



Influência da temperatura de secagem e da concentração de Aerosil®200 nas características dos extratos secos por aspersão da *Schinus terebinthifolius* Raddi (Anacardiaceae)

*E.A.F. Vasconcelos, M.G.F. Medeiros, F.N. Raffin, T.F.A.L. Moura**

Universidade Federal do Rio Grande do Norte, Faculdade de Farmácia, Laboratórios de Desenvolvimento de Fitoterápico, Av. Gal. Cordeiro de Farias S/N, Petrópolis, 59.010-180, Natal, RN, Brasil

RESUMO: A *Schinus terebinthifolius* Raddi é muito usada na medicina popular e atualmente como fitomedicamento pelas propriedades antimicrobiana, cicatrizante e antiinflamatória. O objetivo deste trabalho foi avaliar a influência da temperatura de entrada e a concentração de Aerosil®200 nas características de extratos secos por aspersão da *Schinus terebinthifolius* Raddi. Os extratos preparados com etanol 70 °GL foram secos em Mini-spray dryer, Buchi B191, com adição do adjuvante tecnológico numa proporção de 20:80; 25:75 e 30:70 (p/p) Aerosil®200: resíduo seco, variando a temperatura de entrada de 120 °C a 160 °C. A umidade residual, o rendimento final do produto e o aumento da massa frente à umidade relativa controlada de 90 % foram usados como critério de avaliação. A análise de superfície de resposta revelou que à medida que a temperatura e a concentração de Aerosil aumentam, diminui a umidade residual dos extratos, bem como sua higroscopicidade. As melhores condições de secagem foram a temperatura de entrada de 140 °C e 30 % do adjuvante, resultando em rendimento acima de 80 %.

Unitermos: *Schinus terebinthifolius*, Anacardiaceae, parâmetros de secagem, Aerosil®200, adjuvante tecnológico.

ABSTRACT: "Influence of the drying temperature and the Aerosil®200 concentration on the characteristics of Spray-dried extracts from *Schinus terebinthifolius* Raddi (Anacardiaceae)." *Schinus terebinthifolius* Raddi has been used in the Brazilian folk medicine since a long time and now as phytopharmaceutical because of its antimicrobial, cicatrizant and anti-inflammatory properties. The aim of this work was to evaluate the influence of the inlet temperature and the Aerosil concentration on the characteristics of the spray-dried extracts from *Schinus terebinthifolius* Raddi by spray-drying method. The extracts were prepared from a 70 °GL ethanolic extract with a Buchi B 191 Mini-spray dryer with technological adjuvant into a ratio of 20:80; 25:75 and 30:70 (w/w) Aerosil®200: dried residue, in the inlet temperature range from 120 °C to 160 °C. The residual humidity, final yield and the moisture uptake profile at 90 % Relative Humidity (RH) were used as evaluation criteria. The response surface analysis showed that increasing the temperature and the Aerosil®200 concentration, lead to lower residual humidity and moisture uptakes. The best drying parameters were the inlet temperature of 140 °C and 30 % of Aerosil®200 concentration, resulting in yields over 80 %.

Keywords: *Schinus terebinthifolius*, Anacardiaceae, parameters of drying, Aerosil®200, technological adjuvants.

INTRODUÇÃO

Extratos vegetais secos por aspersão têm sido utilizados como produtos finais e intermediários na obtenção de diferentes formas farmacêuticas (Moura et al., 1994; Wendel; Çelic, 1998).

A *Schinus terebinthifolius* Raddi, conhecida popularmente no Brasil como Aroeira da Praia, é uma planta amplamente utilizada na medicina popular como antiinflamatório, cicatrizante e antimicrobiano (Viana et al., 1995; Martinez et al., 1996; Raposo et al., 2002). No desenvolvimento tecnológico de fitoterápicos, a técnica de secagem por aspersão "Spray-drying" tem sido bastante empregada com o intuito de se obter produtos

intermediários com maior concentração de constituintes químicos e com melhores características tecnológicas. Os produtos secos apresentam vantagens relacionadas com a homogeneidade de distribuição dos constituintes da preparação e maior estabilidade física (Casadebaig et al., 1989; Moura et al., 1994; González; Schmidt, 1995; Senna et al., 1997).

A otimização dos parâmetros de secagem como temperaturas de entrada e de saída e velocidade de fluxo de alimentação, concentração e tipo de adjuvante tecnológico, assim como os teores de resíduo seco do extrato fluído a nebulizar são fatores indispensáveis para obtenção de extratos secos com melhores características físico-químicas e aumento do rendimento da operação

(Gaudy et al., 1991; Paula et al., 1998).

O uso de adjuvantes tecnológicos influencia de maneira decisiva no aumento do rendimento do processo de secagem, além de contribuir positivamente sobre a recomposição em água do produto (Linden et al., 2000; Souza et al., 2000; Soares, 2002). Os adjuvantes tecnológicos mais utilizados e citados na literatura são o dióxido de silício coloidal, fosfato tricálcio e β -ciclodextrina (Wouessidjewe; Duchêne, 1994; Tsai, 1997).

O objetivo deste estudo foi avaliar a influência da temperatura de entrada e a concentração de Aerosil na obtenção de extratos secos por aspersão da *Schinus terebinthifolius* Raddi (Aroeira da Praia).

MATERIAL E MÉTODOS

Material vegetal

As cascas foram coletadas na região da Mata Atlântica da Paraíba e a exsicata encontra-se depositada no Herbário Parque das Dunas da Universidade Federal do Rio Grande do Norte, com registro de N° 20.

Preparação dos extratos

Extratos hidroalcoólicos e aquosos foram preparados por maceração a partir de 100 g de cascas secas e trituradas (partículas selecionadas, $710 \mu\text{m} \geq \varnothing \geq 210 \mu\text{m}$) com 1000 mL de etanol 70 °GL e água destilada, respectivamente, durante cinco dias à temperatura ambiente, com agitação esporádica.

Determinação do resíduo seco

Em pesa-filtros previamente tarados, foram pesadas amostras de 20,0 g das soluções extrativas, em seguida evaporadas em banho-maria até a secura. Os resíduos foram colocados na estufa, à $105 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ por 2 horas, resfriados em dessecador e pesados. Em seguida foram recolocados em estufa por mais 30 minutos, repetindo este procedimento até peso constante. O resultado foi expresso em relação a 100 g do extrato, pela média de cinco determinações.

Seleção do adjuvante

Para a escolha prévia do adjuvante, previamente foram preparados extratos secos por aspersão a partir dos extratos hidroalcoólicos (EH) e extratos aquosos (EA) sem a presença de adjuvante tecnológico (EHS1 e EAS1) e com adição de Aerosil®200 (Dióxido de Silício Coloidal) e Kleptose® (β -ciclodextrina) na concentração de 30 % em relação ao resíduo seco (EHS2 e EAS2) e (EHS3 e EAS3) respectivamente. A secagem foi realizada em Mini Spray-drying (BÜCHI B-191). Os parâmetros de secagem foram mantidos constantes, durante todo o processo de secagem,

para os três extratos; temperatura de admissão: 140 °C, temperatura de saída: 95 °C, velocidade de fluxo: 7,0 mL/min. e pressão de 600 mmHg. As soluções extrativas adicionadas dos adjuvantes tecnológicos foram mantidas sob agitação durante todo processo de secagem. Nesta etapa do trabalho, a manutenção das características físicas, o rendimento e o comportamento dos extratos frente à umidade relativa de 60 e 90 % foram os parâmetros de escolha para a seleção do solvente extrator e do adjuvante tecnológico.

Influência dos parâmetros de secagem e da concentração do adjuvante tecnológico

Para avaliar os parâmetros de secagem, foram obtidos extratos secos com diferentes temperaturas de secagem variando de 120 °C a 160 °C e concentração de adjuvante de 20, 25 e 30 % de Aerosil, mantendo-se constantes a velocidade de fluxo de alimentação e a pressão. Nesta etapa, a umidade residual, o rendimento líquido e o aspecto físico dos extratos secos, foram critérios de escolha para otimização dos parâmetros de secagem por aspersão.

Os extratos secos foram analisados após terem sido submetidos à atmosfera de umidade relativa de 90 %, obtida com a diluição de 9,79 mL de ácido sulfúrico concentrado para 100,0 mL de água destilada, em dessecador (Gaudy, 1984). No dessecador foram colocados pesa-filtros, previamente tarados (sem tampa), com 200,0 mg de extratos secos ($n = 3$) e pesa-filtro sem extrato (controle) ($n = 1$). A cada 24 horas os pesa-filtros foram retirados e colocados em dessecadores com sílica-gel e em seguida pesados e retornados ao dessecador. A avaliação da sorção de água foi realizada por gravimetria, determinando-se a diferença de peso inicial e a cada 24 horas, durante sete dias de exposição. Os resultados expressam a média de três determinações.

Teor de umidade residual

A determinação da umidade residual de todos os extratos secos foi realizada logo após a secagem, seguindo metodologia descrita na Farmacopéia Brasileira 4ª edição. Os resultados foram expressos em perda percentual de umidade em massa através da média de três determinações.

Rendimento dos extratos

O rendimento bruto da operação de secagem dos extratos secos foi calculado em relação à massa teórica de sólidos totais presente nas soluções extrativas. Os sólidos totais correspondem ao teor de resíduo seco da solução extrativa, somada ao peso do adjuvante adicionado.

Análise estatística

Para análise estatística foi utilizado o Software Statistica 6.0. Na análise dos dados empregou-se técnica de análise de variância (ANOVA) das variáveis: umidade residual dos extratos secos e rendimento ponderal do processo de secagem. A otimização das condições de secagem foi obtida aplicando uma análise descritiva dos resultados, considerando a temperatura de secagem e a concentração de Aerosil (Montgomery, 1996).

RESULTADOS E DISCUSSÃO

Seleção do adjuvante

Os extratos secos por aspersão da *Schinus terebinthifolius* Raddi com e sem adjuvantes tecnológicos (Aerosil®200 e Kleptose®), mostraram-se diferentes quanto ao aspecto físico visual. Os extratos com adição de 30 % de Kleptose® apresentaram coloração mais clara em relação ao extrato obtido sem adjuvante e com Aerosil. Os adjuvantes adicionados aos extratos contribuíram para manutenção das características físicas dos extratos secos, além de influenciarem positivamente no rendimento do processo de secagem.

A avaliação dos extratos secos frente às umidades relativas de 60 e 90 %, em atmosfera controlada, mostrou que o ganho de massa dos extratos atomizados ocorreu de forma intensa nas primeiras 24 horas de exposição. Proporcionalmente, os extratos aquosos adsorveram mais água quando comparados aos extratos hidroalcoólicos, especialmente os submetidos à umidade relativa de 60 %. Este comportamento possivelmente pode estar relacionado com as características hidrofílicas e higroscópicas dos compostos extraídos pela água, como açúcares, saponinas e compostos fenólicos, presentes nesta espécie (Viana, et al., 1995; Medeiros, 2001; Simões, et al., 2003).

A influência do adjuvante nos extratos secos por aspersão foi evidenciada pelas características dos pós e as diferenças de ganho de massa entre os extratos, as quais foram estatisticamente significativas, (ANOVA) para um nível de significância de 1 % (Tabelas 1 e 2).

O Aerosil adicionado aos extratos proporcionou

uma boa estabilidade física, mantendo o aspecto de pó fino e solto além de conferir maior rendimento ao processo. Estes dados corroboram com outros estudos (Souza, 2000). Esta estabilidade pode ser atribuída a uma possível microencapsulação das partículas do pó pelo Aerosil (Cornec, 1990). Os extratos com Kleptose apresentaram tendência à formação de aglomerados, enquanto os extratos sem adjuvante adquiriram forma semi-sólida, de coloração enegrecida, após 24 horas de exposição à umidade relativa de 60 e 90 %. Portanto o Aerosil foi o adjuvante de escolha para o estudo de otimização dos parâmetros de secagem.

Otimização da temperatura de secagem e concentração de Aerosil

Na otimização dos parâmetros do processo de secagem, foram considerados os mesmos critérios de avaliação anteriormente empregados, ou seja, o teor de umidade residual, o rendimento do produto final e a estabilidade em atmosfera de umidade relativa de 90 %.

O rendimento líquido e umidade residual dos extratos estão apresentados na tabela 3. A análise dos dados de rendimento do processo de secagem dos extratos secos mostrou que existe um comportamento diferenciado dentro do parâmetro de concentração de Aerosil, onde os melhores rendimentos foram obtidos nas concentrações mais altas. O efeito dos parâmetros de temperatura e concentração de adjuvante tecnológico foi observado utilizando a metodologia da superfície de resposta (Montgomery, 1996). A análise de probabilidade de significância do teste F mostra que o teste foi significativo para as causas de variação temperatura ($p = 0,000015$ L e $0,000032$ Q) e concentração ($p = 0,012398$ Q). Não foi observada interação entre os dois fatores ($p = 0,265244$).

A análise de superfície de resposta ajustada revela que o ponto otimizado, ou seja, que fornece maiores índices de rendimento líquido, por extrapolação, situa-se nas seguintes coordenadas estimadas: 146 °C e 25,4 % para temperatura e concentração, respectivamente. O valor predito para o rendimento líquido neste ponto é

Tabela 1. Análise de variância do ganho de massa dos extratos secos frente à umidade relativa de 60 % em 24 horas.

Fonte de Variância	Graus de Liberdade	Soma dos Quadrados	Variância	F
Diferentes adjuvantes	2	153,49	76,74	19,54
Erro	6	23,56	3,92	P = 1%
Total	8	177,05		

Tabela 2. Análise de variância do ganho de massa dos extratos secos frente à umidade relativa de 90 % em 24 horas.

Fonte de Variância	Graus de Liberdade	Soma dos Quadrados	Variância	F
Diferentes adjuvantes	2	51,31	25,65	108,77
Erro	6	1,41	0,23	P = 1%
Total	8	52,72		

Tabela 3. Média e desvio padrão para variável umidade residual (%) e rendimento líquido (%) em função da temperatura de entrada e concentração em Aerosil.

Temperatura (°C) x Concentração (%)	Umidade residual (%)	Rendimento Líquido (%)
120:20	7,02 ± 0,25	43,70
120:25	7,10 ± 0,77	65,90
120:30	5,52 ± 0,27	44,80
130:20	6,89 ± 0,38	62,70
130:25	6,36 ± 0,80	44,10
130:30	5,14 ± 0,36	70,40
140:20	7,28 ± 0,30	69,00
140:25	6,62 ± 0,40	75,60
140:30	5,57 ± 0,85	89,30
150:20	5,95 ± 0,35	79,40
150:25	5,67 ± 0,25	85,30
150:30	5,13 ± 0,58	77,60
160:20	5,84 ± 0,45	73,60
160:25	5,56 ± 0,16	76,60
160:30	5,54 ± 0,26	64,60

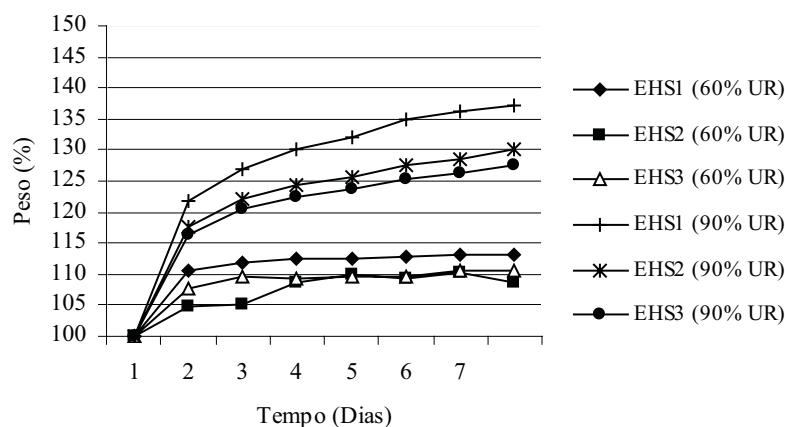
85,25 % (Figura 3). Todavia, é considerado o percentual de umidade residual retida por cada extrato. O aumento limitado do rendimento líquido no processo de secagem, em consequência ao acréscimo da temperatura e concentração de Aerosil, pode ser explicado considerando que uma maior adição percentual de adjuvante tecnológico, aumentaria a quantidade de sólidos, podendo aumentar a viscosidade do meio e dificultar a aspersão da solução extrativa, e conseqüentemente influenciar no rendimento (List, 1989).

O critério de avaliação umidade residual dos extratos secos por aspersão, para os parâmetros temperatura e concentração, foi submetido aos mesmos estudos. A análise descritiva dos dados de umidade residual dos extratos secos, apresentados na tabela 3 e figura 3 mostrou que existe um comportamento diferenciado dentro do parâmetro da concentração do adjuvante tecnológico (20 e 25 %), mas o nível que

produz os menores valores para teor de umidade é o de 30 % de concentração, independente da temperatura.

A análise de superfície de resposta ajustada aos dados de umidade residual dos extratos secos mostra que, à medida que o parâmetro de temperatura é aumentado em associação ao aumento do percentual de adjuvante, a umidade residual diminui (Figura 4). A probabilidade de significância, teste F para variável resposta umidade residual, foi significativo para as causas de variação temperatura ($p = 0,001328$ L) e concentração (0,000099 L). Considerando os parâmetros de temperatura de secagem e concentração de adjuvante para as respostas de umidade residual e o rendimento líquido do processo de secagem, foi estabelecido que as condições de temperatura a 140 °C e a concentração de 30 % foram os parâmetros de escolha utilizados para obtenção dos extratos secos, com rendimento líquido de 89,30 %.

O estudo do comportamento dos extratos

**Figura 1.** Ganho de massa nos extratos hidroalcoólicos secos por aspersão frente à umidade relativa de 60 e 90 %.

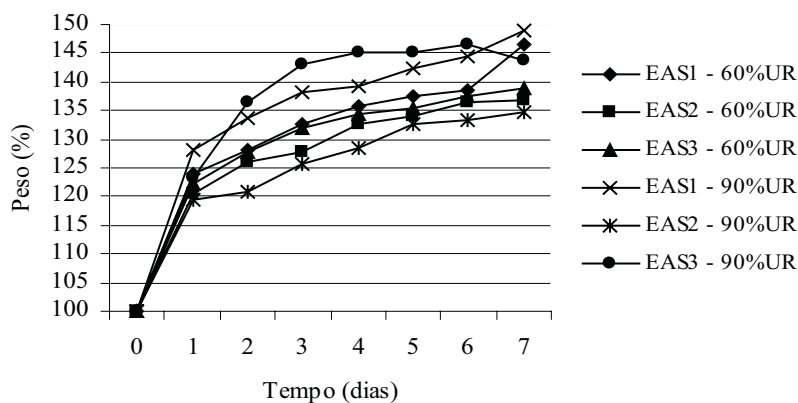


Figura 2. Ganho de massa nos extratos aquosos secos por aspersão frente à umidade relativa de 60 e 90 %.

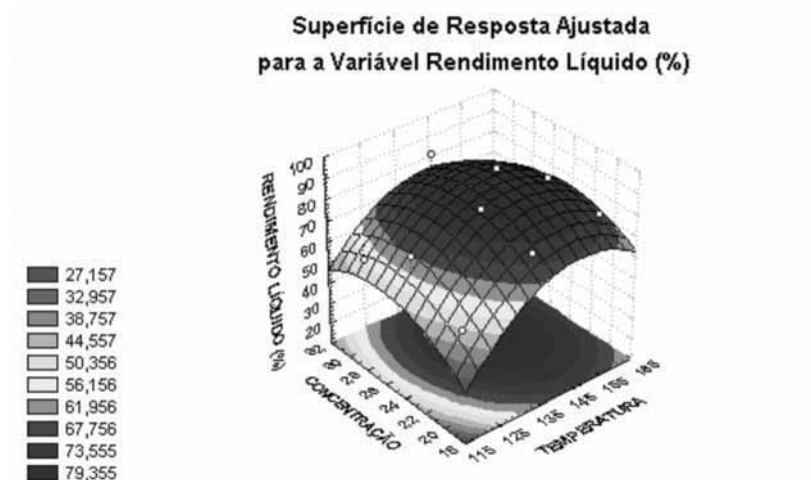


Figura 3. Superfície de resposta ajustada para variável rendimento líquido para otimização dos parâmetros de secagem.

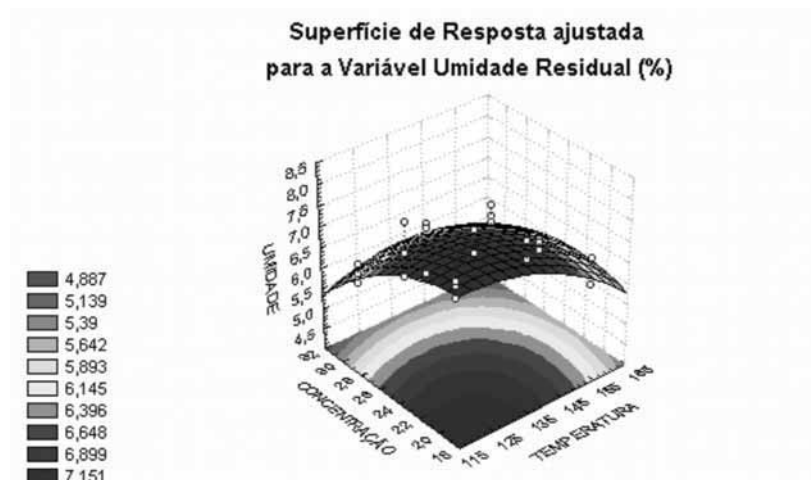


Figura 4. Superfície de resposta ajustada para variável umidade residual (%) para otimização dos parâmetros de secagem.

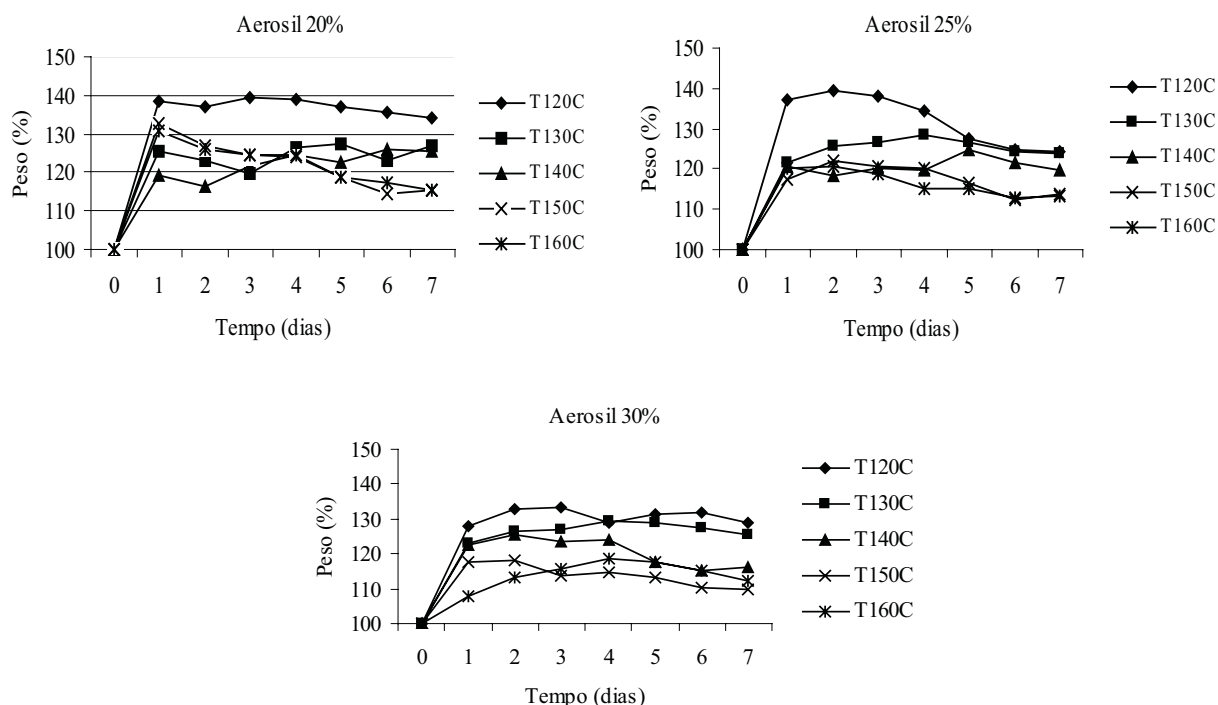


Figura 5. Ganho de massa dos extratos secos por aspersão obtido em diferentes temperaturas, submetidos à atmosfera de 90 % de umidade relativa.

secos, frente à umidade relativa de 90 %, foi realizado para se detectar a estabilidade física do produto obtido, possibilitando conhecer o seu comportamento e as condições ambientais ideais para a produção, armazenamento e transporte. Já sendo conhecido o perfil higroscópico, em umidade relativa de 60 e 90 % para os extratos secos contendo 30 % de Aerosil (Figura 1 e 2), para a otimização dos parâmetros de secagem utilizou-se apenas o estudo da manutenção das características físicas frente à umidade relativa de 90 %. Conforme mostra a figura 5, o ganho de massa dos extratos secos, mostrou um crescimento brusco nas primeiras 24 horas de exposição à atmosfera de 90 % UR, seguindo uma tendência a um platô para os demais dias de exposição, sugerindo haver um equilíbrio entre a pressão de vapor do material em análise e a pressão de vapor da água da atmosfera, independente dos parâmetros da concentração de Aerosil e da temperatura de secagem (Carstensen, 1976).

Quanto aos aspectos físicos dos pós-secos, observou-se comportamentos diferentes. Os resultados mostraram que os extratos secos obtidos em temperaturas inferiores a 140 °C apresentaram enegrecimento na coloração, formação de aglomerados e alteração na forma física, de sólida para semi-sólida. Os extratos obtidos com as concentrações mais altas de Aerosil em temperaturas mais elevadas apresentaram uma maior resistência aos efeitos da higroscopicidade a qual estavam sendo expostos. Isto poderia ser relacionado à menor retenção

de água pelo extrato seco durante o processo de secagem, como também às propriedades tecnológicas do adjuvante adicionado.

CONCLUSÃO

Segundo os resultados obtidos, pode-se concluir que, na obtenção do extrato seco por aspersão, a temperatura de admissão e a concentração de adjuvante tecnológico influenciaram no comportamento físico do produto final e no rendimento da operação. O Aerosil®200 foi o adjuvante que apresentou maior adequabilidade quanto à estabilidade dos extratos secos. As melhores condições de secagem para a obtenção dos extratos secos foram obtidas a 140 °C de temperatura na concentração de 30 % de Aerosil®200. Essas condições proporcionaram ao produto obtido uma melhor estabilidade física.

REFERÊNCIAS

- Casadebaig J, Jacob M, Cassanas G, Gaudy D, Baylac G, Puech A 1989. Physicochemical and pharmacological properties of spray-drier powders from *Fraxinus excelsior* leaf extracts. *J Ethnopharmacol* 26: 211-216.
- Carstensen JT 1976. *Pharmaceutics of solid and solid dosage forms*. New York: John Wiley & Sons, p. 8-13.
- Cornec M 1990. Aérosil: un adjuvant efficace pour les formes sèches, liquides et pâteuses. *STP Pharma Sci* 6: 110-112.

- Farmacopéia Brasileira 1988. 4. ed. São Paulo: Ateneu, p.v.4.2.3.
- Gaudy D 1984. *Contribution à l'optimisation des préparations galéniques à base de Noix vomique: mises au point technologiques et analytiques*, 258p. Thesis: Doctorat d'Etat es Sciences Pharmaceutiques., Montpellier I.
- Gaudy D, Puech A, Jacob M 1991. Rôle de l'adjuvant dans l'optimization de la production d'un extrait sec vegetal nébulisé: "cas de l'extrait de Noix Vomique". *Pharm Acta Helv* 66: 5-10.
- González GO, Schmidt PC 1995. Obtención de comprimidos conteniendo extractos atomizados de flor de la pasión (*Passiflora incarnata* L.). *Acta Farm Bonaerense* 14: 173-180.
- Linden R, Ortega GG, Petrovick PR, Bassani VL 2000. Response surface analysis applied to the preparation of tablets containing a high concentration of vegetable spray-dried extract. *Drug Dev Ind Pharm* 26: 441-446.
- List PH, Schmidt PC 1989. *Phytopharmaceutical Technology*. Boca Raton: CRC.
- Martinez MJ, Gonzalez NA, Betncourt JB 1996. Actividad antimicrobiana del *Schinus terebinthifolius* Raddi (copal). *Rev Cuba Planta Med* 1: 37-39.
- Medeiros MGF 2001. *Influência dos adjuvantes tecnológicos na qualidade dos extratos secos atomizados da Schinus terebinthifolius Raddi "Aroeira da Praia" (Anacardiaceae)*. Natal, 129p. Dissertação de Mestrado - Programa de Pós-Graduação em Ciências Farmacêuticas, Universidade Federal do Rio Grande do Norte.
- Montgomery DC 1996. *Design and analysis of experiments*. 4. ed, New York: John Wiley & Sons.
- Moura T, Gaudy D, Jacob M, Terol A, Pauvert B, Chauvet A 1994. Vitamina C spray-drying solutions. *Pharm Acta Helv* 69: 77-80.
- Paula IC, Ortega, GG, Bassani VL, Petrovick PR 1998. Development of ointment formulations prepared with *Achyrocline satureioides* spray-dried extracts. *Drug Dev Ind Pharm* 24: 235-241.
- Raposo MJ, Melo EJM, Neto JAL, Diniz MFA, Marcelino CAC, Sant'Ána AEG 2002. Medicinal plants in the healing of dry socket in rats: microbiological and microscopic analysis. *Phytomedicine* 9: 109-116.
- Senna EL, Petrovick PR, Ortega GG, Bassani VL 1997. Preparation and characterization of spray-dried powders from *Achyrocline satureioides* (Lam.) DC extracts. *Phytother Res* 11: 123-127.
- Simões CMO, Santos RI, Falkenberg MB 2003. Introdução à análise fitoquímica. In: Simões, CMO, et al. *Farmacognosia: da planta ao medicamento* 3. ed Porto Alegre: UFRGS, Florianópolis: UFSC, p.229-245.
- Soares LAL 2002. *Obtenção de comprimidos contendo alto teor de produto seco por aspersão de Maytenus ilicifolia Mart. Ex. Reissek - Celastraceae. Desenvolvimento tecnológico de produtos intermediários e final*. Porto Alegre, 279p. Tese de Doutorado - Universidade Federal do Rio Grande do Sul.
- Souza KCB, Petrovick PR, Bassani VL, Ortega GG 2000. The adjuvants aerosil 200 and gelita-sol-p influence on the technological characteristics of spray-dried powders from *Passiflora edulis* var. *flavicarpa*. *Drug Dev Ind Pharm* 26: 331-336.
- Tsai T 1997. Modification of physical characteristics of microcrystalline cellulose by codrying with β -cyclodextrins. *J Pharm Sci* 87: 117-122.
- Viana GSB, Matos AFJ, Bandeira MAM, Rao VSN 1995. *Aroeira do sertão (Myracrodruon urundeuva Fr. All.) estudo botânico, farmacognóstico, químico e farmacológico*. Fortaleza: Edições UFC.
- Wendel S, Çelic M 1998. Uma visão geral sobre o uso da tecnologia de spray-drying. *Pharm Technol* 5: 31-43.
- Wouessidjewe D, Duchêne D 1994. Ciclodextrinas: Realidade e possibilidades. *Caderno de Farmácia* 10: 7-13.