

不同干燥方法对半夏药材干燥特性、外观性状与内在成分的影响

罗寅珠, 刘 勇, 黄必胜, 刘艳莉, 刘 启, 雷 咪*, 刘大会*

湖北中医药大学药学院, 湖北 武汉 430065

摘 要:目的 为探究不同初加工干燥方法(晒干、阴干、热风干燥)对半夏 *Pinelliae Rhizoma* 药材块茎外观性状、内在结构及品质的影响规律, 筛选适宜的半夏药材产地干燥加工方法。方法 通过比较晒干、阴干、热风干燥(40、55、70 °C)方法下潜江新鲜半夏水分比、干燥速率随干燥时间的动态变化规律以及对半夏药材外观性状、折干率、密度、灰分、浸出物、淀粉以及核苷类成分(鸟苷、尿苷、腺苷、肌苷、尿嘧啶、次黄嘌呤)含量的影响, 对药材品质进行综合性评价。结果 鲜半夏采用传统阴干耗时最长, 约 179 h, 药材表面变为黑褐色, 品相差, 切面呈絮状, 粉性不足; 晒干较阴干耗时缩短 40.8%, 药材外观性状好, 密度高, 质坚实, 直链淀粉含量最高, 核苷类成分含量整体较高; 鲜半夏采用热风干燥处理速率加快, 耗时较阴干法缩短 59.8%~89.9%, 密度随温度升高而降低, 药材内部出现开裂甚至空心的现象, 角质样严重, 支链淀粉含量高, 粉性降低, 55 °C 烘干处理品相较好, 浸出物含量随温度升高较阴干法降低 7.8%~24.6%, 尿苷、尿嘧啶、腺苷 70 °C 烘干时含量最高, 次黄嘌呤与肌苷含量 40 °C 与 55 °C 烘干处理最高, 鸟苷含量阴干处理最高。结论 从外观性状、药效成分含量及成本等因素综合考虑, 半夏药材产地加工方法以晒干为宜; 若药材加工量较大, 半夏药材产地加工可以采用日光温室大棚多层晾晒技术和开发低温仿日晒干燥技术。

关键词: 半夏; 干燥; 色差; 晒干; 阴干; 热风干燥; 外观性状; 折干率; 密度; 灰分; 浸出物; 淀粉; 核苷; 鸟苷; 尿苷; 腺苷; 肌苷; 尿嘧啶; 次黄嘌呤; 药材品质

中图分类号: R283.1

文献标志码: A

文章编号: 0253-2670(2021)19-5845-09

DOI: 10.7501/j.issn.0253-2670.2021.19.007

Effects of different drying methods on drying characteristics and appearance and components of *Pinelliae Rhizoma*

LUO Yin-zhu, LIU Yong, HUANG Bi-sheng, LIU Yan-ju, LIU Qi, LEI Mi, LIU Da-hui

School of Pharmacy, Hubei University of Chinese Medicine, Wuhan 430065, China

Abstract: **Objective** In order to explore the influence of different primary drying methods (sun-drying, shade-drying, and hot-air drying) on the appearance characteristics, internal structure and quality and select the suitable drying and processing methods of Banxia (*Pinelliae Rhizoma*). **Methods** In this study, comparing the fresh *Pinelliae Rhizoma*'s dynamic changes of the moisture content ratio and drying rate with different drying time under sun-drying, drying-in-the-shade, and hot air drying (40, 55, and 70 °C), the effects of different drying methods on the appearance, drying rate, density, ash, extractives, starch and nucleoside (guanosine, uridine, adenosine, inosine, uracil, and hypoxanthine) and the quality of *Pinelliae Rhizoma* was evaluated comprehensively. **Results** The results showed that it took the longest time for fresh *Pinelliae Rhizoma* to reach the water equilibrium point by traditional shading drying, about 179 h. The surface of *Pinelliae Rhizoma* turned black and brown, the appearance was worse, the section was flocculent, and the powder was insufficient. The time of sun-drying was 40.8% shorter than that of shade-drying. The medicinal materials had good appearance, high density and solid quality. The content of amylose was the highest, and the content of nucleosides was higher overall. Hot air drying processing speed is accelerated, and the time consumption was 59.8%—89.9% shorter than that of drying-in-the-shade, the density decreases with temperature rise, the inner cracking and even the phenomenon of hollow, serious horniness samples, high amylopectin, powder reduced, the appearance was better under 55 °C drying, extract content varied with temperature was reduced by 7.8%—24.6%

收稿日期: 2021-05-07

基金项目: 湖北省技术创新专项(2019ACA119); 国家重点研发计划(2017YFC1700704); 现代农业产业技术体系建设专项资金资助(CARS-21)

作者简介: 罗寅珠(1996—), 女, 在读硕士, 研究方向为中药资源品质评价与开发研究。E-mail: 2350205616@qq.com

*通信作者: 刘大会, 教授, 博士生导师, 主要从事中药资源、中药农业研究。E-mail: 364731480@qq.com

雷 咪, 高级实验师, 主要从事中药资源品质评价与开发研究。E-mail: 191041507@qq.com

than drying-in-the-shade, After 70 °C hot air drying, the contents of uridine, uracil, adenosine was highest, however, hypoxanthine and inosine was highest under 40 °C and 55 °C hot air drying, while the content of guanosine was highest under drying-in-the-shade.

Conclusion Based on the comprehensive consideration of appearance characteristics, the content of pharmacological components and cost, sun-drying was the best processing method for *Pinelliae Rhizoma*. If the medicinal material processing quantity was large, the processing methods of *Pinelliae Rhizoma* can adopt solar greenhouse multilayer drying technology and develop low temperature insolation drying technology.

Key words: *Pinellia ternate* (Thunb.) Breit; dry; colour difference; sun-drying; shade-drying; hot-air drying; appearance character; drying rate; density; ash content; extract; starch; nucleoside; guanosine; uridine; adenosine; inosine; uracil; hypoxanthine; quality of medicinal materials

半夏为天南星科植物半夏 *Pinellia ternata* (Thunb.) Breit. 的干燥块茎, 始载于《神农本草经》^[1], 具有燥湿化痰、降逆止呕、消痞散结的功效, 是小青龙汤、小柴胡汤及射干麻黄汤等经典名方的组成药物之一, 为常用大宗中药材。现代研究发现半夏含有生物碱、有机酸、核苷酸、多糖、半夏蛋白、淀粉等多种化学成分^[2-3]。但《中国药典》2020 年版主要是以外观性状和浸出物作为质量评价标准, 并以“质坚实, 断面洁白, 富粉性”为佳, 未规定明确指标成分。湖北潜江、天门、沙洋、江陵、钟祥、京山等老荆州、荆门地区盛产半夏, 历史上因“粒圆质结, 色白”, 被称为“荆州子”和“荆半夏”, 品质上乘, 乃上选^[4-5]。

产地干燥加工方法直接影响药材的质量, 刘勇等^[6]发现阴干法处理后的三七药材质地坚实, 内部结构紧密, 外观性状较好, 且药效成分含量较高; 杨雅雯等^[7]发现 60 °C 热风干燥处理后的射干药材质地坚实, 内部结构紧密, 外观性状较好, 苷元类成分含量较高。传统本草记载半夏药材产地干燥加工方法多为脱皮后“曝晒”, 而当前半夏为大面积人工栽培, 生产上受限于场地和天气原因产地大量采用简易炕床加热鼓风烘烤。

近年来已有学者开展了半夏药材产地干燥加工研究工作, 杨小艳等^[8]发现半夏药材以晒干和减压干燥的外观性状较好, 生物碱与总酸含量较高; 陈倩等^[9]经 70 °C 烘 2 h 再以低温烘干或低温反复干燥的半夏样品, 其 5 个特有的甾醇类成分的指纹特征峰非常稳定; 但此类研究工作多是围绕生物碱、有机酸等化学成分和药理作用进行研究, 淀粉及核苷类成分相关研究不多, 且在加工后药材外观性状、内在质量结合起来系统评价方面研究较少。因此, 为探索不同干燥加工方法对半夏外观和内在品质的影响, 本实验以潜江半夏为研究对象, 采用常用产地初加工工艺, 将采挖后的半夏进行趁鲜脱皮清洗,

进行通风阴干、自然晾晒、热风干燥等不同加工干燥方式处理, 结合干燥特性指标, 以外在性状、内在结构和化学成分含量为指导, 分析不同干燥方法对半夏品质的影响, 以期优化半夏产地干燥方法, 为规范半夏产地初加工工艺、保障半夏药材质量和临床用药安全提供理论依据。

1 仪器与材料

1.1 仪器

UltiMate3000 型高效液相色谱仪, 美国戴安公司; JSM-6510LV 钨灯丝扫描电子显微镜 (SEM), 日本 JEOL 公司; A580 双光束紫外可见分光光度计, 翱艺仪器有限公司; SZMCTV (1/2) 体式显微镜, 南京宇恒仪器仪表有限公司; NH310 色差仪, 深圳市三恩时科技有限公司; 奥豪斯 EX125DZH 十万分之一天平, 美国奥豪斯仪器 (上海) 有限公司; Precisa XB220A 万分之一电子分析天平, 普利赛斯国际贸易有限公司; HR/T16M 台式高速冷冻离心机, 湖南赫西仪器装备有限公司; DHG-9070A 电热恒温鼓风干燥箱, 上海森信实验有限公司; HWS28 型水浴锅, 昆山一恒仪器有限公司; KQ2200DB 型数控超声波清洗器, 昆山市超声仪器有限公司; SX2-10-12TP 箱式电阻炉, 上海市崇明实验仪器厂。

1.2 材料

对照品淀粉 (批号 ES00354、TC69502, 2 个测量指标, 直链淀粉和支链淀粉; 对照品标准溶液质量浓度 1 mg/mL)、河南省万佳首化生物科技有限公司; 对照品鸟苷 (批号 111977-201501, 质量分数 ≥ 93.6%)、尿嘧啶 (批号 100649-201302, 质量分数 ≥ 99.6%)、尿苷 (批号 110887-201803, 质量分数 ≥ 99.5%), 均购于中国食品药品检定研究院; 对照品腺苷 (批号 X02211803002)、肌苷 (批号 J05911812016)、次黄嘌呤 (批号 C06911812016), 均购于瑞芬思生物科技有限公司, 质量分数 ≥ 98%; 甲醇、乙腈为色谱纯, 其余试剂皆为分析纯。

实验用半夏药材样品于 2019 年 7 月采挖自湖北省潜江市蔡家台,经湖北中医药大学药学院刘大会教授鉴定为天南星科半夏属植物半夏 *P. ternata* (Thunb.) Breit. 的新鲜块茎。

2 方法

2.1 实验设计

将采收后的半夏搓皮洗净,选择色白、组织紧密、手感充实、无破损、无腐烂、大小一致的新鲜半夏,混合均匀。将清洗后的半夏在滤纸上摊开,晾干表面水分,备用。实验分别设置通风阴干[取 3 kg 新鲜、搓皮、洗净、晾干表面水分的半夏块茎,装入带孔塑料筛中,放置室内通风储物架上,阴晾至足干(达到安全含水率 10%左右,下同)]、自然晒干(取 3 kg 新鲜搓皮洗净晾干表面水分的块茎,装入带孔塑料筛中,白天放置室外太阳下暴晒,晚上放置室内通风处,自然晒至足干)、热风干燥(设置 40、55、70 °C 3 个热风干燥温度。分别取 3 kg 新鲜搓皮洗净晾干表面水分的块茎,装入带孔塑料筛中,直接放入设置温度为 40、55、70 °C 的 3 个电热鼓风干燥箱中,热风干燥至足干)3 种方式 5 个处理,每组设置 3 个重复。

2.2 干燥参数测定^[10]

2.2.1 干基含水率 (M_t) 半夏干燥过程中干基含水率用公式(1)获得。

$$M_t = (W_t - G) / G \quad (1)$$

W_t 为 t 时刻半夏总质量, G 为半夏干物质的质量

2.2.2 水分比 (MR) 半夏干燥过程中水分比由式(2)获得。

$$MR = M_t / M_0 \quad (2)$$

M_0 为半夏初始干基含水率, M_t 为半夏在 t 时刻的干基含水率

2.2.3 干燥速率 (drying rate, DR) 干燥过程中的干燥速率由式(3)获得。

$$DR = (M_{t_1} - M_{t_2}) / (t_1 - t_2) \quad (3)$$

DR 为在 t_1 和 t_2 之间半夏的干燥速率, M_{t_1} 、 M_{t_2} 为 t_1 、 t_2 时的半夏的干基含水率

2.3 外观性状及物理常数测定

2.3.1 表皮观察 首先通过肉眼进行半夏的整体观察并拍照,然后通过 SZMCTV (1/2) 体式显微镜进行半夏断面观察并拍照。

2.3.2 SEM 表征观测 采用 SEM 对不同干燥方法的半夏样品横断面的微观结构进行观察分析。

2.3.3 色差测定^[11] 取干燥后的半夏用色差仪测定色差值,每个样品测定 3 次,取平均值。由式(4)

获得。

$$\Delta E = [(L - L_0)^2 + (a - a_0)^2 + (b - b_0)^2]^{1/2} \quad (4)$$

ΔE 表示总色差, L 、 a 、 b 分别表示样品的亮度值、红绿值、黄蓝值, L_0 、 a_0 、 b_0 分别表示标准样品的亮度值、红绿值、黄蓝值

2.3.4 密度测定 采用 AR223CN 型美国奥豪斯电子天平加密度组件测定半夏的密度,其密度测定方法是借助于阿基米德原理(浮力法)来实现。

2.3.5 复水比 取 2.0 g 半夏药材样品于 150 mL 烧杯中,加入 50 mL 蒸馏水,置于 40 °C 恒温水浴箱中浸泡,复水完全后取出,用滤纸吸干表面水分后称量。复水比(rehydration ratio, RR)按照公式(5)计算。

$$RR = W_w / W_d \quad (5)$$

W_w 为复水后样品的质量, W_d 为复水前样品的质量

2.4 灰分、浸出物指标测定

2.4.1 灰分 参照《中国药典》2020 年版四部通则 2302 进行测定。

2.4.2 浸出物 参照《中国药典》2020 年版四部通则 2201(水溶性浸出物冷浸法)进行测定。

2.5 半夏淀粉成分含量测定

采用双波长法测定半夏中直链淀粉、支链淀粉含量^[12]。

2.6 核苷类成分含量测定

2.6.1 色谱条件 Agilent XDB-C₁₈ 色谱柱(250 mm×4.6 mm, 5 μm);流动相为水-乙腈,梯度洗脱:0~10 min, 0.5%~2%乙腈;10~20 min, 2%~3.5%乙腈;20~30 min, 3.5%~10%乙腈;30~50 min, 10%~28%乙腈;50~55 min, 28%~30%乙腈;55~60 min, 30%~0.5%乙腈;体积流量 1.0 mL/min;检测波长 260 nm;柱温 25 °C;检测器为紫外检测器;进样量 20 μL^[13]。混合对照品和半夏晒干样品溶液的 HPLC 图见图 1。

2.6.2 供试品溶液制备 取半夏药材粉末(65 目)2.0 g,精密称定,置具塞锥形瓶中,精密加入纯水 20 mL,密塞,摇匀,称定质量,超声处理 45 min,放冷,再称定质量,用水补足减失的质量,摇匀,4000 r/min 离心 5 min,经 0.22 μm 微孔滤膜滤过,即得供试品溶液。

2.6.3 对照品溶液制备 分别取对照品鸟苷 5.85 mg、次黄嘌呤 5.42 mg、尿苷 5.66 mg、肌苷 4.87 mg、尿嘧啶 6.07 mg、腺苷 4.70 mg,精密称定,于 10 mL 量瓶中加水溶解并定容至刻度,摇匀。分别精密量

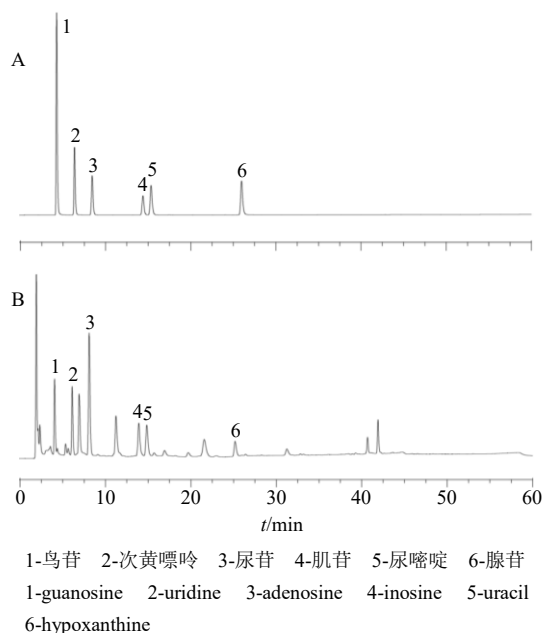


图 1 混合对照品 (A) 和半夏晒干样品 (B) 的 HPLC 图
 Fig. 1 HPLC for mixed reference substances (A) and *Pinelliae Rhizoma* sample under sun-drying (B)

取 1 mL 置于 50 mL 量瓶中, 加水溶解并定容至刻度, 摇匀, 制成鸟苷、次黄嘌呤、尿苷、肌苷、尿嘧啶、腺苷质量浓度依次为 11.70、10.84、11.32、9.74、12.14、9.40 $\mu\text{g/mL}$ 的对照品溶液, 备用。

2.6.4 线性关系考察 分别精密量取上述对照品溶液制备项下的鸟苷、次黄嘌呤、尿苷、肌苷、尿嘧啶、腺苷对照品溶液 1、2、4、6、8 mL 于 50 mL 量瓶中, 用纯水稀释至刻度, 摇匀, 得到不同质量浓度梯度的对照品溶液, 在上述色谱条件下进样测定。以峰面积为纵坐标 (Y), 对照品的质量浓度为横坐标 (X) 进行线性回归, 得回归方程分别为鸟苷 $Y=1.4631X+0.0085$, $r^2=0.9999$, 线性范围 0.234~1.872 $\mu\text{g/mL}$; 次黄嘌呤 $Y=1.186X-0.0059$, $r^2=0.9999$, 线性范围 0.2168~1.7344 $\mu\text{g/mL}$; 尿苷 $Y=0.8117X-0.0047$, $r^2=0.9999$, 线性范围 0.2264~1.8112 $\mu\text{g/mL}$; 肌苷 $Y=0.5575X+0.0035$, $r^2=0.9997$, 线性范围 0.1948~1.5584 $\mu\text{g/mL}$; 尿嘧啶 $Y=0.7340X-0.0035$, $r^2=0.9999$, 线性范围 0.2428~1.9424 $\mu\text{g/mL}$; 腺苷 $Y=1.0883X-0.0118$, $r^2=0.9999$, 线性范围 0.1880~1.5040 $\mu\text{g/mL}$; 结果表明, 各指标成分在各自线性范围内关系良好。

2.6.5 精密度试验 取混合对照品适量, 按“2.6.1”项色谱条件重复进样 6 次, 记录色谱峰面积, 结果鸟苷、次黄嘌呤、尿苷、肌苷、尿嘧啶、腺苷峰面

积的 RSD 分别为 0.69%、0.75%、1.42%、0.93%、1.17%、1.33%, 表明仪器精密度良好。

2.6.6 稳定性试验 取晒干样品按照“2.6.2”项制备供试品溶液, 分别于制备后 0、2、4、6、8、12 h 按上述色谱条件进样测定, 记录色谱峰面积。结果鸟苷、次黄嘌呤、尿苷、肌苷、尿嘧啶、腺苷峰面积的 RSD 分别为 3.40%、4.80%、1.28%、3.90%、4.25%、4.20%, 表明供试品溶液在 12 h 内稳定。

2.6.7 重复性试验 精密称取晒干半夏粉末 2 g, 平行称定 6 份, 按照“2.6.2”项制备供试品溶液, 结果鸟苷、次黄嘌呤、尿苷、肌苷、尿嘧啶、腺苷质量分数的 RSD 分别为 1.44%、1.54%、0.97%、1.03%、2.50%、2.90%, 表明该方法重复性良好。

2.6.8 加样回收率试验^[14] 取已测定指标成分含量的晒干半夏药材粉末 6 份, 每份 0.5 g (《中国药典》2020 年版未规定半夏药材含量测定的取样量, 本项取样量经过大量半夏核苷类文献检索, 发现加样回收取样量在 0.1~2 g 不等, 然后依据已测定的晒干半夏药材含量计算得到, 若仍然称取 2 g, 为使加入的对照品成分质量与样品中待测成分含有量相当, 则加入溶剂的体积将超过 20 mL), 精密称定, 每份样品皆分别加入“2.6.3”项下制备的鸟苷、次黄嘌呤、尿苷、肌苷、尿嘧啶、腺苷的对照品溶液, 加入溶液体积依次为 2、2、8、3、4、0.5 mL, 使加入的对照品成分质量与样品中待测成分含有量相当, 按照“2.6.2”项制备供试品溶液, 按上述色谱条件测定, 记录色谱峰面积, 计算加样回收率, 结果鸟苷、次黄嘌呤、尿苷、肌苷、尿嘧啶、腺苷的平均加样回收率分别为 104.25%、98.08%、101.00%、97.80%、98.00%、105.18%, RSD 分别为 1.87%、1.60%、2.37%、2.60%、1.67%、2.54%。

2.7 统计方法

采用 Excel 2010 和 SPSS 21.0 进行数据整理分析, 采用 GraphPad Prism5.0 软件作图。

3 结果与分析

3.1 不同干燥方法对半夏药材干燥特性影响

从干燥曲线 (图 2) 可知, 不同干燥方法下的半夏药材水分比随着干燥时间延长均呈指数下降。进一步对各干燥方法的干燥曲线进行指数函数拟合 (表 1), 结果表明阴干、晒干、40 $^{\circ}\text{C}$ 烘干、55 $^{\circ}\text{C}$ 烘干、70 $^{\circ}\text{C}$ 烘干各种干燥方法使半夏达到安全含水率 (10%) 分别需要用时为 143.90、75.56、46.27、21.90、14.66 h。

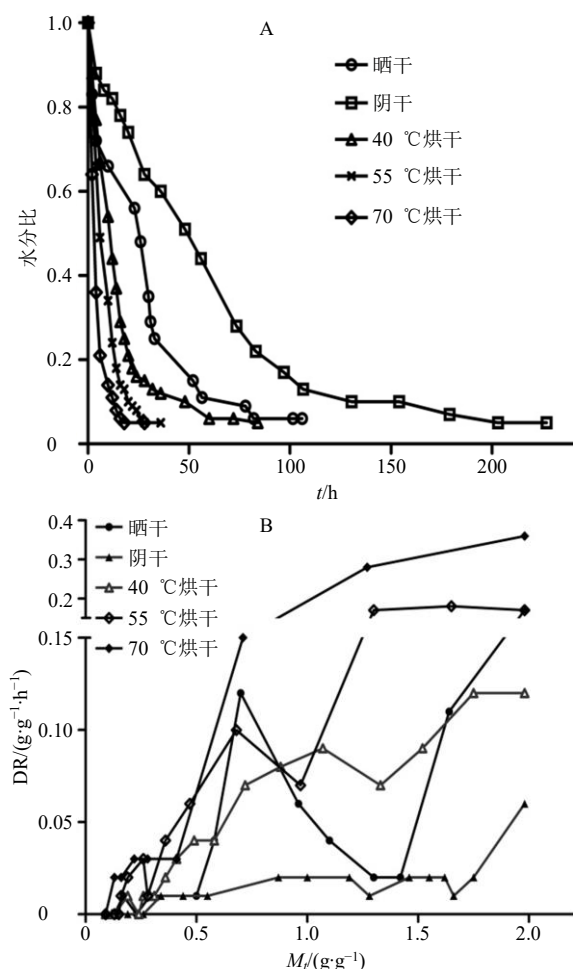


图 2 不同干燥方法下半夏药材的干燥曲线 (A) 与干燥速率曲线 (B)

Fig. 2 Drying curve (A) and drying rate curve (B) of *Pinelliae Rhizoma* under different drying methods

表 1 不同干燥方法下半夏药材的干燥曲线拟合公式

Table 1 Drying curve fitting formula of *Pinelliae Rhizoma* under different drying methods

干燥方法	干燥曲线拟合公式	R^2	安全含水率 (10%) 所需时间/h
晒干	$M_t = 0.8064 e^{-0.027t}$	0.9743	75.56
阴干	$M_t = 0.9736 e^{-0.016t}$	0.9758	143.90
40 °C 烘干	$M_t = 0.6633 e^{-0.041t}$	0.9886	46.27
55 °C 烘干	$M_t = 0.8375 e^{-0.097t}$	0.9927	21.90
70 °C 烘干	$M_t = 0.5632 e^{-0.117t}$	0.9677	14.66

半夏药材传统干燥方式为晒干，阴干相较于晒干干燥时间延长了 47.5%，40、55、70 °C 烘干相较于晒干分别缩短 38.8%、71.0%、80.6%。晒干过程中，半夏药材干燥速度的下降速率较为平缓，其干燥曲线及干燥速率曲线波动较其他 4 种干燥方式稍大，可能是受日光照射时间和昼夜温差的影响；阴

干处理过程中，半夏药材干燥速度呈持续下降趋势，但下降趋势非常平缓，其在干燥阶段需经过一个较长的恒速期，仅在其预热期（表面水分蒸发期）干燥速率较快；40 °C 烘干过程中，半夏药材失水速度及干燥过程变化差异较前者表现的十分明显，干燥速度在 0~25 h 下降幅度较大，25~72 h 下降较为平缓直至趋于平稳，干燥速率曲线表明整个干燥过程主要表现为降速期， M_t 从 1.98 g/g 降到 1.75 g/g 的过程中是一段恒速期，在 1.75~1.33 g/g 过程中干燥速率急剧下降后从 1.33~1.07 g/g 这一段过程中表现为升速期；55 °C 烘干干燥过程中，半夏药材失水速度较 40 °C 烘干处理更加剧烈，其整个干燥过程都呈大幅度快速下降趋势，仅在 18 h 之后相较于 0~18 h 稍缓直至趋于平稳，干燥速率曲线表明，该干燥过程呈现 2 段升速期， M_t 从 1.98~1.65 g/g 的过程中是一段升速期，从 1.65~0.97 g/g 过程中 DR 值由缓慢下降然后急剧下降后在 0.97~0.70 g/g 这一段过程中表现为升速期，之后呈现大幅度快速下降趋势；70 °C 烘干半夏药材失水速度最为剧烈，干燥速度在 0~6 h 大幅度快速下降，6 h 之后下降速度稍缓直至趋于平稳，干燥速率曲线表明，70 °C 烘干半夏药材的干燥阶段主要表现为降速期，仅在干燥过程即将结束时有较短恒速期，且降速阶段 DR 下降非常明显（图 2）。

3.2 不同干燥方法对半夏药材外观性状的影响

新鲜半夏脱皮后表面呈白色，但干燥后半夏块茎会发生不同程度的褐变和角质状，颜色变为黄褐色或者灰褐色。晒干半夏表面黄白色，质坚实，断面洁白，富粉性，与药典描述最为接近。阴干半夏因干燥时间长，药材表面变为黑褐色，切面淀粉呈絮状，粉性不足，品相较差。40、55、70 °C 烘干处理半夏表面黄棕色，质坚实，断面洁白，但表皮均出现不同程度的角质化。

用色差仪测定不同干燥方法下干燥后半夏药材表皮，切面的色差值，发现不同干燥方法均导致干燥后半夏药材表皮色泽度不同程度的降低，其中阴干条件下所得干制品的 L^* 值最低，说明该条件导致物料的表皮色泽最暗；晒干条件下所得干制品的 a^* 最高， b^* 值偏低， ΔE 值最小，且切面 L^* 最高，说明晒干条件下的色泽亮，颜色为黄白色；3 种烘干处理中 55 °C 下 L^* 最高， ΔE 值较小， a^* 较高， b^* 最高，且断面 L^* 最高，说明在这 3 种烘干干燥温度中 55 °C 下的性状略好（表 2）。

表 2 不同干燥方法下干燥后半夏药材表皮及切面颜色比较

Table 2 Comparison of epidermal and cross-sectional color of *Pinelliae Rhizoma* under different drying methods

干燥方法	表皮				切面			
	L^*	a^*	b^*	ΔE	L^*	a^*	b^*	ΔE
鲜样	85.25±1.64 ^a	0.36±0.67 ^c	9.68±1.96 ^d	0.00 ^d	86.64±0.93 ^c	-0.10±0.33 ^c	8.88±1.50 ^a	0.00 ^d
晒干	67.34±6.74 ^c	14.04±1.19 ^a	32.10±2.95 ^b	29.67±4.80 ^b	92.02±2.21 ^a	-0.05±0.33 ^c	6.00±0.69 ^c	7.02±2.22 ^a
阴干	60.13±3.35 ^d	10.89±1.73 ^b	29.48±5.17 ^c	36.57±2.15 ^a	82.62±1.13 ^d	1.73±0.14 ^a	7.54±0.07 ^{ab}	3.98±0.88 ^{bc}
40℃烘干	64.96±4.62 ^c	13.24±0.66 ^a	35.43±4.11 ^a	35.68±2.20 ^a	87.96±1.72 ^{bc}	1.07±0.56 ^b	6.49±0.28 ^{bc}	3.79±1.07 ^{bc}
55℃烘干	71.13±4.40 ^b	13.16±2.67 ^a	38.74±3.44 ^a	34.97±4.53 ^a	90.32±2.24 ^{ab}	0.02±0.15 ^c	5.56±0.25 ^c	5.95±1.62 ^{ab}
70℃烘干	70.51±4.71 ^b	12.74±1.57 ^a	37.67±2.93 ^a	34.37±2.32 ^a	86.01±1.89 ^{cd}	1.33±0.26 ^{ab}	7.53±0.14 ^{ab}	2.56±0.45 ^c

显著性差异法 (LSD) 多重比较分析, 同列数值后不同字母 a~d 表示不同处理间差异达到 5% 显著水平, 所有测量指标均同列进行比较, 均值最大处理记为 a, 与记为 a 的处理组有显著差异者记为 b, 与记为 b 的处理组有显著差异者记为 c, 以此类推; ab 则表示此处理组与记为 a、b 的处理组相较均无显著差异, bc、cd 同理; 下表同

The difference significance test is the LSD method (LSD) multiple comparative analysis, after the same column value, different letters a to d indicate that the difference between different treatments reaches a significant level of 5%, values followed by the same alphabet in the same column are not significantly different. All measurement indicators are compared in the same column. In each column of letters, the treatment with the maximum mean value is denoted as a, b refers to the group that is significantly different from a, and so on; ab indicates that this treatment group has no significant difference compared with the treatment groups marked as a and b, and the same is true for bc and cd. Same as below tables

用 SEM 对不同干燥方法干燥后半夏药材样品横断面的微观结构进行观察分析可见, 晒干处理半夏药材样品断面孔洞直径较小, 较少, 结构紧实; 阴干处理样品断面空洞直径大小中等, 较晒干稍大且多; 3 种烘干处理较晒干, 阴干处理空洞均较大较多, 其中 70℃烘干处理相对 40℃与 55℃烘干

处理半夏样品孔隙要少 (图 3)。

3.3 不同干燥方法对半夏药材折干率、灰分、浸出物、密度、复水比的影响

不同干燥方法对干燥半夏药材的折干率和灰分含量影响不大, 比较而言 55℃烘干折干率略高, 40℃烘干折干率略小, 阴干灰分含量较低。阴干浸

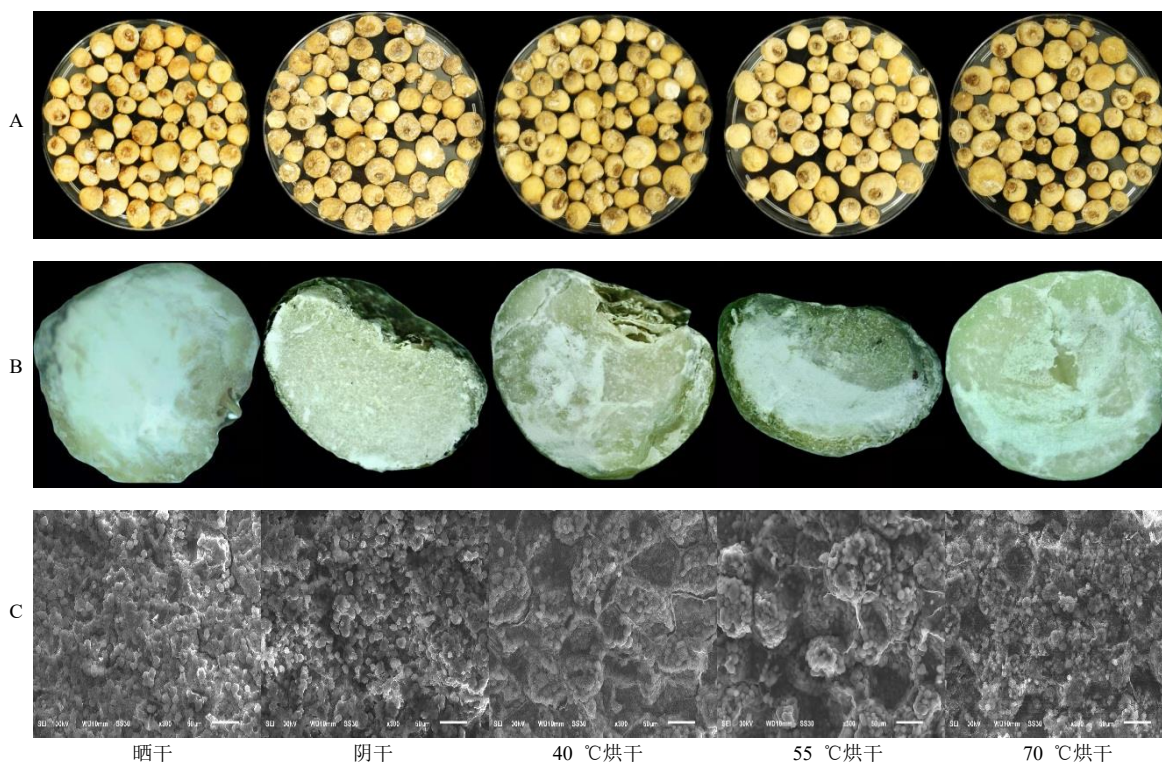


图 3 不同干燥方法下半夏药材表皮 (A)、切面 (B)、SEM (C) 图片

Fig. 3 Surface (A), cross section (B), and SEM (C) images of *Pinelliae Rhizoma* with different drying methods

出物最高,晒干与 40 °C 烘干次之,70 °C 烘干最低,表明烘干温度对半夏药材浸出物含量也影响较大,烘干温度越高,半夏药材可溶性浸出物含量越低。晒干、阴干、40 °C 烘干 3 处理干燥后半夏药材密度差异不大,55 °C 烘干、70 °C 烘干干燥后半夏药材密度随干燥温度的升高较前 3 处理大幅降低,表明烘干温度对半夏药材密度影响较大。

5 种干燥方法下阴干处理复水比最低,晒干次之,40、55、70 °C 烘干处理复水比较高,进一步表明烘干处理半夏药材容易形成疏松多孔的结构,从而利于水分吸收(表 3)。

3.4 不同干燥方法对半夏药材淀粉含量的影响

晒干半夏药材直链淀粉含量最高,阴干处理含

量最低(表 4)。70 °C 烘干半夏药材支链淀粉含量最高,40 °C 次之,阴干后的含量最低。支链淀粉含量/直链淀粉含量的比值是 70 °C 条件下最大,为 2.29,晒干条件下最小为 1.74。直链淀粉含量高的淀粉内部结构较紧密,比直链淀粉含量低的淀粉糊化困难,而支链淀粉含量越多粘度越高,则粉性不足,与其外观性状结果一致。

3.5 不同干燥方法对半夏药材核苷类成分含量的影响

半夏药材鸟苷成分含量是阴干最高(表 5),其次是 55 °C 烘干,晒干和 40 °C 烘干较低,70 °C 烘干最低,较阴干下降 71.4%;次黄嘌呤成分含量是 40 °C 烘干最高,阴干其次,70 °C 烘干最低,较

表 3 不同干燥方法对半夏药材折干率、灰分、浸出物、密度、复水比的影响 ($n=3$)

Table 3 Effects of different drying methods on the drying rate, density, extract, ash content and rehydration ratio of *Pinelliae Rhizoma* ($n=3$)

处理	折干率/%	灰分/%	浸出物/%	密度/(g·cm ⁻³)	复水比
晒干	37.78±0.00 ^a	3.05±0.23 ^a	16.89±0.32 ^b	1.34±0.01 ^a	1.55±0.05 ^{ab}
阴干	38.15±0.64 ^a	3.43±0.42 ^a	18.29±0.61 ^a	1.33±0.01 ^a	1.42±0.02 ^b
40 °C 烘干	37.41±0.64 ^a	3.40±0.35 ^a	16.86±0.24 ^b	1.33±0.01 ^a	1.67±0.15 ^a
55 °C 烘干	38.52±0.64 ^a	3.37±0.87 ^a	14.33±0.09 ^c	1.23±0.02 ^b	1.70±0.07 ^a
70 °C 烘干	37.78±0.00 ^a	3.48±0.65 ^a	13.79±0.19 ^c	1.16±0.03 ^c	1.65±0.07 ^a

表 4 不同干燥方法对半夏药材淀粉含量及支链/直链淀粉占比的影响 ($n=3$)

Table 4 Effects of different drying methods on starch contents and amylose/branched amylose ratio of *Pinelliae Rhizoma* ($n=3$)

干燥方法	直链淀粉/%	支链淀粉/%	支链/直链淀粉比值
晒干	33.78±0.94 ^a	58.85±2.67 ^{bc}	1.74
阴干	29.30±3.85 ^b	52.96±5.95 ^c	1.81
40 °C 烘干	33.10±0.58 ^{ab}	64.20±0.70 ^{ab}	1.94
55 °C 烘干	31.14±1.96 ^{ab}	57.89±4.66 ^{bc}	1.86
70 °C 烘干	29.98±0.49 ^{ab}	68.59±2.29 ^a	2.29

40 °C 烘干下降 72.7%;尿苷成分 70 °C 烘干含量最高,其他 4 种处理含量差异不大,较 70 °C 烘干下降 36.8%~47.4%;肌苷成分含量是 55 °C 烘干含量最高,阴干其次,70 °C 烘干最低,较 55 °C 烘干下降 76.9%;尿嘧啶成分含量是 70 °C 烘干含量最高,晒干其次,40 与 55 °C 烘干含量最低,较 70 °C 烘干下降 72.0%;腺苷成分含量是 70 °C 烘干含量最高,55 °C 烘干其次,其他 3 种处理最低,较 70 °C 烘干下降 83.3%。

综上所述,半夏中鸟苷、肌苷、次黄嘌呤成分含量随着温度的升高呈先增加后降低的趋势,半夏

表 5 不同干燥方法对半夏核苷类成分含量的影响 ($n=3$)

Table 5 Effects of different drying methods on content of nucleosides in *Pinelliae Rhizoma* ($n=3$)

干燥方法	质量分数/(mg·g ⁻¹)					
	鸟苷	次黄嘌呤	尿苷	肌苷	尿嘧啶	腺苷
晒干	0.05±0.00 ^a	0.09±0.01 ^{ab}	0.24±0.01 ^b	0.11±0.00 ^b	0.11±0.00 ^b	0.01±0.00 ^c
阴干	0.07±0.01 ^a	0.10±0.01 ^{ab}	0.20±0.02 ^c	0.12±0.01 ^{ab}	0.10±0.01 ^b	0.01±0.00 ^c
40 °C 烘干	0.05±0.01 ^a	0.11±0.02 ^a	0.22±0.02 ^{bc}	0.11±0.01 ^{ab}	0.07±0.00 ^c	0.01±0.00 ^c
55 °C 烘干	0.06±0.01 ^a	0.08±0.02 ^b	0.23±0.00 ^{bc}	0.13±0.01 ^a	0.07±0.02 ^c	0.02±0.00 ^b
70 °C 烘干	0.02±0.00 ^b	0.03±0.01 ^c	0.38±0.02 ^a	0.03±0.00 ^c	0.25±0.01 ^a	0.06±0.01 ^a

中尿苷, 尿嘧啶和腺苷成分含量随着温度的升高整体呈先降低后增加的趋势。

4 讨论

中药材产地干燥加工不仅是一种方便药材运输和储藏的有效手段, 更是一种赋予药材以特殊药性及品质的过程^[15]。中药材新鲜块茎脱水干燥分为外控干燥阶段(排除块茎表面的自由水分为主)和内控干燥阶段(排除块茎内部结合水和毛细管水)2 部分。本研究中半夏传统晒干干燥工艺, 白天阳光曝晒, 环境温度逐步升高, 促进了半夏块茎外控干燥脱水, 干燥速率上升, 水分比下降较快; 傍晚后太阳下山, 环境温度逐步下降, 外控干燥脱水减弱, 干燥速率下降, 水分比下降变慢; 且夜间由于半夏块茎表皮和内部出现水分含量梯度(白天表皮自由水分散失), 促进了块茎内部结合水和毛细管水向表皮迁移, 此时以内控干燥脱水为主, 块茎表皮出现回潮; 如此昼夜交替, 形成了半夏块茎外控干燥阶段和内控干燥阶段主导作用交替, 故其干燥曲线和干燥速率出现波动; 这也促进半夏块茎外控、内控干燥脱水平衡, 因而其内部结构紧密、均匀, 密度大, 复水比小。半夏阴干处理由于环境温度较低且稳定, 其干燥速率较低, 水分比下降较慢, 脱水时间长, 且其外控干燥脱水和内控干燥脱水趋于平衡, 故其干燥曲线和干燥速率比较平缓, 波动非常小, 这也促进内部结构更紧密, 密度大, 复水比更小。不同温度鼓风烘干处理, 由于外界环境温度高和鼓风排湿, 促进了半夏块茎整个脱水干燥过程是外控干燥脱水占主导, 故其干燥速率快、水分比下降快, 且波动较小; 但外控、内控干燥脱水的不平衡, 急速脱水导致了内部结构出现空隙、开裂, 甚至空心, 密度减小, 故复水比增大。邱婷等^[16]发现在半夏药材干燥过程有一个速率急剧降低后又升高的情况, 和本研究半夏干燥速率相似, 可能跟半夏干燥过程中外壳硬化后, 水分溢出困难有关。

严茂伟等^[17]研究发现半夏在干燥过程中会酶促褐变导致表面变褐色, 容易干燥不当产生“僵子”, 与优质半夏“色白, 粉圆”有差异, 影响了半夏的品质与药理活性。淀粉在过量水存在的条件下加热时, 结构会经历一个由有序向无序变化的相变, 即淀粉的糊化过程, 糊化温度范围随淀粉不同而不同^[18]。本研究 70 °C 烘干后半夏药材角质化严重, 可能是半夏药材高温烘干过程中, 淀粉糊化导致其角质化严重, 粉性不足。中药材在加工过程中的褐

变现象比较普遍, 导致半夏干燥过程发生褐变的机制并不单一, 酶促反应与羰氨反应在半夏药材干燥过程中都会发生, 新鲜半夏中含有葡萄糖与 17 种氨基酸, 易发生羰氨反应^[17], 导致其干燥过程中褐化严重。本研究半夏药材阴干干燥时间较长, 40 °C 其次, 半夏药材酶促反应与羰氨反应时间较长, 则褐化严重。晒干与 55 °C 烘干处理温度适中, 干燥时间较短, 半夏药材外观性状较好。

不同干燥方法半夏药材直链淀粉含量晒干与阴干干燥有显著差异, 直链淀粉含量高有利于防止破裂保持淀粉粒的完整性, 使淀粉有较强的抗剪切稀化能力^[19]。直链淀粉与支链淀粉的比例已被公认为是淀粉物化性质与功能特性的重要决定因素, 大量研究认为直链淀粉含量直接影响谷物在烹煮等加工过程中的吸水膨胀, 受热糊化以及成品品质, 并将直链淀粉含量作为预测淀粉加工性质, 淀粉质食品品质的重要指标。研究发现木薯原淀粉中支链淀粉与直链淀粉的比例高达 4:1, 所以黏性强, 吸水性强, 糊化之后呈现出透明的块状^[20]。本研究中, 70 °C 干燥的半夏支链淀粉与直链淀粉的比值较高达到 2.29, 说明高温烘烤会导致半夏淀粉糊化, 从而出现与木薯淀粉相似的透明的块状, 导致干燥后半夏药材粉性降低, 并导致半夏药材可溶性浸出物含量降低。

杨书婷等^[21]对不同温度干燥的珍珠贝软体进行核苷类成分含量测定, 发现珍珠贝样品尿苷成分在 70 °C 烘干含量最高, 而鸟苷和肌苷成分含量分别在 30 °C 与 70 °C 烘干含量最高; 次黄嘌呤和尿嘧啶成分在 40 °C 和 50 °C 烘干含量最高。本研究半夏药材尿苷成分含量与次黄嘌呤成分最低含量与上述文献结果一致, 尿苷在 70 °C 烘干含量最高, 次黄嘌呤成分在 70 °C 烘干含量最低。尿嘧啶和腺苷成分则是在 70 °C 烘干含量最高; 高温对半夏药材鸟苷和肌苷成分含量影响较大, 本研究与上述文献结果相反, 在 70 °C 烘干二者含量最低。

中药材产地初加工干燥方法的形成和选择常常是基于临近产地、操作简单、技术要求低、投入较少等原则^[6], 本研究比较了生产上使用较为普遍的传统阴干, 晒干, 烘干方法, 综合评价结果表明半夏药材最宜采用晒干处理的干燥方法。半夏生产上如受限场地和天气因素, 则可模拟晒干干燥原理进行半夏仿日晒干燥技术研发。一是采用日光温室结合鼓风排湿设施, 进行半夏立体多层干燥, 提高场

地空间利用效率和晒干效率,并减少晾晒过程中降雨天气影响;二是采用粮食和食品的干燥设备,进行低温(不高于 55℃)鼓风烘烤和间歇回潮相结合方式,优化相关参数,进行半夏药材仿日晒烘干。

利益冲突 所有作者均声明不存在利益冲突

参考文献

- [1] 魏·吴普等述. 清·孙星衍, 孙冯翼撰. 戴铭, 黄梓健, 余知影, 等点校. 神农本草经 [M]. 南宁: 广西科学技术出版社, 2016: 121.
- [2] 左军, 牟景光, 胡晓阳. 半夏化学成分及现代药理作用研究进展 [J]. 辽宁中医药大学学报, 2019, 21(9): 26-29.
- [3] 肖锐钰, 雷林, 陶彩霞, 等. 基于多指标的半夏产地加工去皮前加工工艺研究 [J]. 中草药, 2021, 52(8): 2421-2426.
- [4] 陈仁山, 蒋淼, 陈思敏, 等. 药物出产辨(三) [J]. 中药与临床, 2010, 1(3): 62-64.
- [5] 中国医学院科学院药物研究所. 中药志 [M]. 第一册. 北京: 人民卫生出版社, 1959: 118.
- [6] 刘勇, 徐娜, 陈骏飞, 等. 不同干燥方法对三七药材外观性状与内在结构及其品质的影响 [J]. 中草药, 2019, 50(23): 5714-5723.
- [7] 杨雅雯, 刘勇, 刘雨, 等. 不同干燥方法对射干药材干燥特性、外观性状和有效成分的影响 [J]. 中国中药杂志, 2021, 46(2): 366-373.
- [8] 杨小艳, 李敏, 卢道会, 等. 不同干燥方法对半夏质量的影响 [J]. 成都中医药大学学报, 2013, 36(3): 18-20.
- [9] 陈倩, 陈科力, 杨旻, 等. 半夏产地加工方法对甾醇类成分的影响 [J]. 中药材, 2010, 33(11): 1701-1703.
- [10] 郑霞, 肖红伟, 王丽红, 等. 红外联合气体射流冲击方法缩短哈密瓜片的干燥时间 [J]. 农业工程学报, 2014, 30(1): 262-269.
- [11] 钱婧雅, 张茜, 王军, 等. 三种干燥技术对红枣脆片干燥特性和品质的影响 [J]. 农业工程学报, 2016, 32(17): 259-265.
- [12] 李晓娟, 李柱刚, 王珣, 等. 双波长法测定南瓜中直链与支链淀粉含量 [J]. 食品工业科技, 2018, 39(8): 232-235.
- [13] 李坤, 李明花, 秦文杰, 等. 基于高效液相指纹图谱及聚类分析对不同产地半夏质量评价研究 [J]. 中南药学, 2018, 16(12): 1750-1754.
- [14] 杨冰月, 敬勇, 赖月月, 等. HPLC 法同时测定半夏中 5 个代表性成分的含量 [J]. 药物分析杂志, 2019, 39(11): 1992-1997.
- [15] 张黄琴, 刘培, 钱大玮, 等. 基于多元功效成分的瓜蒌皮药材产地现代干燥加工方法研究 [J]. 中草药, 2020, 51(4): 950-964.
- [16] 邱婷, 余春生, 李金平, 等. 息半夏干燥热力学模型建立及影响因素分析 [J]. 中国野生植物资源, 2020, 39(8): 38-41.
- [17] 严茂伟, 万军, 楚亮, 等. 半夏干燥过程中褐变机制的研究 [J]. 中草药, 2011, 42(5): 877-880.
- [18] (美)J. N. 贝米勒, (美)惠斯特勒主编. 岳国军, 赫小明等译. 3 版. 淀粉化学与技术 [M]. 北京: 化学工业出版社, 2012: 461.
- [19] 周红英, 王建华, 隋鹏, 等. 半夏淀粉的理化特性 [J]. 应用化学, 2010, 27(1): 117-121.
- [20] 丘春平, 李义辉, 谢彩峰, 等. 木薯粉丝的研制及工艺优化 [J]. 中国食品添加剂, 2016(9): 156-163.
- [21] 杨书婷, 吴皓, 刘睿, 等. 干燥温度对珍珠贝软体中核苷影响 [J]. 时珍国医国药, 2019, 30(5): 1207-1210.

[责任编辑 郑礼胜]