

响应曲面法优化微波辅助萃取橙皮精油的工艺研究

毛婷, 董静, 龚丽, 陈茜茜, 彭燕

(西华大学生物工程学院, 四川成都 610039)

摘要: 本文研究了微波辅助正己烷法萃取橙皮中的橙皮精油, 并用响应曲面法对工艺进行了优化。通过单因素试验确定了编码参数, 采用响应曲面法考察了萃取时间、萃取温度、萃取剂用量对橙皮精油萃取得率的影响。结果表明微波辅助正己烷法萃取橙皮精油的最佳工艺条件为: 萃取时间 7 min、萃取温度 57 °C、萃取剂用量为 275 mL, 在此条件下橙皮精油的得率最高, 为 2.221%。

关键词: 微波辅助萃取; 正己烷; 橙皮精油; 响应曲面法

文章编号: 1673-9078(2011)1-84-86

Response Surface Analysis for Optimizing Microwave-assisted n-Hexane

Extraction of Essence Oil from Orange Peel

MAO Ting, DONG Jing, GONG Li, CHEN Qian-qian, PENG Yan

(School of Bioengineering, Xihua University, Chengdu 610039, China)

Abstract: The response surface methodology (RSM) was adopted to optimize the microwave-assisted n-Hexane extraction of essence oil from orange peel. By single factor test, the impacts of extraction time, extraction temperature and the dose of extraction agent on extraction rate of total essence oil from orange peel were investigated. The results showed that the optimal microwave-assisted n-Hexane extraction conditions for essence oil from orange peel were as follows: extracting time 7 min, temperature 57 °C and the dose of extraction agent 275 mL. Under those conditions, the maximum value of the extraction rate was up to 2.221%.

Key words: microwave-assisted extraction; n-Hexane; orange peel essential oil; response surface methodology

橙皮精油是重要的化工及医学原料。研究表明, 橙皮油具有祛痰、止咳、促进肠胃蠕动、促进消化液分泌、镇痛、溶解胆结石及消炎抗菌等作用。而现实中橙皮作为垃圾被人家丢弃, 而忽视了其珍贵的价值, 从橙皮中萃取橙皮油就是一种变废为宝、资源再生, 符合当前循环经济的需要。而从新鲜甜橙、甜橙汁和甜橙皮制备甜橙精油, 常规方法通常有冷榨和蒸馏两种方法, 得率只占全果的 0.4%~0.7%^[1], 而用微波辅助萃取橙皮精油的方法却鲜有报道。

微波辐射法(即微波辅助诱导萃取法)^[2]是近年发展的从天然物中萃取香料的一种新技术, 是利用一种波长极短、频率很高的辐射能来加热物料达到萃取目的的方法^[3]。与传统的萃取方法如回流萃取、有机溶剂萃取等方法比较, 微波萃取技术具有操作简便、节省溶剂、快速高效、节能、省时等优点, 已被广泛应用于各种天然活性成分的萃取^[4]。本实验将微波辅助萃取技术应用于橙皮精油的萃取工艺研究, 通过响应

曲面法设计试验, 探求微波辅助正己烷萃取橙皮精油的最佳工艺条件, 为其工业化生产和利用提供实验数据。

1 材料与方法

1.1 材料与仪器

原料: 新鲜夏橙皮洗净干燥后粉碎过 100 目筛;

试剂: 正己烷、95%乙醇、石油醚(沸程 60-90 °C)、乙酸乙酯、异丙醇及其他试剂均为分析纯;

仪器: DHG-9075A 型电热恒温鼓风干燥箱(上海一恒); ZN-200A 型高速中药粉碎机(中南制药); 电子天平(北京赛多利斯); MAS-II 型微波萃取仪(上海信义); SHZ-D(III)型循环水式真空泵(浙江黄岩求精); RE-52B 型旋转蒸发器(上海亚荣)。

1.2 实验方法

1.2.1 得油率的测定

称取 10 g 橙皮粉末, 置于 500 mL 三口烧瓶中, 再加入 200 mL 萃取液, 放入搅拌子, 转速调至中速, 在萃取温度 60 °C、微波功率 300 W 条件下, 置于 MAS-II 型微波萃取仪中萃取 5 min。然后通过抽滤从

收稿日期: 2010-10-08

基金项目: 西华大学“西华杯”学生科技基金项目资助(20100365)

作者简介: 毛婷(1989-), 女, 在读本科

萃取相中分离残渣。用旋转蒸发器蒸馏，收集馏分，分离出萃取物和萃取介质，并回收利用萃取介质，得到精油产品。

称重，按下式计算得油率。分别改变萃取时间，萃取温度，萃取剂等因素，确定最佳萃取条件。

$$\text{得油率} = (\text{精油产量}(\text{g}) \div \text{橙皮粉末质量}(\text{g})) \times 100\%$$

1.2.2 Box-Behnken 实验设计

采用实验设计软件Design - Expert7.0, 采用响应曲面设计中的Box - Behnken设计模型，以萃取时间、萃取温度、萃取剂剂量为自变量，根据前期单因素试验结果，试验自变量因素编码及水平见表1^[5]。自变量的编码值1、0、-1分别代表自变量的高、中、低水平。橙皮油得率为响应值，由Y表示。

表1 橙皮精油萃取条件优化因素水平

Table 1 Factors and levels in the Box-Behnken experimental design for optimizing the extraction rate of orange essential oil

水平	-1	0	+1
X ₁ (萃取时间/min)	1	8	15
X ₂ (萃取温度/°C)	45	55	65
X ₃ (萃取剂剂量/mL)	100	200	300

2 结果与讨论^[6-7]

表2 橙皮精油得率优化实验设计与结果

Table 2 Arrangement and experimental results of the Box-Behnken experimental design for optimizing the extraction rate of orange essential oil

实验编号	X ₁	X ₂	X ₃	橙皮油得率/%
1	0	0	0	2.234
2	+1	0	-1	1.950
3	0	-1	+1	2.046
4	0	0	0	2.177
5	0	+1	-1	1.773
6	+1	-1	+1	1.999
7	0	-1	-1	2.027
8	+1	0	+1	2.162
9	0	0	0	2.170
10	+1	+1	0	2.015
11	-1	0	-1	1.921
12	0	0	+1	2.193
13	0	0	0	2.172
14	-1	+1	0	2.071
15	-1	-1	0	1.991
16	0	+1	+1	2.131
17	-1	0	+1	2.159

利用实验设计软件Design-Expert 7.0, 采用响应曲面设计中的Box-Behnken设计，进行了17个吸附试验，试验结果见表2。

对表2 试验数据进行回归拟合，得到橙皮油的得率对以上三个因素的二次多项回归模型为：

$$EY(\%) = 2.19 - 2.000E-003X_1 - 9.125E-003X_2 + 0.10X_3 - 0.016X_1X_2 - 6.500E-003X_1X_3 + 0.085X_2X_3 - 0.058X_1^2 - 0.11X_2^2 - 0.083X_3^2$$

从方程的方差分析可知，实验所选用模型 P 值为 0.0013 < 0.01, 表示该模型方程极显著，不同处理间的差异高度显著，说明这种实验方法是准确可靠的。决定系数 R² = 0.9445, R² 越接近 1, 说明此模型越能预测其响应值，本实验 R² 为 0.9445, 说明响应值的变化有 94.45% 来源于所选变量，该方程拟合情况合理可靠。

响应面图形是响应值对各试验因子 X₁、X₂、X₃ 所构成的三维空间的曲面图，从响应面分析图上形象地看出最佳参数及各参数之间的相互作用。当特征值均为正值时，响应面分析图为山谷形曲面，有极小值存在；当特征值为负值时，为山丘曲面，有极大值存在；当特征值有正有负时，为马鞍形曲面，无极值存在^[8]，下面是根据回归方程作出不同因子的响应面分析。

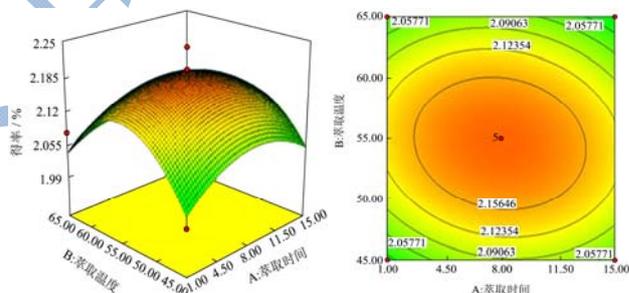


图1 萃取时间与萃取温度对橙皮油得率的响应面图和等高线

Fig.1 Three-dimensional response surface graphs and the contour plots showing combined effects of extraction temperature and time on the yield of orange essential oil

图1 显示在萃取剂水平为0，即萃取剂为200 mL时，萃取时间与萃取温度对橙皮油得率的交互影响效应。等高线的形状反映了交互效应的强弱大小，圆形表示两因素交互作用不显著，而椭圆形或马鞍形则表示两因素交互作用显著^[9]。由图1可知，在萃取剂为200 mL时，萃取时间与萃取温度对橙皮油得率的交互效应显著。萃取温度高有助于橙皮油的萃取，表现为曲线较陡，且随着温度升高橙皮油得率升高，但当达到一定温度继续升温时橙皮油得率反而下降，说明过高过低的温度均不适合橙皮油的萃取。另一方面萃取时间对橙皮油得率影响在图中也表现为曲线较为陡

峭,当萃取时间达到一定值时获得得率最高,时间过长或过短对橙皮油萃取都不利。

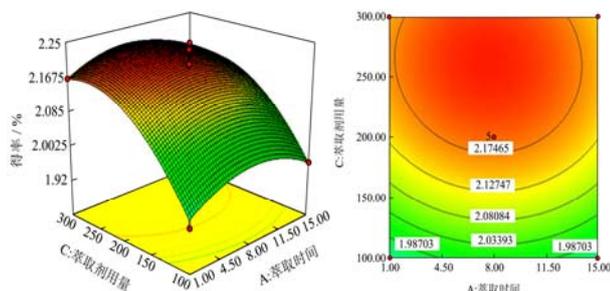


图2 萃取时间与萃取剂用量对橙皮油得率的响应面图和等高线

Fig.2 Three-dimensional response surface graphs and the contour plots showing combined effects of extraction time and extraction reagent dosage on the yield of orange essential oil

图2显示在萃取温度水平为0,即55℃时,萃取时间与萃取剂用量的交互影响效应。由图可知,萃取时间与萃取剂用量的交互效应显著。萃取剂用量曲线在图中表现为较陡,且较高的萃取剂用量有利于橙皮油的萃取,但是当萃取剂用量达到一定值时增加萃取剂用量对橙皮油得率影响较小。

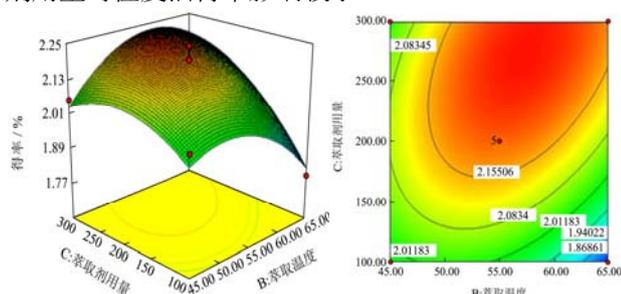


图3 萃取温度与萃取剂用量对橙皮油得率的响应面图和等高线

Fig.3 Three-dimensional response surface graphs and the contour plots showing combined effects of extraction time and extraction reagent dosage on the yield of orange essential oil

图3显示在萃取时间水平为0,即5min时,萃取温度与萃取剂用量的交互影响效应。在萃取时间为5min时,萃取温度与萃取剂用量对橙皮油得率的交互效应显著。在萃取时间一定的情况下,较高的萃取剂用量有助于橙皮油的萃取,表现为曲线较陡。而萃取温度对橙皮油的萃取影响也较大,图中也表现为曲线较陡,先随着温度升高,橙皮油得率升高,但当温度上升到一定高度时橙皮油得率反而下降,进一步说明了过高过低的温度均不适合橙皮油的萃取。

对回归方程求导,并令其等于零,可以得到曲面的最大点,即3个主要因素的最佳水平值,转换得到橙皮精油萃取的最佳条件为萃取时间7.35min,萃取温度57.51℃,萃取剂用量275.42mL,在此条件下橙皮油得率的理论值为2.22718%。为检验响应曲面法

所得结果的可靠性,采用上述优化萃取条件进行橙皮精油的萃取,考虑到实际操作的便利,将提取工艺参数修正为萃取时间7min、萃取温度57℃、萃取剂用量275mL,5次平行实验得到的橙皮油得率分别为:2.219%、2.223%、2.221%、2.225%、2.217%,平均得率为2.221%,其相对误差不到1%,因此基于响应曲面法所得的优化提取工艺参数准确可靠,得到的橙皮油萃取条件具有实际应用价值。

3 结论

应用实验设计软件Design-Expert7.0,采用响应曲面设计中的Box-Behnken设计,利用模型的响应面及等高线对萃取时间、萃取温度、萃取剂剂量三个自变量相互作用进行探讨,确定了三个变量的最佳水平范围,优化出微波辅助正己烷萃取橙皮精油的最佳工艺条件为:萃取时间7min、萃取温度57℃、萃取剂用量为275mL。此时橙皮精油的得率高达2.221%。

参考文献:

- [1] 中国化工百科全书编写组.中国化工百科全书[M].第二卷.北京:化学工业出版社.1994
- [2] 纪鹏,周建平,刘向宇.微波辅助水代法提取油茶籽油条件研究[J].现代食品科技,2010,26(5):486-489
- [3] 张彩文.取在天然产物化学成分萃取中的应用研究[J].口师范学院学报,2008,5:76-79
- [4] 谢明勇,陈奕.微波辅助萃取技术研究进展[J].食品与生物技术学报,2006,25(1):105-114
- [5] 谢贞建,赵超群,邹联柱等.普尔茶多酚的萃取及抗氧化作用[J].食品与机械.2009,25(1):64-67
- [6] 秦义,师俊玲,樊明涛,等.富锌灵芝液体种子培养条件的优化[J].西北农业学报.2007,16(1):153-156
- [7] Walid A. Lotfy, Khaled M. Ghanem, Ehab R. Citric acid production by a novel *Aspergillus niger* isolate: II. Optimization of process parameters through statistical experimental designs [J]. Bio-resource Technology, 2006, 11: 32-40
- [8] GUPTA S, MANOHAR C S. An improved response surface method for the determination of failure probability and importance measures [J]. Structural Safety, 2004, 26: 123-139
- [9] Muralidhar R V, chirmamila R R, Merchant R. Response surface approach for the comparison of lipase production by *Candida* using two different carbon sources [J]. Biochemistry Engineering Journal, 2001, 9: 17-23