

当归药材热风-微波联合干燥方法研究

段素敏^{1,2,3}, 孔 铭^{1,2}, 李秀杨^{1,2}, 刘欢欢^{1,2}, 刘丽芳^{3*}, 李松林^{1,2*}

1. 南京中医药大学附属中西医结合医院 中药质量研究室, 江苏 南京 210028

2. 江苏省中医药研究院 中药代谢组研究室, 江苏 南京 210028

3. 中国药科大学 天然药物活性组分与药效国家重点实验室, 江苏 南京 210009

摘要: **目的** 研究热风-微波联合干燥方法加工当归药材的可行性, 并对加工药材进行质量评价研究。**方法** 分别对热风干燥温度、热风干燥时间、微波干燥电流、微波干燥时间进行考察, 根据《中国药典》2015年版当归项下指标对加工药材进行质量评价, 结合微生物数量和产能, 选出最优工艺; 分别检测最优工艺加工样品、硫熏样品和阴干样品的微生物数量、重金属及有害元素量和10种活性成分(阿魏酸、阿魏酸松柏酯、洋川芎内酯 I、洋川芎内酯 H、洋川芎内酯 A、E-藁本内酯、Z-藁本内酯、正丁烯基苯酞、riligustilide、欧当归内酯 A)量。**结果** 最终确定热风(70℃)干燥20 h+微波(100 mA)干燥6 min为最优工艺。经新方法加工的样品微生物数量与硫熏样品相当, 所加工样品重金属及有害元素均未超标, 并且对药材活性成分无显著影响。**结论** 经新方法加工的当归药材各项理化指标均符合《中国药典》2015年版规定, 热风-微波联合干燥技术可以作为当归药材产地加工中的一种快速干燥方法。

关键词: 当归; 热风-微波联合干燥技术; 质量评价; 微生物; 重金属; 有害元素; 阿魏酸; 阿魏酸松柏酯; 洋川芎内酯 I; 洋川芎内酯 H; 洋川芎内酯 A; E-藁本内酯; Z-藁本内酯; 正丁烯基苯酞; riligustilide; 欧当归内酯 A; 产地加工

中图分类号: R283.3 文献标志码: A 文章编号: 0253-2670(2016)19-3415-05

DOI: 10.7501/j.issn.0253-2670.2016.19.011

Hot air-microwave combination drying method for processing *Angelicae Sinensis Radix*

DUAN Su-min^{1,2,3}, KONG Ming^{1,2}, LI Xiu-yang^{1,2}, LIU Huan-huan^{1,2}, LIU Li-fang³, LI Song-lin^{1,2}

1. Department of Pharmaceutical Analysis, Affiliated Hospital of Integrated Traditional Chinese and Western Medicine to Nanjing University of Chinese Medicine, Nanjing 210028, China

2. Department of Metabolomics, Jiangsu Province Academy of Traditional Chinese Medicine, Nanjing 210028, China

3. State Key Laboratory of Natural Medicines, China Pharmaceutical University, Nanjing 210009, China

Abstract: Objective In this study, the feasibility of hot air-microwave combination drying method for processing *Angelicae Sinensis Radix* (ASR) was investigated and evaluated. **Methods** Hot air temperature, drying time, microwave electric current, and microwave time were taken into consideration. The combined drying method was optimized based on the standards of ASR documented in *Chinese Pharmacopoeia* (2015 version). After that, microorganisms, heavy metals, harmful elements, and active ingredients (ferulic acid, coniferyl ferulate, senkyunolide I, senkyunolide H, senkyunolide A, E-ligustilide, Z-ligustilide, n-butylidenephthalide, riligustilide, and levistilide A) were detected to evaluate the quality of processed samples. **Results** The optimal method was that samples were dried in hot air (70℃) for 20 h, then heated in microwave (100 mA) for 6 min. The number of microorganisms in processed samples equaled to sulfur-fumigated samples; Heavy metals and harmful elements were qualified after this processing; The new drying method for processing ASR had no significant effect on the active ingredient. **Conclusion** After this process, the physical and chemical indicators of ASR are in line with the criteria of *Chinese Pharmacopoeia*. This hot air-microwave combination drying method should be a fast drying method for post-harvest handling of ASR.

收稿日期: 2016-03-15

基金项目: 国家高技术研究发展计划(“863”)项目(2014AA022204); 国家自然科学基金(81503245); 国家中医药管理局行业专项(201307008-2)

作者简介: 段素敏(1990—), 男, 在读硕士研究生, 主要从事现代中药分析研究。E-mail: duansumin@hotmail.com

*通信作者 李松林(1964—), 研究员, 主要从事中药药效物质和质量控制研究。Tel: (025)85639640 E-mail: songlinli64@126.com

刘丽芳(1969—), 教授, 主要从事现代中药分析研究。Tel: (025)86185136 E-mail: liulifang69@126.com

Key words: *Angelicae Sinensis Radix*; hot air-microwave combination drying technique; quality evaluation; microorganism; heavy metals; harmful elements; ferulic acid; coniferyl ferulate; senkyunolide I; senkyunolide H; senkyunolide A; *E*-ligustilide; *Z*-ligustilide; *n*-butylidenephthalide; riligustilide; levistilide A; habitat processing

当归 *Angelicae Sinensis Radix* 为伞形科当归属植物当归 *Angelica sinensis* (Oliv.) Diels 的干燥根, 始载于《神农本草经》^[1]。甘肃产当归具有种植历史悠久、种植面积大、品质优良等优势, 被称为道地药材^[2]。在当归的产地加工中多采用晒干和阴干作为药材的干燥方法^[3], 但是遇到阴雨天无法及时干燥的情况下, 加工过程中多采用硫磺熏蒸当归^[4], 使当归易于干燥, 外观颜色变得美观, 同时还可以有效防止生虫霉变, 延长储藏时间^[5]。研究发现硫磺熏蒸可导致药材有效成分发生转化、药效降低、有害物质残留、毒性增加等问题^[6-9], 因此, 研发既能达到硫磺防霉目的, 又克服其缺点的快速干燥技术是亟待解决的重要课题。

热风干燥技术具有成本低、投资少、无残留毒物、易除去药材外层水分的优点^[10]; 微波干燥技术具有杀菌、易除去药材中内层水分的优点^[11]。本课题组前期实验室小试研究发现^[12], 阴干法加工的当归药材质量最优, 但耗时长; 热风干燥法能够最大程度保留当归中的主要成分, 干燥后期效率较低; 微波干燥法能够保留当归中主成分藁本内酯的量, 干燥效率较高。如果将热风 and 微波 2 种技术联合应用, 就可以发挥各自的优点。所以本实验对热风联用微波干燥和杀菌技术快速干燥当归药材的可行性进行研究。

1 仪器与材料

微波加工设备 (型号: HR-18, 南京虎瑞有限公司) 功率: 0~900 W, 排风: 800、1 600、2 500 m³/h, 电流: 0~300 mA; 带速: 10~50 Hz。电热恒温鼓风干燥箱, 上海精宏设备有限公司; Waters 高效液相色谱仪, Alliance2695 四元泵、自动进样系统、柱温箱、Empower 色谱工作站、Waters2996 二极管阵列检测器; Microfuge 16 台式微量离心机, 美国贝克曼库尔特; AT201 十万分之一电子天平, 瑞士梅特勒公司; DJ-02 灵巧型粉碎机, 上海淀久中药机械制造有限公司; 美国 Milli-Q 纯水器。

当归鲜药材采自甘肃岷县 (编号: JSPACM-15, 批号 20141201), 药材经笔者鉴定, 由江苏省中医药研究院李松林研究员核实为伞形科当归属植物当归 *Angelica sinensis* (Oliv.) Diels 的根。硫磺, 食品级, 临沂优美化工有限公司; 甲醇, 色谱纯, 江苏

汉邦科技有限公司; 甲酸, 分析纯, 上海凌峰化学试剂有限公司; 水为实验室自制超纯水。

2 方法与结果

2.1 热风干燥参数考察

将采集来的鲜当归 (200 kg) 每批 7.5 kg, 洗净, 去泥, 揉搓, 将根捋直, 平铺在样品盘中, 放入烘箱中进行干燥, 分别考察 50、60、70 °C 干燥至水分 20%~30% 所需要的时间, 依据《中国药典》2015 年版要求^[13], 观察药材外观、性状, 对各批次热风干燥样品进行阿魏酸定量测定。如表 1 所示, 3 种不同干燥温度下, 药材的外观性状均符合《中国药典》2015 年版规定, 阿魏酸的量没有明显变化, 并且各温度下阿魏酸的量均符合《中国药典》2015 年版标准 (>0.05%), 热风干燥温度升高没有明显影响药材中阿魏酸的量。70 °C 下干燥至含水量 20% 和 30% 左右分别需要 20 h 和 14 h, 远低于 50 °C 和 60 °C 所需时间, 有利于实际生产中提高效率和产量, 因此选定 70 °C 为热风干燥温度。热风干燥后经微波干燥, 结果见表 2, 热风干燥后水分为 33.63% 的当归样品, 经微波加工后其外观、性状产生了不同程度的变化, 水分仍在 30% 左右, 无法达到《中国药典》2015 年版要求的各项标准。热风干燥后水分为 18.18% 的各批次样品外观、性状均无明显变化, 符合《中国药典》描述, 所以选择热风干燥 20 h (70 °C) 为最优工艺, 能够保证当归药材的质量。

表 1 热风干燥数据 (n=2)

Table 1 Hot air drying data (n=2)

温度/°C	干燥时间/h	干燥后水分/%	阿魏酸/%	外观性状
50	33	32.71	0.143	符合《中国药典》2015 年版描述
	40	20.09	0.136	
60	20	30.15	0.141	
	28	22.23	0.142	
70	14	33.63	0.145	
	20	18.18	0.140	

2.2 微波干燥参数考察

将热风干燥后的当归样品, 每批 7.5 kg, 进行微波干燥工艺研究, 考察微波干燥电流和微波干燥时间对当归药材质量的影响。考察电流分别为 40、60、80、100 mA, 每个微波干燥电流选取 3 个时间

点, 收集各批次药材, 并按《中国药典》标准考察样品的外观、性状、水分, 初步筛选出部分较优工艺。表 2 中, 批号 1-1~1-12 各批次药材外观、性状均符合《中国药典》描述, 其中 1-6、1-9、1-11、1-12 水分均低于 15%, 符合《中国药典》标准, 因此选定 1-6、1-9、1-11、1-12 为较优工艺。

表 2 热风-微波联用加工数据 (n = 2)
Table 2 Technique data of hot air-microwave combination (n = 2)

批号	电流/mA	时间/min	水分/%		外观性状	批号	电流/mA	时间/min	水分/%		外观性状
			起始	干燥后					起始	干燥后	
1-1	40	5	18.18	19.10	符合药典描述	2-1	40	5	33.63	33.52	符合药典描述
1-2	40	10	18.18	17.34	符合药典描述	2-2	40	10	33.63	32.17	符合药典描述
1-3	40	15	18.18	16.43	符合药典描述	2-3	40	15	33.63	37.52	断面色深
1-4	60	5	18.18	17.50	符合药典描述	2-4	60	5	33.63	32.06	符合药典描述
1-5	60	10	18.18	16.33	符合药典描述	2-5	60	10	33.63	33.85	符合药典描述
1-6	60	15	18.18	13.98	符合药典描述	2-6	60	15	33.63	33.43	归身空心, 走油
1-7	80	3	18.18	16.50	符合药典描述	2-7	80	3	33.63	32.07	符合药典描述
1-8	80	7	18.18	15.43	符合药典描述	2-8	80	7	33.63	31.55	色青, 走油, 变质
1-9	80	11	18.18	13.50	符合药典描述	2-9	80	11	33.63	32.16	空心, 熟
1-10	100	2	18.18	16.71	符合药典描述	2-10	100	2	33.63	31.31	符合药典描述
1-11	100	6	18.18	14.85	符合药典描述	2-11	100	6	33.63	29.96	熟
1-12	100	9	18.18	12.54	符合药典描述						

2.3 最优干燥工艺参数确定

将初步筛选出的部分较优工艺各批次当归样品(1-6、1-9、1-11、1-12)按照《中国药典》2015 年版一部当归项下, 对阿魏酸进行定量测定; 根据加工设备每天运转 8 h 记录产量及能耗; 依据《中国药典》2015 年版四部非无菌产品微生物限度检查法(计数法), 进行微生物限度检查。阿魏酸测定结果显示, 批号 1-6、1-9、1-11、1-12 样品中阿魏酸量分别为 (0.142±0.003) %、(0.160±0.001) %、(0.145±0.005) %、(0.157±0.002) % (n=3), 4 批当归药材样品中阿魏酸的量均符合《中国药典》2015 年版标准。根据表 3 中产量及能耗的结果, 1-6、1-9 产量较低, 日产量分别为 240、327 kg, 同样能耗也低。1-11、1-12 产量较高, 日产量分别为 600、400 kg, 能耗相对较高。表 4 中, 由于样本 1-6 和 1-9 功率较小, 杀菌效果较弱, 细菌数目较高; 而样本 1-11 和 1-12 功率较大, 细菌数目明显降低, 且 1-11 霉菌数目较少。综合比较, 确定以 1-11 最优工艺加工样品, 热风微波联合应用的最佳工艺为热风干燥 20 h (70 ℃), 微波干燥 6 min (100 mA)。

2.4 热风-微波联用干燥样品与硫熏样品和阴干样品的质量比较

2.4.1 硫熏和阴干当归样品制备

表 3 较优工艺产量及能耗比较 (n = 2)
Table 3 Yield and energy consumption of selected process (n = 2)

批号	电流/mA	时间/min	产量/ (kg·d ⁻¹)	能耗/ (kW·h·d ⁻¹)
1-6	60	15	240	45
1-9	80	11	327	60
1-11	100	6	600	75
1-12	100	9	400	75

表 4 较优工艺当归中微生物检测结果 (n = 2)
Table 4 Numbers of microorganisms in selected process samples (n = 2)

批号	细菌/(cfu·g ⁻¹)	霉菌和酵母菌/(cfu·g ⁻¹)	大肠杆菌
1-6	8.0×10 ⁴	4.8×10 ⁴	检出
1-9	1.0×10 ⁵	2.4×10 ⁴	检出
1-11	6.0×10 ⁴	3.2×10 ⁴	检出
1-12	5.2×10 ⁴	4.6×10 ⁴	检出

- (1) 硫熏当归样品: 取鲜当归, 摊于纱布包裹的筛网上, 置于密闭容器中用食品级硫磺进行熏蒸, 2 h 后取出当归, 置于烘箱中, 于 70 ℃下干燥至含水量 15% 以下。
- (2) 阴干当归样品: 取鲜当归, 置于阴凉通风

处,干燥至含水量 15%以下。

2.4.2 重金属及有害元素量比较 将最优工艺所得当归样品、硫熏当归样品、阴干当归样品分别依据《中国药典》2015 年版四部,检测铜、镉、铅、砷、汞。依据《GB13196-1991 水质 硫酸盐的测定 火焰原子吸收分光光度法》测定各批次样本中硫元素的量^[14]。结果见表 5,各批次重金属元素的量均符合《中国药典》规定,其中硫熏当归样品,其重金属的检测结果均远远低于《中国药典》标准。硫熏样品硫元素的量远远高于阴干当归样品和热风-微波联用干燥工艺样品,热风-微波联用干燥工艺加工的当归样品硫元素并没有大幅增加。硫熏当归样品中,检测到 SO₂ 残留量为 890.96 mg/kg,折算成硫元素的量则为 445.06 mg/kg,远远低于硫熏样品引入硫元素的量 6 176 mg/kg (扣除未熏样品中硫元素的量)。

2.4.3 微生物数目比较 将硫熏样品与阴干样品,

表 5 不同加工方式当归样品中重金属及硫元素检测结果 ($n=2$)

Table 5 Heavy metal and sulfur elements in ASR samples by different processing samples ($n=2$)

样品	质量分数/(mg·kg ⁻¹)					
	铜	镉	铅	砷	汞	硫
药典限量	≤20	≤0.3	≤5	≤2	≤0.2	—
硫熏当归样品	6.33	0.03	—	—	—	13 861
阴干当归样品	5.78	—	—	0.40	0.02	7 685
1-11	6.20	—	—	0.34	0.03	9 493

“—” 未检测到

“—” not detected

表 6 不同加工方式当归样品中 10 种活性成分的定量测定 ($\bar{x} \pm s, n=3$)

Table 6 Contents of ten active components in ASR samples by different processing samples ($\bar{x} \pm s, n=3$)

样品	质量分数/(mg·g ⁻¹)				
	阿魏酸	阿魏酸松柏酯	洋川芎内酯 I	洋川芎内酯 H	洋川芎内酯 A
硫熏当归样品	0.098±0.002*	10.905±0.117*	0.342±0.008*	0.023±0.001	0.115±0.001
阴干当归样品	0.249±0.002	11.684±0.041	0.839±0.026	0.063±0.006	0.146±0.002
热风-微波联用干燥样品 (1-11)	0.279±0.005	11.636±0.180	1.114±0.008	0.073±0.001	0.169±0.002

样品	质量分数/(mg·kg ⁻¹)				
	E-藁本内酯	Z-藁本内酯	正丁烯基苯酞	riligustilide	欧当归内酯 A
硫熏当归样品	1.148±0.008*	7.451±0.012*	0.252±0.006	0.080±0.000	0.046±0.001
阴干当归样品	1.665±0.015	8.780±0.086	0.336±0.001	0.102±0.002	0.083±0.002
热风-微波联用干燥样品 (1-11)	0.980±0.029*	11.981±0.498*	0.347±0.005	0.153±0.002	0.106±0.002

与阴干组比较: * $P<0.005$

* $P<0.005$ vs non-fumigated sample

依据《中国药典》2015 年版四部微生物限度检查法,进行微生物限度检查,并与最优工艺样品比较。结果表明,2 样品均检出大肠杆菌,硫熏样品细菌数目为 3.6×10^3 cfu/g,霉菌和酵母菌数目为 3.4×10^4 cfu/g;阴干样品细菌数目为 1.5×10^5 cfu/g,霉菌和酵母菌数目为 1.3×10^5 cfu/g。

将表 4 中的最优工艺样品同阴干当归样品比较,热风-微波联用干燥加工的样品细菌数目、霉菌和酵母菌数目明显降低。同硫熏样品相比,细菌数目比硫熏样品稍高,霉菌和酵母菌的数目与硫熏样品属同等水平,热风-微波联用干燥方法可以达到杀菌、防霉的目的。

2.4.4 活性成分的量比较 将最优工艺当归样品、硫熏当归样品、阴干当归样品依据本课题组前期建立的方法^[12],对当归中的 10 种活性成分进行定量测定,平行测定 3 份,求平均值。结果见表 6,同阴干当归相比硫熏当归中各成分的量有明显降低,热风-微波联用干燥工艺当归样品与阴干当归相比,E-藁本内酯与 Z-藁本内酯量有显著差异,其他活性成分量无显著差异,热风-微波联用干燥工艺对当归活性成分影响较小。

3 讨论

由于微波干燥原理为加热水分子,使药材内部的水分快速蒸发,但药材含水量过高,会导致药材过热,使药材变质。因此在本实验中,将微波加热前水分控制在 20%~30%。本研究目的为建立新的当归药材干燥技术,那么就要考虑产量及效率,在考察热风干燥温度时,各温度条件下加工的药材均无显著差异,而 70 °C 会缩短加工时间,提高产量,

因此选择了 70 ℃ 为热风干燥温度。同样,在确定最优干燥参数时,样本 1-11 和 1-12 均能达到良好的杀菌、防霉效果,但 1-11 的产量显著高于 1-12,从经济利益角度考虑,1-11 为最优工艺。

有研究表明^[15],硫磺熏蒸会使药材中重金属及有害元素超标,本研究中选用食品级硫磺熏蒸当归,硫磺当归重金属及有害元素并未超标,说明选用食品级硫磺进行熏蒸并不会导致重金属的超标。在各样品中均检测到铜元素,说明铜元素可能为药材中含有的元素。在阴干样品与热风-微波联用干燥样品中检测到微量的砷和汞,在硫磺样品中检测到微量的镉,可能是由于药材中带有少量泥沙引入,但其量均低于《中国药典》2015 年版限量。《中国药典》2015 年版中以 SO₂ 残留作为指标来检控硫磺熏中药材及饮片,本研究中分别测定了硫磺药材的 SO₂ 残留和硫元素量,将 SO₂ 残留折算成硫元素量之后明显低于检测到的硫元素的量,说明硫磺熏蒸药材仅以 SO₂ 残留作为指标并不能真实反映药材中引入的硫元素残留,可能还有升华的硫附着在药材上。

本研究对热风-微波联用干燥加工当归成分分析中发现 *E*-藁本内酯的量降低,而 *Z*-藁本内酯的量升高,推测可能是由于在微波干燥过程中 *E*-藁本内酯会转化为 *Z*-藁本内酯。将表 6 中 1-11 阿魏酸的量与“2.3”项中阿魏酸的量比较可以看出,《中国药典》2015 年版方法测得的阿魏酸的量明显偏高,《中国药典》2015 年版方法中使用 70% 甲醇回流提取的方法,在此提取条件下测得的阿魏酸为当归药材中初始含有的阿魏酸以及由阿魏酸松柏酯分解得到的阿魏酸的量之和^[16-17],即总阿魏酸的量。本方法以甲醇-甲酸(95:5)作为提取溶剂,能够最大程度抑制阿魏酸松柏酯的水解^[17],测得的阿魏酸的量为药材中原始阿魏酸的量。经过硫磺熏蒸后各活性成分的量有不同程度的降低,但热风-微波联用干燥组同阴干组比较并没有显著差异,说明热风-微波联用干燥对当归中的活性成分影响较小,能够保证当归药材的质量。

参考文献

- [1] Yi L Z, Liang Y Z, Wu H, *et al.* The analysis of *Radix Angelicae Sinensis* (Danggui) [J]. *J Chromatogr A*, 2009, 1216(11): 1991-2001.
- [2] 王亚丽,唐红霞,朱书强. 甘肃不同产地当归的比较分类研究 [J]. 中国中药杂志, 2009, 34(11): 1390-1394.
- [3] 祝永甲. 当归产地加工干燥工艺技术研究 [D]. 兰州: 甘肃中医学院, 2014.
- [4] Zhan J Y X, Yao P, Bi C W C, *et al.* The sulfur-fumigation reduces chemical composition and biological properties of *Angelicae Sinensis Radix* [J]. *Phytomedicine*, 2014, 21(11): 1318-1324.
- [5] Kan W L, Ma B, Lin G. Sulfur fumigation processing of traditional chinese medicinal herbs: beneficial or detrimental? [J]. *Front Pharmacol*, 2011, 84(2): 84-90.
- [6] 翟宇瑶, 胡明勋, 陈安家, 等. 硫磺熏蒸对黄芪中黄酮类和皂苷类成分的影响 [J]. 现代药物与临床, 2014, 29(5): 489-493.
- [7] 宋丽琴, 范 蕾, 王国夫. 不同硫磺熏蒸程度黄芪中二氧化硫残留量与有效成分含量的相关性 [J]. 辽宁中医杂志, 2014, 41(4): 767-770.
- [8] 赵莹莹, 蔡 皓, 刘 晓, 等. 白芍硫磺熏蒸后导致升麻葛根汤 HPLC 指纹图谱变化的研究 [J]. 南京中医药大学学报, 2014, 30(4): 365-369.
- [9] 王志旺, 李 芸, 潘 政, 等. 硫磺炮制当归的急性与亚急性毒性研究 [J]. 毒理学杂志, 2013, 27(6): 489-490.
- [10] Takashi W, Takahiro O, Hiroshi S, *et al.* The influence of inhibit avoid water defect responses by heat pretreatment on hot air drying rate of spinach [J]. *J Food Eng*, 2016, 168(8): 113-118.
- [11] 桑迎迎, 周国燕, 王爱民, 等. 中药材干燥技术研究进展 [J]. 中成药, 2010, 32(12): 2140-2144.
- [12] Bai Y J, Kong M, Xu J D, *et al.* Effect of different drying methods on the quality of *Angelicae Sinensis Radix* evaluated through simultaneously determining four types of major bioactive components by high performance liquid chromatography photodiode array detector and ultra-high performance liquid chromatography quadrupole time-of-flight mass spectrometry [J]. *J Pharm Biomed*, 2014, 94(6): 77-83.
- [13] 中国药典 [S]. 一部. 2015.
- [14] 中华人民共和国国家标准 [S]. 1991.
- [15] 刘静静, 蔡 皓, 刘 晓, 等. ICP-AES 法分析硫磺熏蒸前后白芍中有害重金属、硫及主要微量元素的变化 [J]. 中国中药杂志, 2011, 36(13): 1790-1793.
- [16] Duan S M, Xu J, Bai Y J, *et al.* Sulfur dioxide residue in sulfur-fumigated edible herbs: The fewer, the safer? [J]. *Food Chem*, 2016, 192(1): 119-124.
- [17] Lu G H, Chan K, Leung K, *et al.* Assay of free ferulic acid and total ferulic acid for quality assessment of *Angelica Sinensis Radix* [J]. *J Chromatogr A*, 2005, 1068(2): 209-219.