

响应面法优选广玉兰种籽油的超声提取工艺

余子川*, 李小龙, 余捷婧(湖北中医药大学药学院, 武汉 430061)

中图分类号 R284.2; R283 文献标志码 A 文章编号 1001-0408(2013)47-4457-04

DOI 10.6039/j.issn.1001-0408.2013.47.14

摘要 目的: 优选广玉兰种籽油的超声提取工艺。方法: 以得油率为评价指标, 以液固比、超声温度、超声时间为考察因素, 采用响应面法优选超声提取工艺。结果: 优选的提取工艺为液固比 25:1(ml/g), 超声温度为 40 ℃, 超声时间为 30 min。结论: 所选工艺合理、可行, 可用于广玉兰种籽油的提取; 所建立的数学模型与试验观察数据相符。

关键词 广玉兰种籽; 超声提取; 响应面法; 得油率

Optimization of Ultrasonic Extraction Process of *Magnolia grandiflora* Seed Oil by Response Surface Methodology

YU Zi-chuan, LI Xiao-long, YU Jie-jing(Pharmacy College, Hubei University of TCM, Wuhan 430061, China)

ABSTRACT OBJECTIVE: To optimize ultrasonic extraction process of *Magnolia grandiflora* seed oil. METHODS: The ultrasonic extraction process was optimized by response surface methodology with the yield of oil as index using ratio of liquid to solid, ultrasonic temperature and ultrasonic time as factors. RESULTS: The optimal process were as follows: ratio of liquid to solid was 25:1(ml/g); ultrasonic temperature was 40 ℃; ultrasonic time was 30 min. CONCLUSIONS: The technology is reasonable, feasible and suitable for the extraction of *M. grandiflora* seed oil; observed responses are in close agreement with the predicted values of the mathematic models.

KEY WORDS *Magnolia grandiflora* seeds; Ultrasonic extraction; Response surfaces methodology; Yield of oil

广玉兰(*Magnolia grandiflora* Lima)又名荷花玉兰、洋玉兰, 系木兰科木兰属乔木树种。广玉兰叶可入药, 主治高血压, 花、叶可提取香料, 种籽可榨油^[1]。广玉兰种籽油系从其种籽中提取的含有多种不饱和脂肪酸、黄酮类及酚类化合物。广玉兰种籽油中不饱和脂肪酸占总脂肪酸的 90% 以上^[2], 其不饱和脂肪酸具有预防心血管疾病和减少低密度脂蛋白胆固醇的作用^[3]。笔者利用超声波的空化效应^[4], 有效破碎植物细胞壁或包埋结构的外层, 改变物质扩散, 有效释放内容物, 且体系的温度不会大幅度升高, 故不会破坏其有效成分, 从而提高提取率。

响应面(Response surface methodology, RSM)法是一种优

选工艺条件的有效方法^[5-6], 可用于确定各因素及其交互作用在工艺过程中对指标(响应值)的影响, 精确地表述因素和响应值之间的关系。因此, 笔者采用 RSM 法对超声提取工艺中影响广玉兰种籽油得率的关键因素进行优化, 同时验证了该试验设计法在超声提取工艺应用中的可行性。

1 材料

1.1 仪器

KQ-200KDE 可调数控超声波清洗器(上海科导超声仪器有限公司, 功率: 250 W, 频率: 59 kHz); RE-52AA 旋转蒸发器(上海亚荣生化仪器厂); KDF-2311 多功能食品粉碎机(北京弘祥隆生物技术开发有限公司)。

尾等情况。由于主观评价易受个人因素影响, 所以采用盲法求平均分的方法, 即请多名非本课题组但具相关专业知识的

参考文献

- [1] 李时珍. 本草纲目: 校点本[M]. 北京: 人民卫生出版社, 1977: 1 045.
- [2] 刘爽, 江蔚新, 吴斌. 黄蜀葵花化学成分及药理活性研究进展[J]. 中国现代中药, 2010, 12(8): 5.
- [3] 王柏强, 刘福, 江承平, 等. 正交试验优选杜仲叶滴丸的成

型工艺[J]. 中国药房, 2012, 23(7): 616.

- [4] 王捧英, 陈琳, 武朝阳, 等. 固体分散技术制备人参强心滴丸的最佳工艺研究[J]. 中国医药导报, 2012, 9(9): 105
- [5] 国家药典委员会. 中华人民共和国药典: 一部[S]. 2010 年版. 北京: 中国医药科技出版社, 2010: 附录 10.
- [6] 钱一鑫, 康冀川, 何珺. HPLC 测定银杏黄酮苷元固体分散体胶囊剂的含量[J]. 中国现代应用药学, 2010, 27(8): 723.
- [7] 王聪, 高永良. 固体分散技术增溶的新工艺研究进展[J]. 现代生物医学进展, 2010, 16(10): 3 145.

(收稿日期: 2013-01-09 修回日期: 2013-04-02)

* 副研究员。研究方向: 中药制剂与新剂型。电话: 027-68889065。

E-mail: zch_yu@126.com

1.2 中药饮片

广玉兰种籽(上海得高实业有限公司,批号:201112151)。

1.3 试剂

正己烷、石油醚(30~60℃,分析纯,天津市森达化工产品销售有限公司)。

2 方法与结果

2.1 广玉兰种籽油超声提取工艺流程

广玉兰种籽→干燥→粉碎→超声提取→抽滤→提取液→真空浓缩→广玉兰种籽油。准确称取5g粉碎(过20目筛)的广玉兰种籽粉末,装入250ml磨口烧瓶中,以石油醚(沸程:30~60℃)为提取溶剂,超声提取,滤过,残渣再提取1次,合并滤液,低温真空浓缩,即得广玉兰种籽油。按下式计算广玉兰种籽油得率: $Y=m_1/m_2 \times 100\%$ (式中:Y为得油率, m_1 为广玉兰种籽油质量, m_2 为广玉兰种籽粉末质量)。

2.2 溶剂的选择

常用的提取溶剂主要是正己烷和石油醚^[7]。由预试验可知,正己烷和石油醚对广玉兰种籽油的得油率影响不大,而正己烷价格却是石油醚价格的3倍,成本较高。综合分析,故最终选择石油醚(沸程:30~60℃)为广玉兰种籽油的提取溶剂。

2.3 单因素试验

2.3.1 广玉兰种籽粒度对得油率的影响^[8] 固定液固比20:1(ml/g),超声提取时间20min,温度30℃,提取2次,研究不同广玉兰种籽粒度对得油率的影响,结果见图1。

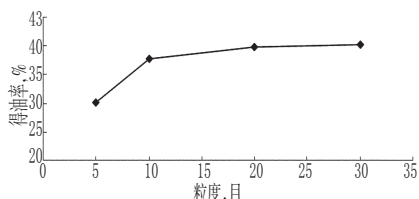


图1 不同广玉兰种籽粒度对得油率的影响

Fig 1 Effects of different granularity of *M. grandiflora* seeds on the yield of oil

由图1可知,得油率随着广玉兰种籽粒度减小而增大,当广玉兰种籽的粉碎粒度为10~30目时,得油率增长趋势趋于平滑,在这个范围内对得油率影响较小,因此选择粒度为20目较佳。

2.3.2 超声时间对广玉兰种籽得油率的影响 设定广玉兰种籽粒度为20目,液固比20:1(ml/g),超声温度30℃,提取2次,考察不同超声时间对得油率的影响,结果见图2。

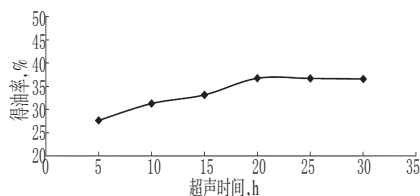


图2 超声时间对得油率的影响

Fig 2 Effects of ultrasonic time on the yield of oil

由图2可知,得油率随着超声时间的延长而增大,但超声时间超过20min则得油率增加幅度较小,增长缓慢,这是因为20min时提取过程已达到了一个动态平衡,故超声时间选择

20min为宜。

2.3.3 液固比对广玉兰种籽得油率的影响 设定广玉兰种籽粒度为20目,超声温度30℃,超声时间20min,提取2次,考察液固比对得油率的影响,结果见图3。

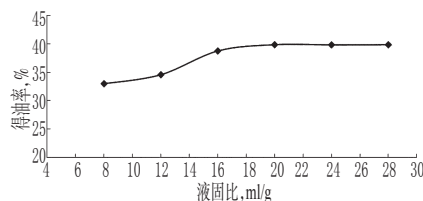


图3 不同液固比对得油率的影响

Fig 3 Effects of different ratio of liquid to solid on the yield of oil

由图3可知,在液固比(8~20):1(ml/g)范围内,随着提取剂用量的增加,得油率明显增大,这是因为对于一定质量的广玉兰种籽粉末,溶剂用量的增加降低了广玉兰种籽油的浓度,增加了原料与溶剂接触面的浓度差,从而提高了油脂与溶剂的扩散速度,得油率增加;但液料比超过20:1(ml/g)时,广玉兰种籽中的绝大部分油已被溶解出来,得油率增加缓慢。从经济角度考虑,选择液固比20:1(ml/g)较为合适。

2.3.4 超声温度对广玉兰种籽得油率的影响 设定广玉兰种籽粒度为20目,液固比20:1(ml/g),超声时间20min,提取3次,考察不同超声温度对得油率的影响,结果见图4。

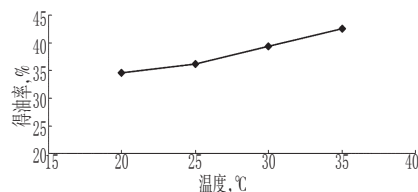


图4 不同超声温度对得油率的影响

Fig 4 Effects of different ultrasonic temperatures on the yield of oil

由图4可知,随着温度的上升得油率增加。但是,考虑到广玉兰种籽油中所含单氧甲基、厚朴酚、油酸、亚油酸等活性成分,温度过高易被氧化,因此超声温度不宜过高,低于50℃以下较适宜。

2.4 响应面法优选提取工艺

2.4.1 试验设计 在单因素试验基础上,选择液固比(A)、超声温度(B)、超声时间(C)为自变量,并以自变量的编码值+1、0、-1分别代表自变量的高、中、低水平,以得油率为响应值(Y),利用响应面法优选工艺。因素与水平见表1。

表1 因素与水平

Tab 1 Factors and levels

水平	因素		
	A, ml/g	B, °C	C, h
-1	10:1	30	20
0	20:1	40	30
+1	30:1	50	40

2.4.2 试验结果与分析 称取广玉兰种籽适量,按表1安排进行试验,响应面法试验设计与结果见表2。

表2 响应面设计与结果

Tab 2 Design and results of response surfaces test

试验号	A, ml/g	B, °C	C, h	Y, %
1	30	30	30	31.67
2	10	50	30	35.68
3	20	40	30	38.33
4	30	40	40	38.41
5	20	40	30	38.28
6	20	40	30	38.06
7	20	50	40	38.45
8	30	50	30	38.56
9	30	40	20	37.85
10	10	40	20	33.64
11	20	40	30	38.31
12	10	30	30	28.86
13	20	50	20	38.35
14	20	30	40	32.31
15	20	30	20	29.87
16	20	40	30	38.31
17	10	40	40	34.65

利用 Design Expert 8.0.5b 软件对表 2 数据进行多元回归拟合,得到多元二次回归模型: $Y = -47.23 + 0.83A + 2.91B + 0.63C + 1.75 \times 10^{-4}AB - 1.125 \times 10^{-3}AC - 5.85 \times 10^{-3}BC - 0.016A^2 - 0.0298B^2 - 5.34 \times 10^{-3}C^2$ ($r = 0.9974$), 其校定系数 ($Adj R^2 = 0.9884$), 说明该模型拟合度良好, 试验误差小, 可用此模型对广玉兰种籽油提取进行分析和预测。方差分析结果见表 3。

表3 方差分析结果

Tab 3 Results of analysis of variance

方差来源	平方和	自由度	均方	F	P
Model	180.01	9	20.00	151.98	<0.0001
A	23.32	1	23.32	177.24	<0.0001
B	100.32	1	100.32	762.33	<0.0001
C	2.11	1	2.11	16.04	0.0052
AB	1.225×10^{-3}	1	1.225×10^{-3}	9.308×10^{-3}	0.9258
AC	0.051	1	0.051	0.38	0.5548
BC	1.37	1	1.37	10.40	0.0145
A ²	10.60	1	10.60	80.53	<0.0001
B ²	37.37	1	37.37	283.94	<0.0001
C ²	1.20	1	1.20	9.12	0.0194
残差	0.92	7	0.13		
失拟性	0.87	3	0.29	23.10	0.0055
纯误差	0.050	4	0.013		
总差	180.93	16			

由表 3 可知, 在本试验设定的区域范围内, 液固比和超声温度对广玉兰种籽得油率有极显著性影响, 超声时间对广玉兰种籽得油率有显著性影响, 超声温度和超声时间的交互对广玉兰种籽得油率有显著影响, 其二次项中的 A²、B² 的偏回归系数达极显著水平, C² 的偏回归系数达显著水平, 其他交互项中 AB、AC 的偏回归系数均未达到显著水平。回归方程失拟检验显著, 说明未知因素对试验结果干扰很小, 即可表明该方程与实际情况拟合很好, 较好地反映了广玉兰种籽得油率与液固比、超声温度和超声时间的关系, 因此所得的回归方程能较好地预测广玉兰种籽得油率随各参数的变化规律。

2.4.3 RSM 优化和预测 根据二次多项式模型, 应用 Design-Expert 8.0.5b 软件绘制三维效应曲面图(其余自变量设为中心点值)及等高线图, 分别见图 5~图 7。

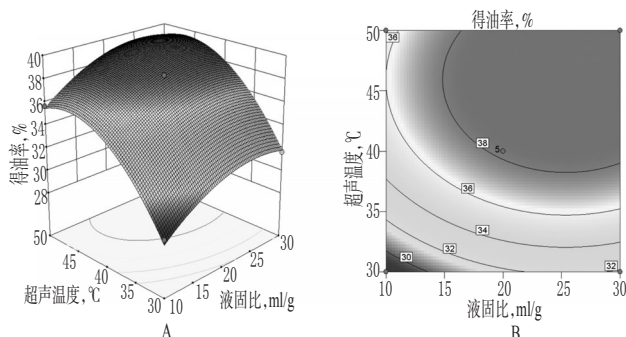


图5 液固比和超声温度对得油率的影响(超声时间为 30 min) A. 三维效应曲面图; B. 等高线图

Fig 5 Effects of ratio of liquid to solid and ultrasonic temperature on oil yield (ultrasonic temperature at 30 min)

A. three-dimensional response surface; B. contour map

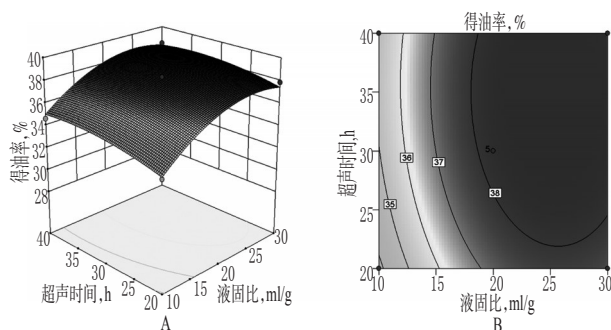


图6 液固比和超声时间对得油率的影响(超声温度为 40 °C) A. 三维效应曲面图; B. 等高线图

Fig 6 Effects of ratio of liquid to solid and ultrasonic temperature on oil yield (ultrasonic temperature at 40 °C)

A. three-dimensional response surface; B. contour map

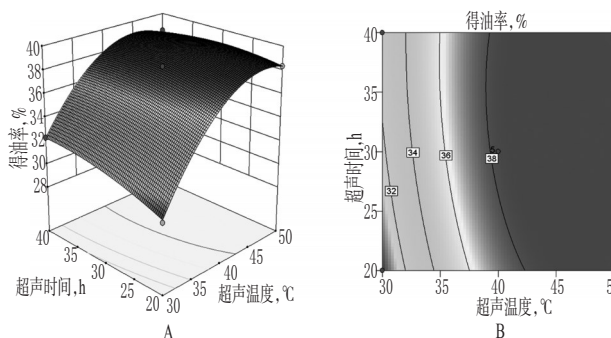


图7 超声温度和超声时间对得油率的影响(液固比为 20:1, ml/g) A. 三维效应曲面图; B. 等高线图

Fig 7 Effects of ultrasonic time and ultrasonic temperature on oil yield (ratio of liquid to solid 20:1, ml/g)

A. three-dimensional response surface; B. contour map

根据图 5~图 7, 并对回归模型进行预测分析, 最优超声提取广玉兰种籽油的工艺条件为液固比 25.39:1 (ml/g), 超声温度为 45.85 °C, 超声时间为 31.05 min, 此时广玉兰种籽的得油率可达 39.78%。考虑到实际操作的可行性, 同时又达到节省时间与能耗的目的, 将广玉兰种籽油的提取工艺修正为液固

比25:1(ml/g),超声时间为30 min,超声温度为40℃。

2.4.4 工艺验证试验 称取广玉兰种籽适量,按上述选取的工艺进行3次平行试验,并计算得油率。结果,平均得油率为39.72%,RSD=0.368%(n=3),偏差率=(39.78-39.72)/39.78=0.15%。表明所建立的数学模型具有良好的预测性,利用BSM法优化得到的广玉兰种籽油提取工艺真实、可靠、重现性好,具有实用价值。工艺验证试验结果见表4。

表4 工艺验证试验结果

Tab 4 Results of validation tests

试验号	得油率,%	平均得油率,%	RSD,%
1	39.75		
2	39.68	39.72	0.368
3	39.73		

3 讨论

笔者曾考察了超声功率和超声频率以及超声次数对超声提取工艺的影响。结果表明,当超声温度达到一定值时,广玉兰种籽的得油率最高;另一方面,随着超声温度的提高,热力学运动加快,有利于药材有效物质的溶出,但考虑到广玉兰种籽油中成分的特性,因此选择超声温度为40℃。超声提取3次时,得油率较前2次低,考虑到成本因素,选择超声2次为宜。

RSM法作为一种有效的试验设计方法,近年逐步应用于中药提取工艺的优化^[9]。它可进行多因素、多水平以及各因素间的交互作用研究,并根据综合指标得到最优化的工艺结果,这种方法显示出较其他设计方法更多的优势。笔者采用此法优选广玉兰种籽油的超声提取工艺,并建立了广玉兰种籽得油率与液固比、超声温度和超声时间关系的回归模型,经验证该模型是合理的,能够较好地预测超声辅助提取广玉兰种籽的得油率,从而获得最优的工艺参数,能有效减少工艺操作的

盲目性,从而为进一步的试验研究奠定基础。

参考文献

- [1] 张应焯,龙婉婉,尹彩萍.21种植物花提取物抑菌活性的筛选研究[J].河南农业科学,2005,34(8):60.
- [2] 张倩,唐娜娜,于海林,等.广玉兰实脂果脂肪酸成分的GC-MS分析[J].河南大学学报:医学版,2009,28(2):101.
- [3] Fadav IA, Barzega M, Mohammad HA. Determination of fatty acids and total lipid content in oil seed of 25 pomegranates varieties grown in Iran[J]. *J Food Compos Anal*, 2006,19(9):676.
- [4] 胡爱军,丘泰球.物理场强化萃取新技术及应用[J].安徽化工,2002,115(1):26.
- [5] Li QH, Fu CL. Application of response surface methodology forextraction optimization of germinant pu-mpkin seeds protein[J]. *Food Chemistry*,2005,92(4):701.
- [6] 茆诗松,王静龙,史定华,等.统计手册[M].北京:科学出版社,2003:78.
- [7] 于文景,于平.油脂制取加工技术、工艺流程、质量检测与生产管理、包装储藏实务全书[M].北京:金版电子出版公司,2000:1308-1373,1412-1463.
- [8] 张峰,仇农学.响应面法优化超声波辅助提取辣椒籽油及脂肪酸组成分析[J].中国油脂,2008,33(4):30.
- [9] 徐金龙,张红梅,徐秀泉.响应面分析法优化牡丹皮中总黄酮的提取工艺[J].中国药房,2011,22(27):2536.

(收稿日期:2012-12-03 修回日期:2013-02-21)

国家卫生和计划生育委员会副主任王国强强调:要加快中医药行业协同创新步伐

本刊讯 2013年11月16日,以“新成果、新进展、新突破”为主题的中华中医药学会2013年学术年会在京举行。国家卫生和计划生育委员会副主任、国家中医药管理局局长、中华中医药学会会长王国强在讲话中指出,要充分认识中医药协同创新的重大战略意义,准确把握中医药协同创新的机遇与挑战,进一步明确中医药协同创新的目标与任务,加快中医药行业协同创新步伐。

全国政协副主席、农工党中央常务副主席刘晓峰,中国科协副主席、党组副书记、书记处书记程东红,中国工程院副院长樊代明院士,国医大师路志正,国家中医药管理局副局长、中国中医科学院党委书记王志勇,中国中医科学院院长、天津中医药大学校长张伯礼院士等出席,国家中医药管理局副局长、中华中医药学会副会长马建中主持会议。

王国强指出,在党的“十八届三中全会”上,中央进一步明确了“加快建设创新型国家”的战略任务。协同创新作为深化科技体制改革的重要举措,有助于提升创新系统的效率。协同创新对促进中医药事业发展同样具有重大意义。协同创新是满足人民群众不断增长的医疗保健需求的有效保障,是提

升中医药自主创新能力的的重要途径,是推动中医药产业快速发展的内在动力,是提高中医药国际竞争力的关键环节。

近年来,中医药科研机构打破围墙,整合资源,在全国范围内开展了国家中医临床研究基地建设;初步构建了中医药防治传染病临床科研体系;创新建设了以稳定科技人才和聚焦研究方向为核心的中医药重点研究室;将17种重大疑难疾病、63种常见病的防治研究成果以及200多项规范的实用技术能够直接服务于临床诊疗工作;围绕中药研发和产业全过程中解决了一批技术难点和瓶颈问题,促进了中药产业转型升级。但是,缺乏协同动力、缺乏组织经验、缺乏政策支持等问题制约着协同创新向更广的范围、更深的领域发展。

王国强强调,要进一步明确中医药协同创新的目标与任务,通过多个主体的协同作用和资源共享,产生整体大于部分的协同效应,实现创新价值的最大化,为加快中医药行业协同创新的步伐,要以需求为导向,加强顶层设计;打破壁垒,创建战略联合体;优化资源配置,推进制度创新;发挥学术团体优势,培育中介机构。