCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$  และเกลือ  $\text{ZnCl}_2$  ที่อัตราส่วน 2:1, 2:1, 1:2 และ 1:1 ตามลำดับ

**ตารางที่ 3** ปริมาณและโทนสีของสารสีจากอัตราส่วนต่างๆ ของสารสกัด AC\_EtOH ต่อเกลือต่างชนิด

อัตราส่วนของสารสกัด ต่อเกลือ	น้ำหนักสารสีเฉลี่ย (g) และโทนสีของสารสี			
	$\text{AlK}(\text{SO}_4)_2 \cdot 12\text{H}_2\text{O}$	$\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$	$\text{FeCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$	$\text{ZnCl}_2$
-	-	-	-	-
1:2	4.1061 ± 0.0724	0.1959 ± 0.0074	1.1276 ± 0.0245*	0.3867 ± 0.0107
1:1	3.8585 ± 0.0899	0.1908 ± 0.0048	0.4142 ± 0.0073	0.3809 ± 0.0168
2:1	4.6623 ± 0.1391*	0.3364 ± 0.0169*	0.4233 ± 0.0053	0.3857 ± 0.0079

หมายเหตุ. \* แสดงถึงความแตกต่างอย่างมีนัยสำคัญทางสถิติเปรียบเทียบอัตราส่วนต่างๆ ของสารสกัด AC\_EtOH ต่อเกลือชนิดเดียวกัน

10. ผลการเตรียมสารสีจากสารสกัด AC\_EtOH ทำปฏิกิริยากับเกลือที่ความเข้มข้น เวลา และอัตราส่วนของสารสกัดต่อเกลือที่เลือกไว้ กับความเป็นกรด-ด่างต่างๆ ที่ทำให้เกิดปริมาณสารสีที่เหมาะสมที่สุดในแต่ละเกลือพบปริมาณสารสีที่เกิดขึ้น ดังตารางที่ 4 พบว่า ที่ pH 3, 5, 7, 9 และ 11 มีสีและปริมาณที่แตกต่างกัน โดย pH ที่เพิ่มขึ้นมีผลสารสีเพิ่มขึ้นจากกลุ่ม *o*-diphenol ligand ทำปฏิกิริยากับอะตอมโลหะมากขึ้น (Hemingway & Laks, 1992; Kraal et al., 2006) พบ pH ที่เกิดปริมาณสารสีของเกลือแต่ละชนิดมากที่สุดครั้งนี้ เกลือ  $\text{AlK}(\text{SO}_4)_2 \cdot 12\text{H}_2\text{O}$  เกลือ  $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  เกลือ  $\text{FeCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$  และเกลือ  $\text{ZnCl}_2$  ที่ pH 9, 7, 11 และ 11 ตามลำดับ

11. ผลการเลือกสภาวะที่เหมาะสมในการเกิดสารสี คือ สารสีจากเกลือ  $\text{FeCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$  ความเข้มข้น 6 mg/ml อัตราส่วนสารสกัด AC\_EtOH ต่อเกลือ 1:2 เวลาในการเกิดสารสี 24 ชั่วโมง ที่ pH 11 และเกลือ  $\text{ZnCl}_2$  ความเข้มข้น 6 mg/ml อัตราส่วนสารสกัด AC\_EtOH ต่อเกลือ 1:1 ใช้เวลาในการเกิดสารสี 24 ชั่วโมง ที่ pH 11

12. ผลประเมินการคายสี (bleeding) ของสารสีที่เกิดจากสารสกัด AC\_EtOH ทำปฏิกิริยากับเกลือ  $\text{FeCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$  และ  $\text{ZnCl}_2$  เรียกว่า สารสี AC\_EtOH/  $\text{FeCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$  และสารสี AC\_EtOH/  $\text{ZnCl}_2$  ตามลำดับ ไม่พบการคายสีของสารสี

ตารางที่ 4 ปริมาณและโทนสีของสารสีจากความเป็นกรด-ด่างต่างๆ

pH	น้ำหนักสารสีเฉลี่ย (g) และโทนสีของสารสี			
	$\text{AlK}(\text{SO}_4)_2 \cdot 12\text{H}_2\text{O}$	$\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$	$\text{FeCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$	$\text{ZnCl}_2$
-	-	-	-	-
3	$0.4180 \pm 0.0246$	$0.0336 \pm 0.0025$	$0.9773 \pm 0.0150$	$0.0148 \pm 0.0045$
5	$4.6163 \pm 0.0835$	$0.3520 \pm 0.0082$	$1.1549 \pm 0.0114$	$0.3562 \pm 0.0074$
7	$6.0527 \pm 0.0367$	$0.5526 \pm 0.0067$	$1.1652 \pm 0.0071$	$0.7234 \pm 0.0120$
9	$9.9064 \pm 0.0346$	$0.1545 \pm 0.0052$	$1.1747 \pm 0.0114$	$0.9447 \pm 0.0057$
11	$4.7359 \pm 0.0512$	$0.1176 \pm 0.0119$	$1.3969 \pm 0.2597$	$1.0181 \pm 0.0157$

ตารางที่ 5 การศึกษาความคงตัวของสารสี

ศึกษาความคงตัว	สารสี			
	AC_EtOH/ $\text{FeCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$		AC_EtOH/ $\text{ZnCl}_2$	
	ก่อน	หลัง	ก่อน	หลัง
ลักษณะภายนอก	ของแข็งเป็นผง	ของแข็งเป็นผง	ของแข็งเป็นผง	ของแข็งเป็นผง
สี	ละเอียด สีดำ	ละเอียด สีดำ	ละเอียด สีน้ำตาล	ละเอียด สีน้ำตาล
กลิ่น	ไม่มีกลิ่น	ไม่มีกลิ่น	ไม่มีกลิ่น	ไม่มีกลิ่น

ตารางที่ 6 การวัดสีก่อน-หลังเก็บในสภาวะเร่งของสารสี

วัดสี	ระยะเวลาการทดสอบความคงตัวของสารสี			
	AC_EtOH/ $\text{FeCl}_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$		AC_EtOH/ $\text{ZnCl}_2$	
	เริ่มต้น	7 รอบ	เริ่มต้น	7 รอบ
$L^*$	$40.08 \pm 0.04$	$40.66 \pm 0.01$	$42.17 \pm 0.02$	$42.05 \pm 0.01$
$a^*$	$0.82 \pm 0.01$	$0.71 \pm 0.02$	$2.07 \pm 0.00$	$1.83 \pm 0.01$
$b^*$	$1.32 \pm 0.01$	$1.44 \pm 0.02$	$3.14 \pm 0.02$	$3.02 \pm 0.02$
$C^*$	$1.56 \pm 0.01$	$1.61 \pm 0.03$	$3.76 \pm 0.02$	$3.53 \pm 0.02$
$\Delta E^*$	$0.60 \pm 0.04$		$0.30 \pm 0.01$	



13. ผลทดสอบความคงสภาพแบบเร่ง (Accelerated storage test) โดยการใช้อุณหภูมิต่ำ สลับสูง (Heating cooling cycle) บันทึกลักษณะภายนอก สี กลิ่น และวัดสีก่อนการเก็บและหลังการเก็บด้วยเครื่องวัดสี ดังตารางที่ 5 และ 6 จากตาราง พบว่า ผลของการวัดค่าสีของสารสี AC\_EtOH/FeCl<sub>2</sub>·4H<sub>2</sub>O และ สารสี AC\_EtOH/ZnCl<sub>2</sub> หลังเก็บในสภาวะแบบเร่ง 7 รอบมีค่า  $L^*$ ,  $a^*$ ,  $b^*$ ,  $C^*$  และ  $\Delta E^*$  ดังนี้

สารสี AC\_EtOH/FeCl<sub>2</sub>·4H<sub>2</sub>O จากค่า  $L^*$  สารสีมีความสว่างมากขึ้น ค่า  $a^*$  สีไปในทิศทางสีแดงลดลง และค่า  $b^*$  สีไปในทิศทางสีเหลืองมากขึ้น

สารสี AC\_EtOH/ZnCl<sub>2</sub> จากค่า  $L^*$  สารสีมีความสว่างลดลง ค่า  $a^*$  สีไปในทิศทางสีแดงลดลง และค่า  $b^*$  สีไปในทิศทางสีเหลืองลดลง

ค่าความเข้มสี ( $C^*$ ) เปรียบเทียบความแตกต่างความเข้มของสี ในชนิดเดียวกัน (อภิัญญา เจริญกุล, 2553) พบว่า สารสี AC\_EtOH/FeCl<sub>2</sub>·4H<sub>2</sub>O มีความเข้มของสีมากขึ้น และสารสี AC\_EtOH/ZnCl<sub>2</sub> มีความเข้มของสีลดลง

ค่าความแตกต่างของสี ( $\Delta E^*$ ) สารสี AC\_EtOH/FeCl<sub>2</sub>·4H<sub>2</sub>O และ สารสี AC\_EtOH/ZnCl<sub>2</sub> มีค่าความแตกต่างของสีที่  $\leq 1$  ไม่สามารถแยกความแตกต่างของสีได้ (Wrolstad et al., 2005)

#### อภิปรายผลการวิจัย

1. สารสกัด AC\_EtOH มีปริมาณแทนนินชนิดที่ละลายตัวได้ แทนนินชนิดรวมตัวแน่น และกรดแทนนิกมากที่สุดเท่ากับ  $1,261.90 \pm 86.54$  mg TAE/g crude extract,  $3,915.56 \pm 128.12$  mg CE/g crude extract และ  $377.92 \pm 3.78$  mg TAE/g crude extract ตามลำดับ

2. การเตรียมสารสีโดยใช้สารสกัด AC\_EtOH ทำปฏิกิริยากับเกลือ FeCl<sub>2</sub>·4H<sub>2</sub>O และ ZnCl<sub>2</sub> เหมาะสมที่สุด โดยความเป็นกรด-ด่าง มีผลต่อปริมาณการเกิดสารสี พบว่า เกลือ FeCl<sub>2</sub>·4H<sub>2</sub>O อัตราส่วนสารสกัด AC\_EtOH ต่อเกลือ 1:2 ใช้เวลาในการเกิดสารสี 24 ชั่วโมง ที่ pH 11 เกลือ ZnCl<sub>2</sub> อัตราส่วนสารสกัด AC\_EtOH ต่อเกลือ 1:1 ใช้เวลาในการเกิดสารสี 24 ชั่วโมง ที่ pH 11 มีปริมาณสารสีมากที่สุด

3. การประเมินการคายสีของสารสี AC\_EtOH/FeCl<sub>2</sub>·4H<sub>2</sub>O และ สารสี AC\_EtOH/ZnCl<sub>2</sub> และทดสอบความคงสภาพแบบเร่ง พบว่า สารสีทั้งสองไม่พบการคายสีและมีค่า  $\Delta E^*$  เท่ากับ  $0.60 \pm 0.04$  และ  $0.30 \pm 0.01$  ตามลำดับ

#### ข้อเสนอแนะ

1. สภาวะความคงตัวของสารสีที่ทดสอบความคงสภาพแบบเร่ง ควรศึกษาให้ครอบคลุมทุกความเป็นกรด-ด่าง

2. สารสีสำหรับใช้ในผลิตภัณฑ์ทางเครื่องสำอางประเภทเสริมแต่งให้สีส้น (color makeup) ควรมีการประเมินการคายสีโดยใช้น้ำหรือ propylene glycol และควรให้มีการทดสอบปริมาณโลหะที่เหลือจากการเกิดสารสี (impurity residue)

#### รายการอ้างอิง

ชลธิชา นิवासประภคติ, ไมตรี มัณยานนท, ยามาระตี จัยสิน, และปิยานี รัตนชานอง. (2556).

การศึกษาลักษณะทางกายภาพ ปริมาณสารไฮโดรไลซ์แทนนินและฤทธิ์ต้านอนุมูลอิสระ  
อิสระของมะขามป้อมจากจังหวัดกาญจนบุรี. *Thai Journal of Pharmacology*, 35(1), 4-13.  
อภิัญญา เจริญกุล. (2553). ผลของการทดแทนแป้งสาลีด้วยแป้งข้าวกล้องงอกต่อสมบัติทางกายภาพ  
และทางประสาทสัมผัสของคุกกี้สิงคโปร์. *วารสารวิชาการ มหาวิทยาลัยหอการค้าไทย*,  
4(1), 108-119

อรัญญา มโนสร้อย. (2529). *เครื่องสำอาง* (เล่ม 1). เชียงใหม่: ศูนย์พิมพ์ดีดคณะเภสัชศาสตร์  
มหาวิทยาลัยเชียงใหม่.

American society for testing and materials international. (2002). Standard test methods for  
bleeding of pigments. *Annual book of ASTM standards*. Pennsylvania: American society  
for testing and materials international.

Baldosano, H. Y., Castillo, M. B. M. G., Elloran, C. D. H., Bacani, F.T. (2015, March). *Effect of  
Particle Size, Solvent and Extraction Time on Tannin Extract from Spondias purpurea  
Bark Through Soxhlet Extraction*. Paper presented at the De La Salle University  
Research Congress, Manila.

Falcao, L. & Araujo, M.E.M. (2013). Tannins characterization in historic leathers by  
complementary analytical techniques ATR-FTIR, UV-Vis and chemical tests. *Journal of  
Cultural Heritage*, 14(6), 499–508.

Gupta, S.P. & Garg, G. (2014). Quantitative analysis of tannic acid in crude drug and its  
ayurvedic formulation by UV spectrophotometry. *International Journal of  
Pharmacognosy and Phytochemical Research*, 6(2), 190-193.

Hemingway, R.W. & Laks, P.E. (1992) *Plant Polyphenols*. New York: Plenum Press.

Iffat, A.T., Maqsood, Z.T. & Fatima, N. (2005) Study of Complex Formation of Fe(III) with  
Tannic Acid. *Journal of the Chemical Society of Pakistan*, 27(2), 174-177.

Kallithraka, S., Garcia-Viguera, C., Bridle, P. & Bakker, J. (1995). Survey of solvents for the  
extractions of grape seed phenolics. *Phytochemical Analysis*, 6(5), 265- 267.

- Karamac, M. (2009). Chelation of Cu(II), Zn(II), and Fe(II) by tannin constituents of selected edible nuts. *International Journal of Molecular Sciences*, 10(12), 5485-5497.
- Kraal, P., Jansen, B., Nierop, K.G.J. & Verstraten, J.M. (2006) Copper complexation by tannic acid in aqueous solution. *Chemosphere*, 65(11), 2193-2198.
- Mamah, B., Nisan, N., Duanyai, S. & Manok, S. (2017). Development of Cosmetic Product from Leaves of *Moringa oleifera* Lam. Collected in Sripoom Community in Thonburi Area. *Isan Journal of Pharmaceutical Sciences*, 13(2). 80-89.
- Murugakoothan, P., Ananth, S., Vivek, P. & Arumanayagam, T. (2014). Natural dye extracts of areca catechu nut as dye sensitizer for titanium dioxide based dye sensitized solar cells. *Journal of Nano- and Electronic Physics*, 6(1), 01003-1-01003-4.
- Peng, W., Liu, Y.J., Wua, N., Sun, T., He, X.Y. & Gao, Y.X. (2015). *Areca catechu* L. (Arecaceae): A review of its traditional uses, botany, phytochemistry, pharmacology and toxicology. *Journal of Ethnopharmacology*, 164(1), 340-356.
- Rathod, K., Shivaprasad, M. & Rajshekhar. (2015). Characterization and extraction of tannin from areca nut waste and using it as rust deactivator. *International Journal of Science, Engineering and Technology*, 3(2), 366-372.
- Sangthong, S., Pintathong, P., Thongyai, S. & Chaiwut, P. (2012, November). *Stability assessment of Areca catechu L. extract for application in cosmetics*. Paper present at the 1<sup>st</sup> Mae Fah Luang University International Conference, Chiang Rai.
- Vanimakhal, R.R. & Balasubramanian, S. E. (2016). Phytochemical qualitative analysis and total tannin content in the aqueous extract of areca catechu nut. *Asian Journal of Biomedical and Pharmaceutical Sciences*, 6(54), 7-9.
- Wrolstad, R.E., Acree, T.E., Decker, E.A., Penner, M.H., Reid, D.S., Schwartz, S.J., Shoemaker, C.F., Smith, D. & Sporns, P. (2005). *Handbook of Food Analytical Chemistry*. New Jersey: John Wiley & Sons.
- Zollinger, H. (2003). *Color Chemistry Syntheses, Properties, and Applications of Organic Dyes and Pigments*. Zurich: Verlag Helvetica Chemica Acta.