

微波加压提取大黄的工艺研究

任国强¹, 刘照强², 薛 栋², 曹 旭², 刘世恩², 闫 正¹, 孙宏丽^{2*}

1. 河北大学物理科学与技术学院, 河北 保定 071002

2. 河北大学药学院, 河北 保定 071002

摘 要: 目的 采用一种微波加压萃取装置提取大黄饮片, 并优化其工艺。方法 以浸膏得率和蒽醌提取率为指标, 通过单因素和正交试验研究大黄在微波加压条件下提取的最佳工艺参数, 并与常压煎煮法、加压提取法、常压微波提取法进行比较。结果 微波加压提取大黄的最佳工艺为料液比 1:16, 操作压力 0.20 MPa, 提取时间 20 min, 浸膏得率达到 44.37%、蒽醌提取率达 2.44%。结论 微波加压提取大黄饮片浸膏得率和蒽醌提取率明显优于常压煎煮法、加压提取法、微波提取法。

关键词: 大黄; 微波加压提取; 蒽醌; 正交试验; 微波提取

中图分类号: R284.2 **文献标志码:** A **文章编号:** 0253-2670(2012)07-1336-04

Study on extraction technology of *Rhei Radix et Rhizoma* by microwave pressure

REN Guo-qiang¹, LIU Zhao-qiang², XUE Dong², CAO Xu², LIU Shi-en², YAN Zheng¹, SUN Hong-li²

1. College of Physics Science and Technology, Hebei University, Baoding 071002, China

2. College of Pharmaceutical Science, Hebei University, Baoding 071002, China

Key words: *Rhei Radix et Rhizoma*; microwave pressure extraction; anthraquinone; orthogonal test; microwave extraction

大黄为蓼科植物掌叶大黄 *Rheum palmatum* L.、唐古特大黄 *R. tanguticum* Maxim. ex Balf. 或药用大黄 *R. officinale* Baill. 的干燥根及根茎, 其主要产地为甘肃省、青海省。大黄为常用中药, 具有泻热通便、凉血解毒、逐瘀通经的功效。实验及临床研究表明, 大黄对慢性肾功能衰竭有确切的疗效^[1]。大黄的化学成分有蒽醌类衍生物, 其中游离蒽醌衍生物有大黄酸、大黄素、大黄酚、芦荟大黄素、大黄素甲醚等。

大黄的提取方法主要包括水煮醇沉法、微波提取法^[2]、超声提取法、超滤法等, 未见微波加压条件下提取大黄饮片的报道, 本实验采用专利技术^[3]研制的一款适合工业化生产的微波压力萃取中草药的设备, 微波频率为 2 450 MHz, 最大功率为 3 kW, 有效容积为 20 L, 工作压力在 0~0.4 MPa, 工作温度 <145 °C, 在此微波压力的条件下, 研究了提取大黄的工艺参数, 为今后工业化生产提供有效可靠的数据。

1 仪器与材料

自制微波压力中草药萃取样机, LS—35L 型高压灭菌锅(江阴滨江医疗设备厂), GZX—9070MBE 数显鼓风干燥箱(上海博迅实业有限公司医疗设备厂), KDM 型调温电热套(山东省鄄城光明仪器有限公司), FA2104N 电子分析天平(上海民桥精密科学仪器有限公司), 721 型分光光度计(上海菁华科技仪器有限公司)。

大黄饮片购自安国药材市场, 经河北大学药学院生药学讲师徐红欣鉴定为蓼科植物唐古特大黄 *Rheum tanguticum* Maxim. ex Balf. 的干燥根及根茎(产地为甘肃, 2010 年 3 月); 大黄素对照品(批号 110756-200110, 中国药品生物制品检定所); 甲醇、氯仿、无水硫酸钠、醋酸镁、浓硫酸均为分析纯。

2 方法与结果

2.1 微波加压提取方法

将 25.0 g 大黄饮片放入萃取装置的提取罐内, 按比例加水。加金属盖, 启动微波加热开关, 排尽

收稿日期: 2011-09-02

基金项目: 河北省科学技术厅科技支撑资助项目(10215676)

作者简介: 任国强(1963—), 男, 副教授, 专业方向为制剂设备。Tel: (0312)5079354 E-mail: Renguoqiang2007@126.com

*通讯作者 孙宏丽 Tel: (0312)2281527 E-mail: chdshl@sina.com

网络出版时间: 2012-06-19 网络出版地址: <http://www.cnki.net/kcms/detail/12.1108.R.20120619.1731.002.html>

提取罐内冷空气后密封提取罐。继续加热，提取罐内的压力升到所需的压力并保持压力至所需的时间后，切断电源。提取罐内压力自然下降，压力降到 0 MPa 时，倒出药液，趁热滤过。

2.2 制备浸膏^[4]

将“2.1”项过程滤过后得到的药液定容至 250 mL，精密吸取 10.00 mL 于恒定质量的表面皿上，水浴蒸干称定质量，放入 80 ℃干燥箱至恒定质量，计算浸膏得率。

浸膏得率 = 浸膏质量 / 药材质量

2.3 线性关系考察

精密称取大黄素对照品 50 mg 置于 50 mL 量瓶中，加甲醇定容。精密吸取大黄素对照品甲醇溶液 0.20、0.40、0.60、0.80、0.10、1.20、1.40、1.60、1.80 mL 置于 10 mL 量瓶中。50 ℃温水浴下挥发除去甲醇，冷却至室温，加入甲醇 1.00 mL，用醋酸镁-甲醇溶液定容至 10 mL。以醋酸镁-甲醇溶液为空白，在 510 nm 处测定吸光度 (A) 值，以 A 值对质量浓度进行线性回归，得回归方程 $Y=0.3487X+0.0047$ ， $r=0.99998$ ，表明大黄素在 0.20~1.80 mg/mL 线性关系良好。

2.4 提取液中总蒽醌的测定^[5]

将按“2.1”项方法提取的大黄药液定容至 100 mL，用移液管取 1.00 mL 置 50 mL 圆底烧瓶中，加入稀硫酸 10.0 mL，氯仿 8.5 mL，水浴加热回流 1 h。冷却，将圆底烧瓶内的药液移至分液漏斗中，用少量氯仿洗涤烧瓶，并入分液漏斗中，分取氯仿层。分两次各用 8.5 mL 氯仿洗涤水层，合并氯仿层，再分两次各用 10.0 mL 蒸馏水洗涤氯仿层。用 5.0 g 无水硫酸钠将氯仿层脱水，氯仿层转移至 50 mL 烧瓶中，水浴加热回收氯仿。残渣用甲醇溶解，在 10 mL 量瓶中定容，用 0.45 μ m 微孔过滤器滤过，吸取 1.00 mL 滤液于 10 mL 量瓶加醋酸镁-甲醇溶液定容，摇匀后以醋酸镁-甲醇溶液为空白，在 510 nm 处测定 A 值，计算总蒽醌的量，计算提取率。

提取率 = $C_{测} \times V_{测} / (M_{样} \times W_{蒽醌})$

$C_{测}$ 为测得的样品质量浓度； $V_{测}$ 为测定时样品定容的体积； $M_{样}$ 为 $V_{测}$ 体积中生药的质量； $W_{蒽醌}$ 为生药中蒽醌的量

2.5 单因素试验

取 25.0 g 大黄饮片，选择料液比、提取时间、提取压力为因素，以浸膏得率、蒽醌提取率为指标进行试验。

2.5.1 料液比 在压力 0.15 MPa，提取时间 20 min

条件下按不同的料液比进行大黄提取，制备浸膏，测定蒽醌的量，计算提取率，结果见表 1。随料液比增大，提取率也逐渐增高，至 1:16 最高，而后 1:20 下降，因而确定料液比为 1:16。

表 1 料液比的影响

Table 1 Influence of solid-liquid ratio

料液比	浸膏得率 / %	蒽醌提取率 / %
1:8	33.1	0.96
1:12	35.6	1.08
1:16	41.8	1.21
1:20	35.2	1.07

2.5.2 提取时间 在料液比 1:16，提取压力 0.15 MPa，提取时间 5、10、15、20、25 min 条件下进行大黄提取，制备浸膏，测定蒽醌的量，计算提取率，结果见表 2。提取时间 20 min 时提取率最高，因此选择提取时间为 20 min。

表 2 提取时间的影响

Table 2 Influence of extracting time

提取时间 / min	浸膏得率 / %	蒽醌提取率 / %
5	38.87	1.82
10	40.45	1.77
15	40.39	2.13
20	44.37	2.44
25	43.71	1.95

2.5.3 提取压力 在料液比 1:16，提取时间 20 min，分别在 0.05、0.10、0.15、0.20 MPa 条件下进行大黄提取，制备浸膏，测定蒽醌的量，计算提取率，结果见表 3。在时间、料液比一定的条件下，浸膏得率随着压力的增大而增大，在 0.15 MPa 时达到最大值，压力超过 0.15 MPa 后，增大压力，浸膏得率减小；确定提取的最佳压力为 0.15 MPa。

2.6 正交试验

根据单因素试验结果，以浸膏得率 (Y_1) 和蒽

表 3 提取压力的影响

Table 3 Influence of extracting pressure

压力 / MPa	浸膏得率 / %	蒽醌提取率 / %
0.05	33.62	1.54
0.10	38.07	1.02
0.15	43.95	2.44
0.20	43.14	2.02

酞提取率 (Y_2) 的综合评分 (综合评分 = $Y_{1i} / Y_{1\max} \times 0.4 + Y_{2i} / Y_{2\max} \times 0.6$) 为考察指标^[6], 选择对大黄提取工艺具有较大影响的料液比 (A)、提取压力 (B)、提取时间 (C) 为考察因素, 采用正交试验优化最佳提取工艺, 正交试验设计及结果见表 4, 方差分析见表 5。

由表 4 可以看出, 各因素对试验结果的影响程度为 $B > A > C$, 即提取压力 $>$ 料液比 $>$ 提取时间。

结合表 4 和 5, 最佳条件为 $A_4B_4C_4$, 而料液比的 K_3 与 K_4 差别很小, 从节省溶剂考虑料液比选 K_3 即 1 : 16, 所以确定大黄微波加压提取的条件为 $A_3B_4C_4$ 即压力 0.20 MPa, 料液比 1 : 16, 提取时间 20 min。

2.7 验证试验

按确定的提取条件重复提取 3 次, 计算浸膏得率及总蒽醌提取率, 结果见表 6。

表 4 $L_{16}(4^5)$ 正交试验设计及结果

Table 4 Design and results of $L_{16}(4^5)$ orthogonal test

试验号	A	B / MPa	C / min	D	E	$Y_1 / \%$	$Y_2 / \%$	综合评分
1	1 : 8 (1)	0.05 (1)	5 (1)	(1)	(1)	31.97	0.87	59.96
2	1 : 8 (1)	0.10 (2)	10 (2)	(2)	(2)	32.43	0.86	59.93
3	1 : 8 (1)	0.15 (3)	15 (3)	(3)	(3)	37.35	1.06	71.78
4	1 : 8 (1)	0.20 (4)	20 (4)	(4)	(4)	44.18	1.51	93.08
5	1 : 12 (2)	0.05 (1)	15 (3)	(2)	(4)	40.17	1.00	71.64
6	1 : 12 (2)	0.10 (2)	20 (4)	(1)	(3)	38.87	1.05	72.59
7	1 : 12 (2)	0.15 (3)	5 (1)	(4)	(2)	37.56	1.14	75.13
8	1 : 12 (2)	0.20 (4)	10 (2)	(3)	(1)	46.82	1.37	91.62
9	1 : 16 (3)	0.05 (1)	20 (4)	(3)	(2)	43.05	1.15	79.88
10	1 : 16 (3)	0.10 (2)	15 (3)	(4)	(1)	38.90	1.27	81.35
11	1 : 16 (3)	0.15 (3)	10 (2)	(1)	(4)	41.08	1.20	80.30
12	1 : 16 (3)	0.20 (4)	5 (1)	(2)	(3)	41.81	1.42	89.63
13	1 : 20 (4)	0.05 (1)	10 (2)	(4)	(3)	35.74	1.01	68.51
14	1 : 20 (4)	0.10 (2)	5 (1)	(3)	(4)	46.91	1.09	80.56
15	1 : 20 (4)	0.15 (3)	20 (4)	(2)	(1)	50.37	1.44	97.22
16	1 : 20 (4)	0.20 (4)	15 (3)	(1)	(2)	49.39	1.38	94.06
K_1	284.75	279.99	305.28	306.91	330.12			
K_2	310.98	294.43	300.36	318.42	309.00			
K_3	331.16	324.43	318.83	323.84	302.52			
K_4	340.35	368.39	342.77	318.07	325.58			
R	55.60	88.36	42.41	16.93	27.64			

表 5 方差分析

Table 5 Analysis of variance

误差来源	平方和	自由度	F值	显著性
A	455.472	3	0.556	无
B	1143.780	3	1.397	无
C	270.386	3	0.330	无
误差	1637.160	6		

$F_{0.05}(3, 6) = 3.86$

2.8 提取方法比较

为了比较微波、微波加压方法提取大黄饮片的

表 6 重复性试验结果

Table 6 Results of reproducibility test

试验号	浸膏得率 / %	蒽醌提取率 / %
1	50.88	1.89
2	52.78	1.93
3	53.89	2.02

效果, 采用高压蒸汽灭菌锅与自制设备, 在相同条件下进行了大黄饮片提取的对比试验。提取时间、料液比以本正交试验的最佳条件设定, 压力以高压蒸汽灭菌锅安全操作压力 (0.15 MPa) 设定。常压

提取,保持沸腾 20 min;高压提取,压力控制为 0.15 MPa,时间 20 min。实验结果见表 7。

表 7 4 种提取方法对照表

Table 7 Contract of four kinds of extracting methods

装 置	提取方法	浸膏得	蒽醌提取
		率 / %	率 / %
高压锅	常压煎煮法	26.32	1.57
	加压法	32.62	1.57
微波压力提取设备	常压微波法	30.03	1.04
	微波加压法	44.37	2.44

3 结论

利用微波压力萃取装置,探索了一种在微波加压条件下提取中药饮片的方法。以大黄为主要试验材料,通过正交试验确定了大黄饮片在微波加压下的最佳提取条件:料液比 1:16,操作压力 0.20 MPa,提取时间 20 min,在该条件下大黄浸膏得率比常压微波法提高 74.9%,比加压法提高 61.0%,

比传统煎煮法提高 99.5%,证实微波加压条件下的提取率、有效成分的量高。综上所述微波加压提取方法是一种新型实用的提取方法,具有广阔的应用前景。

参考文献

- [1] 郝守祝,张虹,刘丽,等.微波技术在大黄游离蒽醌浸提中的应用[J].中草药,2002,33(1):23-26.
- [2] 金汝城,谢伟雪,吴卓,等.微波技术提取大黄蒽醌类物质的最佳工艺研究[J].中国中医药信息杂志,2009,16(5):54-56.
- [3] 河北大学.闫正.大容量分层辐射微波萃取装置[P].中国专利:ZL200910073920.5,2010-12-1.
- [4] 叶殷殷,曾元儿,曹骋,等.大黄总蒽醌乙醇提取工艺优化实验[J].时珍国医国药,2010,21(10):246-249.
- [5] 魏玉辉,武新安,陈岚,等.大黄蒽醌类成分含量测定方法实验研究[J].兰州大学学报,2005,31(1):13-15.
- [6] 高祖新.医药数理统计方法[M].第4版.北京:人民卫生出版社,1987.