

玉米须水提液喷雾干燥工艺优选

谢彩侠, 刘蕊, 白雁*, 简守珺, 高颖
(河南中医学院, 郑州 450046)

[摘要] 目的: 优选玉米须水提液喷雾干燥工艺条件, 为玉米须配方颗粒的制备提供参考。方法: 在单因素试验基础上, 以总黄酮、总多糖含量及出粉率、水分的综合评分为指标, 通过正交试验考察进风温度、空气流量和进料量对玉米须水提液喷雾干燥工艺的影响。采用 UV 测定总黄酮和总多糖含量, 检测波长分别为 400, 490 nm。结果: 最佳喷雾干燥工艺条件为进风温度 180 °C, 进料量 20%, 空气流量 800 L·h⁻¹。总黄酮、总多糖质量分数及水分、出粉率平均值分别为 0.14%, 2.71%, 5.81%, 91.33%。结论: 优化的喷雾干燥工艺稳定可行, 为玉米须配方颗粒的品种开发和工业化生产提供参考。

[关键词] 玉米须; 水分; 喷雾干燥; 总黄酮; 总多糖; 出粉率

[中图分类号] R283.6; R284.1 **[文献标识码]** A **[文章编号]** 1005-9903(2015)04-0019-04

[doi] 10.13422/j.cnki.syfjx.2015040019

Optimization of Spray Drying Process of Stigma Maydis Water Extract XIE Cai-xia, LIU Rui, BAI Yan*, JIAN Shou-jun, GAO Ying (Henan University of Traditional Chinese Medicine, Zhengzhou 450046, China)

[Abstract] **Objective:** To optimize spray drying process of Stigma Maydis water extract and provide theory support for preparation of Stigma Maydis dispensing granules. **Method:** According to single factor tests, with composite score of contents of total flavonoids and total polysaccharides, moisture content, flour yield as index, influence of inlet air temperature, air flow and feed rate on spray drying process of Stigma Maydis water extract was investigated by orthogonal test. Contents of total flavonoids and total polysaccharides were determined by UV, detection wavelengths were 400 nm and 490 nm, respectively. **Result:** Optimum spray drying process was as follows: inlet air temperature of 180 °C, air flow rate of 800 L·h⁻¹, inlet rate of 20%. Contents of total flavonoids and total polysaccharides, moisture content, flour yield were 0.14%, 2.71%, 5.81% and 91.33%.

Conclusion: This optimized process is rational and stable, it can provide experimental basis for industrial production and product development of Stigma Maydis dispensing granules.

[Key words] Stigma Maydis; moisture content; spray drying; total flavonoids; total polysaccharides; flour yield

玉米须又称玉米胡子、玉麦须、棒子毛^[1], 为《卫生部药材标准》1985年版一部收录的常用药材品种之一。玉米成熟时采收, 摘取花柱, 晒干或烘干, 或鲜用, 内服煎汤 15~30 g, 大剂量用 60~90 g^[2]。现代药理研究证明玉米须具有显著的抑菌、降血压、增强免疫、抗癌等活性^[3-8]。但玉米须质地蓬松且用量较大, 不利于调剂和服用, 而玉米须饮片经水提, 精制, 浓缩, 烘干制粒制成配方颗粒后可有效解决该问题。单味中药配方颗粒是以符合炮制规

范的中药饮片为原料, 经现代工业制备而成的, 该剂型服用方便且安全有效, 被广大患者所接受^[9]。中药浸膏的干燥方法有真空干燥、冷冻干燥、喷雾干燥^[10]等, 其中喷雾干燥具有干燥时间短、有效成分破坏少等优点, 是用于中药液态物料干燥的一种较为理想的方法。目前尚未见玉米须浸膏喷雾干燥工艺的报道。本实验选择总黄酮、总多糖含量及水分、出粉率为评价指标, 通过正交试验优选玉米须水提液的喷雾干燥工艺, 为玉米须配方颗粒的品种开发

[收稿日期] 20140526(013)

[基金项目] 河南中医学院科技创新人才计划项目(2012XCXRC03); 河南中医学院研究生创新基金项目(2013YCX015)

[第一作者] 谢彩侠, 副教授, 博士, 从事现代仪器分析方法在中药质量控制中应用研究, Tel: 13673651577, E-mail: 1210571736@qq.com

[通讯作者] * 白雁, 教授, 从事利用现代仪器分析方法对中药质量控制进行研究, Tel: 0371-65962967, E-mail: white-yan@hotmail.com

和工业化生产提供参考。

1 材料

AL204型电子天平(瑞士梅特勒-托利多仪器有限公司),UV-1800PC型紫外-可见分光光度计(上海美谱达仪器有限公司),101-3AB型电热鼓风干燥箱(北京中兴伟业仪器有限公司),SY-6000小型喷雾干燥仪(上海世远生物工程设备有限公司)。玉米须购自河南张仲景大药房,经河南中医学院董诚明教授鉴定为禾本科植物玉蜀黍 *Zea mays* 的花柱和柱头;无水葡萄糖(天津市登科化学试剂有限公司,批号40120480),芦丁对照品(成都曼斯特生物科技有限公司,批号MUST-12040302,纯度 $\geq 98\%$),试剂均为分析纯。

2 方法与结果

2.1 总黄酮的含量测定

2.1.1 对照品溶液的配制 精密称取芦丁对照品4.0 mg至25 mL量瓶中,加65%甲醇稀释至刻度,摇匀,即得。

2.1.2 标准曲线的制备 精密量取芦丁对照品溶液1.0,2.0,3.0,4.0,5.0 mL,分别置于25 mL量瓶中,对应加入65%甲醇溶液4.0,3.0,2.0,1.0,0 mL,加0.1 mol·L⁻¹氯化铝的甲醇溶液定容,摇匀,得系列对照品溶液。以相应试剂为空白,于400 nm处测吸光度(A)。以A为纵坐标,质量浓度为横坐标,得回归方程 $Y = 0.0238X + 0.0024 (r = 0.9997)$,线性范围0~32 mg·L⁻¹。

2.1.3 供试品溶液的制备 精密称取喷雾干燥粉末0.07 g,加65%甲醇溶解并定容至25 mL量瓶中,于40 MHz,30℃超声40 min,滤液于4 000 r·min⁻¹离心10 min,取上清液,即得。

2.2 总多糖的含量测定

2.2.1 对照品溶液的配制 精密称取干燥至恒重的无水葡萄糖99.8 mg,置100 mL量瓶中,加水溶解并定容至刻度,摇匀,即得。

2.2.2 标准曲线的制备 精密量取葡萄糖溶液1.0,2.0,3.0,4.0,5.0,6.0 mL,分别置于100 mL量瓶中,加水定容,摇匀,得系列溶液。精密量取上述葡萄糖溶液1.0 mL于10 mL试管中,各加5%苯酚溶液0.6 mL和浓硫酸4 mL,摇匀,水浴40℃,反应15 min,以相应试剂为空白,于490 nm测定A。以A为纵坐标,质量浓度为横坐标,得回归方程 $Y = 0.0087X + 0.2008 (r = 0.9997)$,线性范围9.98~59.88 mg·L⁻¹。

2.2.3 供试品溶液的制备 精密称取喷雾干燥粉

末0.1 g,加水10 mL使溶解,加入无水乙醇,使乙醇体积分数达75%,4℃静置过夜,用定量滤纸滤过,自然干燥,将滤纸剪碎,置100~150 mL锥形瓶中,精密加入水50 mL,称定质量,于90℃水浴加热3 h,取出,放凉,用水补足减失的质量,过滤,滤液于4 000 r·min⁻¹离心10 min,用移液管精密吸取上清液10 mL置于50 mL量瓶中,用水定容至刻度,即得。

2.3 水分测定^[11] 按照《中国药典》2010年版一部附录IX H水分测定法第一法(烘干法)测定。

2.4 出粉率测定 取一定量玉米须浓缩液,置干燥至恒重的蒸发皿中,水浴至完全挥干,于100~105℃干燥3 h,冷却,称定质量,得出膏质量。取相同体积的浓缩液进行喷雾干燥,得到的喷雾干燥粉末精密称定质量,得粉末质量,按粉末质量/出膏质量×100%计算出粉率。

2.5 单因素试验考察

2.5.1 进风温度 精密量取玉米须浓缩液(相对密度1.02~1.05,常温测定)70 mL,共10份,固定空气流量800 L·h⁻¹,进料量20%,进风温度分别为150,160,170,180,190℃,以总黄酮、总多糖含量及水分、出粉率为评价指标,研究不同进风温度对玉米须配方颗粒喷雾干燥效果的影响,见表1。结果表明进风温度对总黄酮和总多糖含量的影响较小,而对水分和出粉率的影响较前者稍微大些,在190℃时,水分最少,但此时喷雾干燥仪不稳定,故选择进风温度180℃。

表1 不同因素对玉米须水提液喷雾干燥效果的影响

Table 1 Effects of different factors on spray drying process of *Stigma Maydis* water extract

因素	参数	总黄酮/%	总多糖/%	水分/%	出粉率/%
进风温度	150℃	0.15	1.92	7.71	75.01
	160℃	0.17	2.06	6.54	79.03
	170℃	0.17	2.16	6.31	80.35
	180℃	0.16	2.14	5.82	82.36
	190℃	0.14	2.13	5.60	78.84
空气流量	600 L·h ⁻¹	0.14	2.13	5.60	74.30
	700 L·h ⁻¹	0.16	2.80	7.02	88.00
	800 L·h ⁻¹	0.16	2.14	5.82	82.36
	900 L·h ⁻¹	0.16	2.14	5.82	82.36
进料量	20%	0.16	2.14	5.82	82.36
	25%	0.18	3.16	8.59	94.00
	30%	0.14	1.77	7.78	70.77
	35%	0.19	2.31	7.51	87.53

2.5.2 空气流量 当进风温度 180 ℃, 进料量 20% 时, 考察不同空气流量(600, 700, 800 L·h⁻¹) 对喷雾干燥效果的影响, 见表 1。说明在喷雾干燥过程中, 空气流量对总黄酮、总多糖含量的影响较小, 而对出粉率和水分变化更明显一些。

2.5.3 进料量 当空气流量 800 L·h⁻¹, 进风温度 180 ℃ 时, 进料量分别为 20%, 25%, 30%, 35%, 考察不同进料量对喷雾干燥效果的影响, 见表 1。结果表明进料量对各评价指标均有明显影响。

2.6 正交试验 在单因素试验基础上, 选择喷雾干燥机进风温度、空气流量和进料量为考察因素, 取浓缩液 9 份(相对密度 1.02 ~ 1.05, 常温测定), 每份 70 mL, 采用 L₉(3⁴) 正交表进行试验, 选择总黄酮、总多糖含量及水分、出粉率的综合评分^[12] 为指标, 权重系数分别为 0.3, 0.3, 0.1, 0.3, 水分评分 = [1 - (水分值 - 水分最小值)/水分最小值] × 0.1 × 100, 其他指标取值越高越好。试验安排及结果见表 2, 方差分析见表 3。

表 2 玉米须水提液喷雾干燥工艺正交试验分析

Table 2 Orthogonal test analysis of spray drying process of Stigma Maydis water extract

No.	A 进风温度 / ℃	B 进料量 / %	C 空气流量 / L·h ⁻¹	D(空白)	总黄酮 / %	总多糖 / %	出粉率 / %	水分 / %	综合评分 / 分
1	170	20	600	1	0.14	2.78	83	7.29	90.63
2	170	25	700	2	0.14	2.60	86	9.51	86.66
3	170	30	800	3	0.14	2.62	87	9.03	87.74
4	180	20	700	3	0.14	2.57	88	7.02	90.44
5	180	25	800	1	0.14	2.67	94	8.59	91.08
6	180	30	600	2	0.14	2.73	79	9.40	85.89
7	190	20	800	2	0.14	3.02	98	7.81	96.90
8	190	25	600	3	0.14	2.83	86	9.13	89.43
9	190	30	700	1	0.15	2.74	79	8.65	89.09

表 3 综合评分方差分析

Table 3 Variance analysis of comprehensive score

方差来源	SS	MS	F	P
A	19.740	9.870	11.552	>0.05
B	41.080	20.540	24.039	<0.05
C	20.691	10.345	12.108	>0.05
D(误差)	1.709	0.854		

注: F_{0.05}(2, 2) = 19。

由直观分析可知, 各因素对喷雾干燥工艺的影响顺序为 B > A > C。方差分析表明各因素均对喷雾干燥工艺无显著性影响。结合工业生产实际考虑, 选择最佳工艺组合 A₂B₁C₃, 即进风温度 180 ℃, 进料量 20%, 空气流量 800 L·h⁻¹。

2.7 验证试验 取玉米须浓缩液 3 份, 每份 70 mL, 按优选的工艺条件进行喷雾干燥, 结果总黄酮、总多糖质量分数及水分、出粉率平均值分别为 0.14%, 2.71%, 5.81%, 91.33%, RSD 依次为 4.0%, 4.4%, 1.7%, 1.3%, 表明优选的工艺稳定可行。

3 讨论

喷雾干燥机的出风温度受进风温度、空气流

量和进料量的影响, 进风温度升高, 出风温度随之升高; 进料量增大, 出风温度会降低; 空气流量升高, 出风温度亦会降低。结合生产实际, 出风温度最好控制在 80 ~ 100 ℃, 故本文采用的出风温度均在 91 ~ 95 ℃。玉米须浸膏相对密度 < 1.02 时, 喷雾颗粒太细, 被尾气带走的粉末较多, 蒸发的水量相应增加, 造成了能源浪费, 增加了生产成本, 同时工作效率较低; 相对密度 > 1.05 时, 黏稠度大, 雾化困难, 干燥慢, 易造成粉末的含水量偏高^[13], 故本文将玉米须浸膏的相对密度控制在 1.02 ~ 1.05(室温)。

正交试验优化提取工艺过程中, 采用多指标综合评价法, 根据各指标对提取工艺的影响程度给予分配不同的权重系数。总多糖和总黄酮为玉米须配方颗粒的重要有效成分, 出粉率是衡量喷雾干燥工艺的重要参数, 为了能较好地控制药物有效成分不损失, 同时保持较高出粉率, 故设定总多糖、总黄酮含量和出粉率权重系数均为 0.3, 水分则为 0.1。这样既保证了评价指标全面性, 又给予了关键因素相应的侧重, 使分析结果更为科学和客观, 以保证优选工艺路线的合理性。

[参考文献]

[1] 张育光. 玉米须化学成分、药理作用及其应用研究进展[J]. 中国中医药现代远程教育, 2007, 5(2): 34-35.

[2] 徐国钧, 何宏贤, 徐璐珊, 等. 中国药材学[M]. 北京: 中国医药科技出版社, 1996: 1006.

[3] 郑鸿雁, 闵伟红, 吕友权, 等. 玉米须多糖调节免疫功能研究[J]. 食品科学, 2004, 25(10): 291-293.

[4] 苗明三, 张桂兰, 苗艳艳, 等. 玉米须总皂苷对大鼠糖尿病模型肾脏和胰脏超微结构的影响[J]. 中国中药杂志, 2008, 33(10): 1179-1183.

[5] 赵文竹, 于志鹏, 于一丁, 等. 玉米须多糖的研究进展[J]. 食品科学, 2010, 31(11): 289-292.

[6] 陈艳军, 高旭珍, 关大勇, 等. 玉米须醇提取物对肝纤维化大鼠药效学研究[J]. 中国实验方剂学杂志, 2012, 18(11): 195-198.

[7] 窦传斌, 杜娟. 许启泰. 玉米须多糖的利尿作用研究

[J]. 河南大学学报: 医学版, 2007, 26(3): 35-37.

[8] 张彤. 车前草配方颗粒的研究[D]. 成都: 成都中医药大学, 2013.

[9] 范晓艳, 吕冬霞, 金岳雷, 等. 玉米须多糖对人肝癌 SMMC-7721 细胞 Caspase-3 和 p53 表达的影响[J]. 黑龙江医药科学, 2007, 30(6): 3-4.

[10] 吕子明, 于向红, 陈凯, 等. 正交试验法优选黄连浸膏的喷雾干燥工艺[J]. 中国实验方剂学杂志, 2013, 19(1): 10-12.

[11] 国家药典委员会. 中华人民共和国药典. 一部[S]. 北京: 中国医药科技出版社, 2010: 附录 52.

[12] 陈大中, 张洋, 闫广利. 权重系数评分法优化立血康软胶囊的提取工艺[J]. 中国实验方剂学杂志, 2008, 14(10): 20-22.

[13] 奚燕, 张宁. 芩珠凉血颗粒喷雾干燥工艺研究[J]. 中南药学, 2010, 8(4): 253-255.

[责任编辑 刘德文]

《中国实验方剂学杂志》入选“2015—2016 RCCSE 中国核心学术期刊”

由武汉大学中国科学评价研究中心(RCCSE)、武汉大学图书馆、中国科教评价网(www.nseac.com)共同研制的第4版《RCCSE 中国学术期刊评价研究报告——权威、核心学术期刊排行榜(2015—2016)》已于2015年1月13日公布,《中国实验方剂学杂志》被评定为“RCCSE 中国核心学术期刊(A)”,在参评的112本中医学与中药学类期刊中综合排名第15名。

本次学术期刊评价在重点突出期刊学术影响力的同时,也注重了对期刊网络传播效率和期刊即时反应速率的考察,主要评价指标有:总被引频次、2年影响因子、即年指标、基金论文比、Web即年下载率、二次文献转载量(或国外重要数据库收录情况)和专家定性评价。参评期刊共6201种,排名前5%的“RCCSE 中国权威学术期刊”(A⁺)316种,排名前5%~20%的“RCCSE 中国核心学术期刊”(A)和排名前20%~30%的“RCCSE 中国核心学术期刊(扩展版)”(A⁻)共1572种,准核心的学术期刊1848种(B⁺),一般期刊1828(B)种,较差期刊637种(C)。

“RCCSE 中国核心学术期刊”是继“中文核心期刊(北大)”和“中国科技核心期刊”之后国内推出的又一核心期刊评价体系。