

引用:刘文豪,刘刁,谢龙龙,等.响应面法优化沙棘果粉喷雾干燥工艺[J].现代中医药,2023,43(6):103-108.

响应面法优化沙棘果粉喷雾干燥工艺^{*}

刘文豪¹ 刘刁¹ 谢龙龙¹ 梁甜津¹ 蒋云溪¹ 崔春利^{1**} 刘红波^{1,2,3}

(1. 陕西中医药大学,陕西 咸阳 712046;2. 陕西中医药大学/陕西中药资源产业化省部共建协同创新中心,陕西 咸阳 712046;3. 秦药特色资源研究与开发国家重点实验室(培育)/陕西中药产业研究院,陕西 咸阳 712046)

摘要:目的 优化沙棘果粉喷雾干燥工艺。方法 采用单因素实验分别考察进风温度、进料流量和辅料含量 3 个因素对沙棘果粉的营养特性的影响;随后以进风温度、进料流量、辅料含量 3 个因素作为自变量,以出粉率、总黄酮含量进行综合评分,采用三因素三水平 Box-Behnken 响应面试验设计,应用 Design-Expert. V12.0 程序分析所得实验数据,确定最佳干燥工艺条件,改良沙棘果粉的生产过程。**结果** 优选出的最佳工艺参数为:进风温度为 130℃、进料流量为 15 mL·min⁻¹和辅料含量 100%时,得到的出粉率和总黄酮含量均为最高。**结论** 优选的沙棘果粉喷雾干燥工艺稳定可行。

关键词:沙棘果浆;喷雾干燥;响应面分析法;工艺优选

中图分类号:R283 **文献标识码:**A

文章编号:1672-0571(2023)06-0103-06

DOI:10.13424/j.cnki.mtcm.2023.06.021

沙棘为胡颓子科植物沙棘 *Hippophae rhamnoides* L. 的干燥成熟果实。气微,味微酸、涩。我国对沙棘医用价值的研究是世界上最早的国家,并且在多个医药经典的著作如《晶珠本草》《四部医典》等都记载着沙棘具有利肺、祛痰、壮阳、风温等多种功效。沙棘是药食两用品种之一,除了药用,还可作为天然维生素,尤其沙棘果富含 Vc,故有“Vc 之王”之称^[1-2]。沙棘果及籽可以提炼沙棘油,或加工成沙棘果汁,沙棘化妆品等,沙棘越来越受到国内外学者的青睐。然而,沙棘为小浆果较难运输,本研究拟采用沙棘鲜果制成果浆后进行喷雾干燥制粉,并对喷干工艺进行了优化,从而更方便的为沙棘的深加工提供原料^[3-5]。

1 仪器与试药

1.1 仪器 GQ-76 管式分离机(上海市离心机械研究所有限公司);FG200-SH 数显高速分散均质机(上海标本模型厂);AH-BASICI 高压均质机(ATS 工业系统有限公司);SD-O6AG 喷雾干燥器(英国 LabPlant 公司);UV-2100 双光束紫外可见

分光光度计(北京瑞利分析仪器有限公司);JYL-C23 九阳家用电动多功能榨汁机(山东九阳小家电有限公司);AP224W 电子天平(岛津企业管理有限公司)。

1.2 试药 沙棘鲜果(陕西艾康沙棘制药有限公司);麦芽糊精(吉林中粮生化能源销售有限公司);芦丁对照品(批号:T27F10Z81699,纯度≥98%,上海源叶生物科技有限公司);微粉硅胶(西安天正药用辅料有限公司);糊精(汉中秦发糊精有限责任公司);硝酸铝、亚硝酸钠、氢氧化钠、95%乙醇等均为分析纯,纯净水(娃哈哈饮用纯净水)。

2 方法与结果

2.1 操作流程 沙棘鲜果挑选→压榨→分离→均质乳匀→喷雾干燥

2.1.1 沙棘鲜果挑选 挑选完全成熟的果实,没有出现腐烂、发霉的情况。

2.1.2 压榨 将沙棘果放入榨汁机,进行两次榨汁。

* 基金项目:陕西省科技厅项目(2014K-03-01);陕西省大学生创新项目(S202110716074)

** 通讯作者:崔春利,高级实验师。E-mail:ccl906@163.com

2.1.3 分离 用 9 号筛对过滤后的沙棘果浆再一次进行细过滤以备均质使用。

2.1.4 均质乳匀 采用均质机一级阀压力 300 bar 对果浆进行均质,使其在高压下形成均一的分散液。

2.1.5 喷雾干燥 以均质处理好的沙棘果浆,加入适量的麦芽糊精对沙棘果浆进行喷雾干燥。

2.2 沙棘果浆总固形物含量测定 精密量取 25 mL 沙棘果浆并置于干燥至恒重的蒸发皿中,然后 100 ℃ 水浴上蒸干,在 105 ℃ 烘箱中干燥 2 h,最后置于干燥器中冷却 30 min,随后使用电子天平迅速精密称定质量,根据《中国药典》2020 年版四部通则 2201 浸出物测定法算出总固形物含量(%)。结果,沙棘果浆的总固形物含量为:12.4%。

2.3 出粉率计算 出粉率 = $m/m_1 \times 100\%$,公式中, m 为喷雾干燥后沙棘粉的质量, m_1 为喷雾干燥前沙棘果浆中总固形物含量。

2.4 黄酮含量测定

2.4.1 对照品溶液的制备 取芦丁对照品适量,精密称定,置 50 mL 量瓶中,加 60% 乙醇适量,置水浴上微热使溶解,放冷,加 60% 乙醇至刻度,摇匀,即得浓度为 $0.4065 \mu\text{g} \cdot \text{mL}^{-1}$ 芦丁对照品溶液母液。精密量取母液 25 mL,置 50 mL 量瓶中,加水稀释至刻度,摇匀,即得浓度为 $0.2033 \text{ mg} \cdot \text{mL}^{-1}$ 芦丁对照品溶液。

2.4.2 标准曲线的制备 精密量取对照品溶液 1 mL、2 mL、3 mL、4 mL、5 mL 和 6 mL,分别置 25 mL 量瓶中,各加 30% 乙醇至 6 mL,加 5% 亚硝酸钠溶液 1 mL,混匀,放置 6 min,再加 10% 硝酸铝溶液 1 mL,摇匀,放置 6 min。加氢氧化钠试液 10 mL,再加 30% 乙醇至刻度,摇匀,放置 15 min,以相应试剂为空白,照紫外 - 可见分光光度法(《中国药典》2020 年版通则 0401),在 500 nm 的波长处测定吸光度,以吸光度为纵坐标,浓度为横坐标,绘制标准曲线。

2.4.3 总黄酮含量测定 取喷雾干燥粉约 2 g,精密称定,加 60% 乙醇 30 mL,加热回流 2 h,放冷,滤过,残渣再分别加 60% 乙醇 25 mL,加热回流 2 次,每次 1 h,滤过,合并滤液,置 100 mL 量瓶中,残渣用 60% 乙醇洗涤,洗液并入同一量瓶中,用 60% 乙醇稀释至刻度,摇匀。精密量取 25 mL,置 50 mL

量瓶中,加水至刻度,摇匀,作为供试品溶液。

精密量取供试品溶液 3 mL,置 25 mL 量瓶中,加 30% 乙醇至 6 mL,照“2.4.2”项下标准曲线制备方法进行的操作,依法测定吸光度,同时取供试品溶液 3 mL,除不加氢氧化钠试液外,其余同上操作,作为空白,以标准曲线供试品溶液中含芦丁的含量上读出即得。

2.5 水分含量测定 取沙棘粉 2g 置干燥恒重的扁形称量瓶中,精密称定,开启瓶盖在 100 ~105℃ 烘箱中干燥 5 h,将瓶盖盖好,移置干燥器中冷却 30 min,精密称定,再在上述温度干燥 1 h,冷却,称重,至连续两次称重的差异不超过 5 mg 为止。根据减少的重量,计算沙棘粉中含水量。

2.6 喷雾干燥工艺单因素试验 主要考察进风温度、进液流量、辅料含量对出粉率及总黄酮含量的影响,分别取 50 mL 沙棘果浆在不同条件下进行实验,控制一个变量,进行喷雾干燥;随后计算出粉率并取相同质量沙棘粉进行总黄酮含量测定。

2.6.1 进风口温度的确定 随着进风口温度升高,出粉率呈现先升高后降低的趋势,并且在进风口温度为 130℃ 时出粉率高于 30%;总黄酮含量也出现了先升高继而降低的情况,130℃ 时总黄酮含量高达 $0.6 \text{ mg} \cdot \text{g}^{-1}$ 。见图 1 和图 2。

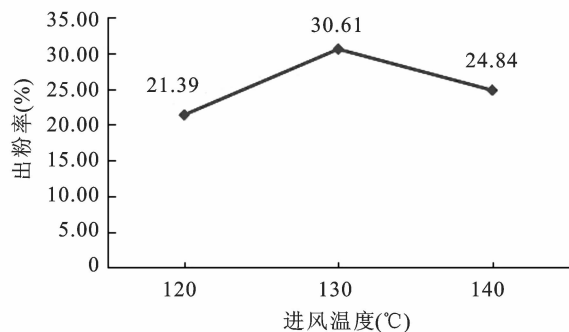


图 1 进风温度对果粉出粉率的影响

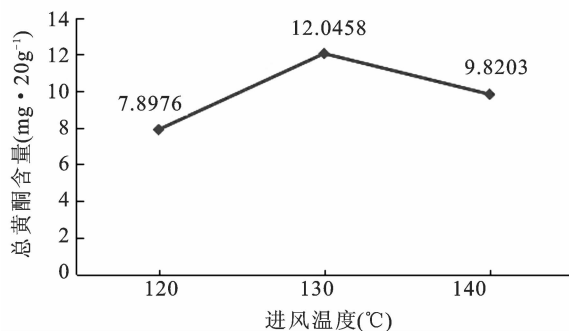


图 2 进风温度对果粉总黄酮含量的影响

根据图中数据分析得出,进风口温度对沙棘粉出粉率和总黄酮含量有明显影响。温度在 120℃ 时,由于水分蒸发不完全导致沙棘粉粘附于器壁;温度在 140℃ 时,由于物料表面水分很快被蒸发,水蒸气存在导致物料回潮;同时温度过高总黄酮含量降低的原因主要是黄酮是一种热敏性物质,温度升高反而会导致其发生氧化分解,进一步影响总黄酮含量。因此最佳温度为 130℃^[6-7]。

2.6.2 进液流量的确定 随着进液流量升高,沙棘出粉率保持在 20% ~ 35% 之间,在进液流量为 15 mL · min⁻¹ 时,出粉率为 30.61%,达到最大值;而总黄酮含量一直在 0.4 ~ 0.6 mg · g⁻¹,在进液流量为 15 mL · min⁻¹ 时,总黄酮含量最高。见图 3 和图 4。

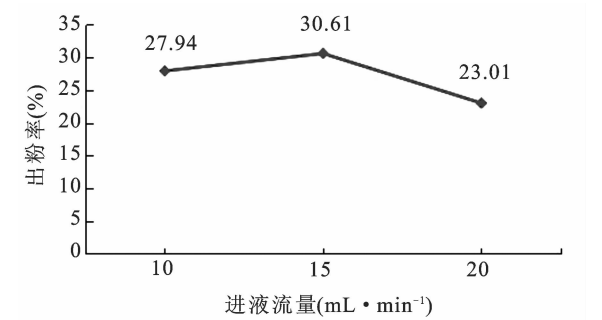


图 3 进料流量对果粉出粉率的影响

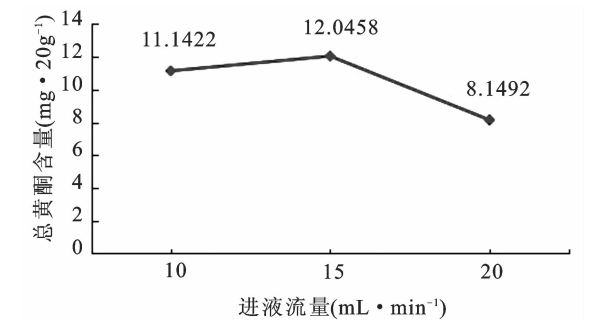


图 4 进料流量对果粉总黄酮含量的影响

进液流量的快慢也会影响到沙棘的出粉率及总黄酮含量。当进料流量增加时,液滴的直径会变得更大,喷雾干燥需要更长的时间导致其不易干燥造成粘壁现象,使出粉率与总黄酮含量降低^[8-12]。

2.6.3 辅料种类的确定 通过对比沙棘果和佛手果,两种果实均为碱性药材,且含有油、黄酮类成分及其它物质。杨慧等^[13-16]通过平行实验筛选辅料,筛选方案最佳辅料为麦芽糊精。为了防吸

湿,选用糊精、微粉硅胶作为沙棘粉防吸湿辅料进行研究。最终,本研究采用糊精、麦芽糊精、微粉硅胶作为研究喷干的辅料。

2.6.4 辅料比例确定^[13-15] 保持进风温度、进料流量分别为 130℃、15 mL · min⁻¹。各取 50 mL 沙棘果浆加入辅料,进行平行实验,以出粉量、水分含量为评价指标,通过对比,最佳辅料比例为 2:4:5。见表 1。

表 1 辅料比例确定平行实验表

糊精:微粉硅胶:麦芽糊精	出粉量(g)	水分含量(%)
1:4:5	9.54	12.5
1:6:5	10.65	11.2
2:4:5	11.92	10.5
2:6:5	11.31	10.3

2.6.5 辅料添加量的确定 保持进风温度、进液流量分别为 130℃、15 mL · min⁻¹;通过上述平行实验所得辅料比,将糊精:微粉硅胶:麦芽糊精 = 2:4:5 的比例加入沙棘果浆中混匀进行喷干。由图可知,辅料总量占果浆固含物含量为 60%,出粉率与总黄酮含量最低,分别为 23.96%,0.45 mg · g⁻¹;辅料含量为 100% 时,出粉率与总黄酮含量最高 30.61%,0.6 mg · g⁻¹。出粉率和总黄酮含量随辅料含量的增加呈现增加趋势。见图 5 和图 6。

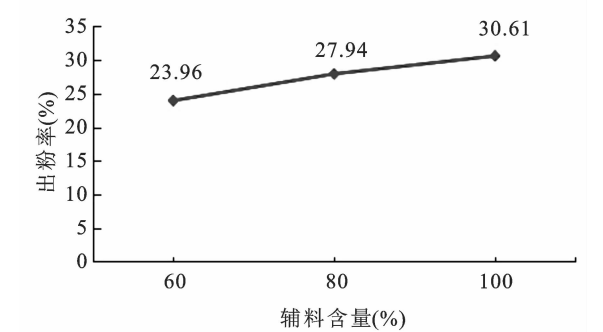


图 5 辅料含量对果粉出粉率的影响

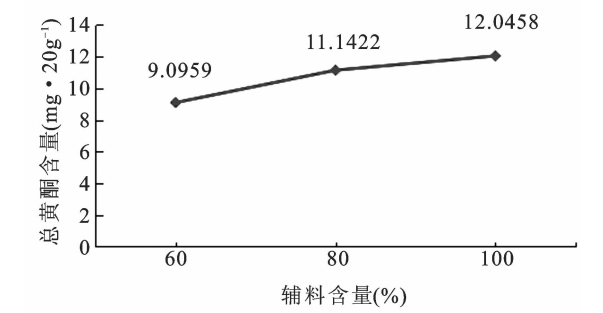


图 6 辅料含量对果粉总黄酮含量的影响

辅料含量对于沙棘果粉的出粉率及总黄酮含量均有显著性影响。由于增加辅料添加量可以增加总固形物含量,降低沙棘果浆含水量,使出粉率与总黄酮含量增加^[17-19]。

2.7 响应面设计优化喷雾干燥工艺 在以上干燥工艺单因素试验结果的基础上,选择进风温度、进料流量、辅料含量 3 个因素作为自变量,然后对出粉率、总黄酮含量所得数据进行标准化处理,最后进行综合评分。进行 3 因素、3 水平共 17 个试验点的响应面分析试验。

2.7.1 数据标准化处理 由于得到的数据差距

比较大,数值高的指标会在综合评分中相对削弱数值水平较低的指标,采用极差标准化法进行数据标准化处理,将原始数据转化为无量纲化指标测评值,使各指标值处于同一数量级别,随后进行综合评分。

将原始数据通过此公式进行计算: $(X - X_{\min}) / (X_{\max} - X_{\min})$, X 为测定结果,所得结果见表 2。

2.7.2 分析方案 将权重定为 6:4 (综合评分 = 出粉率 \times 0.6 + 总黄酮含量 \times 0.4),然后按照此比例将两者进行计算,得出综合评分。见表 2。

表 2 喷雾干燥响应面数据结果及分析方案

序号	A 进风 温度	B 进液 流量	C 辅料 含量	指标测定结果		指标标准化处理结果		综合 评分
				出粉率	总黄酮含量	出粉率	总黄酮含量	
1	1	0	1	0.2396	9.0959	0.4192	0.5691	0.2515
2	-1	0	-1	0.2301	8.1492	0.3362	0.4307	0.2017
3	0	-1	-1	0.2101	7.4346	0.1616	0.3263	0.0969
4	0	0	0	0.2802	11.6601	0.7738	0.9439	0.4643
5	0	1	1	0.1916	5.2042	0	0.0002	0.0001
6	0	0	0	0.2794	11.1422	0.7668	0.8689	0.4601
7	0	0	0	0.3061	12.0458	1	1.0003	0.6000
8	0	1	-1	0.2484	9.8203	0.4961	0.6750	0.2976
9	0	0	0	0.2787	11.5261	0.7607	0.9243	0.4564
10	0	-1	1	0.2435	9.7402	0.4533	0.6633	0.2720
11	-1	-1	0	0.2523	9.9608	0.5301	0.6955	0.3181
12	-1	0	1	0.2496	9.9951	0.5066	0.7005	0.3039
13	1	1	0	0.2471	9.3704	0.4847	0.6092	0.2908
14	0	0	0	0.2804	11.0572	0.7755	0.8558	0.4653
15	1	-1	0	0.2523	10.0061	0.5301	0.7021	0.3181
16	1	0	-1	0.2601	10.8382	0.5983	0.8238	0.3590
17	-1	1	0	0.2139	7.8976	0.1948	0.3939	0.1169

运用 Design-Expert. V12.0 程序对 17 个试验点的响应值进行回归拟合,分别得到综合评分的二次多项回归模型方程 Y (综合评分) 为:

$$Y = 0.4892 + 0.0384A - 0.0375B - 0.0160C + 0.0435AB - 0.0324AC - 0.1182BC - 0.0579A^2 - 0.1703B^2 - 0.1523C^2。$$

表 3 是综合评价(果浆出粉率与总黄酮含量拟合)线性回归分析。从表 3 的 P 值可以得出, BC 、 B^2 、 C^2 对 Y 的影响较明显,说明各项指标与各因素之间的线性关系较为复杂。各因素对果浆综合评分的影响水平为: $C < A < B$; 表明当分别探究各因素对实验的影响时进风温度、进料流速对指

标影响较大,而辅料的添加量的影响较小;从表 3 方差分析得出:模型的 $P < 0.01$,回归方程失拟性检验 $P = 0.7206 > 0.05$,无显著性差异,说明模型拟合度良好,此模型选择合理;其关系数为 $r = 0.9719$,表明模型能够对各项指标的预测可靠^[20]。

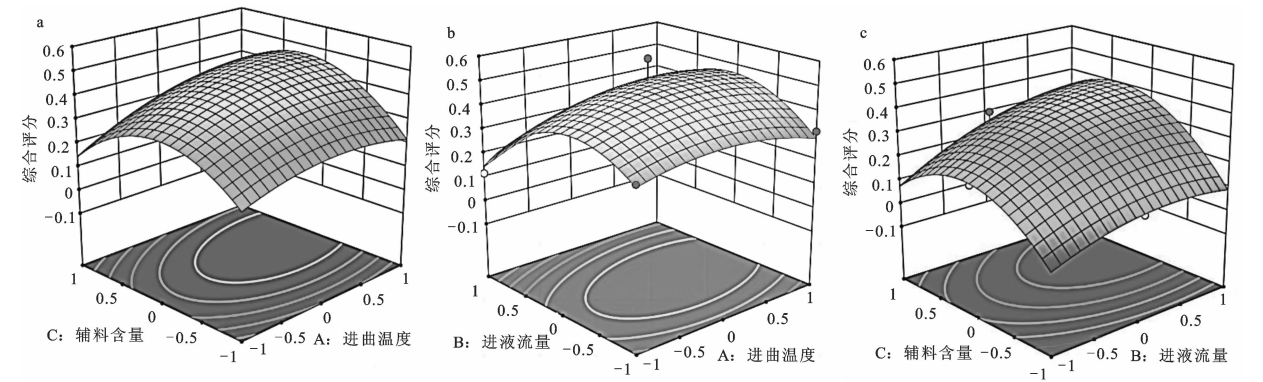
从图 7 各响应面的三维图像可以看出影响喷雾干燥工艺的因素之间相互影响,并且不难发现以下响应面图 a ~ 图 c 存在着最高点与等高线,可以直观的反映出最大值与最小值(极值),以及最小椭圆的中心点。从图 a ~ 图 c 可看出,对于综合评分(总黄酮含量与出粉率的拟合)的影响,进风温度、进液流量以及麦芽糊精添加量彼此之间的

的相互作用对综合评分的影响尤为显著。图 a 表明,辅料含量与进风温度彼此的相互作用明显;图 b 表明进液流量与辅料含量之间的作用较明显;图 c 表明,进风温度、进液流量之间的相互影响比

较显著。因此,说明了三种因素对沙棘果浆喷雾干燥综合评分影响显著。对试验结果及模型以综合评分作为指标进行分析,最终确定沙棘果浆喷雾干燥工艺的最佳条件^[21]。

表 3 喷雾干燥综合评价回归方程方差分析表

方差来源	平方和	d _f	均方	F	P	显著性
模型	0.3537	9	0.0393	13.2300	0.0013	显著
A-进风温度	0.0097	1	0.0097	3.2700	0.1134	不显著
B-进液流量	0.0112	1	0.0112	3.7800	0.0929	不显著
C-辅料含量	0.0020	1	0.0020	0.6874	0.4344	不显著
AB	0.0076	1	0.0076	2.5500	0.1546	不显著
AC	0.0110	1	0.0110	3.7000	0.0958	不显著
BC	0.0559	1	0.0559	18.8100	0.0034	显著
A2	0.0141	1	0.0141	4.7600	0.0656	不显著
B2	0.1221	1	0.1221	41.1200	0.0004	显著
C2	0.0976	1	0.0976	32.8700	0.0007	显著
残差	0.0208	7	0.0030	—	—	—
失拟项	0.0054	3	0.0018	0.4679	0.7206	不显著
绝对误差	0.0154	4	0.0038	—	—	—
总和	0.3745	16	—	—	—	—



注:a.进风温度和辅料含量对综合评分的影响;b.辅料含量和进液流量对综合评分的影响;c.进风温度和进液流量对综合评分的影响

图 7 各因素交互作用对综合评分的影响响应面图

为了验证此模型试验(RSM)的准确性,我们采用了重复实验的方法进行验证(≥ 3 次),采取上面分析得出沙棘果浆喷雾干燥的最佳条件组合:以进风温度 130°C 、进液流量 $15\text{ mL}\cdot\text{min}^{-1}$ 、辅料含量 100% 为参数进行重复试验 3 次,在最优工艺条件下所得数据并取平均值值得综合评分 0.613。

3 讨论

沙棘品种已经有 8 个大系 200 余种品系,市面上流通的沙棘产品有沙棘速溶茶、沙棘油、沙棘纤维素、沙棘黄酮等。沙棘干果、鲜果,沙棘籽及沙棘叶及枝等所具有的营养、保健、美容及药用价

值成为目前的研究热点。目前,沙棘鲜果在进行加工处理时其中部分营养物质流失,利用率降低。本研究根据均质乳化原理,将分散在果浆中的少量果油进行处理,使沙棘果中营养物质的利用率提高,其使用的乳化剂也有益于人体。利用制剂技术将果浆制成果粉,既保存了营养价值,也便于携带,且降低了生产成本。然而,由于沙棘果核过于小且坚硬,不易处理,其中的果油不能充分榨出,因此对设备和工艺流程的设置的要求较高。喷雾干燥技术是将被干燥的液体物料浓缩至一定浓度,通过喷嘴将物料液体分散成非常小的

液滴,然后经过高温空气等干燥介质与雾滴进行热交换,并在短时间内完成溶剂的蒸发,最后经过旋风分离器的作用得到干燥粉状产品。喷雾干燥技术的优点在于能够把干燥、制粒、混合等操作工艺一步实现,使生产工艺变得简单,从而极大地缩减了干燥的时间,提高了药品的生产效率,且解决了提取液浓缩干燥的问题,另外还减少了辅料的用量和服药的剂量,并且减少生产过程中污染环境的机会^[22-24]。

本研究发现,喷雾干燥时温度超过 180℃ 时粉易焦糊,低于 120℃ 时难以得到喷干粉,且制出的沙棘粉粘壁比较严重,在收集沙棘粉时及其容易吸湿结块。通过参考文献并进行平行实验得出最佳辅料及其比例(2:4:5),极大限度的减少了喷干粉末的吸湿情况。

响应面法能够对工艺参数进行优化,通过多因素综合分析、数据处理得到模型及回归方程,在优化中药材有效成分的提取工艺中发挥极其重要的作用^[25]。经过工艺验证表明,本实验所得出的最佳喷干工艺切实可行,为沙棘的进一步开发利用提供了支持。

参考文献

- [1] 黄媛媛,张志斌. 沙棘的高效综合利用[J]. 食品安全导刊,2020(15):147-148.
- [2] 白玉花. 沙棘果饮食品加工技术简介[J]. 内蒙古林业,1986(12):25.
- [3] 钟心,尤飞,周振亚,等. 我国沙棘产业发展现状与对策建议[J]. 世界林业研究,2021,34(3):102-106.
- [4] 顾晶晶. 新疆青河沙棘果油的酶法提取分离及精制研究[D]. 乌鲁木齐:新疆大学,2009.
- [5] 杨明明. 沙棘籽油脂肪乳注射液的研究[D]. 沈阳:沈阳药科大学,2009.
- [6] 乌日娜,那生桑,包勒朝鲁. 复方沙棘颗粒剂的喷雾干燥工艺优选[J]. 中国实验方剂学杂志,2013,19(4):56-58.
- [7] 秦荣新,刘百义. 吠喃西林麻黄碱滴鼻乳的制备与质量控制[J]. 医药导报,2009,28(1):95-96.
- [8] 李雅,易丽娟,柳兰,等. Box-Behnken 响应面法结合反向传播神经网络优化益心泰复方浓缩液喷雾干燥工艺研究[J]. 中国新药杂志,2021,30(18):1715-1723.
- [9] 崔素芬,廖芬,何全光,等. 采用离心喷雾干燥技术制备桑葚果粉[J]. 食品与发酵工业,2012,38(11):73-78.

- [10] 张厅,陈思奇,丁筑红,等. 刺梨果汁喷雾干燥制粉工艺优化[J]. 现代食品科技,2020,36(12):168-179,203.
- [11] 徐思宁,刘红波,唐志书,等. 沙棘果浆微囊喷雾干燥制备工艺及其理化性质研究[J]. 食品与发酵工业,2020,46(6):121-126.
- [12] 段晓颖,邢慧资,刘晓龙,等. 降糖通络颗粒喷雾干燥工艺的优化[J]. 中成药,2018,40(10):2317-2320.
- [13] 刘晓龙. 二种中药制剂喷雾干燥防粘壁关键技术研究[D]. 郑州:河南中医学院,2014.
- [14] 王俊杰,冯怡,杨胤,等. 辅料对改善强力宁提取液喷雾干燥粘壁现象的作用研究[J]. 中成药,2012,34(1):34-38.
- [15] 李明娟,张雅媛,游向荣,等. 低温喷雾干燥技术制备核桃蛋白粉的工艺条件优化[J]. 食品工业,2021,42(1):156-161.
- [16] 杨慧,周爱梅,梁秀媚,等. 响应面分析法优化佛手果粉喷雾干燥工艺研究[J]. 食品科技,2015,40(3):83-89.
- [17] 李居南. 喷雾干燥法生产谷物速溶粉的技术研究[D]. 杨凌:西北农林科技大学,2012.
- [18] 万敏惠,叶劲松,何伟明,等. 喷雾干燥条件对经 TGase 处理后蛋清粉乳化活性的影响[J]. 基因组学与应用生物学,2021,40(S1):2136-2143.
- [19] 刘艳,唐美玲,蔡文,等. 喷雾干燥法制备山药大果山楂固体饮料[J]. 食品工业,2021,42(3):103-107.
- [20] 刘少静,秦蓓,张颖,等. 沙棘果粉中总黄酮和鞣皮素的含量测定[J]. 化工科技,2019,27(5):51-54.
- [21] 赵重博,王晶,吴博,等. 星点设计优化天南星多糖提取工艺及提取动力学研究[J]. 陕西中医药大学学报,2018,41(5):107-113.
- [22] 曹霞,谭玉梅,吕都,等. 茯砖速溶茶喷雾干燥工艺优化[J]. 食品工业,2021,42(2):33-36.
- [23] 聂增宇,胡文林,许世锦,等. 工业中应用离心喷雾干燥技术制备功能性红曲粉[J]. 食品与发酵科技,2021,57(6):54-59.
- [24] 李鹏飞,余倩倩,苏亚平,等. 基于喷雾干燥技术制备海棠果粉及其固体饮料的研发[J]. 饮料工业,2021,24(4):5-13.
- [25] 赵璠,李家磐,段道,等. 响应面法优化茜草总酚超声提取工艺[J]. 陕西中医药大学学报,2022,45(5):119-123.