

正交实验法优选枳实药材挥发油提取工艺

★ 江巍¹ 吴耀² 龚建平³ 官扬¹ 简晖^{1,3*} (1. 江西中医学院 南昌 330009; 2. 江西省南昌市湾里区卫生监督所 南昌 330004; 3. 中药固体制剂制造技术国家工程研究中心 南昌 330006)

摘要:目的:研究枳实和白术药材挥发油的最佳提取工艺。方法:采用比较法和正交试验法对挥发油提取工艺进行考察,以挥发油得率为指标进行测定。结果:合提较单提出油速度略快、得率略高;提取工艺以粗粉、10倍量水、提取6h,挥发油得率最高,浸泡时间随实际情况而定。结论:此工艺对挥发油的提取率高,稳定性好,适合工业生产。

关键词:枳实;挥发油;正交试验

中图分类号:R 284.2 **文献标识码:**A

Optimize the Extraction Process for the Volatile Oil from Citrus Aurantium and Atractylodes by Orthogonal Design

JIANG Wei¹, WU Yao², GONG Jian-ping³, ZHANG Guo-song³, JIAN Hui^{1,3}

1. National Pharmaceutical Engineering Center for Solid Preparation in Chinese Herbal Medicine, Nanchang 330006

2. Health Monitor Department of Wanli Section, Nanchang City, Jiangxi Province, Nanchang 330004

3. Jiangxi University of Traditional Chinese Medicine, Nanchang 330006

Abstract: Object: to determine the optimum condition of extraction processes of volatile oil from Citrus aurantium and Atractylodes. Methods: the extraction processes were studied with the comparison method and potentiometric method, and the contents of extraction rate of volatile oils as the markers. Results: compared with single extracting, the extracting speed and extraction rate of volatile oils of composite extracting is faster and higher. the contents of extraction rate of volatile oils were the highest when the following extraction condition was used: extracting with coarse power and 10 times solvent (water) per-time, boiling once, 6 hours, and the immersion time followed by practical situation. Conclusion: The contents of extraction rate of volatile oils are high and the stability is good when this extraction process is used. This extraction process is suitable for industrial production.

Key words: Citrus aurantium and Atractylodes; Volatile oil; Orthogonal test

枳实和白术富含挥发油,分别为0.2%~1.8%^[1]和1.3%^[2]。其中,枳实挥发油主要成分为d-柠檬烯约41.2%、枸橼醛、d-芳香醇和邻氨基苯甲酸甲酯等,是其破气消积、化痰散痞的有效成分之一;白术挥发油主要成分为苍术酮、苍术醇、白术内酯A、B等,是健脾益气、治疗便秘的主要成分。为保证挥发油成分提取完全,我们对其提取工艺进行了研究,现报道如下。

1 材料、仪器和药品

所用药材均购自江西樟树,经鉴定均为《中国药典》2005年版和江西省药材标准收载品种。挥发油提取器,江苏启东市吕四玻璃厂;所用试剂均为分析纯,符合《中国药典》标准。

2 方法与结果

2.1 挥发油提取方法的确定

2.1.1 单提与合提挥发油出油率比较 取粉碎后的枳实、白术药材各200g,单提。另取枳实100g、白术200g,混匀,

用来合提。取以上3份样品,分别加8倍量水,水蒸气蒸馏法提取挥发油9h,比较各时间点出油率。结果见表1和图1。

表1 单提与合提挥发油出油率比较

出油率 / $\mu\text{L}\cdot\text{g}^{-1}$ ($n=3$)	时间/h							
	1	2	3	4	5	6	7	9
枳实单提	9.4	11.1	12.5	13.6	14.1	14.5	14.6	14.6
白术单提	3.7	5.7	7.1	7.7	8.3	8.6	8.8	8.9
单提累积 出油率	5.6	7.5	8.7	9.6	10.2	10.5	10.7	10.9
合提	5.7	7.9	9.2	9.8	10.4	10.9	11.1	11.2

出油率($\mu\text{L/g}$) = 得油体积(μL) / 加入药材质量(g)

2.1.2 单提与合提挥发油成分比较 分别取2.1.1项下挥发油100 μL 用乙酸乙酯定容至5ml量瓶中,作为样品溶液。照薄层色谱法(中国药典2005年版附录VIB)试验,吸取样

* 通讯作者:简晖, E-mail: jianhui126@126.com.

品溶液各 10 μl 分别点样于同一以羧甲基纤维素钠为黏合剂的硅胶 G 薄层板上,以石油醚(60~90 $^{\circ}\text{C}$): 乙酸乙酯(8.8:1.2)为展开剂展开,取出,晾干,喷以 10% 硫酸乙醇溶液,105 $^{\circ}\text{C}$ 烘 7 min,在紫外灯光(365 nm)下检视。观察发现枳实和白术挥发油薄层行为有一定差异,各自具有特征斑点;合提挥发油样品中枳实、白术主要斑点均可见,且无其他异常斑点出现。白术、枳实单提挥发油色谱中,分别在合提挥发油色谱相应的位置处显相同颜色的荧光斑点。说明合提可将枳实和白术挥发油提取出来,且化学成分未发生改变。

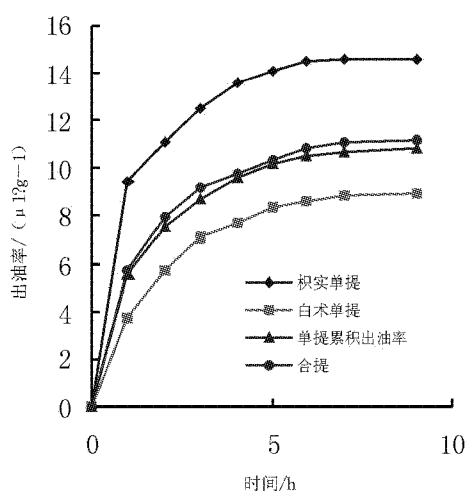


图1 单提、合提累积出油率比较

2.1.3 挥发油提取方法的确定 从以上试验结果可以看出,合提与单提挥发油出油率相近,合提可将枳实和白术挥发油提取出来,且化学成分未发生改变。见图 1 和图 2。单提枳实挥发油出油较快、较多,约为 1.41%;然白术出油率却与文献报道(1.3%)^[2]相差较大,可能与不同产地、采收季节等因素有关。综合比较合提与单提出油率可知,合提较单提出油速度略快、得率略高。

2.2 提取工艺参数的优选

2.2.1 正交试验设计 根据文献报道和预试验结果,以挥发油得率为评定指标,浸泡时间、粉碎粒度、加水量和蒸馏时间为考察因素,选用 $L_9(3^4)$ 正交表安排试验。见表 2。其中粗粉粉碎粒度为 20 目,颗粒直径为 1~3 mm。

表2 因素水平表

水平	因素			
	A 浸泡时间/min	B 粉碎粒度	C 加水量/倍	D 蒸馏时间/h
1	30	饮片	6	4
2	60	颗粒	8	5
3	90	粗粉	10	6

2.2.2 试验方法 按表 3 安排试验,每次试验样品按处方比例枳实:白术=1:2取样,取样量为 300 g。参照挥发油测定法(《中国药典》2005 年版一部附录 XD 甲法),水蒸气蒸馏法提取。

2.2.3 数据分析 表 3 中极差直观分析可知,各因素对挥发油提取量的影响大小为: $B > D > C > A$, 因素 A 的影响最小,所以方差分析时可以先忽略因素 A。直观分析得最佳工艺组合为: $B_3 C_3 D_3$ 。由方差分析可知,颗粒度有显著影响,提

取时间和加水量影响并不显著。综合考虑,确定最优工艺条件为:颗粒粉碎到粗粉,10 倍量水,提取 6 h。由于浸泡时间对提取结果影响不大,因此生产上可以根据实际情况选取适宜的浸泡时间。

表3 正交试验结果

试验号	因素				挥发油得率 / $\text{ml} \cdot \text{g}^{-1}$ ($n=3$)
	A	B	C	D	
1	1	1	1	1	0.24%
2	1	2	2	2	0.74%
3	1	3	3	3	1.25%
4	2	1	2	3	0.32%
5	2	2	3	1	0.56%
6	2	3	1	2	1.21%
7	3	1	3	2	0.26%
8	3	2	1	3	0.74%
9	3	3	2	1	1.21%
K_1	2.23	0.82	2.20	2.01	
K_2	2.09	2.04	2.26	2.21	
K_3	2.21	3.67	2.07	2.31	
R	0.14	2.85	0.19	0.30	

表4 方差分析表

方差来源	离均差平方和(SS)	自由度(v)	方差(MS)	F 值	P
B	12.268	2	6.134	332.761	< 0.01
C	0.058	2	0.029	1.570	
D	0.136	2	0.068	3.691	
误差(e)	0.037	2	0.018		
总变异	12.499	8			

2.2.4 验证实验 称取枳实、白术药材共 3 份,每份 300 g,照优选出的工艺条件进行试验,结果挥发油得率平均值为 3.71 ml, RSD 为 1.97%。证明该工艺合理可行。

3 讨论

(1) 复方中药中含有多种含挥发油药材时,通常采用合并提取方法。本文对枳实、白术药材单提与合提进行了比较,发现合提较单提出油速度相对略快、得率略高。薄层层析法证明合提可将枳实和白术挥发油提取出来,且化学成分未发生改变。

(2) 本文研究中发现,粉碎粒度对枳实和白术挥发油的提取影响非常显著。二者合提,粉碎粒度不同,不仅出油量不同,所得挥发油颜色也不相同,肉眼观察当以饮片投料时,所得挥发油呈黄色,即白术挥发油的颜色,而以颗粒和粗粉投料时所得挥发油呈淡黄色,粗粉颜色较颗粒的还要浅。薄层层析法比较,发现混料所得挥发油中白术主斑点颜色较浅,提示合提中白术挥发油比例较低。

(3) 由本文的研究结果可以看出,不同粉碎粒度对不同药材挥发油提取的效果不同,而且复方药材的比例不同也可能造成挥发油得率不同,因此应进行深入研究,优选出最佳的工艺条件。

参考文献

- [1] 刘振丽,宋志前,张玲,等. 枳实饮片中 3 类化学成分含量测定[J]. 中国中药杂志,2006,31(17):1425-1427.
- [2] 邱琴,崔兆杰,刘廷礼,等. 白术挥发油化学成分的 GC-MS 研究[J]. 中草药,2002,33(11):980-981.

(收稿日期:2008-04-09)