

• 制剂工艺 •

清宫消炎栓中莪术、青皮挥发油 的正交试验优选及气相色谱-质谱联用分析

赵红霞^{1*}, 白卫国¹, 汪文来¹, 吉力², 汪芳²

(1. 中国中医科学院基础理论研究所, 北京 100700; 2. 中国中医科学院中药研究所, 北京 100700)

[摘要] 目的: 用正交实验优选清宫消炎栓中莪术、青皮挥发油的最佳工艺条件并对挥发油成分组成进行 GC-MS 色谱分析。方法: 采用正交设计法, 以挥发油出油率为考察指标, 对清宫消炎栓中挥发油的粉碎度、提取时间、加水量三因素进行优选研究。结果: 药材粉碎度为 10~20 目, 提取时间为 6 小时, 加水 8 倍量。结论: 挥发油提取时间是影响挥发油提取的主要因素; 该工艺方法简单, 适合工业化生产。

[关键词] 清宫消炎栓; 挥发油; 正交设计; 气相色谱-质谱联用

[中图分类号] R283.6 **[文献标识码]** B **[文章编号]** 1005-9903(2006)06-0001-02

清宫消炎栓系由莪术、青皮等中药组成, 具有清热解毒, 活血止痛的作用, 用于湿热下注, 热毒熏蒸, 损伤血络导致的赤白带下, 量多, 质黏腻, 阴部瘙痒, 少腹隐痛等症。相当于现代医学的急、慢性宫颈炎症。莪术挥发油具有抗菌、抗炎作用^[1]; 青皮挥发油与理气、调气作用有关^[2,3], 二药采用水蒸气蒸馏法提取挥发油。本文通过对药材粉碎度、提取时间、加水量的考察, 优选了挥发油提取工艺, 并对提取的挥发油组成成分进行了气相色谱和气质联用色谱分析。

1 仪器与材料

1.1 仪器 挥发油测定器; 98-1-A 普通型电热套(天津市泰斯特仪器有限公司); SCOUT 电子天平(SE2020 型, 上海奥豪斯国际贸易有限公司)。

1.2 材料 莪术为姜科植物广西莪术 *Curcuma kwangsiensis* S. G. Lee et C. F. Liang 的干燥根茎; 青皮为芸香科植物橘 *Citrus reticulata* Blanco 的干燥幼果。购于北京燕京医药公司, 经中国中医科学院中药研究所胡世林教授鉴定。

2 方法与结果

2.1 正交试验设计 以挥发油出油率作为考察指

标, 选用正交试验表 $L_9(3^4)$ 安排试验, 对挥发油提取工艺中的粉碎度(A)、提取时间(B)和加水量(C)三因素进行考察, 同时, 每个因素取三个水平。见表 1。

表 1 因素与水平表

因素	A	B	C
水平	粉碎度(目)	提取时间(h)	加水量(倍数)
1	10~20	4	8
2	20~40	6	10
3	大于40	8	12

2.2 实验方法 按处方配比称取莪术、青皮药材共 100g, 计 9 份。按照 $L_9(3^4)$ 正交试验表所列条件进行, 置 2000mL 圆底烧瓶中, 加入一定量的水与玻璃珠数粒, 振摇混合后, 连接挥发油测定器与回流冷凝管。自冷凝管上端加水使充满挥发油测定器的刻度部分, 并溢流入烧瓶时为止。将烧瓶置电热套中加热至沸, 并保持微沸一定时间, 停止加热, 放置至冷, 开启提取器下端活塞, 将水缓缓放出后, 放出挥发油于干净的试管中, 减重法称重, 并计算得率。

2.3 实验结果 各因素和水平之间的 9 种组合方式及每组试验的结果见表 2。方差分析结果见表 3。

2.4 实验数据统计与方差分析 表 2 和表 3 的试验结果表明, 提取时间(B)对于挥发油出油率有显著性影响, $B_2 > B_3 > B_1$, 选择 B_2 水平; 粉碎度(A)、加水量(C)对实验结果无显著影响, 其中 $A_2 > A_1 > A_3$, 考

[收稿日期] 2005-11-10

[通讯作者] 赵红霞, Tel: (010) 64014411-2516; E-mail:

zhaohongxia7000@yahoo.com.cn

虑提取挥发油后药渣与其它药一起煎煮,防止糊化,选择 A₁ 水平; C₂ > C₃ > C₁, 考虑生产实际节约生产成本,选择 C₁ 水平。故最佳工艺为 A₁B₂C₁, 即粉碎度 10~20 目,提取时间 6h,加水量为药材量的 8 倍。

表 2 实验安排和试验结果

实验号	A 粉碎度	B 提取时间	C 加入量	D 空白	出油率 (%)
1	1	1	1	1	0.91
2	1	2	2	2	1.26
3	1	3	3	3	1.22
4	2	1	2	3	1.05
5	2	2	3	1	1.27
6	2	3	1	2	1.24
7	3	1	3	2	0.96
8	3	2	1	3	1.17
9	3	3	2	1	1.15
I ₁	3.39	2.92	3.32	3.33	Σ= 10.23
I ₂	3.56	3.70	3.46	3.46	
I ₃	3.28	3.61	3.45	3.44	
R	0.28	0.78	0.14	0.13	

表 3 方差分析表

方差来源	离差平方和	自由度	方差	F 值	P 值	显著性
A	0.0133	2	0.0067	3.9412	P > 0.05	
B	0.1214	2	0.0607	35.7059	P < 0.05	*
C	0.0041	2	0.0021	1.2353	P > 0.05	
误差	0.0033	2	0.0017			

$F_{0.05}(2, 2) = 19$, * 显著差异

3 挥发油的气相色谱和气质联用分析

挥发油用气相色谱、气质联用仪测定挥发油中成分组成。

3.1 样品制备 按上述最佳工艺提取挥发油,即得。

3.2 仪器及条件 美国 Finnigan 公司 TRACE GC 气相色谱仪, SE-54 石英毛细管色谱柱 (30m × 0.32mm), 程序升温: 起始温度 60℃, 保持 1min, 然后以 2.5℃/min 升至 220℃, 保持 30min; 进样口温度 240℃, 进样量 0.1μl, 分流比 20:1; 定量采用面积归

一化法。美国 TRACE GC-TRACE MS 公司气相色谱-质谱联用仪, 色谱柱: DB-5MS 色谱柱 (30m × 0.25mm × 0.25μm), 电离方式: EI, 离子源温度 200℃, 接口温 240℃, 电子能量 70eV, 发射电流 150μA, 质量范围 35~455, 扫描周期 0.4s, 数据处理系统 Xcalibur 1.2, 图谱库 NIST Version 1.7, 接口温度 240℃, 进样量 0.2μl, 程序升温: 升至 220℃, 保持 20min, 定量采用面积归一化法计算各色谱峰的相对百分含量。检测结果见表 4。

表 4 挥发油成分组成及相对百分含量

序号	中文名称	英文名称	相对百分含量 (%)
1	柠檬烯	Limonene	0.85
2	(E, E)-大菴牛儿-3, 7 (11), 9-三烯-6 酮	(E, E)-Germacr 3, 7 (11), 9-trien-6 one	5.05
3	姜黄二酮	Curdione	29.93

4 讨论

4.1 从正交实验分析结果表明, 最佳工艺为 B > A > C > D, B 提取时间是影响莪术、青皮挥发油提取率的最主要因素。药材粉粉碎度和加水倍量对实验几乎无影响。考虑到用药剂量、生产成本核算等综合因素, 故选用药材粉碎度 10~20 目; 加水倍量 8 倍。

4.2 按照上述挥发油提取的最佳工艺条件提取了 3 批样品, 结果挥发油平均出油率为 1.25% 左右。该工艺方法简单, 适合工业化生产。粉碎度 > 40 目提取时容易糊化且不符合生产实际, 故提取挥发油不宜粉碎过细。

4.3 莪术、青皮挥发油中的一个相对百分含量为 34.47% 的化合物, EIMS 未鉴定出, 文献也未见报道。质谱数据 EIMS m/z (%): 230[M]⁺ (34), 214(14), 161(13), 121(100), 93(41), 76(10), 65(15), 64(15)。

[参考文献]

- [1] 李成章, 时继慧. 莪术油抗炎作用的研究[J]. 中药通报, 1985, 10(3): 38.
- [2] 郑学钦, 沈小燕, 刘紫英. 陈皮、青皮、枳实和枳壳的气相色谱研究[J]. 海峡药学, 1995, 7(4): 4-5.
- [3] 郭兰忠. 现代实用中药学[M]. 北京: 人民卫生出版社, 1999. 555-557.