

doi:10.3969/j.issn.2095-6002.2019.05.012

文章编号:2095-6002(2019)05-0091-07

引用格式:蒋华梅,王向前,杨丹. 插田泡果实花色苷萃取方法比较及微波萃取条件优化[J]. 食品科学技术学报,2019,37(5):91-97.

JIANG Huamei, WANG Xiangqian, YANG Dan. Comparison of extraction methods for anthocyanins from fruit of *Rubus coreanus* Maq. and optimization of microwave-assisted extraction process[J]. Journal of Food Science and Technology, 2019,37(5):91-97.

插田泡果实花色苷萃取方法比较及微波萃取条件优化

蒋华梅¹, 王向前², 杨丹¹

(1. 贵阳学院 化学与材料工程学院, 贵州 贵阳 550005; 2. 贵阳学院 图书馆, 贵州 贵阳 550005)

摘要:为完善插田泡果实花色苷的萃取方法及提高花色苷得率,比较了微波辅助法、超声波辅助法、超声-微波协同萃取法3种方法对花色苷得率的影响,并选取微波功率、微波提取时间、酸化乙醇体积分数(pH值为2)3个因素进行Box-Behnken试验设计,利用响应面法对插田泡果实花色苷的微波萃取工艺进行优化,建立了插田泡果实花色苷得率的回归方程。结果表明,微波萃取法的花色苷得率远高于超声波辅助法及超声-微波协同萃取法。插田泡果实花色苷的优化微波萃取工艺参数为微波功率148 W、微波提取时间1.10 min、酸化乙醇体积分数74%(pH值为2),该条件下花色苷得率可达372.39 mg/100 g。

关键词:插田泡; 花色苷; 微波; 超声波; 超声-微波; 响应面法

中图分类号: TS201.4; O623.54; O629.9

文献标志码: A

蔷薇科悬钩子属类植物插田泡(*Rubus coreanus* Maq.),全世界分布广泛,中国主要分布于贵州、陕西、安徽、四川等地。插田泡果实6-8月成熟,营养丰富,富含花色苷、超氧化物歧化酶、维生素C、蛋白质等营养成分^[1-3]。花色苷属水溶性黄酮多酚类化合物,具有抗氧化、抗炎、调节血脂、改善胰岛素抵抗、抗肿瘤、抗突变及预防心肌缺损等生物活性^[4-7]。

植物花色苷的萃取方法有溶剂法、微波辅助法、超声波辅助法、酶法、超临界流体萃取法等^[4,8-11]。溶剂法操作简便,但提取率不高;酶法提取率高,但反应条件的微小波动会使酶活大大降低,且提取过程中可能产生新的化学物质,影响提取物纯度;超临界流体萃取法提取率高,但仪器昂贵;微波、超声辅助法操作简便,省时省力,节约试剂且提取率高。

目前,插田泡果实花色苷的研究仅涉及溶剂振荡萃取和抗氧化活性方面的内容^[2]。为完善插田泡果实花色苷的萃取方法及提高花色苷得率,实验首先比较了微波辅助法、超声波辅助法、超声-微波协同萃取法3种方法对花色苷得率的影响,并采用响应曲面法优化插田泡果实花色苷的微波萃取条件,以期对插田泡植物资源利用及其花色苷的研究提供借鉴。

1 材料与方法

1.1 材料与试剂

插田泡果实于2018年6月采自贵州省安顺市西秀区,挑选紫黑色成熟果实超纯水洗净,-40℃冰箱冷冻储存备用。无水乙醇、氢氧化钠、醋酸钠、氯化钾,均为分析纯,重庆川东化工有限公司;盐酸(分析纯),西陇化工有限公司。

收稿日期:2019-01-18

基金项目:贵州省高校优秀科技创新人才支持计划项目(黔教合KY字[2015]500);国家级大学生创新创业训练计划项目(201810976009);贵州省大学生创新创业训练计划项目(2018520779)。

第一作者:蒋华梅,女,副教授,硕士,主要从事天然产物化学方面的研究。

1.2 仪器与设备

FA1104 型电子分析天平,上海西艾电子有限公司;BluStar-A 型紫外-可见分光光度计,北京莱伯泰科仪器股份有限公司;CW-100 型超声-微波协同萃取仪,上海比朗仪器制造有限公司;PHS-3C 型精密酸度计,上海雷磁创益仪器仪表有限公司。

1.3 实验方法

1.3.1 最大吸收波长的确定

准确称取 5.00 g 插田泡果实,研钵研碎,转移至 250 mL 三口烧瓶中,加入体积分数 75% 乙醇溶液(pH 值 2) 150 mL,于超声-微波协同萃取仪中微波反应 2 min,过滤,收集滤液。滤液在 200 ~ 700 nm 范围内进行扫描,确定花色苷的最大吸收波长。

1.3.2 花色苷得率的测定

参照插田泡果实花色苷及玫瑰茄红素^[2,12-13]测定方法。插田泡果实解冻后准确称取 5.00 g 研碎,不同条件下萃取、抽滤,收集滤液,滤液定容至 250 mL 得到插田泡果实花色苷粗提液。准确移取 2 mL 插田泡果实花色苷粗提液与盐酸缓冲液(pH 值 1.0) 6 mL 混合,摇匀;再准确移取 2 mL 花色苷粗提液与醋酸缓冲液(pH 值 4.5) 6 mL 混合,摇匀。分别用相应的缓冲溶液为空白对照,于最大吸收波长 538 nm 处测吸光度,花色苷得率计算见式(1)。

$$w = \frac{\Delta A \cdot V \cdot F \cdot M \cdot 100}{\varepsilon \cdot b \cdot m} \quad (1)$$

式(1)中, w 为插田泡果实花色苷得率,mg/100 g; ΔA 为 $A_{\text{pH}1}$ 和 $A_{\text{pH}4.5}$ 的吸光度差值; V 为插田泡果实花色苷提取液的总体积,mL; F 为稀释倍数; M 为矢车菊素-3-葡萄糖苷的摩尔质量,449 g/mol; ε 为矢车菊素-3-葡萄糖苷的摩尔消光系数,29 600 L/(mol·cm); b 为比色皿厚度,1 cm; m 为样品质量,g。

1.3.3 花色苷萃取方法的确定

准确称取 3 份各 5.00 g 样品,在料液比 1:30 (g/mL)、体积分数 75% 乙醇(pH 值 2)的条件下,分别以微波 150 W、超声波 150 W、超声-微波协同 300 W,按 1.3.2 节方法进行萃取反应 1 min,平行实验 3 次。

1.3.4 单因素实验设计

按 1.3.2 节方法,料液比 1:30 (g/mL)、萃取温度 35 °C,选取微波功率(90、120、150、180、210 W)、微波提取时间(0.5、1.0、1.5、2.0、2.5 min)、酸化乙

醇体积分数(55%、65%、75%、85%)、酸化乙醇 pH 值(1、2、3、4) 4 个因素进行实验,考察单一因素改变对插田泡果实花色苷得率的影响,平行重复 3 次,结果取平均值。

1.3.5 响应面试验设计

根据单因素实验结果,选择 3 个因素微波功率(X_1)、微波提取时间(X_2)、酸化乙醇体积分数(X_3)进行响应面试验,根据 Box-Behnken 试验设计原理,以插田泡果实花色苷得率(Y)为响应值,利用 Design-Expert 8.0.6 进行三因素三水平响应面优化试验,以确定插田泡果实花色苷的最佳微波萃取条件,因素水平见表 1。

表 1 响应面试验因素水平

Tab. 1 Factors and levels of response surface design

因素	水平编码值		
	-1	0	1
X_1 微波功率/W	120	150	180
X_2 微波提取时间/min	0.5	1.0	1.5
X_3 酸化乙醇体积分数/%	65	75	85

1.4 数据处理

采用 Excel、Design-Expert 8.0.6 和 Origin 软件进行数据处理。

2 结果与分析

2.1 最大吸收波长的确定结果

花色苷类物质经紫外-可见光谱扫描后有 2 个特征峰,一个在紫外光区 270 ~ 290 nm 附近,与苯甲酰基有关;另一个在可见光区 500 ~ 540 nm,与肉桂酰基有关。图 1 显示插田泡果实花色苷在 292 nm

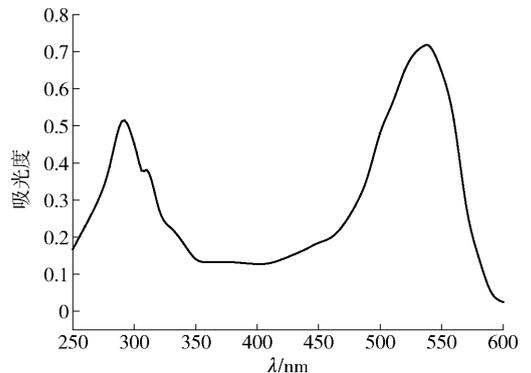


图 1 插田泡花色苷紫外可见光谱

Fig. 1 UV-Vis spectroscopy of anthocyanin from *Rubus coreanus* Maq.

和 538 nm 波长处有特征吸收峰。310 nm 处吸收峰, 表明插田泡果实花色苷含有酰基化基团, 酰化的酸为对香豆酸^[4,14]。因此, 实验选取 538 nm 作为测定波长。

2.2 花色苷萃取方法的确定结果

微波辅助法、超声波辅助法、超声-微波协同萃取法的花色苷得率分别为 317.75、257.19、253.10 mg/100 g。结果表明, 微波辅助法比超声波和超声-微波协同萃取法更有利于插田泡果实花色苷的快速溶出, 提高花色苷得率。超声-微波协同萃取法花色苷得率稍低, 可能是由于微波、超声波同时作用, 体系温度较高(最高至 36 °C), 造成部分花色苷分解(花色苷在此介质中的最低分解温度是 35 °C), 得率降低。因此实验选用微波辅助萃取的方法对插田泡果实花色苷进行提取。

2.3 单因素实验结果

各因素对花色苷得率的影响如图 2。由图 2(a)可知, 插田泡果实花色苷得率随着微波功率的升高出现明显的上升趋势。当功率到达 150 W 时, 花色苷得率最大, 随后出现下降趋势。功率的升高使花色苷更易溶出, 花色苷得率增大。但当微波功率过大, 体系温度太高, 促使花色苷分解, 得率减

少^[8]。由图 2(b)可知, 插田泡果实花色苷得率随微波提取时间延长先快速增加, 提取 1.0 min 时达到最大 294.39 mg/100 g; 之后随着微波提取时间的延长, 体系温度升高, 由于花色苷较差的热稳定性, 花色苷得率反而减小。由图 2(c)可知, 插田泡果实花色苷得率随着乙醇体积分数的增加逐渐增大; 当乙醇体积分数超过 75% 时, 花色苷得率降低, 这是由于有机溶剂乙醇体积分数的增加降低了亲水性花色苷的提取率, 导致总花色苷得率降低^[15-16]。由图 2(d)可知, 插田泡果实花色苷得率随酸化乙醇 pH 值的增大而增加, 当 pH 值 2 时达到最大; 之后花色苷得率随 pH 值的增大而缓慢下降。说明花色苷类物质的提取应在适宜酸度范围内进行, 酸度过高(如 pH 值 1)或过低将降低花色苷稳定性, 导致花色苷的水解及降解^[17]。

2.4 微波萃取条件优化结果

2.4.1 响应面试验设计及结果分析

基于单因素实验结果, 选择对插田泡果实花色苷得率影响显著的 3 个因素微波功率(X_1)、微波提取时间(X_2)、酸化乙醇体积分数(X_3)为自变量, 以花色苷得率(Y)为响应值, 用 Design-Expert 软件的 Box-Behnken 试验设计原理设计了三因素三水平响

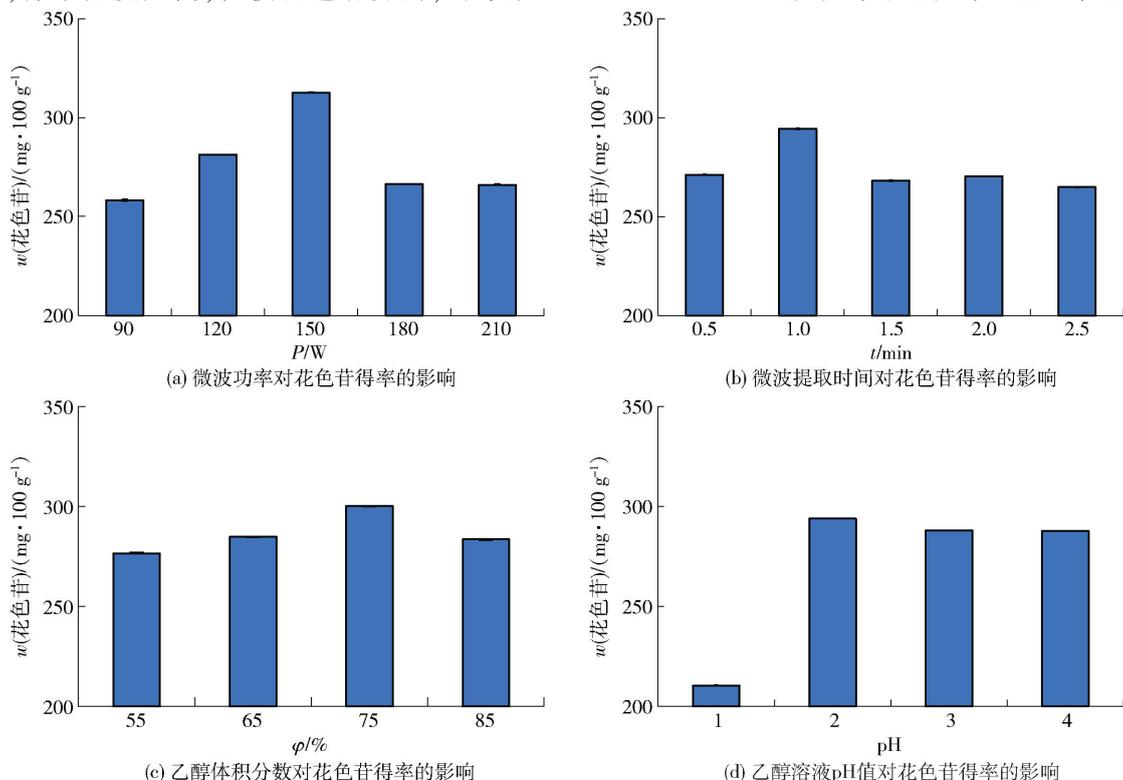


图 2 各因素对花色苷得率的影响

Fig. 2 Effects of factors on anthocyanin yield

应面试验,方案设计及结果见表2。对表2的实验数据进行回归拟合分析,得到插田泡果实花色苷得率的二次多项回归模拟方程为 $Y = -42.97788 + 2.93117X_1 + 192.71900X_2 + 1.18375X_3 - 0.27433X_1X_2 + 0.035708X_1X_3 + 0.71850X_2X_3 - 0.017859X_1^2 - 93.27200X_2^2 - 0.048905X_3^2$ 。

表2 响应面试验设计与结果

Tab. 2 Experimental design and results for response surface analysis

试验号	X_1	X_2	X_3	$w(\text{花色苷})/(\text{mg}\cdot 100\text{g}^{-1})$
1	0	0	0	320.55
2	0	1	1	307.28
3	0	1	-1	300.75
4	1	1	0	290.03
5	0	0	0	321.74
6	1	0	-1	288.73
7	0	-1	1	280.58
8	0	-1	-1	288.42
9	-1	-1	0	267.89
10	-1	1	0	294.43
11	0	0	0	321.25
12	-1	0	-1	316.71
13	-1	0	1	292.85
14	0	0	0	324.16
15	1	-1	0	279.95
16	1	0	1	307.72
17	0	0	0	324.63

表3 花色苷得率的方差分析

Tab. 3 Variance analysis of anthocyanin yield

方差来源	平方和	自由度	均方	F值	P值	显著性
模型	5067.57	9	563.05	56.74	<0.0001	极显著
X_1	3.71	1	3.71	0.37	0.5601	
X_2	715.37	1	715.37	72.09	<0.0001	极显著
X_3	4.77	1	4.77	0.48	0.5103	
X_1X_2	67.73	1	67.73	6.83	0.0348	显著
X_1X_3	459.03	1	459.03	46.26	0.0003	显著
X_2X_3	51.62	1	51.62	5.20	0.0566	
X_1^2	1087.75	1	1087.75	109.62	<0.0001	极显著
X_2^2	2289.39	1	2289.39	230.71	<0.0001	极显著
X_3^2	100.70	1	100.70	10.15	0.0154	显著
残差	69.46	7	9.92			
失拟项	56.23	3	18.74	5.67	0.0635	不显著
纯误差	13.23	4	3.31			
总回归	5137.03	16				

$$R^2 = 0.9865; R_{Adj}^2 = 0.9691; \text{模型精密度} = 21.639$$

差异显著, $P < 0.05$; 差异极显著, $P < 0.0001$; 差异不显著, $P > 0.05$ 。

二次响应面回归模型的 $P < 0.0001$, 说明此回归模型极显著, 具有统计学意义, 该方法的拟合效果较好, 见表3。由校正绝对系数 R^2 为 0.9865 (大于 0.80), 且变异系数 CV 为 1.04%, 说明该模型只有 1.35% 的变异, 进一步说明模型拟合程度较好, 回归模型方程代表性较好, 响应值的变化有 98.65% 来自于所选的变量。模型调整系数 R_{Adj}^2 为 0.9691, 说明模型的预测性较好, 实际值与预测值较接近; 模型精密度的 21.639, 大于 4, 说明此模型是可行的, 其可靠性可通过方差分析及相关系数来考察。方程的失拟项 P 值为 0.0635, 大于 0.05, 不显著, 表明该回归模型拟合程度好, 无失拟因素存在, 误差小, 因此可用该回归模型方程代替实验真实点对实验结果进行分析。因此, 该模型可用于微波萃取插田泡果实花色苷的工艺条件优化。

由各因素 F 值的大小可知, 3 个因素对花色苷得率的影响程度由大到小依次为微波提取时间、酸化乙醇体积分数、微波功率。其中 X_2 、 X_1^2 、 X_2^2 对花色苷得率的影响极显著; X_1X_2 、 X_1X_3 、 X_3^2 对花色苷得率的影响显著。

2.4.2 交互作用对花色苷得率的影响

根据回归方程绘出响应面图及等高线图, 见图3~图5, 分析微波功率、微波提取时间、酸化乙醇体积分数 3 个因素对插田泡果实花色苷得率的交互影响。

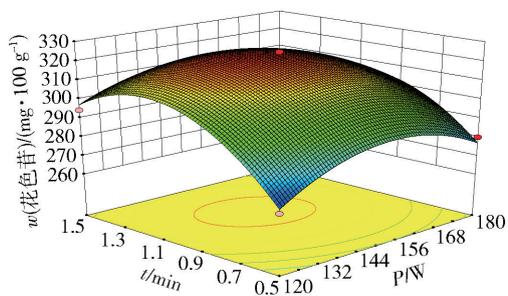


图 3 微波功率与提取时间对花色苷得率的交互影响

Fig. 3 Interactions of microwave power and extraction time on anthocyanin yield

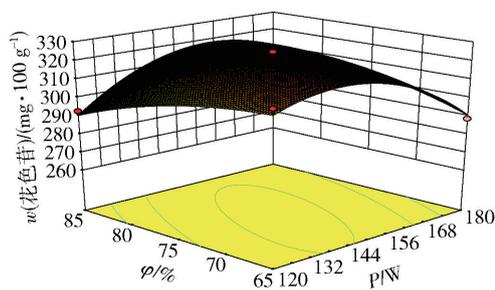
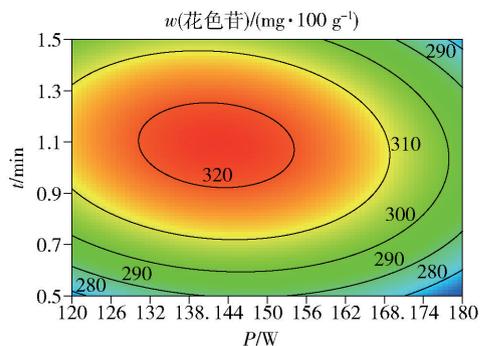


图 4 微波功率与乙醇体积分数对花色苷得率的交互影响

Fig. 4 Interactions of microwave power and ethanol concentration on anthocyanin yield

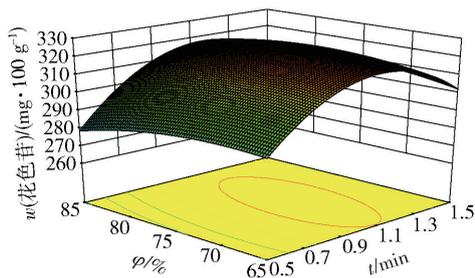
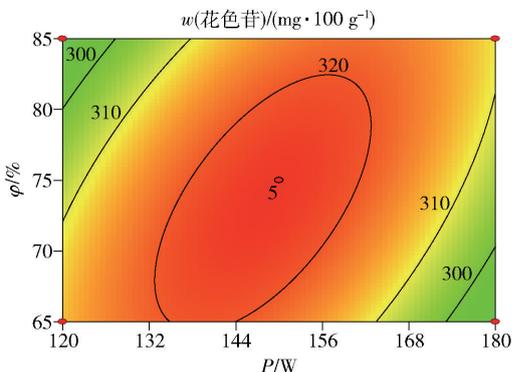
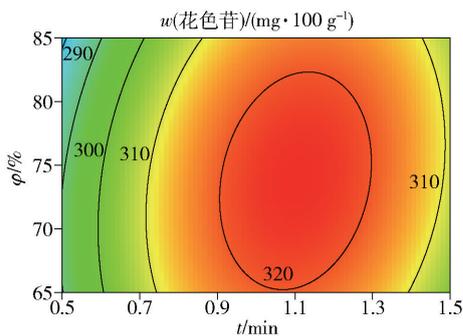


图 5 乙醇体积分数与提取时间对花色苷得率的交互影响

Fig. 5 Interactions of ethanol concentration and extraction time on anthocyanin yield



由图 3 可知,随着微波提取时间和微波功率的增加,插田泡花色苷得率先增大后减少,响应面的坡度陡峭,表明交互效应显著。由图 4 可知,随着酸化乙醇体积分数和微波功率的增加,插田泡花色苷得率先增大后减少,坡度更为陡峭,等高线呈椭圆形,说明交互作用更为显著。由图 5 可知,随着酸化乙醇体积分数和微波提取时间的增大,插田泡花色苷得率先缓慢地增大后减少,坡度较平缓,说明两因素的交互作用不显著。从等高线可知 3 个因素对花色苷得率的影响由大到小依次为微波提取时间、酸化

乙醇体积分数、微波功率。

2.4.3 优化提取条件的确定及验证实验结果

通过 Design-Expert 8.0.6 软件分析得到插田泡果实花色苷的优化提取条件为微波功率 147.70 W、微波提取时间 1.10 min、酸化乙醇体积分数 74.13% (pH 值 2)。考虑实际操作的简便性,将以上条件调整为微波功率 148 W、微波提取时间 1.10 min、酸化乙醇体积分数 74% (pH 值 2),并进行 5 次平行实验,测得插田泡果实花色苷得率为 372.39 mg/100 g,与模拟计算值基本接近,表明预测值与真

实值之间有很好的拟合性,进一步验证了模型的可靠性^[9]。

3 结 论

微波萃取法的插田泡果实花色苷得率高于超声波和超声-微波协同萃取法,也高于溶剂振荡萃取法的花色苷得率^[2],说明微波辅助萃取技术更有利于插田泡果实细胞中花色苷组分的浸出,萃取效率更高。通过单因素实验和响应面试验,确定插田泡果实花色苷的优化微波萃取工艺参数为微波功率148 W、微波提取时间1.10 min、酸化乙醇体积分数74% (pH值2),该条件花色苷得率可达372.39 mg/100 g。

该研究为插田泡果实花色苷萃取提供了一种经济、环保、高效可行的方法,但插田泡花色苷资源的纯化、鉴定、生物活性及作用机制、作用基因、靶器官、受体等方面的研究仍然任重而道远。随着插田泡植物资源研究的深入,插田泡花色苷必将充分发挥其在医药、食品、化妆品等领域的价值,为人类健康做出积极有益的贡献。

参考文献:

[1] LIM J W, JEONG J T, SHIN C S. Component analysis and sensory evaluation of Korean black raspberry (*Rubus coreanus* Mique) wines [J]. International Journal of Food Science & Technology, 2012, 47(5): 918-926.

[2] 蒋华梅, 石登红, 王向前, 等. 插田泡花色苷的振荡提取及抗氧化活性[J]. 食品科学, 2014, 35(20): 67-72.

JIANG H M, SHI D H, WANG X Q, et al. Mechanical shaking extraction and antioxidant activity of anthocyanins from *Rubus coreanus* Maq. fruits [J]. Food Science, 2014, 35(20): 67-72.

[3] 蒋华梅, 石登红, 杨秀群, 等. 黔产野生插秧泡果实的营养成分及其利用价值[J]. 贵州农业科学, 2012, 40(2): 15-16.

JIANG H M, SHI D H, YANG X Q, et al. Nutritional components and utilization values of wild *Rubus coreanus* fruit in Guizhou [J]. Guizhou Agricultural Sciences, 2012, 40(2): 15-16.

[4] 李颖畅. 植物花色苷[M]. 北京: 化学工业出版社, 2013: 19-114.

LI Y C. Plant anthocyanins [M]. Beijing: Chemical Industry Press, 2013: 19-114.

[5] WOONG L J, JOO H H, SOO S C. Polyphenol compounds and anti-inflammatory activities of Korean black raspberry (*Rubus coreanus* Miquel) wines produced from juice supplemented with pulp and seed [J]. Journal of Agricultural and Food Chemistry, 2012, 60(20): 5121-5127.

[6] SEO Y C, CHOI W Y, KIM J S, et al. Effect of ultra high pressure processing on immuno-modulatory activities of the fruits of *Rubus coreanus* Miquel [J]. Innovative Food Science and Emerging Technologies, 2011, 12(3): 207-215.

[7] 曹菲菲, 康鹏玲, 甄润英, 等. 紫甘蓝色素提取工艺及其抗氧化活性研究[J]. 食品研究与开发, 2018, 39(15): 75-79.

CAO F F, KANG P L, ZHEN R Y, et al. Study on extraction and antioxidation of purple cabbage pigment [J]. Food Research and Development, 2018, 39(15): 75-79.

[8] 吕春茂, 王新现, 董文轩, 等. 响应面法优化越橘花色苷微波辅助提取工艺参数[J]. 食品科学, 2011, 32(6): 71-75.

LÜ C M, WANG X X, DONG W X, et al. Optimization of microwave-assisted extraction process for anthocyanins from bilberry by response surface methodology [J]. Food Science, 2011, 32(6): 71-75.

[9] 位路路, 林杨, 王月华, 等. 黑果腺肋花楸花色苷提取工艺优化及其抗氧化活性和组成鉴定[J]. 食品科学, 2018, 39(12): 239-246.

WEI L L, LIN Y, WANG Y H, et al. Optimization of extraction of anthocyanins from berries of *Aronia melanocarpa* and their antioxidant activity and composition [J]. Food Science, 2018, 39(12): 239-246.

[10] 田密霞, 李亚东, 胡文忠, 等. 响应面分析法优化超临界CO₂萃取蓝莓花色苷工艺条件的研究[J]. 食品工业科技, 2016, 37(1): 208-212.

TIAN M X, LI Y D, HU W Z, et al. Optimization of supercritical CO₂ extraction of blueberry anthocyanins using response surface methodology [J]. Science and Technology of Food Industry, 2016, 37(1): 208-212.

[11] ÖZGÜ M Ü, ÇİMEN E. Ultrasound-assisted extraction of anthocyanins from red rose petals and new spectrophotometric methods for the determination of total monomeric anthocyanins [J]. Journal of AOAC International, 2018, 101(4): 967-980.

[12] 石登红, 刘燕, 汪维进, 等. 插田泡果实花色苷提取条件的研究[J]. 食品工业, 2014, 35(10): 161-164.

SHI D H, LIU Y, WANG W J, et al. Study on extraction of anthocyanins from *Rubus coreanus* [J]. Food Industry, 2014, 35(10): 161-164.

- [13] 曾哲灵, 郝纯青, 吕伟, 等. 响应面法优化玫瑰茄红色素提取工艺[J]. 食品科学, 2010, 31(20): 47–51.
ZENG Z L, HAO C Q, LÜ W, et al. Optimizing the extraction of red pigments from dry roselle calyx by response surface methodology[J]. Food Science, 2010, 31(20): 47–51.
- [14] 马自超, 陈文田, 李海霞. 天然食用色素化学[M]. 北京: 中国轻工业出版社, 2016: 45–50.
MA Z C, CHEN W T, LI H X. Chemistry of natural edible pigment[M]. Beijing: China Light Industry Press, 2016: 45–50.
- [15] PATIL G, MADHUSUDHAN M C, BABU B R, et al. Extraction dealcoholization and concentration of anthocyanin from red radish [J]. Chemical Engineering and Processing: Process Intensification, 2009, 48(1): 364–369.
- [16] VATAI T, SKERGET M, KNEZ Z, et al. Extraction and formulation of anthocyanin-concentrates from grape residues [J]. Journal of Supercritical Fluids, 2008, 45(1): 32–36.
- [17] 方忠祥, 倪元颖, 唐建成. 紫肉甘薯中花色苷热降解动力学研究[J]. 食品工业科技, 2004, 25(3): 111–113.
FANG Z X, NI Y Y, TANG J C. The thermal degradation kinetics of anthocyanins from the purple sweet potato [J]. Science and Technology of Food Industry, 2004, 25(3): 111–113.

Comparison of Extraction Methods for Anthocyanins from Fruit of *Rubus coreanus* Maq. and Optimization of Microwave-Assisted Extraction Process

JIANG Huamei¹, WANG Xiangqian², YANG Dan¹

(1. College of Chemistry and Material Engineering, Guiyang University, Guiyang 550005, China;

2. Library of Guiyang University, Guiyang 550005, China)

Abstract: In order to improve the extraction methods and the yield of anthocyanins from fruit of *Rubus coreanus* Maq., the effects of microwave-assisted extraction, ultrasonic-assisted extraction and ultrasonic-microwave synergistic extraction on the yield of anthocyanins were compared. Single factor experiments were used to examine the influence of microwave power, microwave treatment time and ethanol solvent concentration (pH=2) on anthocyanin yield. The selected key parameters were optimized using response surface methodology with Box–Behnken experimental design. Results indicated that the yield of anthocyanins by microwave-assisted extraction was much higher than that of ultrasonic-assisted and ultrasonic-microwave synergistic extraction. The optimal microwave-assisted extraction parameters for anthocyanins from fruit of *Rubus coreanus* Maq. were microwave powder 148 W, microwave treatment time 1.10 min, and ethanol solvent concentration 74% (pH=2). Under the optimal extraction conditions, the anthocyanin yield from fruit of *Rubus coreanus* Maq. reached 372.39 mg/100 g.

Keywords: *Rubus coreanus* Maq.; anthocyanins; microwave; ultrasonic; ultrasonic-microwave; response surface methodology

(责任编辑: 张逸群)