

doi:10.3969/j.issn.1006-4931.2021.09.011

星点设计-响应面法优选余甘子保健饮料制备工艺*

裴河欢¹, 李琦², 孙朋³, 凌光锋¹, 宁成裕¹, 张美凤^{4△}

(1. 广西壮族自治区钦州市中医医院, 广西 钦州 535000; 2. 广西壮族自治区桂林市食品药品检验所, 广西 桂林 541012;
3. 广西中医药大学药学院, 广西 南宁 530200; 4. 广西壮族自治区钦州市第一人民医院, 广西 钦州 535000)

摘要:目的 优选余甘子保健饮料的制备工艺。方法 以加水量、白砂糖量和柠檬酸量为影响因素, 以组织状态、甜度、口感、气味和色泽为评价指标, 采用星点设计-响应面法优选余甘子保健饮料的最佳制备工艺。结果 优选的最佳制备工艺为加18倍量水, 65℃水浴浸提2.5 h, 过滤, 放冷, 加入白砂糖量19.00%, 柠檬酸量0.20%。结论 优选的制备工艺方法简便、预测性好、科学可行。

关键词:余甘子保健饮料; 星点设计; 响应面法; 工艺优化

中图分类号: R932; R943; TQ460.6

文献标志码: A

文章编号: 1006-4931(2021)09-0039-04

Optimization of Preparation Process of *Phyllanthus Emblica* Health Drink by Central Composite Design-Response Surface Methodology

PEI Hewan¹, LI Qi², SUN Peng³, LING Guangfeng¹, NING Chengyu¹, ZHANG Meifeng⁴

(1. Qinzhou Hospital of Traditional Chinese Medicine, Qinzhou, Guangxi, China 535000; 2. Guilin Food and Drug Inspection Institute, Guilin, Guangxi, China 541012; 3. College of Pharmacy, Guangxi University of Chinese Medicine, Nanning, Guangxi, China 530200; 4. Guangxi Qinzhou First People's Hospital, Qinzhou, Guangxi, China 535000)

Abstract: **Objective** To optimize the preparation process of *Phyllanthus emblica* health drink. **Methods** The optimal preparation process of *Phyllanthus emblica* health drink was optimized by central composite design-response surface methodology with the amount of water, white granulated sugar and citric acid as the influencing factors and with the organizational state, sweetness, taste, smell and color as the evaluation indexes. **Results** The optimal preparation process was as follows: adding 18 times of water, extracting 2.5 h in 65℃ water bath, filtering, cooling, adding 19.00% of white granulated sugar and 0.20% of citric acid. **Conclusion** The optimized preparation process is simple with good predictability and scientific feasibility.

Key words: *Phyllanthus emblica* health drink; central composite design; response surface methodology; process optimization

余甘子为大戟科植物余甘子 *Phyllanthus emblica* L. 的干燥成熟果实, 收载于2015年版《中国药典(一部)》^[1], 作为一味传统民族药, 也收载于《广西壮族自治区壮药质量标准(第一卷)》^[2], 更是卫生部公布的药食两用品种。其壮药品名为芒音, 异名牛甘子、油甘子等, 原植物主要分布于福建、广东、广西等地, 在广西主要分布于钦州、贵港、玉林等地, 具有清热凉血、消食健胃、生津止咳功效^[1-3]。现代药理学研究表明, 余甘子果实中酚酸类成分能减轻自由基对机体的损伤, 具有抗氧化、缓解疲劳的作用^[4-7]。前期研究发现, 广西壮族自治区玉林市容县的余甘子中酚酸类成分含量较高、质量较好^[8-9]。本研究选用该产地的余甘子作为主要原料, 研制出一种风味口感改善、可缓解疲劳的余甘子保健饮料, 并采用星点设计-响应面法优选其制备工艺。现报道如下。

1 仪器与试剂

1.1 仪器

TX2202L型电子天平(日本岛津公司, 精度为0.01 g); Simplicity超纯水系统(德国默克密理博公司);

DK-98-II型电热恒温水浴锅(天津市泰斯特仪器有限公司)。

1.2 试剂

余甘子药材产自广西壮族自治区玉林市容县, 饱满、质实、无虫霉, 经广西中医药大学药学院郭敏副教授鉴定为正品; 白砂糖(食品级, 广西东亚扶南精糖有限公司); 无水柠檬酸(食品级, 浙江绿之源食品生物科技有限公司)。

2 方法与结果

2.1 星点试验设计

研究发现, 料液比和甜味剂用量是饮料制备的主要因素^[10]。在文献[11-12]和前期试验基础上, 在药液中加入白砂糖作为甜味剂、柠檬酸作为酸度调节剂。以加水量(因素 X_1)、白砂糖量(因素 X_2)、柠檬酸量(因素 X_3)为主要影响因素, 每个因素5个水平(见表1)。以饮料的组织状态、甜度、口感、气味和色泽为评价指标进行综合评分。综合评分(Y , 满分100分)=组织状态评分(20分)+甜度评分(20分)+口感评分(20分)+气味评分

*基金项目: 广西壮族自治区中医药局自筹经费科研课题[GZZC2019270]; 钦州市科学研究与技术开发计划项目[20198508]。

第一作者: 裴河欢, 男, 在职研究生, 副主任药师, 研究方向为天然药物和制剂工艺开发, (电子信箱)pei.hehuan@163.com。

△通信作者: 张美凤, 女, 大学本科, 主管护师, 研究方向为制剂工艺开发, (电子信箱)450504216@qq.com。

(20分)+色泽评分(20分),评分要求见表2。按照星点设计^[13-14]三因素表安排试验。

表1 因素水平表

Tab.1 Factors and levels

水平	因素 X_1 (倍)	因素 X_2 (%)	因素 X_3 (%)
-1.732	8.00	5.00	0.10
-1	10.50	8.20	0.14
0	14.00	12.50	0.20
1	17.50	16.80	0.26
1.732	20.00	20.00	0.30

表2 评分要求

Tab.2 Scoring requirements

评价指标	评分要求
组织状态(20分)	有明显沉淀,不均匀(14分);透明液体,较均匀(15~16分);透亮液体,均匀(17~20分)
甜度(20分)	偏甜或偏酸(14分);稍微偏甜或偏酸,口味较柔和(15~16分);口味适中(17~20分)
口感(20分)	粗糙,不均匀(14分);较细腻,较均匀(15~16分);细腻,均匀(17~20分)
气味(20分)	无香味,有异味(14分);余甘味淡,无异味(15~16分);余甘味明显,无异味(17~20分)
色泽(20分)	颜色暗淡(14分);颜色较鲜亮(15~16分);颜色鲜亮(17~20分)

2.2 药液制备

将挑选的药材用超纯水洗净,干燥,去核,粉碎成直径为0.5~0.8 cm的粗颗粒,充分混匀,粉碎,过4号筛,混匀,各取粉末10 g,按表1的试验设计方案,分15个水平试验,加入相应量的水,煎煮2次,每次1 h,合并煎液,过滤,将滤液浓缩至相对密度为0.90(60~80℃),放冷,备用。

2.3 结果与分析

试验结果见表3。将表3中Y这个指标用Hassan方法标准化为0~1之间的归一值,以指标归一值求算几何平均数,得总评归一值(OD)。对取值越小越好的因素和取值越大越好的因素采用Hassan方法分别进行数学转换求归一值 $d_{\min}$ 和 $d_{\max}$, $d_{\min} = (Y_{\max} - Y_i) / (Y_{\max} - Y_{\min})$, $d_{\max} = (Y_i - Y_{\min}) / (Y_{\max} - Y_{\min})$ 。这个指标的含量以取值越大越好的因素计算OD, $OD = d^{1/k}$, $k=1$ 。结果见表3。采用Statistica 10.0统计学软件处理数据,以OD为指标进行多元线性回归拟合, $Y(OD) = -0.5190 + 0.0125X_1 + 0.0350X_2 + 1.9467X_3$, $r=0.5839$, $F(3,11)=1.8965$, $P=0.1887>0.05$,查表 $F_{0.05}(3,11)=3.59$,则未通过检验。用二项式 $Y = b_0 + b_1X_1 + b_2X_2 + b_3X_3 + b_4X_1^2 + b_5X_2^2 + b_6X_3^2 + b_7X_1X_2 + b_8X_1X_3 + b_9X_2X_3$ 进行拟合, $r=0.8877$,相关系数较高,线性回归方程为 $Y(OD) = -4.3672 + 0.1448X_1 + 0.1638X_2 + 28.2152X_3 - 0.0125X_1^2 - 0.0081X_2^2 - 69.9408X_3^2 + 0.0104X_1X_2 + 0.4464X_1X_3 - 0.3634X_2X_3$,二次模型的方差分析结果见表4。以此方程作为分析及预测模型,未将模型进一步简化,固定3个影响因素之一为中值,将中心点值代

入OD的二次回归模型方程得到新的OD方程,以该OD值为因变量,相对于另2个自变量的效应面三维图见图1至图3。

表3 星点试验设计与结果

Tab.3 Central composite design and results

序号	因素			Y(分)	OD
	X_1 (倍)	X_2 (%)	X_3 (%)		
1	-1	-1	-1	87	0.2500
2	1	-1	-1	86	0.0000
3	-1	1	-1	89	0.7500
4	1	1	-1	88	0.5000
5	-1	-1	1	89	0.7500
6	1	-1	1	87	0.2500
7	-1	1	1	87	0.2500
8	1	1	1	90	1.0000
9	-1.732	0	0	87	0.2500
10	1.732	0	0	89	0.7500
11	0	-1.732	0	87	0.2500
12	0	1.732	0	89	0.7500
13	0	0	-1.732	86	0.0000
14	0	0	1.732	88	0.5000
15~20	0	0	0	90	1.0000

注:15~20号为重复试验,用平均值表示。

Note: No. 15 - No. 20 are repeatability tests, which are expressed by average value.

表4 二次模型方差分析结果

Tab.4 The ANOVA results of the quadratic model

项目	估计值	标准误差	t(5)值	P值
b_0	-4.3672	3.5103	-1.2441	0.2686
b_1	0.1448	0.2613	0.5543	0.6032
b_2	0.1638	0.1741	0.9407	0.3901
b_3	28.2152	14.1665	1.9917	0.1030
b_4	-0.0125	0.0084	-1.5025	0.1933
b_5	-0.0081	0.0054	-1.5031	0.1931
b_6	-69.9408	29.9230	-2.3374	0.0666
b_7	0.0104	0.0060	1.7196	0.1461
b_8	0.4464	0.4327	1.0318	0.3495
b_9	-0.3634	0.3522	-1.0318	0.3495

当加水量为中心点($X_1=14.00$ 倍)时,由图1可见,随着白砂糖量和柠檬酸量的增加,OD值呈现增加趋势,最优OD值范围为0.7~0.8,即加白砂糖13.00%~20.00%,加柠檬酸0.15%~0.24%。

当白砂糖量为中心点($X_2=12.50\%$)时,由图2可见,随着加水量和柠檬酸量的增加,OD值呈现增加趋势,最优OD值范围为0.6~0.7,即加水14.40~20.00倍,加柠檬酸0.21%~0.27%。

当柠檬酸量为中心点($X_3=0.20\%$)时,由图3可

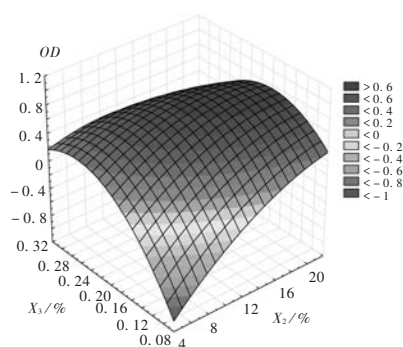


图1 OD对白砂糖量和柠檬酸量的因变量响应面图(加水量为14.00倍)

Fig.1 Response surface of OD to white granulated sugar and citric acid(14 times of water)

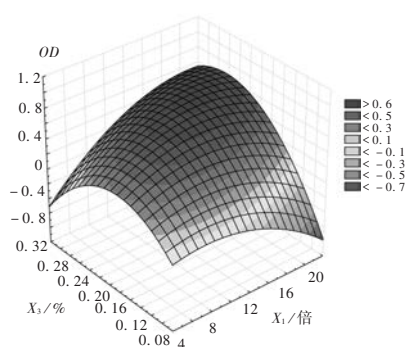


图2 OD对加水量和柠檬酸量的因变量响应面图(白砂糖量为12.50% of white granulated sugar)

Fig.2 Response surface of OD to white granulated sugar and citric acid(12.50% of white granulated sugar)

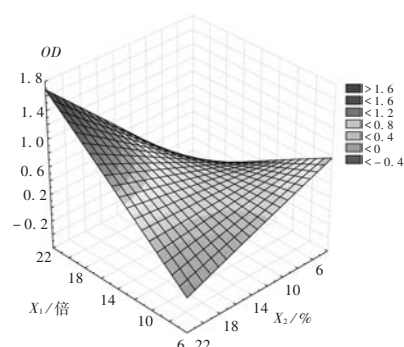


图3 OD对加水量和白砂糖量的因变量响应面图(柠檬酸量为0.20% of citric acid)

Fig.3 Response surface of OD to white granulated sugar and citric acid(0.20% of citric acid)

见,随着加水量和白砂糖量的增加,OD值呈现增加趋势,最优OD值范围为1.2~1.7,即加水17.50~20.00倍,加白砂糖18.00%~20.00%。

2.4 最佳工艺及验证试验

由响应面法数据优选出的最佳制备工艺为:取药材粉末,加18.00倍量水,于65℃水浴中浸提2.5h,过滤,放冷,加入白砂糖19.00%,溶解,再加入柠檬酸0.20%,搅匀,滤过,即得。经过3次验证试验,以饮料的组织状态、甜度、口感、气味和色泽为评价指标进行综合评分(Y),OD实际测得平均值为0.9201,与理论预测值0.9290的偏差为-0.96%,表明该模型预测性良好。

3 讨论

星点设计-响应面法是根据所建立的数学模型,运用统计分析软件描绘出评价指标对考察的主要影响因素的响应面,在响应面上选择较佳的响应区,对评价指标用Hassan方法标准化为0~1间的归一值进行综合评价,从而推算出自变量取值范围,即最佳试验条件的优化法。该方法具有试验次数少、精密度高、预测性好的优点^[15]。同时,根据《食品安全国家标准 保健食品》(GB 16740-2014)、《食品安全国家标准 饮料》(GB 7101-2015)和《感官分析 食品感官质量控制导则》(GB/T 29605-2013)的规定,选择以饮料的组织状态、甜度、口感、气味和色泽为星点设计的评价指标进行综合评分,将主观评分与数学模型有机结合,减少了主观评价对分析结果的偏离和影响,使感官分析评价更具科学性。本研究结果显示,OD的实际测得值与理论预测值偏差较小,说明所建立的数学模型可用于预测余甘子保健饮料的质量评价。

余甘子酸甜微涩,回味甘甜,其果实中含有大量结构复杂的酚酸类成分,主要有没食子酸、鞣花酸、没食子儿茶素、柯里拉京、诃子联苯酸、表儿茶素等^[8-9,16],其中表儿茶素是引起果实涩感的主要酚酸类化合物^[17]。根据

《食品安全国家标准 食品添加剂使用标准》(GB 2760-2014)的规定,白砂糖作为甜味剂可赋予饮料甜味,而柠檬酸作为酸度调节剂,可适当改变饮料的酸碱度。按优选出的最佳工艺加入18.00倍量水、白砂糖19.00%和柠檬酸0.20%,制备出的余甘子保健饮料透亮均匀,在保留特有余甘味的同时,口感酸甜适中而柔和,涩感降低。

综上所述,本制备工艺方法简便、预测性好、科学可行,可作为余甘子保健饮料的制备工艺。

参考文献

- [1] 国家药典委员会. 中华人民共和国药典(一部)[M]. 北京: 中国医药科技出版社, 2015: 179.
- [2] 广西壮族自治区食品药品监督管理局. 广西壮族自治区壮药质量标准第一卷(2008年版)[M]. 南宁: 广西科学技术出版社, 2008: 122.
- [3] 南京中医药大学. 中药大辞典(第二版)[M]. 上海: 上海科学技术出版社, 2014: 1387-1388.
- [4] 刘晓丽, 赵谋明, 杨宝, 等. 余甘子活性成分含量与抗氧化性研究(英文)[J]. 天然产物研究与开发, 2007, 19(2): 188-192.
- [5] 章江生, 吴婷, 唐琪晶, 等. 余甘子提取物对大鼠脑缺血再灌注损伤的保护作用及机制[J]. 中草药, 2014, 45(24): 3590-3593.
- [6] 元旗, 崔雅萍, 梁文仪, 等. 藏药余甘子与诃子化学和药理作用比较[J]. 世界科学技术——中医药现代化, 2016, 18(7): 1171-1176.
- [7] 王锐. 余甘子多酚 α -葡萄糖苷酶抑制及抗氧化作用[J]. 食品研究与开发, 2017, 38(11): 13-16.
- [8] 李琦, 裴河欢, 李静, 等. HPLC法同时测定余甘子中5种成分的含量及主成分、聚类分析[J]. 中国药房, 2018, 29(11): 1491-1495.
- [9] 李琦, 孙朋, 李静, 等. 盐炙对广西余甘子中没食子酸、鞣花酸和表儿茶素含量的影响[J]. 时珍国医国药, 2019, 30(9): 2155-2158.
- [10] 黄清松, 曾满红, 李红枝, 等. 余甘子复合功能性饮料的制备工艺研究[J]. 宜春学院学报, 2015, 37(12): 60-62.
- [11] 陈卫卫, 何炜玲, 李海涛, 等. 星点设计-响应面法优选参