doi:10.3969/j.issn.1009-6469.2019.09.013 ◇药物分析◇

# 蒙药饮片煨诃子的质量标准研究

敖格日乐图[1],孙丽君[2],肖志彬[2],王玉华[2],那生桑[2]
作者单位:[1]内蒙古自治区国际蒙医医院药学部,内蒙古自治区 呼和浩特 010065;
[2]内蒙古医科大学药学院,内蒙古自治区 呼和浩特 010110
通信作者:那生桑,男,教授,硕士生导师,研究方向为蒙药学,E-mail:nasang56@sina.com
基金项目:内蒙古自治区政府重大项目(MB 2016-01);内蒙古医科大学青年创新基金项目(YKD2017QNCX009)

**摘要:目的** 建立蒙药饮片煨诃子的质量标准。**方法** 采用色谱法、化学检查法等方法,对煨诃子进行鉴别、水分、总灰分、浸出物、没食子酸的含量测定等项目进行研究。**结果** 显微鉴别特征明显;薄层色谱鉴别斑点清晰、分离度好;拟定水分不得过13.0%,总灰分不得过5.0%,浸出物的含量不得低于30.0%,含没食子酸($C_7H_6O_5$)不得少于0.74%(按干燥品计算)。**结论** 该方法稳定可靠,可用于煨诃子的质量控制。
**关键词:**煨诃子; 没食子酸; 质量标准

# Study on quality standard of flour-roast processing *Chebulae Fructus*

AO Geriletu[1],SUN Lijun[2],XIAO Zhibin[2],WANG Yuhua[2],NA Shengsang[2]
*Author Affiliations:*[1]*Inner Mongolia International Hospital of Mongolian Medicine,Hohhot,Inner Mongolia Autonomous Region* 010065,*China*;[2]*Inner Mongolia Medical University,Hohhot,Inner Mongolia Autonomous Region* 010110,*China*

**Abstract: Objective** To formulate quality standard of flour-roast processing *Chebulae Fructus*. **Methods** Chromatography and Chemical examination were used to identify the contents of water,total ash,extract and gallic acid of flour-roast processing *Chebulae Fructus*. **Results** The microscopic identification features were obvious;the spots in TLC were clear and well-separated;the content of water was no more than 13.0 %,the content of total ash was no more than 5.0 %,the content of extracts was no less than 30.0 %;the content of gallic acid ($C_7H_6O_5$) was not less than 0.74% (in terms of dry products). **Conclusion** This stable and reliable method can be used for the quality control of flour-roast processing *Chebulae Fructus*.
**Key words:** Flour-roast processing *Chebulae Fructus*; Gallic acid; Quality standard

诃子为使君子科植物诃子(*Terminalia chebula Retz.*)或绒毛诃子(*Terminalia chebula Retz.var.tomentella Kurt.*)的干燥成熟果实,分布在我国云南、广西等地[1],主要含三萜类、鞣质类、番泻苷A、诃子素等化学成分,具有涩肠止泻、敛肺止咳、降火利咽的功效。据《中国药典》(2015版)及各地方炮制规范(内蒙古、四川、广西、甘肃等)[2-5],诃子主要的炮制方法有净制、切制、煨制、炒制、蒸制、砂烫制、炒炭等。其中,煨制后鞣质含量显著增高,收涩作用增强[6]。前期实验中,在传统工艺的基础上,通过正交试验已优选出诃子面煨制的工艺条件[7-8],得到不同批次的煨诃子。因此,本实验自2017年5月至2018年5月对煨诃子质量标准进行系统研究,为蒙药材诃子煨制工艺的规范化提供了理论依据。

## 1 仪器与试药

**1.1 仪器** 硅胶G薄层板(青岛海洋化工有限公司),DV215CD型十万分之一电子分析天平(奥豪斯仪器上海有限公司),Dionex Ultimate3000型高效液相色谱仪(赛默飞世尔科技有限公司),KQ-500E型超声波清洗器(昆山市超声仪器有限公司),AR224CZ电子天平(奥豪斯仪器上海有限公司)。

**1.2 试药** 诃子药材按《中国药典》进行检验符合诃子项下的有关规定;没食子酸对照品(中国食品药品检定研究院,批号:110831-201605)、诃子对照药材(中国食品药品检定研究院,批号:121206-201508);甲醇、乙腈、磷酸均为色谱纯,水为重蒸水,其余试剂均为分析纯。

## 2 方法与结果

**2.1 制法** 在传统工艺的基础上[5],通过正交试验已优选出诃子面煨制的工艺条件,得煨诃子制法。即取诃子,照煨法(本附录Ⅱ[4]),用面皮包裹约2~3 mm厚,晾至半干,在烫砂中埋煨(410±10)℃,7 min,面皮呈焦

黄色时取出(每100 kg诃子,用面粉300 kg)。

**2.2 性状** 本品形状如诃子,质地较酥脆。具焦香气,味酸、极涩。

**2.3 显微鉴别** 本品粉末黄褐色,显微特征同诃子。粉末中以纤维束、石细胞、木化厚壁细胞、靴状厚壁细胞以及草酸钙簇晶为主要显微特征。见图1。

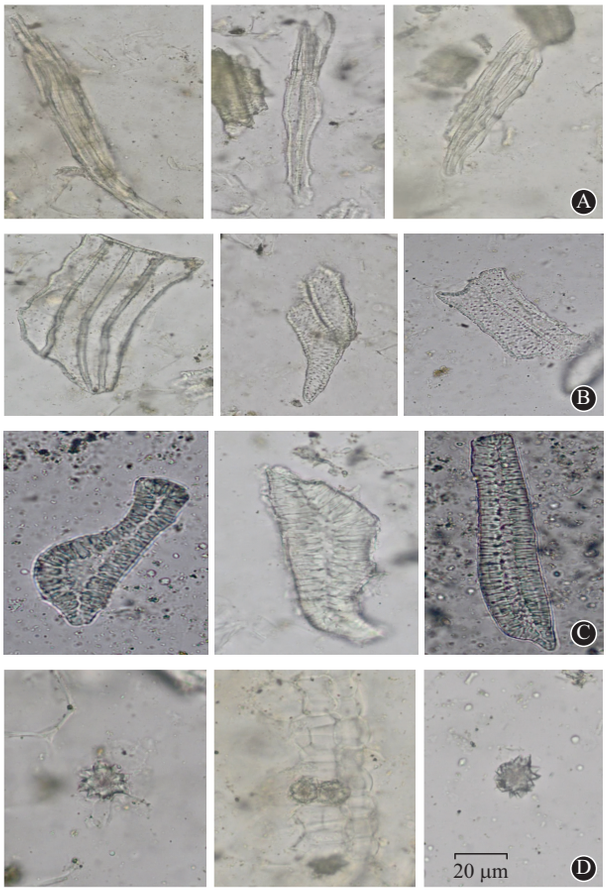



**图1** 煨诃子粉末显微特征(×400):A为纤维束;B为厚壁细胞;C为石细胞;D为为簇晶

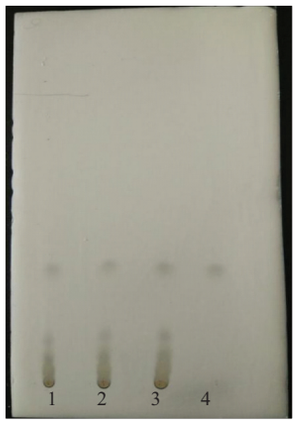
### 2.4 薄层色谱鉴别

**2.4.1** *对照药材的薄层色谱鉴别* 取煨诃子粉末,照《中国药典》(2015年版)诃子项下进行薄层色谱鉴别。供试品色谱中,在与对照药材色谱相应的位置上,显相同颜色的荧光斑点。见图2。

**2.4.2** *没食子酸的薄层色谱鉴别* 取煨诃子(去核)粉末0.5 g,加50%无水乙醇30 mL,加热回流30 min,滤过,滤液,蒸干,残渣用甲醇3 mL溶解,作为供试品溶液。另取没食子酸对照品,加甲醇制成每1 mL含0.5 mg的溶液,作为对照品溶液。照薄层色谱法(通则0502)试验,吸取上述两种溶液各4 μL,分别点于同一硅胶G薄层板上,以甲苯-冰醋酸-水(12∶10∶0.4)为展开剂,展开,取出,晾干,喷以1%三氯化铁乙醇溶液,在日光下检视。供试品色谱中,在与对照品相应的位置上,显相同颜色的斑点。结果见图3。

注:展开剂:甲苯-冰醋酸-水(12∶10∶0.4),显色剂:10%硫酸乙醇,检视条件:紫外光灯(365 nm)下检视

**图2** 煨诃子薄层鉴别图:1为煨诃子1(批号:150801;产地:广西);2为煨诃子2:(批号:151002313;产地:云南);3为煨诃子3(批号:1508001;产地:广东);4为没食子酸对照品;5为诃子对照药材




注:展开剂:甲苯-冰醋酸-水(12∶10∶0.4),显色剂:1%三氯化铁乙醇溶液

**图3** 煨诃子薄层鉴别图:1为煨诃子1(批号:150801;产地:广西);2为煨诃子2(批号:151002313;产地:云南);3为煨诃子3(批号:1508001;产地:广东);4为没食子酸对照品

### 2.5 检查[3]

**2.5.1** *水分* 分别称取3批次煨诃子粉末约2.0 g,每批2份,照水分测定法(通则0832第二法)进行测定。结果见表1。

**表1** 煨诃子的水分测定结果

| 编号 | 称样量/g | 水分含量/% | 平均含量/% | RSD/% |
|---|---|---|---|---|
| 广西 | 2.000 0 | 7.48 | 7.40 | 1.53 |
| 18032801 | 2.000 0 | 7.32 | | |
| 云南 | 2.000 0 | 7.05 | 7.01 | 0.81 |
| 151002313 | 1.999 9 | 6.97 | | |
| 广东 | 2.000 0 | 7.06 | 7.03 | 0.60 |
| 15080001 | 2.000 0 | 7.00 | | |

结果表明,3批次供试品的水分为7.03%~7.40%,结合诃子该项下的规定,故拟定水分为13.0%。

**2.5.2** *总灰分* 分别称取3批次煨诃子粉末约2.0 g,每批2份,照灰分测定法(通则2302)进行测定。结果见表2。

**表2**　煨诃子的灰分测定结果

| 编号 | 称样量/g | 灰分含量/% | 平均含量/% | RSD/% |
|---|---|---|---|---|
| 广西 | 2.000 1 | 2.84 | 2.88 | 1.96 |
| 18032801 | 2.000 0 | 2.92 | | |
| 云南 | 1.998 9 | 1.98 | 1.94 | 1.44 |
| 151002313 | 2.001 2 | 1.94 | | |
| 广东 | 2.000 1 | 2.60 | 2.63 | 1.61 |
| 15080001 | 2.000 2 | 2.66 | | |

结果表明，3批次供试品的灰分为1.94%~2.88%，结合诃子该项下的规定，故拟定灰分为5.0%。

**2.5.3**　*浸出物*　分别称取3批次煨诃子（批号见表1）粉末约2.0 g，每批2份，照水溶性浸出物测定法（通则2201）项下的冷浸法测定。结果见表3。

**表3**　煨诃子浸出物测定结果

| 编号 | 称样量/g | 浸出物/% | 平均含量/% | RSD/% |
|---|---|---|---|---|
| 广西 | 3.998 5 | 61.56 | 61.34 | 0.51 |
| 18032801 | 3.999 7 | 61.12 | | |
| 云南 | 3.999 4 | 42.18 | 42.21 | 0.10 |
| 151002313 | 3.999 6 | 42.24 | | |
| 广东 | 3.999 3 | 56.81 | 56.70 | 0.29 |
| 15080001 | 3.998 9 | 56.58 | | |

结果表明，3批次供试品的水溶性浸出物为42.21%~61.34%，结合诃子该项下的规定，故规定水溶性浸出物不得少于30.0%。

**2.6　含量测定**

**2.6.1**　*色谱条件与系统适用性试验*　色谱柱为Apollo $C_{18}$柱（4.6 mm×250 mm，5 μm）；以甲醇-0.2%磷酸水溶液（8∶92）为流动相；检测波长为270 nm；流速为1.0 mL/min；柱温25 ℃。理论塔板数按没食子酸峰计算应不低于3 000。

**2.6.2**　*对照品储备溶液的制备*　取没食子酸对照品适量，精密称定，加甲醇制成浓度为0.40 mg/mL的溶液，即得。

**2.6.3**　*供试品溶液的制备*　称取本品粉末（过四号筛）约0.5 g，精密称定，置具塞锥形瓶中，精密加入甲醇溶液25 mL，称定重量，超声处理30 min，放冷，再称定重量，用甲醇补足减失的重量，摇匀，过滤，取续滤液，即得。

**2.6.4**　*线性关系考察*　精密吸取对照品储备液4 mL，置10 mL量瓶中，加水稀释至刻度。精密吸取2、5、10、12、15、17、20 μL，分别注入液相色谱仪中，按上述色谱条件测定，记录各图谱的没食子酸峰面积积分值（$Y$）。以进样量（$X$：μg）对峰面积积分值（$Y$）进行回归分析，回归方程为$Y=35.107X-0.015\ 7$，$r=1$。结果见表4和图4。

结果显示，没食子酸在0.32~3.2 μg范围内与峰面积积分值呈良好的线性关系。

**表4**　标准曲线测定数据（$n=7$）

| 进样量（$X$：μg） | 峰面积值（$Y$） | 回归方程 | $r$ |
|---|---|---|---|
| 0.32 | 11.273 5 | | |
| 0.80 | 28.107 6 | | |
| 1.60 | 56.103 2 | | |
| 1.92 | 67.248 1 | $Y=35.107X-0.015\ 7$ | 1.000 0 |
| 2.40 | 84.281 6 | | |
| 2.72 | 95.444 6 | | |
| 3.20 | 112.419 7 | | |

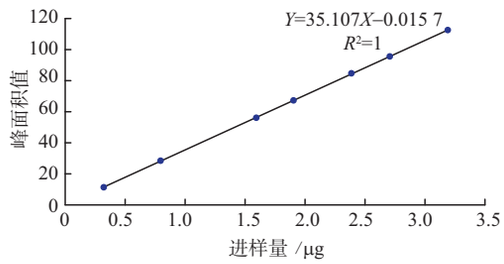



**图4**　没食子酸标准曲线图

**2.6.5**　*精密度试验*　取供试品约0.5 g，精密称定，按“2.6.3”项下方法操作，制备供试品溶液，进样5 μL，按上述色谱条件测定，连续进样6针。结果见表5。

**表5**　精密度试验结果（$n=6$）

| 序号 | 峰面积积分值 | 平均值 | RSD/% |
|---|---|---|---|
| 1 | 49.489 1 | | |
| 2 | 49.660 0 | | |
| 3 | 49.463 9 | | |
| 4 | 49.851 5 | 49.603 5 | 0.28 |
| 5 | 49.603 2 | | |
| 6 | 49.553 3 | | |

结果显示，RSD＝0.28%（$n=6$），表明该方法精密度良好。

**2.6.6**　*重复性试验*　取同一批次的供试品粉末约0.5 g，精密称定，共6份。分别按“2.6.3”项下方法操作，制备供试品溶液，进样5 μL，按上述色谱条件测定。结果见表6。

**表6**　重复性试验结果（$n=6$）

| 序号 | 称样量/g | 峰面积 | 含量/（mg/g） | 平均含量/（mg/g） | RSD/% |
|---|---|---|---|---|---|
| 1 | 0.500 7 | 48.074 5 | 13.67 | | |
| | 0.500 7 | 48.132 3 | 13.70 | | |
| 2 | 0.500 2 | 49.257 3 | 14.03 | | |
| | 0.500 2 | 49.734 3 | 14.17 | | |
| 3 | 0.500 3 | 48.301 3 | 13.75 | | |
| | 0.500 3 | 48.458 4 | 13.80 | | |
| 4 | 0.500 6 | 48.966 0 | 13.94 | 13.98 | 1.59 |
| | 0.500 6 | 48.964 5 | 13.93 | | |
| 5 | 0.500 6 | 49.426 2 | 14.07 | | |
| | 0.500 6 | 49.992 7 | 14.23 | | |
| 6 | 0.500 5 | 50.054 4 | 14.25 | | |
| | 0.500 5 | 50.121 9 | 14.27 | | |

结果显示,RSD=1.59%($n$=6),表明该方法重复性良好。

**2.6.7** 稳定性试验 取同一份供试品溶液,分别在0、1、2、4、6、8、12 h测定。结果见表7。

**表7** 稳定性试验结果

| 测定时间/h | 峰面积积分值 | 平均值 | RSD/% |
|---|---|---|---|
| 0 | 105.490 9 | | |
| 2 | 105.665 0 | | |
| 4 | 105.761 3 | | |
| 6 | 105.774 4 | 105.840 3 | 0.31 |
| 8 | 105.914 8 | | |
| 12 | 106.435 3 | | |

结果显示,RSD=0.31%($n$=6),表明供试品溶液在12 h内稳定。

**2.6.8** 加样回收率试验 取已知含量供试品(批号:1508001)约0.25 g,精密称定,共6份。精密加入没食子酸对照品约3.496 mg,照"2.6.3"项下方法操作,测定没食子酸含量,并计算加样回收率。结果见表8。

**表8** 加样回收试验结果($n$=6)

| 序号 | 取样量/g | 含量/mg | 对照品加入量/mg | 测得总量/mg | 回收率/% | 平均回收率/% | RSD/% |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 1 | 0.250 2 | 3.498 7 | 3.496 0 | 6.992 8 | 0.999 5 | | |
| | 0.250 2 | 3.498 7 | 3.496 0 | 6.925 8 | 0.980 3 | | |
| 2 | 0.250 6 | 3.504 3 | 3.496 0 | 6.939 0 | 0.982 5 | | |
| | 0.250 6 | 3.504 3 | 3.496 0 | 6.932 2 | 0.980 5 | | |
| 3 | 0.250 5 | 3.502 9 | 3.496 0 | 6.971 2 | 0.992 1 | | |
| | 0.250 5 | 3.502 9 | 3.496 0 | 6.982 2 | 0.995 2 | 0.994 4 | 1.03 |
| 4 | 0.250 4 | 3.501 5 | 3.496 0 | 6.988 9 | 0.997 5 | | |
| | 0.250 4 | 3.501 5 | 3.496 0 | 6.999 1 | 1.000 5 | | |
| 5 | 0.250 7 | 3.505 7 | 3.496 0 | 6.968 3 | 0.990 5 | | |
| | 0.250 7 | 3.505 7 | 3.496 0 | 6.978 0 | 0.993 2 | | |
| 6 | 0.250 4 | 3.501 5 | 3.496 0 | 7.026 9 | 1.008 4 | | |
| | 0.250 4 | 3.501 5 | 3.496 0 | 7.041 8 | 1.012 7 | | |

结果显示,该方法平均回收试验为99.44%,RSD=1.03%($n$=6),表明方法准确度良好。

**2.6.9** 样品含量测定 分别称取上述3批次煨诃子粉末约0.5 g,精密称定,按"供试品溶液的制备"方法操作,制备供试品溶液,进样5 μL,按上述色谱条件测定。结果见表9。

**表9** 不同批次煨诃子中没食子酸含量测定结果

| 编号 | 样品量/g | 炮制品没子酸含量/(mg/g) | 平均含量/(mg/g) | 生品没食子酸含量/(mg/g) | 含量/% |
|---|---|---|---|---|---|
| 广西18032801 | 0.500 8 | 7.363 6 | 7.372 6 | 2.650 3 | 0.74 |
| | | 7.349 5 | | | |
| | 0.500 6 | 7.389 3 | | | |
| | | 7.387 9 | | | |
| 云南151002313 | 0.500 7 | 9.032 9 | 9.013 8 | 6.576 4 | |
| | | 9.014 6 | | | |
| | 0.500 6 | 9.003 4 | | | |
| | | 9.004 1 | | | |
| 广东15080001 | 0.500 3 | 13.920 9 | 13.904 4 | 9.635 5 | 1.39 |
| | | 13.898 7 | | | |
| | 0.500 5 | 13.890 7 | | | |
| | | 13.907 2 | | | |

结果显示,3批次供试品中没食子酸平均含量为0.74%~1.39%,均比诃子原药材的没食子酸含量有所提高,考虑到药材的采收时间、地点不同等因素,拟定为本品按干燥品计算,含没食子酸($C_7H_6O_5$)不得少于0.74%。

## 3 讨论

**3.1 薄层色谱鉴别** 煨诃子炮制后药性缓和,涩敛之性增强,主要源于鞣质类成分、番泻苷A等化学成分的变化,对三萜酸类成分影响较小,故本文以生品诃子对照药材为对照对其进行TLC鉴别,此为方法一。但该法没有检出没食子酸,而没食子酸为煨诃子主要有效成分,故本文又以没食子酸对照品为对照对其进行TLC鉴别,即方法二。

**3.2 含量测定** 本研究对煨诃子的提取方法(超声提取、加热回流提取)、提取时间(20 min、30 min、40 min)及提取溶剂(甲醇、70%甲醇、50%甲醇)进行了选择。结果显示,以甲醇为提取溶剂,超声提取30 min时效果最佳。

本研究对煨诃子的水分、总灰分、浸出物、显微鉴别、薄层鉴别、及含量测定等项目进行较为系统和全面地研究。其测定方法简便准确,方法学考察表明精密度、重复性、稳定性、加样回收率的范围均符合要求,故为蒙药饮片煨诃子的质量控制提供了有力的实验依据。

## 参考文献


[1] 中国科学院中国植物志编辑委员会.中国植物志[M].北京:科学出版社,1985:322.

[2] 龚千锋.中药炮制学[M].北京:中国中医药出版社,2013:132-138.

[3] 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,2015:187.

[4] 那生桑.内蒙古蒙药炮制规范[M].呼和浩特:内蒙古人民出版社,2015:50.

[5] 包·那木吉拉.炮制明藏[M].赤峰:内蒙古科学技术出版社,2003:87.

[6] 韩志强,额尔顿.蒙药金色诃子炮制品对α-萘异硫氰酸酯致大鼠肝损伤的保护作用及其急性毒性研究[J].中国中医药科技,2014,21(3):267-268.

[7] 夏宇成,张兰,陈宇洁,等.种子类药材菟丝子提取工艺研究[J].安徽医药,2019,23(4):724-727.

[8] 张玉婷,高家荣,刘健,等.正交试验法优选五味温通除痹胶囊水提工艺[J].安徽医药,2014,18(10):1833-1836.


(收稿日期:2019-03-07,修回日期:2019-04-25)