

基于多元功效成分的干姜干燥方法研究

李鹏辉¹, 吴启南^{1*}, 严辉^{1*}, 包胜¹, 朱邵晴¹, 郭盛¹, 黄胜良², 汪国强²

1. 南京中医药大学 江苏省中药资源产业化过程协同创新中心/国家中医药管理局中药资源循环利用重点研究室/国家中药材产业技术体系盐城综合试验站, 江苏 南京 210023
2. 江苏融昱药业有限公司, 江苏 淮安 223001

摘要: 目的 比较不同干燥方法对干姜药材中6种活性成分的影响, 探讨干燥过程中干姜成分的动力学变化和水分动力学变化。方法 采用HPLC同时测定干姜中的多元功效成分, 以6-姜酚、8-姜酚、10-姜酚、6-姜烯酚、 α -姜黄烯、(E)- β -金合欢烯为指标, 对不同干燥方法所得干姜进行综合评价; 利用Weibull函数模拟干姜干燥过程中水分的动态变化结合成分动态变化, 探讨干姜干燥过程的原理。结果 12种干燥方法对干姜中多元功效成分有一定影响, 干燥过程各成分呈波动变化, Weibull函数模拟干姜干燥过程的 r^2 均大于0.990。以控温鼓风60℃干燥所得干姜较优; 含水量范围6%~15%为干姜加工的适宜水分; 干姜干燥过程中6-姜酚、8-姜酚、10-姜酚和6-姜烯酚与含水量呈显著的负相关关系。结论 Weibull分布函数能够较好的模拟干姜干燥过程的水分变化, 对干姜干燥过程的预测、调控具有重要意义, 同时为使用现代干燥技术干燥干姜药材提供了技术依据。

关键词: 干姜; 干燥方法; 动态变化; Weibull函数; 姜酚; 综合评价; 6-姜酚; 8-姜酚; 10-姜酚; 6-姜烯酚; α -姜黄烯; (E)- β -金合欢烯; 含水量

中图分类号: R263.1 文献标志码: A 文章编号: 0253-2670(2018)18-4293-09

DOI: 10.7501/j.issn.0253-2670.2017.18.013

Drying processing method for *Zingiberis Rhizoma* based on multiple bioactive constituents

LI Peng-hui¹, WU Qi-nan¹, YAN Hui¹, BAO Sheng¹, ZHU Shao-qing¹, GUO Sheng¹, HUANG Sheng-liang², WANG Guo-qiang²

1. Jiangsu Collaborative Innovation Center of Chinese Medicinal Resources Industrialization; Key Laboratory of Chinese Medicinal Resources Recycling Utilization of State Administration of Traditional Chinese Medicine; National and Yancheng Comprehensive Test Station of China Agriculture Research System, Nanjing University of Chinese Medicine, Nanjing 210023, China
2. Jiangsu Rongyu Pharmaceutical Co., Ltd., Huaian 223001, China

Abstract: Objective To compare the effects of different drying methods on six bioactive constituents of *Zingiberis Rhizoma* (ZR), and explore the dynamic changes of bioactive constituents and water content during the drying process. **Methods** The multiple components in ZR were simultaneously measured by HPLC, and 6-gingerol, 8-gingerol, 10-gingerol, 6-shogaol, α -curcumen, (E)- β -farnesene were used as indexes to evaluate ZR obtained from different drying methods. The Weibull function was used to simulate the dynamic change of water content, which was combined with the dynamic changes of components during the drying process of ZR to explore the principle of drying process. **Results** A total of 12 kinds of drying methods had a certain effect on the multiple components of ZR, and the components presented the fluctuation change in the drying process. The coefficient of correlation of Weibull functional simulation of ZR drying process was greater than 0.990. **Conclusion** ZR obtained by drying at 60℃ was better. Water content range of 6%—15% was suitable for processing ZR. 6-gingerol, 8-gingerol, 10-gingerol, and 6-shogaol were significantly negatively correlated with the moisture content of ZR. The Weibull distribution model could well simulate the fluctuation

收稿日期: 2018-05-07

基金项目: 国家中药标准化项目“新生化颗粒标准化建设”(ZYBZH-C-JS-34); 国家现代农业产业技术体系建设专项资金资助(CARS-21)

作者简介: 李鹏辉, 男, 硕士研究生, 研究方向为中药资源与鉴定。E-mail: 348854023@qq.com

*通信作者 吴启南, 男, 教授, 博士生导师, 主要从事中药资源与鉴定研究。E-mail: qnwyjs@163.com

严辉, 男, 副教授, 主要从事中药资源与鉴定研究。E-mail: glory-yan@163.com

change of water content in the drying process, and it was of great significance for the prediction and quality control of ZR during drying process, which could also provide a technical basis for the use of modern drying technology to dry ZR at the same time.

Key words: *Zingiberis Rhizoma*; drying process; dynamic change; Weibull function; gingerol; synthetic evaluation; 6-gingerol; 8-gingerol; 10-gingerol; 6-shogaol; α -curcumene; (*E*)- β -farnesene; water content

干姜来源于姜科植物姜 *Zingiber officinale* Rosc. 的干燥根茎^[1], 具有温中散寒、回阳通脉、温肺化饮的功效^[2]。干姜的有效成分主要有姜辣素和挥发油 2 大类^[3]。姜辣素成分主要包含 6-姜酚、8-姜酚、10-姜酚、姜烯酚及姜酮等酚类成分^[4-5]。现代药理研究表明, 姜酚具有消炎、抗氧化、抗肿瘤、保肝利胆和抑制中枢神经等作用; 其挥发油具有抗缺氧、改善血液循环等作用^[6-9], 为干姜发挥功效的主要物质基础。目前, 干姜产地加工多存在干燥条件可控性差, 耗时长, 易受气候条件影响等问题, 随着科技的进步和中药材生产工业化程度的提升, 如何建立科学、高效、合理的产地加工技术, 将现代科学技术与方法运用到传统中药材生产中, 是实现中药材产地加工规范化的关键问题^[10-13]。目前文献报道关于干姜药材加工方法主要以 6-姜酚为评价指标, 难以全面、客观地评价干姜加工后药材的品质。基于此, 本实验利用现代干燥方式对干姜药材进行干燥加工, 以干姜中 4 个姜酚类成分和 2 个挥发油类成分为指标, 利用 Weibull 函数模拟干姜干燥过程中水分的动态变化, 同时探讨干燥过程中多元成分的动态变化, 以期更加全面、合理地评价干姜的干燥方法, 为干姜药材产地加工更好地与现代干燥设备结合提供一定的参考。

1 仪器与材料

1.1 仪器

隧道式中短红外干燥机, 江苏省泰州圣泰科红外科技有限公司; 电热恒温鼓风干燥箱, 上海精宏实验设备有限公司; 隧道式微波干燥机, 南京研正微波设备厂; Waters 2695 Alliance 高效液相色谱系统, 含四元泵溶剂系统、在线脱气机和自动进样器、PDA 检测器, 美国 Waters 公司; BT125 型电子分析天平, 赛多利斯科学仪器有限公司; EPED 超纯水系统, 南京易普达易科技发展有限公司; KH5200B 型超声波清洗器, 昆山禾创超声仪器有限公司; DRAGONLAB D2012 高速台式离心机, 大龙兴创实验仪器北京有限公司。

1.2 试剂

乙腈, 色谱纯, 美国 Tedia 公司; 甲醇, HPLC 专用, 山东禹王实业有限公司化工分公司; 6-姜酚

(批号 6-JF20161004)、8-姜酚(批号 8-JF20161223)、10-姜酚(批号 10-JF20170201)、6-姜烯酚(批号 6-JXF20170111) 购自南京春秋生物有限公司, 经 HPLC 分析, 质量分数 $\geq 98\%$; (*E*)- β -金合欢烯(批号 DSH1499) 购自日本和光纯药工业株式会社; α -姜黄烯(批号 0606/0) 购自法国 Extrasynthese 公司, 经 GC 分析, 质量分数 $\geq 90\%$ 。

1.3 样品

鲜姜样品(批号 20171204) 采集于云南罗平干姜药材种植基地, 同时收集同产地同采收期经产地加工干燥的优质药材 6 批, 传统产地加工选均匀、饱满结实、未经霜冻、不霉不烂的鲜姜作原料。先将鲜姜上滚筒式清洗机, 洗去表面泥沙、撞去栓皮, 冲洗干净后至阴凉通风处晾干, 待表面水分稍干后, 即可开始上炕烘烤。烘烤第 1 天, 温度保持在 80~90 °C, 保证姜块水分快速蒸发, 防止表面糖化。第 2 天温度降至 70~80 °C, 第 3 天 60 °C, 第 4、5 天维持在 50 °C 左右, 一般经 5 d 烘烤即得成品。烘烤过程中通常 2 h 翻动 1 次, 尽量把底层的姜块翻上来, 翻姜时需使用竹木制品, 注意不要将姜块弄碎。烘烤 3 d 后, 通常已有六、七成干, 此时停火后需在姜块上盖草席或麻袋片保温, 使干姜内部水分重新分布。当姜块用手折时发出脆声, 断面处可见姜丝, 此时含水量约为 10%~15%, 即可。所有样品经南京中医药大学严辉副教授鉴定为姜科植物姜 *Zingiber officinale* Rose. 的根茎。

2 方法与结果

2.1 干燥加工方法

取鲜姜药材(批号 20171204), 去除杂质, 洗净, 混匀后随机平均分为 12 份, 分别用不同干燥方法处理, 待水分降低至 19% 以内停止干燥, 另外收集同产地同采收期经产地加工干燥的优质药材 6 批(120401、120403、120405、120407、120409、120411) 用于对照实验, 具体样品信息见表 1。

2.2 指标成分含量测定

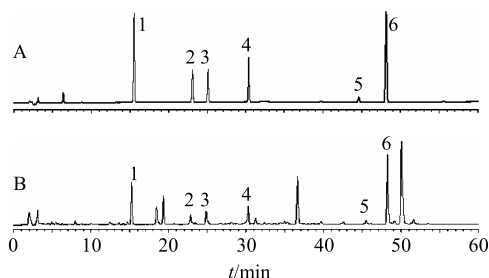
2.2.1 色谱条件 Waters Symmetry ShieldTM RP C₁₈ 色谱柱(250 mm $\times$ 4.6 mm, 5 μ m); 流动相为乙腈-水, 梯度洗脱, 洗脱程序: 0~30 min, 35%~70% 乙腈; 30~50 min, 70%~90% 乙腈; 体积流量 1.0

mL/min; 进样量 20 μ L; 检测波长 280 nm; 柱温 30 $^{\circ}$ C。混合对照品与样品 HPLC 图见图 1。

表 1 干姜药材加工方法信息

Table 1 Information of drying methods carried out on ZR samples

编号	干燥方法	时间/h	编号	干燥方法	时间/h
No.1	红外 50 $^{\circ}$ C	155.00	No.10	微波 50 $^{\circ}$ C	6.50
No.2	红外 60 $^{\circ}$ C	72.00	No.11	微波 60 $^{\circ}$ C	1.56
No.3	红外 70 $^{\circ}$ C	63.00	No.12	微波 70 $^{\circ}$ C	0.73
No.4	红外 80 $^{\circ}$ C	16.00	No.13	产地烘烤	
No.5	鼓风 50 $^{\circ}$ C	140.00	No.14	产地烘烤	
No.6	鼓风 60 $^{\circ}$ C	70.00	No.15	产地烘烤	
No.7	鼓风 70 $^{\circ}$ C	51.00	No.16	产地烘烤	
No.8	鼓风 80 $^{\circ}$ C	14.00	No.17	产地烘烤	
No.9	微波 40 $^{\circ}$ C	15.60	No.18	产地烘烤	



1-6-姜酚 2-8-姜酚 3-6-姜烯酚 4-10-姜酚 5- α -姜黄烯
6-(E)- β -金合欢烯
1-6-gingerol 2-8-gingerol 3-6-shogaol 4-10-gingerol
5- α -curcumene 6-(E)- β -farnesene

图 1 混合对照品 (A) 与干姜样品 (B) 的 HPLC 图

Fig.1 HPLC of mixed reference substances (A) and Zingiberis Rhizoma sample (B)

2.2.2 混合对照品溶液的制备 取 6-姜酚、8-姜酚、6-姜烯酚、10-姜酚、 α -姜黄烯和 (E)- β -金合欢烯对照品适量, 精密称定, 加 75% 甲醇溶解并稀释, 分别制成含 6-姜酚 0.212 mg/mL、8-姜酚 0.087 mg/mL、6-姜烯酚 0.019 mg/mL、10-姜酚 0.146 mg/mL、 α -姜黄烯 0.024 mg/mL 和 (E)- β -金合欢烯 0.265 mg/mL 的溶液, 即得。

2.2.3 供试品溶液的制备 取本品粉末(过 3 号筛)约 0.5 g, 精密称定, 置具塞锥形瓶中, 精密加入 75% 甲醇 20 mL, 密塞, 称定质量, 超声处理 40 min, 取出, 放冷, 再称定质量, 用 75% 甲醇补足减失的质量, 提取液经 13 000 r/min 条件下离心 10 min, 上清液过 0.45 μ m 的微孔滤膜, 取续滤液, 即得。

2.2.4 线性关系考察 将“2.2.2”项下混合对照品溶液分别稀释 2、4、8、16、32、64 倍, 按“2.2.1”项下色谱条件进样测定, 以各对照品峰面积为纵坐标 (Y), 质量浓度为横坐标 (X), 进行线性关系考察, 结果见表 2。各对照品 r^2 均不小于 0.999 9, 表明其线性关系良好。

2.2.5 精密度试验 取“2.2.2”项下混合对照品溶液, 按“2.2.1”项下色谱条件连续进样 6 次, 每次进样 20 μ L, 记录色谱图, 结果显示, 各对照品峰面积的 RSD 值均不大于 2.13%, 表明仪器的精密度良好。

2.2.6 稳定性试验 取同一份供试品溶液 (批号 120409), 按“2.2.1”项下色谱条件进样, 分别记录 0、2、4、8、12 h 的色谱图。结果显示, 各待测成分峰面积的 RSD 值均不大于 1.66%, 表明供试品溶

表 2 各对照品线性关系考察及方法学考察结果

Table 2 Linear regression and linear ranges of reference substances

成分	回归方程	r^2	线性范围/ $(\mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1})$	RSD/%				平均加样	
				精密密度	稳定性	重复性	回收率	回收率/%	
6-姜酚	$Y=10\ 882\ X-7\ 182$	1.000 0	3.318~212.380	1.19	0.82	1.61	1.91	97.47	
8-姜酚	$Y=10\ 586\ X-2\ 973.7$	1.000 0	1.360~87.080	1.24	1.16	1.92	1.79	98.91	
6-姜烯酚	$Y=38\ 775\ X-1\ 717.1$	1.000 0	0.311~19.920	2.13	0.77	1.88	1.82	102.36	
10-姜酚	$Y=9\ 172.1\ X-4\ 961.3$	1.000 0	2.284~146.160	1.49	1.58	1.02	1.97	99.13	
α -姜黄烯	$Y=33\ 155\ X-1\ 188.4$	0.999 9	0.371~23.760	1.55	1.24	1.08	1.71	101.35	
(E)- β -金合欢烯	$Y=54\ 079\ X-842.38$	0.999 9	4.141~265.000	1.74	1.66	1.65	1.35	98.26	

液在 12 h 内稳定性良好。

2.2.7 重复性试验 取同一干姜样品 (批号 120409) 5 份, 按照“2.2.3”项下方法制备供试品溶液, 按“2.2.1”项下色谱条件进样, 记录色谱图。

结果显示, 各待测成分峰面积的 RSD 值均不大于 1.92%, 表明仪器的重复性良好。

2.2.8 加样回收率试验 精密称定已测定的样品粉末 (批号 120409) 9 份, 每 3 份为 1 组, 分别加入

样品中各成分 50%、100%、150% 3 个水平的对照品溶液,按“2.2.2”项下方法进行供试品溶液的制备,按“2.2.1”项下色谱条件进行含量测定。结果显示,各待测成分的回收率范围为 97.47%~102.36%,RSD 值均不大于 1.97%。

2.3 不同干燥方法对干姜多元成分的影响

取经不同干燥方法处理的干姜及 6 批产地优质干姜样品,按“2.2.3”项下方法制备供试品溶液,按“2.2.1”项下色谱条件进行含量测定,按《中国

药典》2015 年版对干姜进行水分测定,结果见表 3。数据显示,不同干燥方式和不同干燥温度对干姜中 6-姜酚、8-姜酚、10-姜酚、10-姜烯酚、(E)- β -金合欢烯、 α -姜黄烯的含量具有较明显的影响。

从干燥方式来看,微波干燥品和控温鼓风干燥品各成分含量明显高于中短红外干燥品,微波干燥品各成分含量整体稍高于控温鼓风干燥品;从干燥温度来看,温度对各成分含量影响相对较小,70℃干燥品含量略高于其他温度干燥品;产地传统加工

表 3 干姜不同干燥方法各成分含量测定结果

Table 3 Contents of each component in ZR samples obtained from different drying methods

编号	干燥方式	含水量/%	质量分数/(mg·g ⁻¹)					
			6-姜酚	8-姜酚	6-姜烯酚	10-姜酚	α -姜黄烯	(E)- β -金合欢烯
1	红外 50℃	15.94	6.19	1.34	0.65	2.44	0.06	0.96
2	红外 60℃	17.84	4.38	1.08	0.55	2.42	0.03	1.11
3	红外 70℃	10.82	6.81	1.63	2.06	2.76	0.04	2.59
4	红外 80℃	6.79	5.66	1.13	1.67	2.20	0.02	1.86
5	鼓风 50℃	17.84	7.13	1.49	1.42	2.88	0.07	2.26
6	鼓风 60℃	12.62	7.87	2.07	1.77	2.91	0.05	2.32
7	鼓风 70℃	14.52	7.14	1.84	1.89	2.69	0.03	2.14
8	鼓风 80℃	12.57	6.82	1.44	1.18	2.99	0.02	2.75
9	微波 40℃	12.92	8.03	1.54	1.09	3.56	0.02	2.80
10	微波 50℃	16.33	7.22	1.68	1.94	2.93	0.03	2.10
11	微波 60℃	8.95	6.60	1.58	1.98	2.64	0.03	2.43
12	微波 70℃	4.76	7.37	1.66	3.28	3.09	0.03	2.46
13	产地烘烤(120401)	11.19	8.11	1.84	1.83	3.30	0.04	2.54
14	产地烘烤(120403)	10.30	8.33	1.90	1.73	3.38	0.05	2.62
15	产地烘烤(120405)	10.60	8.23	1.91	1.71	3.40	0.04	2.56
16	产地烘烤(120407)	10.82	8.09	1.85	1.70	3.36	0.05	2.57
17	产地烘烤(120409)	10.64	7.47	1.77	1.53	3.16	0.05	2.32
18	产地烘烤(120411)	10.59	7.87	1.90	1.71	3.32	0.04	2.54

所有实验结果均以干质量计算

All test results were calculated by dry mass

品中 6-姜酚、8-姜酚、10-姜酚含量稍微高于现代干燥方法,表明现代干燥加工方法与产地传统加工仍有一定的差异。

2.4 干燥方式的选择

为优选干姜药材适宜产地的干燥方法,对不同干燥方法所得干姜进行综合评价。以所测的 6 种活性成分为数据分析源,对表 3 所示干姜样品进行主成分分析(PCA)和聚类分析,同时以外观性状为辅助,筛选最佳干燥方法。

2.4.1 PCA 结果 结果见表 4,前 2 个主成分(特

表 4 主成分的特征值及贡献率

Table 4 Total variance explained

成分	初始特征值			旋转后特征值		
	合计	方差/%	累计/%	合计	方差/%	累计/%
1	3.551	59.191	59.191	3.551	59.191	59.191
2	1.247	20.788	79.979	1.247	20.788	79.979
3	0.752	12.541	95.520			
4	0.242	4.036	96.556			
5	0.154	2.575	99.131			
6	0.052	0.869	100.000			

征值大于 1) 占总贡献率的 79.979%, 说明它们能够客观反映干姜药材质量的基本情况, 因此选取前 2 个主成分进行分析。PC1、PC2 的贡献率分别为 59.191%和 20.788%, 以 PC1 和 PC2 为坐标, 得到 18 批干姜样品的散点图 (图 2)。结果显示, 产地传统加工干姜样品 (编号 13~18) 聚集较好, 3 种干燥方式中控温鼓风干燥品与产地传统加工品相对距离较为接近, 其中 60 °C 控温鼓风干燥品 (编号 6) 与产地最为接近。同时将干姜样品的 2 个主成分因子进行计算得到因子总得分, 因子总得分不是将单项因子得分进行简单加和, 而是根据各因子的权重系数进行累加, 权重系数可以清晰地反映各具体变量对干姜质量的影响^[14]。各因子权重系数的确定依据其方差贡献率的大小, 其值等于各主成分的贡献率占 2 个主成分总贡献的百分比。第 1 主成分 F1 的权重系数 $w_{F1}=59.191\%/79.979\%=0.740\ 1$, 同理可得第 2 主成分 F2 的权重系数为 0.259 9。将各主成分因子得分与其权重系数乘积相加, 得到各个干姜药材的总因子得分 (F), 结果见表 5, F 值越大, 表明该样品的质量越好。根据 F 值对各干姜样品质量进行评价。数据显示, 产地传统加工干姜总体得分较高, 说明产地加工所得干姜具有一定的优势; 60 °C 控温鼓风干燥 (编号 6) 和 50 °C 控温鼓风干

燥 (编号 5) 所得干姜在不同干燥方法中得分最高, 说明控温鼓风干燥较其他干燥方式具有一定的优势, 与产地传统加工最为接近, 其中 60 °C 控温鼓风干燥为最优选择, 这与散点图的结果一致。

2.4.2 聚类分析结果 聚类分析图反映的是各样品间的相似程度, 样品间的分类距离越大则样品间的差异性也越明显, 结果见图 3, 聚类结果显示, 18 批干姜药材可以大致分为 4 类, 1、2、4 号样品距离其他样品较远, 说明与其他样品的拟合度较低,

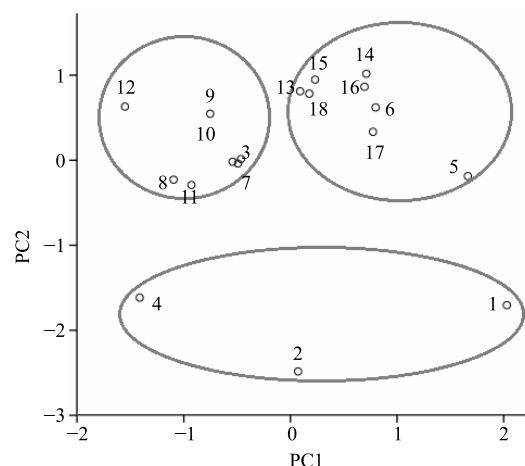


图 2 干姜不同干燥方法样品散点分布图

Fig. 2 Loading plots of ZR samples obtained from different drying methods

表 5 干姜不同干燥方法因子得分排序

Table 5 Component score of ZR samples obtained from different drying methods

积分排名	样品编号	干燥方法	F1	F2	F
1	14	产地烘烤 (120403)	1.017 2	0.711 6	0.937 8
2	16	产地烘烤 (120407)	0.863 2	0.694 6	0.819 3
3	15	产地烘烤 (120405)	0.948 1	0.230 8	0.761 7
4	6	鼓风 60 °C	0.620 4	0.798 8	0.666 7
5	18	产地烘烤 (120411)	0.782 8	0.176 6	0.625 2
6	13	产地烘烤 (120401)	0.810 8	0.090 5	0.623 6
7	17	产地烘烤 (120409)	0.334 3	0.774 4	0.448 7
8	5	鼓风 50 °C	-0.186 5	1.663 9	0.294 4
9	9	微波 50 °C	0.546 7	-0.752 9	0.208 9
10	12	微波 50 °C	0.629 9	-1.551 9	0.062 8
11	3	红外 70 °C	0.014 1	-0.464 0	-0.110 2
12	10	微波 60 °C	-0.017 8	-0.542 8	-0.154 3
13	7	鼓风 70 °C	-0.039 1	-0.492 5	-0.156 9
14	8	鼓风 80 °C	-0.228 8	-1.096 0	-0.454 2
15	11	微波 70 °C	-0.291 4	-0.928 5	-0.456 9
16	1	红外 50 °C	-1.704 1	2.029 4	-0.733 8
17	4	红外 80 °C	-1.615 7	-1.413 4	-1.563 1
18	2	红外 60 °C	-2.484 1	0.071 5	-1.819 9

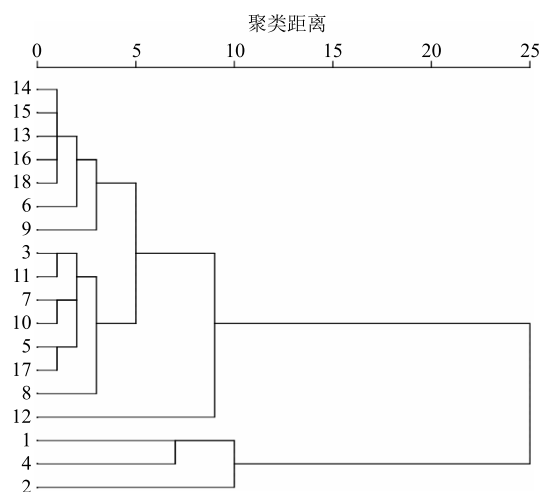


图 3 干姜不同干燥方法与产地传统干燥样品的聚类分析
Fig. 3 Dendrogram of ZR samples obtained from different drying methods and different origins

即红外干燥品与其他样品相似度较低；当欧式距离为 2 时，6 号样品距离 13、14、15、16、18 号样品归为一类，说明 6 号样品和产地样品最为接近。因此，60 °C 控温鼓风干燥为干姜干燥的最优选择，这与 PCA 的结果一致。

2.4.3 不同干燥方法所得干姜药材的外观性状比较 经不同干燥方法所得的 12 批干姜药材，外观性状具有一定的差异。微波干燥所得干姜表面黄色，质轻，具柴性，易折断，断面黄棕色，干燥温度高易形成蜂窝状，且断面色泽加深变黑，有焦糊味。红外干燥所得干姜药材表面灰黄色，断面纤维性较强，气味较淡；控温鼓风干燥所得干姜药材断面黄白色，粉性和气味较强，与产地传统加工方式所得干姜最为相似。

综上所述，无论是外观性状分析还是主成分和聚类分析，都显示出控温鼓风干燥为更适合干姜的干燥加工方式，其中 60 °C 控温鼓风干燥推荐为干姜干燥的最优选择。结果显示，不同干燥方式和不同干燥温度对干姜中多元成分的含量有着一定的影响，然而干燥过程中成分变化的原理仍未知，于是本课题组继续研究了干姜干燥过程的成分动态变化和水分动态变化，以期更好地揭示干姜的干燥原理。

2.5 成分动态变化和水分动力学研究

2.5.1 处理方法 将鲜姜药材混匀后分别采用控温鼓风干燥和红外干燥的方式进行干燥加工。2 种干燥方式分别采用 50、60、70 °C 进行实验，以考察干燥方式和温度对干姜干燥过程的影响。从干燥开始定时测定干姜药材的质量，取不同含水量的干姜

进行多元功效成分和水分的含量测定，同时对不同含水量的干燥品进行总挥发油的测定，按“2.2.3”项下进行供试品溶液的制备，按“2.2.1”项下色谱条件进行含量测定，按《中国药典》2015 年版进行水分和挥发油的测定，研究干姜干燥过程中多元成分、挥发油和水分的动态变化。

2.5.2 成分动态变化研究结果与分析 控温鼓风干燥和红外干燥过程中，成分变化曲线有着极高的相似性，结果见图 4。在干燥过程中，6-姜酚、8-姜酚、10-姜酚和 10-姜烯酚的含量随水分的降低逐渐增高； α -姜黄烯在干燥过程中整体含量较低，无明显规律；(E)- β -金合欢烯在干燥过程中呈波动下降趋势；挥发油含量随水分的减少呈先降低到趋于平稳最后又下降的趋势，水分在 15%~19% 和 1%~6% 时挥发油含量随水分的增高逐渐升高，在 6%~15% 时趋于平稳；由于水分过高不利于干姜的贮存，易发生霉变，所以水分在 15%~19% 可能并不合适，含水量在 1%~6% 时挥发油含量降低较多；而含水量在 6%~15% 时挥发油含量趋于平稳，挥发油含量相较虽稍有减少，但化合物较为稳定，从低含水量以利于贮存以及挥发油含量的角度综合考虑，可以初步优选含水量 6%~15% 作为干姜加工的适宜水分范围；同时将所有不同干燥方法所得干姜的水分和有效成分含量进行相关性分析，结果显示，水分与 6-姜酚、8-姜酚、10-姜酚和 6-姜烯酚呈现显著的负相关性，即干燥过程中 6-姜酚、8-姜酚、10-姜酚和 6-姜烯酚的含量随水分的流失含量逐渐升高；6-姜酚、8-姜酚、10-姜酚作为姜酚类同系物，三者表现出极显著的正相关关系；结果见表 6。

综上所述，水分对干姜的质量有着一定的影响，如何能够控制干燥过程中水分的变化在干姜质量控制中具有一定的作用。

2.5.3 水分动力学研究结果与分析 干姜药材干燥过程中的干燥曲线采用水分比 (MR) 随干燥时间变化的曲线表示。MR 用于表示一定干燥条件下不同干燥时刻的物料含水量，可以用来反映物料干燥速率的快慢^[15]。

不同干燥方式水分动力学曲线见图 5，结果显示，控温鼓风干燥与红外干燥在不同温度条件下的干燥水分比曲线显示着相似的规律，干姜干燥到目标含水量所需要的时间随干燥温度的升高而逐渐减少，提高干燥温度能够显著地缩短干燥时间。

采用 SPSS 21.0 进行数据处理，用非线性回归

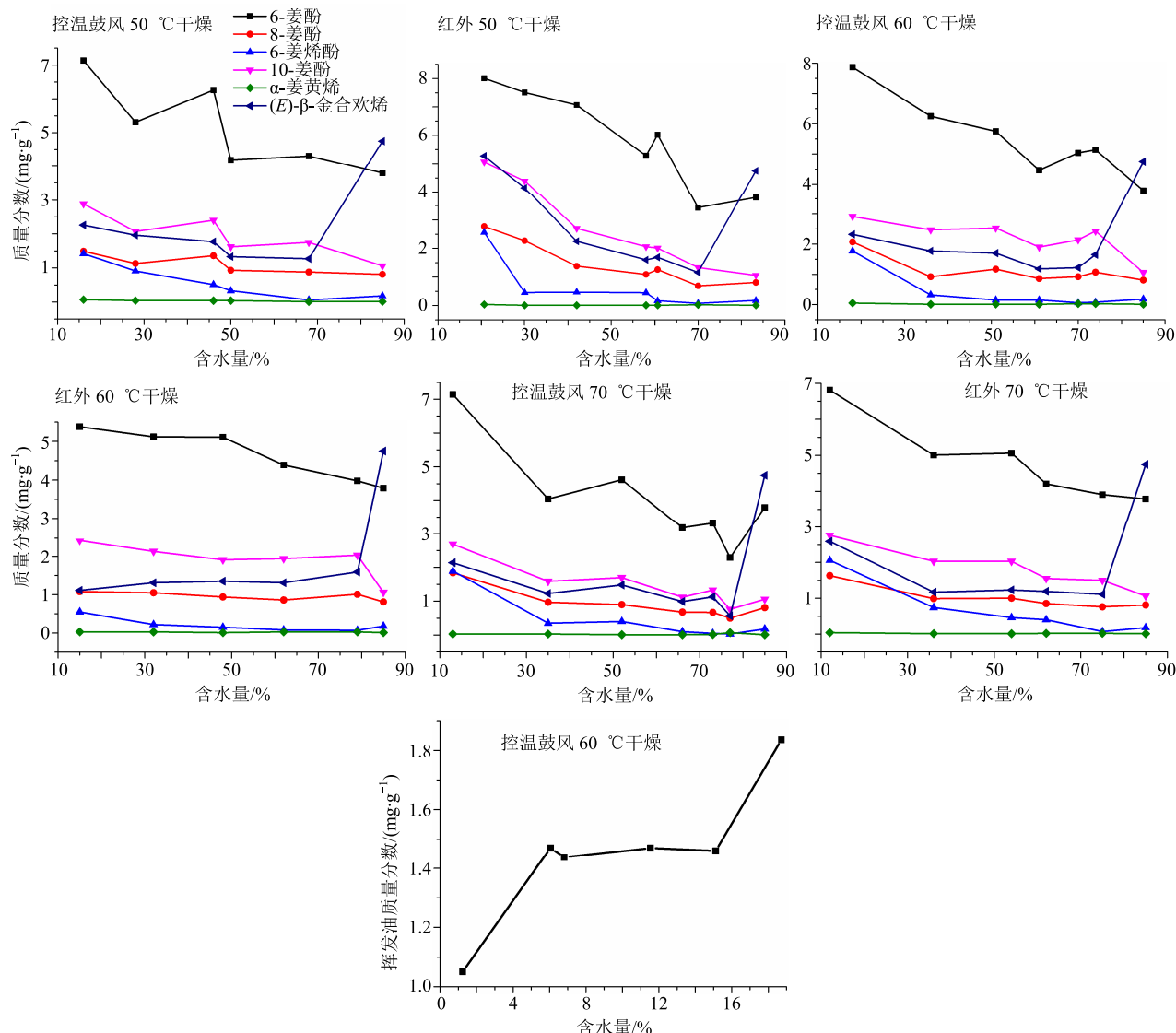


图 4 不同干燥方法下干姜有效成分和挥发油含量动态变化

Fig. 4 Dynamic changes of effective components and volatile oils in ZR samples obtained from different drying methods

表 6 干姜药材水分及有效成分含量之间相关性分析

Table 6 Correlation analysis between water content and active ingredient content of ZR

成分	相关系数						
	含水量	6-姜酚	8-姜酚	6-姜烯酚	10-姜酚	α-姜黄烯	(E)-β-金合欢烯
含水量	1.000						
6-姜酚	-0.412**	1.000					
8-姜酚	-0.592**	0.873**	1.000				
6-姜烯酚	-0.701**	0.407	0.470*	1.000			
10-姜酚	-0.481**	0.875**	0.686**	0.218	1.000		
α-姜黄烯	0.126	0.253	0.301	-0.136	0.107	1.000	
(E)-β-金合欢烯	-0.272	0.764**	0.611**	0.507*	0.743**	-0.163	1.000

* $P < 0.05$ ** $P < 0.01$

分析将 Weibull 数学模型方程(Weibull 函数表达式: $MR = \exp[-(t/\alpha)^\beta]$) 与实验数据进行拟合, 拟合的优

劣决定于系数 r^2 , r^2 越大, 则拟合度越高, 结果见表 7。结果显示, 干姜药材干燥曲线模拟 Weibull 函

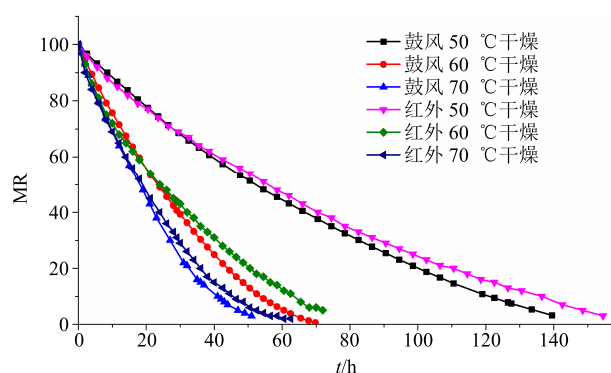


图 5 不同干燥方式干姜的水分变化曲线

Fig. 5 Curve of water changes in ZR samples obtained from different drying methods

表 7 Weibull 函数模拟干姜干燥过程模型参数及 r^2

Table 7 Parameter values of ZR drying curves modeled by Weibull distribution

干燥方式	α/min	β	r^2
红外 50 °C	4 062.36	1.232	0.994
红外 60 °C	1 796.40	1.304	0.993
红外 70 °C	1 337.10	1.290	0.996
鼓风 50 °C	4 341.60	1.140	0.994
鼓风 60 °C	1 945.80	1.096	0.990
鼓风 70 °C	1 451.16	1.212	0.992

数的 r^2 均大于 0.990, 说明 Weibull 函数能够较好地模拟干姜药材在不同干燥方法下的干燥曲线, 以期干姜干燥过程的预测提供一定的参考及更好的进行质量控制。 α 称为尺度参数^[16], 表示干燥过程中的速率常数, 其值约等于干燥过程完成 63% 所需要的时间。在同一干燥方式下, α 值随着温度的升高而逐渐减小, 说明干燥温度越高, 干燥过程进行的越快; 在同一干燥温度下, 红外干燥的 α 值均小于鼓风干燥, 说明红外干燥前中期阶段效率比控温鼓风干燥高。 β 称为形状参数^[16-17], 其数值大小与干燥过程所处的阶段有关, 不同干燥方式下 β 值稍大于 1, 说明干姜干燥过程存在前期延滞阶段; β 值的范围在 1.096~1.304, 无显著变化, 说明不同干燥方式对干姜的完整性无明显影响。

3 讨论

本实验以 4 个姜酚类成分和 2 个挥发油类成分为指标, 综合比较了不同干燥方法所得干姜样品, 同时对干姜干燥过程中多元成分、挥发油及水分的动态变化进行探讨, 发现以 60 °C 控温鼓风干燥相对较好, 含水量 6%~15% 为干姜加工的适宜水分, 干姜干燥过程中 6-姜酚、8-姜酚、10-姜酚和 6-姜烯

酚与含水量呈显著的负相关关系, Weibull 分布函数能够较好的模拟干姜干燥过程的水分变化。

在干姜加工方法选择中, 本课题组尝试使用微波 80 °C 干燥, 发现容易使干姜碳化, 焦糊味严重, 断面发黑; 红外和控温鼓风干燥 40 °C 干燥过程中干姜容易发生霉变; 试验中发现, 产地加工所得干姜优于现代干燥方法所得干姜, 产地加工使用烘烤法, 经历翻动、变温和麻袋保温等过程, 与现代干燥方式存在一定的差异; 产地加工技术相对较落后, 采用炕对干姜进行烘烤, 由于温度相对较难控制, 为使干姜受热均匀, 需每隔一段时间翻动 1 次, 现代干燥技术虽产热相对稳定, 但持续加热可能使干姜在干燥过程中出现外表水分散出过快与内部水分层形成间断的情况, 从而影响干姜的品质; 变温开始采用高温烘烤, 使其水分快速流失, 减少淀粉糖化的机会, 逐渐降温的过程可能减少了一些化学成分的流失和分解, 从而使得产地干姜成分含量增高; 麻袋保温烘烤过程可能增加了干燥时的湿度, 也对干姜的质量产生了一定的影响, 具体原因有待进一步探讨。虽然产地加工所得干姜较优, 但产地加工主要依靠人力实施, 且存在易烤糊、温度不易控制和加工时间长等缺点, 因此推进加工技术现代化十分必要, 这些提示应用现代技术对干姜进行干燥加工时应考虑翻动、缓苏、变温和控湿等过程。

干姜成分动态变化实验中发现, 由于干燥过程中对水分的准确控制具有一定难度, 导致不同干燥方法在同一干燥程度中水分存在一定差异, 但并未影响每一种干燥方法下水分与多元成分之间的整体规律。此外, 《中国药典》2015 年版对干姜的水分有一定要求, 但不超过 19% 是一个相对宽泛的范围, 所以, 在加工过程中干燥程度可能对干姜的质量产生一定的影响; 干姜在干燥过程中, 姜酚类成分随含水量的降低含量逐渐上升, 而挥发油经历降低、平稳、下降的过程, 说明干燥程度对干姜的质量具有一定的影响, 由于水分低更有利于干姜的贮存, 综合考虑优选干姜加工的水分适宜范围为 6%~15%。

同时为更好的控制干姜干燥过程中水分的变化, 本课题组继续研究了干姜的水分动力学, 选择控温鼓风干燥和红外干燥进行实验, 发现 Weibull 分布函数能够较好地模拟干姜干燥过程的水分变化, 为干姜的质量控制提供一定的参考。本课题组通过对比 12 种不同干燥方法所得干姜的多元成分

含量和外观性状,探讨干燥过程中干姜的成分动态变化,利用 Weibull 分布函数模拟干姜干燥过程的水分变化,为干姜的产地加工与现代技术相结合提供一定的参考和依据。

参考文献

- [1] 中国药典 [S]. 一部. 2015.
- [2] 尚志钧. 神农本草经校注 [M]. 北京: 学苑出版社, 2008.
- [3] 王 哲, 金永日, 李绪文. 干姜药材的化学成分研究 [J]. 中国药房, 2017, 28(24): 3403-3405.
- [4] 孙凤娇, 李振麟, 钱士辉, 等. 干姜化学成分研究 [J]. 中国野生植物资源, 2016, 35(5): 20-24.
- [5] 郭敏娟, 张 廷, 马 开, 等. 干姜中有效成分在大鼠体内组织分布与归经的相关性研究 [J]. 中草药, 2014, 45(7): 965-972.
- [6] 孙凤娇, 李振麟, 钱士辉, 等. 干姜化学成分和药理作用研究进展 [J]. 中国野生植物资源, 2015, 34(3): 34-37.
- [7] Kikuzaki H. Cyclic diaryheptanoids from *Zingiber officinale* [J]. *Phytochemistry*, 1996, 43(1): 273-278.
- [8] 吴英智, 傅 强, 严全能, 等. 姜酚在心血管疾病中的药理作用研究进展 [J]. 中国临床药理学杂志, 2017, 33(18): 1824-1827.
- [9] Chrubasika S, Pittlere M H, Roufogalis B D. *Zingiberis Rhizoma*: A comprehensive review on the ginger effect and efficacy profiles [J]. *Phytomed*, 2005, 12(9): 684-696.
- [10] 罗文敏, 张珍明, 王 芳, 等. 多指标综合评价法优选黔产灰毡毛忍冬最佳初加工方法 [J]. 中草药, 2018, 49(4): 826-834.
- [11] 严 辉, 段金廛. 我国药材采收现状的分析与探讨 [J]. 中国现代中药, 2009, 11(8): 11-16.
- [12] 董百惠, 林志健, 李丽玉, 等. 中药采收与产地加工不良现象综述 [J]. 北京中医药, 2015, 34(4): 342-343.
- [13] 段素敏, 孔 铭, 李秀杨, 等. 当归药材热风-微波联合干燥方法研究 [J]. 中草药, 2016, 47(19): 3415-3419.
- [14] 严 辉, 段金廛, 钱大玮, 等. 我国不同产地当归药材质量的分析与评价 [J]. 中草药, 2009, 40(12): 1988-1992.
- [15] 沙秀秀, 朱邵晴, 段金廛, 等. 基于 Weibull 分布函数的当归干燥过程模拟及其动力学研究 [J]. 中国中药杂志, 2015, 40(11): 2117-2122.
- [16] 张卫鹏, 高振江, 肖红伟, 等. 基于 Weibull 函数不同干燥方式下的茯苓干燥特性 [J]. 农业工程学报, 2015, 31(5): 317-324.
- [17] 王 鹤, 慕 松, 吴 俊, 等. 基于 Weibull 分布函数的枸杞微波干燥过程模拟及应用 [J]. 现代食品科技, 2018, 34(1): 141-147.