

基于多指标综合加权法的细毡毛忍冬花蕾加工工艺研究

李旭东^{1,2}, 吴宇^{1#}, 彭芳¹, 毛常清¹, 陶珊¹, 张达³, 李生翠¹, 赵豆豆¹, 何欢¹, 米亚东⁴, 李羿^{2*}, 张超^{1*}

1. 四川省农业科学院经济作物育种栽培研究所, 四川 成都 610300

2. 成都医学院, 四川 成都 610500

3. 南江县金银花产业发展中心, 四川 巴中 636600

4. 巴中市绿色农业创新发展研究院, 四川 巴中 636600

摘要: **目的** 探讨加工工艺对细毡毛忍冬 *Lonicera similis* 花蕾品质的影响。**方法** 对细毡毛忍冬花蕾的杀青时间、烘干温度和干燥方式设置 15 种不同处理方式, 测定其粉末色度, 钙、镁、磷、钾、铁、锌、硼、锰、镍和钼 10 种营养元素含量, 砷、镉、铜、铅和汞 5 种重金属元素含量和绿原酸、异绿原酸 A、异绿原酸 B、异绿原酸 C、木犀草苷、芦丁和马钱苷 7 种主要化学成分含量; 采用加权评分法进行多指标综合评价。**结果** 不同加工方法药材色泽差异大, 其中不杀青直接 40 ℃ 烘干和直接冷冻干燥 2 种方法色泽较佳, 药材呈绿色, 褐变指数分别为 39.70%、40.00%; 7 个主要化学成分总量最高 (144.70 mg/g) 的加工方式是杀青 10 min、80 ℃ 烘干, 最低 (48.10 mg/g) 的加工方式是不杀青、60 ℃ 烘干; 综合加权评分排在前三位的分别为杀青 10 min、40 ℃ 烘干, 杀青 10 min、80 ℃ 烘干, 杀青 10 min、60 ℃ 烘干; 加工因素对褐变指数的影响顺序为烘干温度 > 干燥方式 > 杀青时间, 对元素含量的影响顺序为烘干温度 > 杀青时间 > 干燥方式, 对主要化学成分的影响顺序为杀青时间 > 烘干温度 > 干燥方式。**结论** 烘干温度对细毡毛忍冬花蕾的褐变程度和元素含量有显著影响, 杀青时间对其有效成分含量有显著影响。细毡毛忍冬花蕾最适宜的产地加工方法为杀青 10 min、40 ℃ 烘干。

关键词: 细毡毛忍冬; 花蕾; 干燥加工; 多指标综合加权评分法; 褐变指数; 营养元素; 重金属; 杀青; 烘干; 色度

中图分类号: R283.6 **文献标志码:** A **文章编号:** 0253-2670(2022)11-3496-09

DOI: 10.7501/j.issn.0253-2670.2022.11.028

Study on processing technology of *Lonicera similis* floral bud by multi-index comprehensive weighting method

LI Xu-dong^{1, 2}, WU Yu¹, PENG Fang¹, MAO Chang-qing¹, TAO Shan¹, ZHANG Da³, LI Sheng-cui¹, ZHAO Dou-dou¹, HE Huan¹, MI Ya-dong⁴, LI Yi², ZHANG Chao¹

1. Industrial Crop Research Institute, Sichuan Academy of Agricultural Sciences, Chengdu 610300, China

2. Chengdu Medical College, Chengdu 610500, China

3. Nanjiang Honeysuckle Industry Development Center, Bazhong 636600, China

4. Bazhong Green Agriculture Innovation and Development Research Institute, Bazhong 636600, China

Abstract: **Objective** To investigate effects of different processing methods on the floral buds' quality of *Lonicera similis*. **Methods** The floral buds of *L. similis* were treated by 15 methods with different fixation times and drying methods. The powder chroma, contents of 10 nutrient elements including Ca, Mg, P, K, Fe, Zn, B, Mn and Mo, five heavy metal elements including As, Cd, Cu, Pb and Hg, and seven main chemical components including chlorogenic acid, isochlorogenic acid A, isochlorogenic acid B, isochlorogenic acid C, hibisin, rutin and loganin were determined. The multi-index comprehensive evaluation was carried out by weighted scoring method. **Results** Floral buds of *L. similis* processed by different methods showed significant differences in color. Those drying at 40 ℃

收稿日期: 2021-12-15

基金项目: 国家中药材产业技术体系 (CARS-21); 四川省农科院科技成果中试熟化与示范转化 (2021ZSSFKJ18)

作者简介: 李旭东 (1995—), 女, 硕士研究生, 研究方向为中药品种、品质与资源开发。E-mail: 1075651501@qq.com

*通信作者: 张超, 研究员, 硕士生导师, 研究方向为川产道地药材的育种栽培。Tel: (028)68907207 E-mail: jychoazhang@163.com

李羿, 博士, 教授, 硕士生导师, 研究方向为中药品种、品质与资源开发。Tel: 13688305707 E-mail: 543260747@qq.com

#共同第一作者: 吴宇 (1994—), 男, 学士, 研究方向为川产道地药材的育种栽培。E-mail: 8244445921@qq.com

without fixation or freeze-drying directly showed green color, and their browning index were 39.70% and 40.00%, respectively. Samples treated with 10 min fixation and 80 °C drying had the highest total content of the seven main chemical components (144.70 mg/g) while the ones dried directly at 60 °C had the lowest (48.10 mg/g). The top 3 comprehensive weighted scores were 10 min fixation and 40 °C drying, 10 min fixation and 80 °C drying, and 10 min fixation and 60 °C drying, respectively. The influence order of processing factors on browning index was drying temperature > drying mode > fixation time; the influence order on element content was drying temperature > fixation time > drying mode; And the influence order on chemical components was fixation time > drying temperature > drying mode. **Conclusion** The browning index and element content of *L. similis* were significantly affected by drying temperature, while the content of chemical components was significantly affected by fixation time. The most suitable processing method for *L. similis* was 10 min fixation and 40 °C drying.

Key words: *Lonicera similis* Hemsl.; floral bud; drying process; multi-index comprehensive weighting method; browning index; nutrient element; heavy metal element; fixation; drying; chroma

忍冬属植物细毡毛忍冬 *Lonicera similes* Hemsl. 的干燥花蕾是“川银花”主流品种之一,具有清热解毒、疏散风热的功效,主治痈肿疮疖、喉痹、丹毒、热毒血痢、风热感冒和温病发热^[1]。其主要活性成分包括挥发油、黄酮、环烯醚萜苷、三萜皂苷、有机酸、无机元素等^[2-5]。

细毡毛忍冬广泛分布于四川、云南、甘肃等地,在四川省南江县已实现规模化种植,常年种植面积超 67 km²,“南江金银花”已成为南江县特产。产地干燥加工是中药材品质形成的关键环节,适宜的加工方式有利于提高金银花黄酮类、有机酸类等成分的含量^[6-8]。目前,细毡毛忍冬花蕾的产地加工多为杀青后晒干和杀青 5 min、105 °C 高温烘干 2 种方法。晒干法的干燥周期较长,易受局部小气候等影响导致药材外观品质参差不齐;杀青 5 min、105 °C 高温烘干对细毡毛忍冬药材成分含量影响还未见研究报道。中药的产地加工是从中药材到中药饮片过程中的关键环节,将影响其饮片的性状特征与成分组成(含量),而饮片又决定了中药的安全性和有效性。因此,本实验对细毡毛忍冬花蕾样品进行不同加工处理,以药材颜色褐变指数、元素、内在成分作为评价指标,通过加权评分法综合分析,以期筛选出适宜的细毡毛忍冬花蕾产地加工工艺,为其规范化生产提供理论依据。

1 仪器与材料

1.1 仪器

CM-700D 型手持式分光测色计,柯尼卡美能达公司;岛津 NexION 2000 型电感耦合等离子体质谱仪(ICP-MS)、岛津 ICPE-9820 型电感耦合等离子体发射光谱仪(ICP-OES)、岛津 Nexera X2 型超高效液相色谱仪,日本岛津公司;T-214 型电子分析天平,绝对精度分度值 0.1 mg,北京赛多利斯仪器系

统有限公司;KQ-300DE 型数控超声波清洗器,昆山市超声仪器有限公司。GZX-9146MBE 型电热鼓风干燥箱,上海博讯实业有限公司医疗设备厂;EH45B 型电热板,莱伯泰科仪器股份有限公司。

1.2 材料

样品经四川省农业科学院经济作物研究所张超研究员鉴定为忍冬科忍冬属植物细毡毛忍冬 *L. similis* Hemsl. 的花蕾。于 2019 年 6 月,自四川省南江县庙坪村采集鲜样,随机均等分成 15 批,每批次 3 个重复进行分析。

1.3 试剂

钙(批号 203049-8)、镁(批号 206034-2)、磷(批号 205016-1)、钾(批号 204031-5)、铁(批号 206021-2)、锌(批号 202009-2)、硼(批号 203002-1)、锰(批号 203024-1)、镍(批号 202018-1)、钼(批号 203031-1)、砷(批号 203007-1)、镉(批号 204046-6)、铜(批号 202005-7)、铅(批号 203033-6)、汞(批号 202010-7)元素标准品,标准值均为 1000 µg/mL,购自国家有色金属及电子材料分析测试中心;对照品绿原酸(批号 MUST-19030620,质量分数 99.39%)、异绿原酸 A(批号 MUST-19032601,质量分数 98.82%)、异绿原酸 B(批号 MUST-19031602,质量分数 99.05%)、异绿原酸 C(批号 MUST-19031603,质量分数 99.84%)、木犀草苷(批号 MUST-19010201,质量分数 99.70%)、芦丁(批号 MUST-19010202,质量分数 98.00%),购自成都曼思特生物科技有限公司;对照品马钱苷(批号 19031406,质量分数 ≥ 98%),购自成都市卓普仪器有限公司;乙腈,色谱纯,赛默飞世尔科技(中国)有限公司;磷酸,分析纯,重庆川东化工集团有限公司;甲醇,分析纯,天津市津东天正精细化学试剂厂;氢氟酸,分析纯,广东光华科技股份有

限公司；过氧化氢，分析纯，成都市科隆化学品有限公司；硝酸，优级纯，成都金山化学试剂有限公司；水为超纯水，Smart-DUVF 超纯水机，上海和泰仪器有限公司。

2 方法

2.1 加工方法

将新鲜细毡毛忍冬花蕾除去杂质，随机均等分为 15 组，每组 3 个重复，每个重复 200 g，长 58 cm、宽 58 cm、高 4.5 cm 的网格托盘盛放，均匀铺开，进行不同的加工处理。15 种不同加工方式的处理办法见表 1，干燥后样品粉碎过 4 号筛，备用。

表 1 干燥加工处理组

Table 1 Dry processing groups

处理	处理过程	处理	处理过程
T1	杀青 3 min、40 °C 烘干	T9	杀青 10 min、80 °C 烘干
T2	杀青 3 min、60 °C 烘干	T10	不杀青、40 °C 烘干
T3	杀青 3 min、80 °C 烘干	T11	不杀青、60 °C 烘干
T4	杀青 5 min、40 °C 烘干	T12	不杀青、80 °C 烘干
T5	杀青 5 min、60 °C 烘干	T13	不杀青、-18 °C 冻干
T6	杀青 5 min、80 °C 烘干	T14	杀青 5 min、105 °C 烘干
T7	杀青 10 min、40 °C 烘干	CK	杀青 5 min、阴干
T8	杀青 10 min、60 °C 烘干		

2.2 药材色泽测定

采用测色计测定细毡毛忍冬花蕾样品粉末色度值，仪器校正后将各样品粉末分别压制于载玻片上，压制厚度约为 1 mm，测定色度值 [L^* 、 a^* 、 b^* ，其中 L^* 代表明暗度（黑白）， a^* 代表红绿色， b^* 代表黄蓝色]，平行 3 次，取平均值。花蕾褐变程度用褐变指数 (BI) 表示， $BI = 100(x - 0.31)/0.17$ ，式中 $x = (a^* + 1.75 L^*) / (5.645 L^* + a^* - 3.012 b^*)$ 。分析不同加工方法对细毡毛忍冬花蕾色泽的影响。

2.3 营养元素、重金属元素的测定

准确称取 0.5 g（需要精确至 0.1 mg）的 15 批干燥加工样品置于洁净的聚四氟乙烯坩埚，加少量超纯水润湿样品后，加 5 mL 浓硝酸漏斗覆盖过夜，去掉漏斗，加 3 mL 氢氟酸和 1 mL 双氧水，置于电热板上加热，设定程序：120 °C，5 min；150 °C，10 min；180 °C，30 min；140 °C，60 min，驱赶产生的白烟并蒸干至样品成黏稠状态，取下坩埚，半冷却后，加入 1 mL 硝酸，在温热状态下溶解可溶性残渣，冷却后用超纯水定容至 50 mL 塑料量瓶。采用 ICP-OES 对其中硼、锰、钼、镍、锌、铁、钙、

镁、磷和钾 10 种营养元素进行测定，并参照《中国药典》2020 年版对金银花重金属元素种类的规定，采用 ICP-MS 对药材的砷、镉、铜、铅和汞 5 种重金属元素进行测定，每批样品平行测定 3 次。

2.4 UPLC 法测定有效成分含量

UPLC 法测定细毡毛忍冬花蕾的有效成分含量参考田伟等^[9]建立的方法。

2.4.1 混合对照品溶液制备 精密称取绿原酸 19.20 mg、异绿原酸 A 11.00 mg、异绿原酸 C 6.50 mg 置于 5 mL 量瓶中，异绿原酸 B 6.39 mg、木犀草苷 7.00 mg 置于 25 mL 量瓶中、芦丁 12.00 mg、马钱苷 6.40 mg 置于 10 mL 量瓶中，分别加 70% 甲醇溶解并定容至刻度。将上述对照品储备液分别稀释成质量浓度依次为绿原酸 384.00 μg/mL、异绿原酸 A 220.00 μg/mL、异绿原酸 B 25.56 μg/mL、异绿原酸 C 130.00 μg/mL、木犀草苷 2.80 μg/mL、芦丁 60.00 μg/mL、马钱苷 6.40 μg/mL 的溶液。

2.4.2 供试品溶液制备 分别称取细毡毛忍冬花蕾样品粉末（过 4 号筛）0.5 g，精密称定，置于 100 mL 具塞锥形瓶中，精密加入 70% 甲醇溶液 25 mL，密塞，称定质量，超声处理（100 W、70 Hz）30 min，放冷至室温，称定质量，用 70% 甲醇溶液补足减失质量，摇匀，吸取上清液，用 0.22 μm 有机滤头滤过，滤液即得细毡毛忍冬药材供试品溶液。

2.4.3 色谱条件 色谱柱为岛津 Shim-pack GIST-HP C₁₈ 柱（100 mm×2.1 mm，3 μm）；流动相为 0.1% 磷酸水溶液-乙腈，洗脱梯度：0.01~5 min，5%~15% 乙腈；5~20 min，15%~25% 乙腈；20~24 min，25%~60% 乙腈；24~24.1 min，60%~5% 乙腈；24.1~30 min，5% 乙腈；检测波长 235、255、327、349 nm；体积流量 0.3 mL/min；柱温 30 °C；进样量：绿原酸进样量 0.2 μL，马钱苷、芦丁、木犀草苷、异绿原酸 A、B、C 进样量 1 μL。

2.5 多指标评价数据标准化

评价指标中包含正指标和逆指标，正指标是数值越大越好的指标，逆指标为数值越大越差的指标^[10]，基于中药材有效性和安全性，正指标确定为硼、锰、钼、镍、锌、铁、钙、镁、磷、钾元素、绿原酸、异绿原酸 A、异绿原酸 B、异绿原酸 C、木犀草苷、芦丁和马钱苷，逆指标包括褐变指数、砷、镉、铜、铅和汞元素。多指标综合评价，指标涉及范围广，需要统一各个指标间的度量标准。为综合不同含义的各种指标，对数据进行标准化处理，

正指标按照公式 $Y_{ij} = [X_{ij} - \min(X_{ij})] / [\max(X_{ij}) - \min(X_{ij})]$ 计算, 逆指标按照公式 $Y_{ij} = [\max(X_{ij}) - X_{ij}] / [\max(X_{ij}) - \min(X_{ij})]$ 计算。

2.6 数据分析

采用 Microsoft Excel 2019 对数据整理, 使用 SPSS 20 对数据进行单因素方差分析, SPSSAU 进行 AHP 层次分析权重确定, 运用加权评分法对各个指标进行多指标综合评价。15 种加工方式的加权评分计算公式为加权评分 = $Y_{B1}W_{B1} + (Y_{11}W_{C1} + \dots + Y_{10}W_{C10})W_{B2} + (Y_{11}W_{C11} + Y_{15}W_{C15})W_{B3} + (Y_{16}W_{C16} + \dots + Y_{22}W_{C22})W_{B4}$, 其中 Y_{B1} 为 B1 颜色褐变指标的标准化数据, $Y_1 \sim Y_{22}$ 为各个评分指标的标准化数据, W_{Bx} 和 W_{Cx} 为各个评分指标对应的权重值。

3 结果与分析

3.1 不同加工方法对细毡毛忍冬药材色泽的影响

由图 1 可知, T10 褐变程度最低、其次为 T13, 2 组处理呈现绿色, T14 褐变程度最高, 呈黄褐色, 其余处理呈不同程度的黄褐色。由表 2 可知, 是否杀青、杀青时长、烘干温度对药材色泽有显著影响。杀青 3 min、60 °C 烘干, 褐变程度较低; 杀青 5 min 及 10 min 时, 40 °C 烘干的褐变程度较低, 总体随着杀青时间的增加和烘干温度的上升, 褐变程度增高。杀青时间增加和烘干温度上升, 褐变程度增高的原因可能是杀青过程钝化酶活性, 酶促褐变减速^[12-13], 但高温烘干下氨基酸化合物, 如氨基酸、肽、蛋白质等和糖类发生美拉德反应加速非酶褐变反应的发

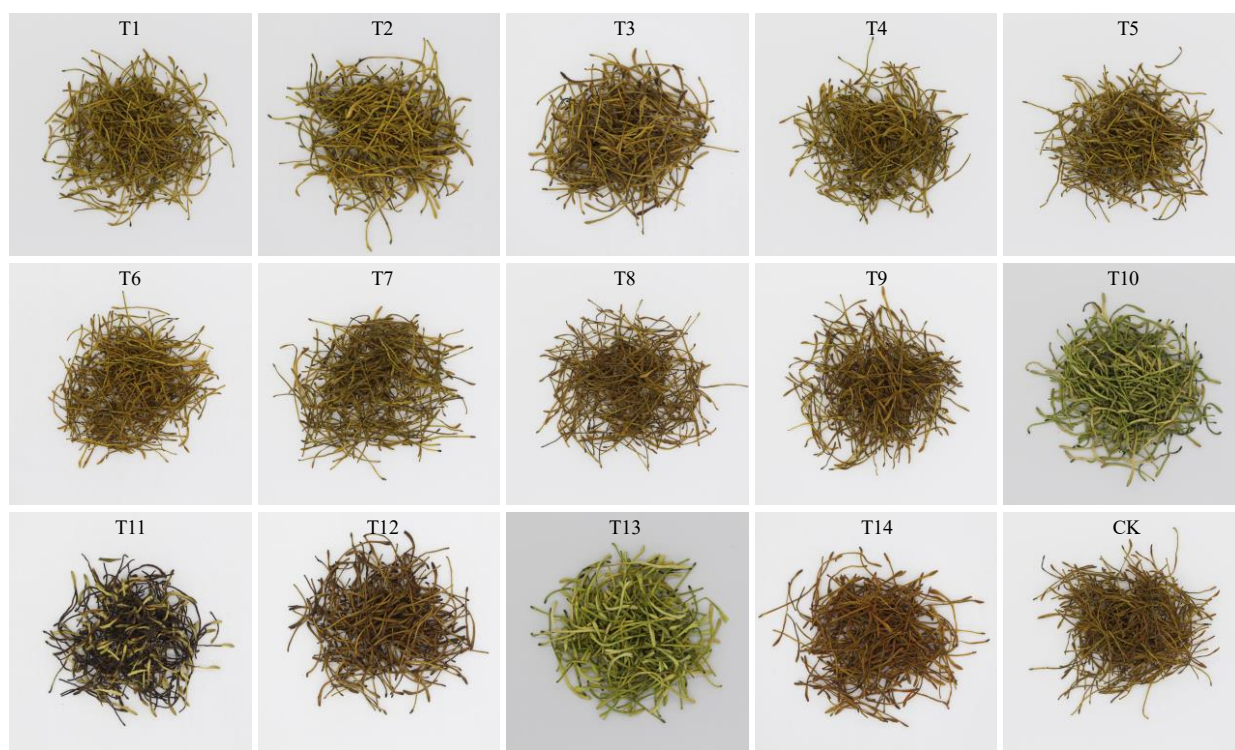


图 1 不同加工方式药材色泽

Fig. 1 Color of medicinal materials under different processing methods

表 2 不同加工方法药材粉末色度测定结果 ($\bar{x} \pm s, n = 3$)

Table 2 Chromaticity determination results of medicinal powders with different processing methods ($\bar{x} \pm s, n = 3$)

处理	L^*	a^*	b^*	褐变指数/%	处理	L^*	a^*	b^*	褐变指数/%	处理	L^*	a^*	b^*	褐变指数/%
T1	66.33	1.01	23.35	43.39 ± 0.81 ^{efg}	T6	68.07	1.20	24.89	45.61 ± 1.52 ^{cde}	T11	52.41	4.94	21.92	59.82 ± 2.43 ^b
T2	67.00	0.85	23.38	42.72 ± 2.60 ^{fg}	T7	67.02	0.76	23.03	41.85 ± 0.83 ^{gh}	T12	55.21	4.12	23.56	59.68 ± 0.53 ^b
T3	66.56	1.29	24.09	45.17 ± 1.26 ^{def}	T8	67.07	1.17	25.12	46.92 ± 1.05 ^{cd}	T13	70.01	-0.44	23.84	40.00 ± 2.78 ^h
T4	66.39	0.84	23.45	43.35 ± 0.82 ^{efg}	T9	67.56	1.31	24.69	45.71 ± 1.01 ^{cde}	T14	61.02	4.98	28.16	66.10 ± 2.28 ^a
T5	66.30	1.19	24.49	46.19 ± 1.99 ^{cd}	T10	67.90	0.58	22.43	39.70 ± 0.36 ^h	CK	64.31	1.64	24.23	47.90 ± 0.97 ^c

同列数据不同字母表示差异显著 ($P < 0.05$)

Different letters in the same column indicate significant difference ($P < 0.05$)

生, 导致颜色变化^[14]。同理, 未杀青组随着烘干温度的上升, 酶活性增强, 样品的颜色由绿色向黄褐色转变, 褐变程度增高^[15]。

3.2 不同加工方法对细毡毛忍冬药材营养元素及重金属元素的影响

将 15 批细毡毛忍冬样品以电热板消解后用 ICP-OES、ICP-MS 法对其中 10 种营养元素和 5 种重金属元素进行测定, 测定结果见表 3。细毡毛忍

冬花蕾经过不同干燥方法处理后, 营养元素、重金属元素的含量呈波动趋势。进一步说明在加工过程中是否杀青、杀青时间和烘干温度均能影响药材中无机元素的含量, 但变化规律尚不明确, 仍需进一步研究探明^[16-17]。

3.3 不同加工方法对有效成分含量的影响

不同加工方法细毡毛忍冬药材中 7 种有效成分含量见表 4, 细毡毛忍冬药材经过不同干燥方法处

表 3 样品中 15 种营养元素及重金属元素含量测定结果

Table 3 Determination results of 15 nutrient elements & heavy metal elements in sample

处理	质量分数/(mg·kg ⁻¹)														
	硼	锰	钼	镍	锌	铁	钙	镁	磷	钾	砷	镉	铜	铅	汞
T1	18.73	121.22	0.13	5.48	28.88	46.21	2 990.11	428.41	3 669.94	27 918.51	1.95	1.19	16.81	0.17	0.15
T2	19.30	125.49	0.12	5.54	25.59	42.06	2 627.60	448.83	3 425.24	27 635.06	2.06	1.24	16.86	0.14	0.28
T3	18.35	129.51	0.12	5.73	35.21	111.08	2 428.08	466.56	3 622.92	22 698.95	3.71	1.26	17.91	0.34	0.36
T4	18.19	118.11	0.11	5.09	34.29	65.00	2 212.86	883.80	3 191.07	30 116.24	2.17	1.22	17.03	0.24	0.43
T5	20.46	116.43	0.17	5.00	50.90	85.83	2 088.58	385.90	2 647.53	34 062.63	2.05	1.17	16.36	0.22	0.57
T6	18.43	121.87	0.24	5.10	32.16	81.96	2 865.18	909.53	2 776.43	33 308.25	2.23	1.22	17.59	0.25	0.55
T7	20.01	131.22	0.12	5.11	26.88	22.55	2 435.47	2 457.52	2 891.65	34 451.47	2.02	1.19	17.38	0.15	0.28
T8	19.84	123.11	0.13	5.24	27.19	31.28	2 611.74	1 752.70	2 766.65	32 431.35	2.06	1.15	17.10	0.13	0.45
T9	20.30	129.83	0.13	4.93	34.18	11.47	5 473.15	636.28	3 041.63	37 009.07	2.01	1.19	17.12	0.13	0.07
T10	21.34	126.64	0.15	5.26	29.64	12.98	8 279.30	1 040.18	3 065.73	28 957.51	1.96	1.22	17.96	0.13	0.13
T11	22.34	124.24	0.14	5.56	61.11	45.42	7 646.75	654.07	2 763.62	29 311.58	2.12	1.23	18.79	0.62	0.30
T12	22.37	123.66	0.11	5.70	65.48	107.84	4 938.99	453.61	2 735.78	24 022.90	2.01	1.20	18.27	0.45	0.71
T13	25.01	125.13	0.13	5.87	66.21	69.47	4 631.78	339.54	2 369.50	26 365.86	2.26	1.25	18.93	0.51	0.45
T14	21.55	125.83	0.15	6.14	61.76	83.59	7 535.81	386.51	2 709.91	28 232.35	1.93	1.21	18.94	0.50	0.55
CK	17.42	120.20	0.17	5.61	37.71	92.11	3 377.03	1 238.32	2 929.75	25 094.65	2.21	1.20	17.16	0.35	0.56

理后, 各有效成分的含量存在差异。杀青组对照未杀青组, 马钱苷含量升高, 芦丁含量降低; 随着杀青时间增长, 异绿原酸 B、异绿原酸 C 含量升高, 异绿原酸 A 含量降低; 随着烘干温度升高, 异绿原酸 B、异绿原酸 C 含量升高, 马钱苷、异绿原酸 A 含量降低; 杀青 10 min、80 °C 烘干的有效成分总量最高为 144.67 mg/g, 不杀青、60 °C 烘干的有效成分总量最低为 48.10 mg/g; 杀青并增长时间, 升高烘干温度有利于有效成分总量的积累。是否杀青、杀青时长、烘干温度等因素对金银花 7 种有效成分含量具有显著影响, 其中是否杀青为最主要的影响因素。

3.4 综合加权评分

3.4.1 权重确定 根据不同加工方法药材颜色褐变指数、元素含量、内在成分含量, 进行多指标综合

加权评价。参考《中国药典》2020 年版中金银花项目, 重金属元素含量和内在成分含量中绿原酸、木犀草苷、异绿原酸 A、异绿原酸 B、异绿原酸 C 作为重要参考指标, 并加入 10 种营养元素作为内在元素指标, 芦丁、马钱苷作为内在成分含量指标。

采用层次分析法中权重确定方法^[18-20], 将细毡毛忍冬药材各性状指标间的关系建立分层结构模型(图 2), 根据 1~9 比率标度法^[21], 通过各指标因素间的两两比较来构造判断矩阵^[22](表 5), 从而确定各指标的权重值(w)。并且 a- ($b_1 \sim b_4$)、b2- ($c_1 \sim c_{10}$)、b3- ($c_{11} \sim c_{15}$) 和 b4- ($c_{16} \sim c_{22}$) 的一致性比率(CR)分别为 0.092、0.000、0.000、0.001, CR 值均小于 0.1, 认为判断矩阵有着良好的一致性。最终得到颜色褐变指标 w 为 0.055 3、营养元素指标 w 为 0.118 8、重金属元素指标 w 为 0.229 2、内在成分

表 4 药材中 7 种有效成分含量 ($\bar{x} \pm s, n = 3$)

Table 4 Contents of seven effective ingredients in medicinal materials ($\bar{x} \pm s, n = 3$)

处理	质量分数/(mg·kg ⁻¹)						
	绿原酸	异绿原酸 A	异绿原酸 B	异绿原酸 C	木犀草苷	芦丁	马钱苷
T1	86.25±4.18 ^{ab}	33.71±1.50 ^{bc}	2.10±0.09 ^g	9.64±0.35 ^f	0.09±0.01 ^b	2.41±0.05 ^{bc}	0.74±0.32 ^{ab}
T2	90.13±2.40 ^{ab}	33.71±1.41 ^{bc}	2.49±0.20 ^f	11.52±0.99 ^e	0.09±0.02 ^b	2.51±0.02 ^{ab}	0.87±0.80 ^{ab}
T3	84.60±10.96 ^b	27.14±1.56 ^{ef}	3.28±0.42 ^d	14.97±1.65 ^d	0.07±0.01 ^c	2.44±0.09 ^{abc}	0.25±0.09 ^{cd}
T4	89.57±2.27 ^{ab}	32.85±0.88 ^c	2.80±0.06 ^{ef}	12.06±0.18 ^e	0.09±0.00 ^{bc}	2.48±0.02 ^{ab}	0.54±0.04 ^{abcd}
T5	90.41±0.67 ^{ab}	30.20±0.71 ^d	3.16±0.01 ^{de}	14.43±0.11 ^d	0.09±0.00 ^{bc}	2.46±0.02 ^{ab}	0.25±0.05 ^{cd}
T6	90.50±0.45 ^{ab}	28.12±0.95 ^{de}	3.53±0.21 ^d	16.30±0.91 ^c	0.09±0.01 ^{bc}	2.45±0.02 ^{ab}	0.20±0.06 ^{cd}
T7	88.76±0.75 ^{ab}	25.50±0.41 ^{fg}	4.49±0.06 ^c	17.09±0.46 ^c	0.10±0.00 ^b	2.38±0.03 ^{bc}	0.74±0.32 ^{ab}
T8	91.11±1.14 ^{ab}	24.36±0.38 ^g	4.91±0.07 ^b	20.42±0.10 ^b	0.09±0.00 ^{bc}	2.38±0.05 ^{bc}	0.20±0.01 ^{cd}
T9	91.90±0.68 ^a	23.62±0.26 ^g	5.18±0.18 ^b	21.30±0.64 ^b	0.08±0.01 ^{bc}	2.43±0.03 ^{abc}	0.19±0.03 ^{cd}
T10	85.01±1.37 ^{ab}	35.50±1.06 ^{ab}	1.94±0.07 ^g	9.18±0.27 ^f	0.09±0.01 ^{bc}	2.58±0.07 ^a	0.49±0.01 ^{bcd}
T11	29.82±4.19 ^c	12.74±3.14 ^h	0.78±0.14 ⁱ	3.23±0.65 ^h	0.03±0.02 ^e	1.34±0.20 ^e	0.17±0.03 ^{cd}
T12	38.39±1.70 ^d	12.73±0.87 ^h	0.84±0.04 ⁱ	4.16±0.45 ^h	0.04±0.00 ^{de}	1.65±0.05 ^d	0.20±0.03 ^{cd}
T13	75.03±4.24 ^c	36.27±0.78 ^a	1.33±0.03 ^h	5.61±0.16 ^g	0.11±0.00 ^a	2.50±0.05 ^{ab}	0.63±0.04 ^{abc}
T14	85.92±2.74 ^{ab}	14.85±0.89 ^h	6.08±0.79 ^a	25.61±0.64 ^a	0.05±0.01 ^d	2.28±0.05 ^c	0.08±0.06 ^d
CK	90.80±7.69 ^{ab}	33.39±3.02 ^{bc}	2.50±0.19 ^f	11.12±0.89 ^e	0.08±0.01 ^c	2.58±0.26 ^a	0.97±0.60 ^a

同列数据不同字母表示差异显著 ($P < 0.05$)

Different letters in the same column indicate significant difference ($P < 0.05$)

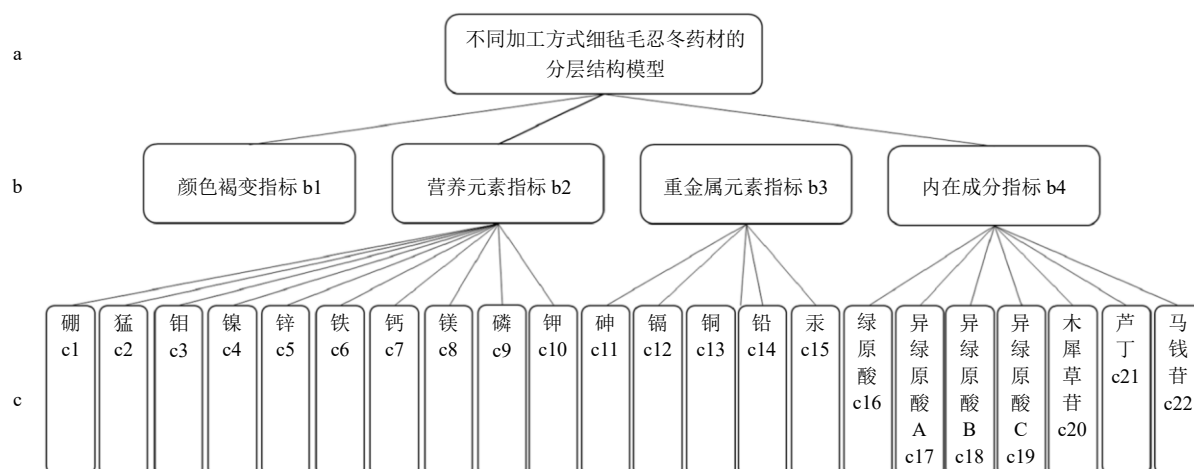


图 2 权重递阶层次结构图

Fig. 2 Weighted hierarchy structure diagram

指标 w 为 0.596 7、其中元素指标中硼、锰、钼、镍、锌、铁、钙、镁、磷、钾、砷、镉、铜、铅和汞的 w 分别为 0.071 4、0.071 4、0.071 4、0.071 4、0.071 4、0.071 4、0.142 9、0.142 9、0.142 9、0.142 9、0.200 0、0.200 0、0.200 0、0.200 0、0.200 0、内在成分指标中绿原酸、异绿原酸 A、异绿原酸 B、异绿原酸 C、木犀草苷、芦丁和马钱苷的 w 分别为 0.306 5、0.097 8、0.097 8、0.097 8、0.306 5、0.046 8、0.046 8。

3.4.2 加权评分 综合加权评分结果见表 6。根据

综合加权评分分析结果显示，排序前列干燥方式以杀青 10 min、40 °C 烘干得分最高，其次为杀青 10 min、80 °C 烘干和杀青 10 min、60 °C 烘干，说明这几种干燥方式在基于多指标综合评价细毡毛忍冬药材干燥方法筛选研究上有明显优势。T12（不杀青、80 °C 烘干）、T11（不杀青、60 °C 烘干）因外观色泽不佳、重金属含量偏高、内在成分含量偏低多重因素导致综合评分较低。未杀青、40 °C 烘干、冷冻干燥利于保持药材外观色泽，但未杀青组没有杀青

表 5 判断矩阵及 w 、最大特征值、CR 值

Table 5 Judgment matrix and weight, maximum eigenvalue, consistency ratio value

项目	判断矩阵										w	最大特征值	CR
a-(b1~b3)	b1	b2	b3	b4								4.244	0.092
b1	1	1/3	1/5	1/7							0.055 3		
b2	3	1	1/3	1/5							0.118 8		
b3	5	3	1	1/5							0.229 2		
b4	7	5	5	1							0.596 7		
b2-(c1~c10)	c1	c2	c3	c4	c5	c6	c7	c8	c9	c10		10.000	0.000
c1	1	1	1	1	1	1	1/2	1/2	1/2	1/2	0.071 4		
c2	1	1	1	1	1	1	1/2	1/2	1/2	1/2	0.071 4		
c3	1	1	1	1	1	1	1/2	1/2	1/2	1/2	0.071 4		
c4	1	1	1	1	1	1	1/2	1/2	1/2	1/2	0.071 4		
c5	1	1	1	1	1	1	1/2	1/2	1/2	1/2	0.071 4		
c6	1	1	1	1	1	1	1/2	1/2	1/2	1/2	0.071 4		
c7	2	2	2	2	2	2	1	1	1	1	0.142 9		
c8	2	2	2	2	2	2	1	1	1	1	0.142 9		
c9	2	2	2	2	2	2	1	1	1	1	0.142 9		
c10	2	2	2	2	2	2	1	1	1	1	0.142 9		
b3-(c11~c15)	c11	c12	c13	c14	c15							5.000	0.000
c11	1	1	1	1	1						0.200 0		
c12	1	1	1	1	1						0.200 0		
c13	1	1	1	1	1						0.200 0		
c14	1	1	1	1	1						0.200 0		
c15	1	1	1	1	1						0.200 0		
b4-(c16~c22)	c16	c17	c18	c19	c20	c21	c22					7.006	0.001
c16	1	3	3	3	1	7	7				0.306 5		
c17	1/3	1	1	1	1/3	2	2				0.097 8		
c18	1/3	1	1	1	1/3	2	2				0.097 8		
c19	1/3	1	1	1	1/3	2	2				0.097 8		
c20	1	3	3	3	1	7	7				0.306 5		
c21	1/7	1/2	1/2	1/2	1/7	1	1				0.046 8		
c22	1/7	1/2	1/2	1/2	1/7	1	1				0.046 8		

去酶，烘干温度增高时褐变程度较杀青组更剧烈，同时未杀青组有效成分总量较低，不推荐使用。杀青后阴干在成分和色泽方面表现较差，同时存在周期长、所需空间大等缺点不适宜在工业上使用。综上，为提升细毡毛忍冬药材的干燥效率，保障其品质，建议产地细毡毛忍冬药材干燥加工方法选择杀青 10 min、40 ℃烘干。

3.5 不同加工因素对指标含量的影响

将所有指标数据采用 min-max 标准化办法处理后，分为褐变指数、营养元素、重金属元素和有效

成分 4 类，并计算 4 类指标含量各自的总量。试验采用混合正交试验设计，设置杀青时间（A，3、5、10、0 min）、烘干温度（B，40、60、80、105、-18、25 ℃）、干燥方式（C，烘干、冻干、阴干）3 个因素，共 15 个处理，每个处理 3 次重复，具体试验设计如表 7 所示。得到不同加工方式对褐变指数、营养元素、重金属元素和有效成分含量混合正交实验结果分析，见表 8。

各因素对褐变指数的影响顺序为 B>C>A，对营养元素和重金属元素含量的影响顺序为 B>A>

表 6 综合加权评分结果

Table 6 Results of comprehensive weight score

处理	加权综合评分	排名	处理	加权综合评分	排名
T7	0.753	1	T6	0.652	9
T9	0.742	2	CK	0.640	10
T8	0.717	3	T13	0.600	11
T1	0.714	4	T3	0.542	12
T2	0.706	5	T14	0.503	13
T10	0.693	6	T12	0.213	14
T5	0.681	7	T11	0.159	15
T4	0.668	8			

C, 对 7 种有效成分含量的影响顺序为 A>B>C。结果表明, 烘干温度高低对细毡毛忍冬药材的褐变程度和 15 种元素含量具有显著影响, 杀青时间长短对其药材的 7 种有效成分含量有显著影响。

为保证药材品质, 以有效成分含量高、重金属元素含量低, 褐变程度低为宜, 因此, 最优组合为 A₃B₁C₁, 即杀青 10 min、40 °C 烘干, 这与综合评分结果一致。

表 7 混合正交试验设计及结果

Table 7 Hybrid orthogonal design results

处理	A/min	B/°C	C	各类指标总量的标准化数据			
				褐变指数	营养元素	重金属元素	内在成分
T1	3 (1)	40 (1)	烘干 (1)	0.14	3.09	0.76	4.70
T2	3 (1)	60 (2)	烘干 (1)	0.11	3.04	1.43	5.13
T3	3 (1)	80 (3)	烘干 (1)	0.21	4.06	3.48	4.11
T4	5 (2)	40 (1)	烘干 (1)	0.14	2.53	1.82	4.73
T5	5 (2)	60 (2)	烘干 (1)	0.25	3.32	1.21	4.43
T6	5 (2)	80 (3)	烘干 (1)	0.22	3.96	2.28	4.48
T7	10 (3)	40 (1)	烘干 (1)	0.08	3.99	1.18	5.21
T8	10 (3)	60 (2)	烘干 (1)	0.27	3.16	0.95	4.68
T9	10 (3)	80 (3)	烘干 (1)	0.23	3.85	0.70	4.74
T10	0 (4)	40 (1)	烘干 (1)	0.00	4.21	1.37	4.50
T11	0 (4)	60 (2)	烘干 (1)	0.76	4.95	3.14	0.10
T12	0 (4)	80 (3)	烘干 (1)	0.76	4.62	2.89	0.67
T13	0 (4)	-18 (5)	冻干 (2)	0.01	4.77	3.46	4.49
T14	5 (2)	105 (4)	烘干 (1)	1.00	5.65	3.05	3.99
CK	5 (2)	25 (6)	阴干 (3)	0.31	3.62	2.14	5.10

表 8 混合正交试验结果分析

Table 8 Analysis of hybrid orthogonal design results

指标	因素 A	因素 B	因素 C	主次顺序 R
褐变指数	A ₂ >A ₄ >A ₃ >A ₁	B ₄ >B ₃ >B ₂ >B ₆ >B ₅ >B ₁	C ₁ >C ₃ >C ₂	B>C>A
营养元素	A ₄ >A ₂ >A ₃ >A ₁	B ₄ >B ₅ >B ₃ >B ₂ >B ₆ >B ₁	C ₂ >C ₁ >C ₃	B>A>C
重金属元素	A ₄ >A ₂ >A ₁ >A ₃	B ₅ >B ₄ >B ₃ >B ₆ >B ₂ >B ₁	C ₂ >C ₃ >C ₁	B>A>C
化学成分	A ₃ >A ₁ >A ₂ >A ₄	B ₆ >B ₁ >B ₅ >B ₄ >B ₂ >B ₃	C ₃ >C ₂ >C ₁	A>B>C

4 讨论

本研究杀青方式选用蒸汽杀青, 蒸汽温度很高, 杀青效果更明显^[23], 同时操作简单、成本较低, 适用于产地工业使用。本实验中杀青组花蕾颜色暗黄, 可能是样品烘干时使用的烘箱内部风力不足, 无法快速升温, 蒸汽无法及时排出, 烘干时间增长导致样品褐变程度增高, 烘干后颜色暗黄。

文献报道了晾晒、烘干、杀青、微波干燥和红外干燥等不同加工处理方式对金银花类药材质量的影响, 以经杀青热风烘干后的金银花类药材质量为佳^[24-26]。物细毡毛忍冬花蕾加工中得到验证, 以杀青后热风烘干得到的药材品质更优。同时本研究在确定杀青烘干加工方法的基础上, 确定了具体的工艺参数, 为规模化的产地加工提供理论支撑, 促进产地加工的规范化与规模化发展。此外, 实验结果

显示南江县细毡毛忍冬花蕾产地加工现采用的杀青 5 min、105 °C 的加工方式较多地考虑了生产成本, 而未能很好地兼顾药材质量, 因此, 该工艺也有待进一步完善。

在中药品质的控制与保障体系中, 产地加工作为其多元调控的环节, 可人为地干预中药材加工品质, 而加工品质的优劣最终需要通过中药临床疗效评价加工药材的效用品质, 优选适宜的加工工艺^[27]。本研究结果对加工后细毡毛忍冬药材的形态品质、化学品质进行了探讨, 还需进一步验证其效用品质, 实现中药“质量-药效”的关联问题分析, 保证药材加工品质。同时, 本实验优化的加工工艺在运用于实际生产还需进一步考虑药材的生产成本与产量, 在保证药材品质的同时获得良好的经济效益。

利益冲突 所有作者均声明不存在利益冲突

参考文献

- [1] 四川省食品药品监督管理局. 四川省中药材标准 [S]. 2010: 84-90.
- [2] 张潇, 王江瑞, 周勤梅, 等. 细毡毛忍冬化学成分研究 [J]. 中药材, 2015, 38(11): 2324-2326.
- [3] 孙天雄, 李成义, 贾妙婷, 等. 红芪中的无机元素及其与药效活性成分关系的研究进展 [J]. 中国现代中药, 2021, 23(12): 2196-2200.
- [4] 樊雪艳. 蝉花和冬虫夏草元素分析与齿痛消炎灵颗粒药效物质基础研究 [D]. 石家庄: 河北医科大学, 2019.
- [5] 毛利华, 李世周, 杨哲, 等. 金银花活性成分及其产品开发研究进展 [J]. 江苏科技信息, 2018, 35(17): 47-49.
- [6] 时玉昌, 沈申, 陈亚运, 等. 不同干燥方法对金银花多元功效成分和感官品质的影响 [J]. 生物加工过程, 2021, 19(1): 66-73.
- [7] 王宴. 不同干燥技术对川产细毡毛忍冬药用品质的影响 [J]. 华西药学杂志, 2017, 32(2): 202-204.
- [8] 杨苗. 细毡毛忍冬的质量标准研究 [D]. 成都: 成都中医药大学, 2008.
- [9] 田伟, 范帅帅, 甄亚钦, 等. UPLC 比较金银花、忍冬藤和忍冬叶中 11 种活性成分的含量 [J]. 中国中药杂志, 2019, 44(1): 100-105.
- [10] 苏为华. 多指标综合评价理论与方法问题研究 [D]. 厦门: 厦门大学, 2000.
- [11] 潘彦洁, 张妍, 王瑞光. 商洛市生态环境质量评价研究 [J]. 价值工程, 2019, 38(36): 22-24.
- [12] 孙洁. 金银花干燥过程与酶及活性成分的相关性研究 [D]. 泰安: 山东农业大学, 2014.
- [13] 朱玉芸. 酶促褐变对菊花品质的影响研究 [D]. 合肥: 安徽中医药大学, 2018.
- [14] 陈平, 张建博, 龚建瑜, 等. 中药鲜品褐变机制及防控的研究进展 [J]. 现代中医药, 2016, 36(5): 102-107.
- [15] 陈思奇, 王旭光, 杜勃峰, 等. 不同干燥温度下刺梨果糕的非酶褐变途径分析 [J]. 食品科技, 2019, 44(3): 51-56.
- [16] 徐双美, 鄢玉芬, 陶明宝, 等. 不同炮制火候及方法对瓦楞子无机元素种类及含量的影响 [J]. 时珍国医国药, 2020, 31(1): 103-105.
- [17] 韦熹苑, 邓琦, 舒柯, 等. ICP-MS 法测定广西金樱根及炮制品中 22 种金属元素 [J]. 广西植物, 2021, 41(7): 1209-1218.
- [18] 刘书斌, 张宏武, 冯晓莉, 等. 基于 AHP 法优化的熵权 TOPSIS 模型对不同产地黄花菜药材质量的综合评价 [J]. 中国实验方剂学杂志, 2019, 25(6): 168-174.
- [19] 黄诗淇, 武正华, 缪文清, 等. 基于高效液相色谱法结合层次分析和正交设计法优选土茯苓醇提工艺 [J]. 中南药学, 2021, 19(4): 642-648.
- [20] 冯利梅, 陈艳琰, 乐世俊, 等. 基于层次分析-熵权法的中药质量标志物量化辨识方法研究: 以芍药甘草汤为例 [J]. 药学报, 2021, 56(1): 296-305.
- [21] 阴美华, 袁蒙蒙, 唐志书, 等. 层次分析法结合响应面法优化南五味子醋制工艺 [J]. 中药材, 2021, 43(10): 2324-2328.
- [22] 陈翠莎, 杨丽飞, 刘莎, 等. 基于质量综合评价的积雪草干燥方法筛选研究 [J]. 中草药, 2019, 50(20): 4911-4919.
- [23] 余伊榄, 谢国勇, 秦民坚. 黄芩叶茶生产过程中杀青工艺探究 [J]. 中国野生植物资源, 2019, 38(2): 16-21.
- [24] 李晓娅, 李钦, 张峰, 等. 金银花采收及产地初加工研究 [J]. 时珍国医国药, 2020, 31(1): 97-99.
- [25] 刘天亮, 董诚明, 齐大明, 等. 不同产地及加工方式金银花的质量评价 [J]. 中药材, 2020, 43(3): 582-586.
- [26] 陈朝晖, 喻晶. 不同加工方法金银花有效成分高效液相色谱比较分析 [J]. 临床医药文献电子杂志, 2019, 6(13): 178.
- [27] 万德光, 杨文字. 基于“品种-质量-药效”相关性的中药动物药品质观 [J]. 中国现代中药, 2019, 21(9): 1127-1136.

[责任编辑 郑礼胜]