

## 切片厚度和烘干温度对唐古特大黄蒽醌含量影响的研究

刘何春<sup>1,2</sup>,姚小波<sup>2</sup>,雷雪萍<sup>2</sup>,周国英<sup>1,3</sup>\*,聂秀青<sup>1,3</sup>,熊丰<sup>1,3</sup><sup>1</sup>中国科学院西北高原生物研究所 藏药研究重点实验室,西宁 810008;<sup>2</sup>西藏自治区农牧科学院农业研究所,拉萨 850032;<sup>3</sup>青海省青藏高原特色生物资源研究重点实验室,西宁 810008

**摘要:**采用 HPLC-DAD 法测定了不同切片厚度在不同烘干温度下唐古特大黄中芦荟大黄素、大黄酸、大黄素、大黄素甲醚、大黄酚的含量,探究切片厚度和烘干温度对唐古特大黄药材质量的影响。色谱柱采用的是 Agilent Eclipse plus C<sub>18</sub> (4.6 × 250 mm, 5 μm); 流动相 A 相为色谱级甲醇, B 相为 0.1% 冰乙酸溶液; 柱温 25 °C; 检测波长 254 nm。结果表明: 75 °C 烘干, 切片厚度以 0.4 ~ 2 cm 或 6 ~ 7 cm; 25、50 °C 时烘干, 切片 0.4 ~ 3 cm 或 6 ~ 8 cm, 药材总蒽醌含量较高, 其他厚度含量较低, 芦荟大黄素、大黄酸、大黄素、大黄素甲醚、大黄酚的含量也符合上述规律。结论唐古特大黄产地初加工时, 75 °C 烘干, 切片厚度以 0.4 ~ 2 cm 或 6 ~ 7 cm 为宜; 25 和 50 °C 时烘干, 切片 0.4 ~ 3 cm 或 6 ~ 8 cm 为宜, 从而保证唐古特大黄药材的质量。

**关键词:**唐古特大黄; HPLC-DAD 法; 切片厚度; 烘干温度; 总蒽醌

中图分类号: R931.4; R284.2

文献标识码: A

文章编号: 1001-6880(2019)12-2098-07

DOI: 10.16333/j.1001-6880.2019.12.013

## Study on the effect of concentrations of anthraquinone derivatives detected in different thickness and drying temperature of the *Rheum tanguticum* Maxim. ex Balf.

LIU He-chun<sup>1,2</sup>, YAO Xiao-bo<sup>2</sup>, LEI Xue-ping<sup>2</sup>, ZHOU Guo-ying<sup>1,3</sup>\*, NIE Xiu-qing<sup>1,3</sup>, XIONG Feng<sup>1,3</sup><sup>1</sup>Key Laboratory of Tibetan Medicine Research, Northwest Institute of Plateau Biology, Chinese Academy of Sciences, Xining 810008, China;<sup>2</sup>Tibet Academy of Agriculture and Animal Husbandry Sciences, Lasa 850032, China;<sup>3</sup>Qinghai Key Laboratory of Qinghai-Tibet Plateau Biological Resources, Xining 810008, China

**Abstract:** The aim was to carry out a study about the effect of concentrations of anthraquinone derivatives detected in different thickness of the *Rheum tanguticum* Maxim. ex Balf. by using high-performance liquid chromatography-photodiode array detector (HPLC-DAD). The condition was Column Agilent Eclipse plus C<sub>18</sub> (4.6 × 250 mm, 5 μm) with the mobile phase consisting of methanol (A) and 0.1% acetic acid (B) in a gradient elution mode. The column temperature was 25 °C and the detection wavelength was 254 nm. The results showed that 75 °C drying, sliced 0.4-2 cm or 6-7 cm or 50 and 25 °C drying, sliced 0.4-3 cm or 6-8 cm, concentrations of anthraquinone derivatives detected in different thickness of the *Rheum tanguticum* Maxim. ex Balf. were higher, the contents were lower for other thickness, the contents of aloe-emodin, rhein, emodin, emodin, chrysophanol were in line with the above rules. To guarantee the quality of *Rheum tanguticum* Maxim. ex Balf., the proposed primary processing of *Rheum tanguticum* Maxim. ex Balf. was: dried at 75 °C drying, sliced 0.4-2 cm or 6-7 cm or 50 and 25 °C drying, sliced 0.4-3 cm or 6-8 cm.

**Key words:** *Rheum tanguticum* Maxim. ex Balf.; HPLC-DAD; different thickness; drying temperature; anthraquinone derivatives

收稿日期: 2019-05-24 接受日期: 2019-11-20

基金项目: 西藏自治区自然科学基金 (XZ2018ZR G-62(Z)); 青海省科技支撑计划 (2014-NS-115); 国家中药标准化项目 (ZYBZH-Y-GS-10); 青海省重点实验室发展建设专项 (2017-ZJ-Y10)

\* 通信作者 Tel: 86-10-9716159630; E-mail: zhougy@nwipb.cas.cn

蓼科 (Polygonaceae) 大黄属 (*Rheum* Linn.) 植物唐古特大黄 *Rheum tanguticum* Maxim. ex Balf. 又名鸡爪大黄、Jun Muzha (藏药名), 是青藏高原独有的中药材和藏药材。生境在海拔高度 2 300 ~ 4 200 米

的森林边缘、沟壑灌木及草地,分布于西藏东北部、青海东北部、甘肃南部、川西北部等<sup>[1-3]</sup>。青藏高原的气候和地理特征,如海拔高、辐射强、积温少、昼夜温差大,造就了唐古特大黄独特的品质<sup>[2]</sup>。它的活性成分中主要包括大黄素甲醚、芦荟大黄素、大黄酚、大黄素、大黄酸等在内的蒽醌类衍生物,这些成分的作用包括强致泻,对病原微生物有抗性、镇痛和抵抗炎症、保肝和利胆、调节免疫<sup>[4]</sup>。

中藏药种类繁多,加工方法因产地而异。不同的炮制、加工方法对中藏药材的成分及功效也有明显的影响,由此造成药材质量的不稳定性<sup>[5]</sup>。中藏药更注重来源和原产地加工方法,切片是加工根茎类药材最主要的方法:对于质地坚硬且不易干燥的粗大根茎药材,收获后应立即去除残留的茎和须,新鲜的根茎应用某些工具切制成固定的形状<sup>[6]</sup>。《中国药典》(2015年版)大黄项下的描述,没有对加工方法做明确要求;甘肃省地方标准《无公害中草药-大黄生产技术》中,对掌叶大黄各种加工规格做了相关规定,但也仅限于一些感官指标,对于其有效成分的含量要求并没有具体说明。目前对于蓼科大黄属植物药材大黄的产地加工报道仅限于甘肃省产区对于掌叶大黄的切制、干燥等加工方法的探讨<sup>[7-11]</sup>,关于唐古特大黄切片加工的报道很少。因此,加强药材切制方面的研究,加以在药材产地逐步推广,对于提高药材饮片的质量,具有十分重要的意义<sup>[12-15]</sup>。

本文作者采用的是 HPLC-DAD 法,研究了唐古特大黄在不同烘干温度下,不同的切片厚度对于蒽醌含量的影响,目的在于完善唐古特大黄的加工工艺。

## 1 材料与方法

### 1.1 植物材料

本实验所用的大黄药材样本采自青海省西宁市湟中县拦隆口镇,采挖时间为2012年10月,药材的生长年限为6年。根茎部洗净、去皮,趁鲜按照0.4、1、2、3、4、5、6、7、8、9、10 cm 梯度厚度切片,分别置于25、50、75 °C 烘干,粉碎备用。

### 1.2 仪器与试剂

仪器:高效液相色谱仪 Agilent1200 型,包括脱气装置 G1322A 型、四元泵 G1311A 型、标准型自动进样器 G1329A 型、柱温箱 G1316A 型、二极管阵列检测器 G1315D 型。旋转蒸发器 N-1001D-WD 型。

试剂:实验室自制 HPLC 级超纯水;氯仿、盐酸、冰乙酸、分析级甲醇等有机溶剂;色谱级甲醇;对照品包括:批号 110795-201007 芦荟大黄素、批号 110757-200206 大黄酸、批号 110756-200110 大黄素、批号 110758-201013 大黄素甲醚和批号:110796-201118 大黄酚,购买于中国食品药品检定研究院。

### 1.3 色谱分析方法

#### 1.3.1 色谱条件

色谱柱采用的是 Agilent Eclipse plus C<sub>18</sub> 柱(4.6 × 250 mm, 5 μm)(反向 C<sub>18</sub> 是色谱柱填料)。体积流量 1.000 mL/min。色谱甲醇作为流动相 A, 0.1% 冰乙酸溶液作为流动相 B; 0 ~ 20 min, 60% ~ 80% A; 20 ~ 40 min, 80% ~ 95% A; 40 ~ 45 min, 95% A 作为梯度洗脱程序。25 °C 作为色谱柱柱温, 254 nm 作为本次试验检测波长。

#### 1.3.2 制备本试验的对照品溶液和供试品溶液

精密称取对照品大黄酚 0.55 mg、大黄素甲醚 1.24 mg、大黄素 1.12 mg、大黄酸 0.60 mg、芦荟大黄素 1.10 mg, 使用甲醇将其分别溶解, 并定容至 25 mL 的容量瓶中, 制成含 22 μg/mL 大黄酚、49.6 μg/mL 大黄素甲醚、44.8 μg/mL 大黄素、24 μg/mL 大黄酸、44 μg/mL 芦荟大黄素的对照品溶液。

称重约 0.150 g 本品粉末(通过四号筛), 准确称重, 将其置于带塞的锥形瓶中, 并准确加入 25 mL 的甲醇, 称定其重量, 加热回流 1 h, 放至其冷却, 再次称重量, 并用甲醇溶液补足在回流过程中由于蒸发损失的量, 摇匀并过滤。量取 5 mL 续滤液, 放置于烧瓶中, 旋转蒸发器中挥去溶剂, 加入 10 mL 8% 盐酸溶液, 在 220 W、40 kHz、30 °C 下超声处理 2 min, 再加 10 mL 氯仿, 加热回流 1 h, 放置至冷却, 分离氯仿层, 用氯仿萃取酸性溶液三次, 每次 10 mL, 合并氯仿溶液, 并在减压条件下将回收溶液恢复至干燥, 甲醇溶解残渣, 转移到 10 mL 量瓶中, 将续滤液取出, 通过 0.45 μm 滤孔的微孔滤膜过滤, 得到供试品溶液。

#### 1.3.3 方法学考察<sup>[14,15]</sup>

方法学考察内容包括:回归方程绘制、稳定性试验、精密度试验、重复性试验、加样回收率试验。结果分别表明:对照品在 24 小时内和 5 天内稳定性良好, 仪器和进样精密度良好, 重复性良好, 回收率良好。

表 1 蒽醌方法学指标

Table 1 The index of methodology of anthraquinone

蒽醌 Anthraquinone	回归方程 Regression equation	$R^2$	线性范围 Linear range ( $\mu\text{g}$ )	日间稳定性 Diurnal stability RSD (%)	日内稳定性 Intraday stability RSD (%)	精密度 Precision RSD (%)	重复性 Repeatability RSD (%)	加样回收率 Recovery of standard of addition (%)	加样回收率 RSD Recovery of standard of addition RSD (%)
芦荟大黄素 Aloeemodin	$Y = 2\ 350.8X - 0.440\ 9$	1	0.044 ~ 2.20	0.44	0.26	0.53	2.06	97.73	1.55
大黄酸 Rhein	$Y = 1\ 862X - 0.880\ 1$	1	0.024 ~ 1.20	3.37	0.51	1.68	1.30	99.21	3.01
大黄素 Emodin	$Y = 5\ 437X + 1.285\ 6$	1	0.0448 ~ 2.24	3.16	0.50	0.66	0.56	102.40	1.22
大黄素甲醚 Physcion	$Y = 2\ 891X + 6.777\ 6$	0.9999	0.022 ~ 1.10	0.32	0.39	2.02	2.19	101.55	0.86
大黄酚 Chrysophanol	$Y = 2\ 491.2X - 8.936\ 1$	1	0.0496 ~ 2.48	2.19	0.31	0.45	0.37	96.66	2.53

### 1.3.4 样品测定

精密称量样品粉末约 0.150 g, 制备供试液, 注入液相色谱仪 Agilent1200 型, 并将每批次平行测量

三次, 记录色谱图的峰面积, 并使用标准曲线测算含量。样品色谱图和混合对照品如图 1 所示。

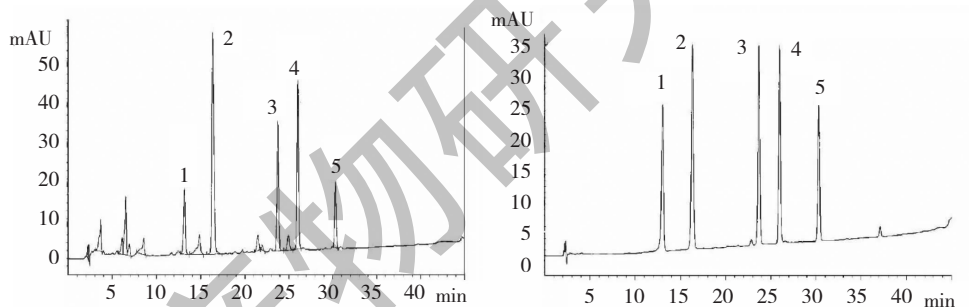


图 1 混合对照品(左)和样品(右)的 HPLC 色谱图

Fig. 1 HPLC chromatogram mixed standard(Left) and sample(Right)

注:1. 芦荟大黄素;2. 大黄酸;3. 大黄素;4. 大黄素甲醚;5. 大黄酚。Note:1. Aloe emodin;2. Rhein acid;3. Emodin;4. Physcion;5 Chrysophanol.

## 2 结果与分析

### 2.1 五种蒽醌成分含量测定结果

#### 2.1.1 芦荟大黄素成分含量测定结果

在不同烘干温度下的不同切片厚度唐古特大黄芦荟大黄素含量如表 2 所示。在相同温度下, 唐古特大黄芦荟大黄素含量的变化随切片厚度增加呈双峰变化。在 25  $^{\circ}\text{C}$ , 厚度 3 cm, 50、75  $^{\circ}\text{C}$ , 厚度 2 cm 出现第 1 个峰值。此后芦荟大黄素含量随着厚度的增加而下降。温度为 25、50  $^{\circ}\text{C}$ , 厚度 5 cm, 75  $^{\circ}\text{C}$ , 厚度 4 cm 时芦荟大黄素含量达最低值。在 25、50  $^{\circ}\text{C}$ , 厚度 8 cm, 75  $^{\circ}\text{C}$ , 厚度 5 ~ 7 cm 时出现第 2 个峰值。

芦荟大黄素有抗菌、泻下的功效, 以其为主要成分入药的话, 建议低温烘干时切片 6 ~ 9 cm 或 0.4

~ 3 cm; 中温烘干时切片 6 ~ 8 cm 或 0.4 ~ 3 cm; 高温烘干时切片 5 ~ 7 cm 或 0.4 ~ 3 cm。

数据分析由 SPSS 20.0 统计软件包中的 one-way ANOVA 模块进行, 95% 置信区间。

#### 2.1.2 大黄酸成分含量测定结果

不同切片厚度唐古特大黄药材在不同烘干温度下大黄酸含量如表 3 所示。在相同温度下, 唐古特大黄大黄酸含量的变化随切片厚度增加呈 w 型变化。三种温度下的大黄酸含量的第一个峰值出现在 0.4 cm 时。低、中、高温下分别在 4、3、2 cm 时出现第二个峰值。中低温下在 8 cm, 高温下在 7 cm 含量达到第三个峰值。

表2 不同切片厚度和不同温度下唐古特大黄中芦荟大黄素含量( $n=5$ )Table 2 Content of aloe-emodin detected in different thickness of the *R. tanguticum* ( $n=5$ )

温度 Temperature ( $^{\circ}\text{C}$ )	含量 Content(mg/g)										
	0.4 cm	1 cm	2 cm	3 cm	4 cm	5 cm	6 cm	7 cm	8 cm	9 cm	10 cm
25	6.728 ± 0.010 <sup>d</sup>	6.956 ± 0.222 <sup>d</sup>	6.723 ± 0.127 <sup>d</sup>	7.238 ± 0.166 <sup>c</sup>	5.667 ± 0.099 <sup>e</sup>	3.998 ± 0.075 <sup>f</sup>	7.351 ± 0.187 <sup>c</sup>	7.693 ± 0.086 <sup>b</sup>	9.605 ± 0.268 <sup>a</sup>	7.780 ± 0.093 <sup>b</sup>	6.741 ± 0.096 <sup>d</sup>
50	6.803 ± 0.055 <sup>d</sup>	7.116 ± 0.055 <sup>e</sup>	7.366 ± 0.213 <sup>b</sup>	7.141 ± 0.074 <sup>c</sup>	6.438 ± 0.242 <sup>e</sup>	4.303 ± 0.273 <sup>g</sup>	5.505 ± 0.332 <sup>f</sup>	7.518 ± 0.124 <sup>b</sup>	8.334 ± 0.492 <sup>a</sup>	5.400 ± 0.037 <sup>f</sup>	5.419 ± 0.018 <sup>f</sup>
75	6.495 ± 0.013 <sup>d</sup>	6.095 ± 0.085 <sup>e</sup>	7.191 ± 0.393 <sup>c</sup>	5.497 ± 0.087 <sup>f</sup>	4.555 ± 0.075 <sup>h</sup>	8.695 ± 0.078 <sup>a</sup>	7.629 ± 0.087 <sup>b</sup>	8.428 ± 0.390 <sup>a</sup>	4.226 ± 0.058 <sup>h</sup>	5.537 ± 0.080 <sup>f</sup>	4.995 ± 0.092 <sup>g</sup>

注:含量 = 均值 ± 标准差;表中的不同字母表示差异显著,相同的字母表示差异不显著。下表同。

Note:Content = mean ± standard deviation;The different letters in the table indicate significant differences, and the same letters indicate that the differences are not significant. The table below is the same.

大黄酸有抗菌、抗癌、导泻、利尿的功效,以其为主要成分入药的话,建议中、低温下切片厚度 6 ~ 8

cm;高温下切片厚度 0.4 ~ 2 cm 或 7 cm。

表3 唐古特大黄药材不同切片厚度大黄酸含量的测定结果( $n=5$ )Table 3 Content of emodin detected in different thickness of the *R. tanguticum* ( $n=5$ )

温度 Temperature ( $^{\circ}\text{C}$ )	含量 Content(mg/g)										
	0.4 cm	1 cm	2 cm	3 cm	4 cm	5 cm	6 cm	7 cm	8 cm	9 cm	10 cm
25	18.95 ± 0.213 <sup>cd</sup>	17.88 ± 0.067 <sup>d</sup>	17.65 ± 0.288 <sup>d</sup>	16.49 ± 0.607 <sup>e</sup>	18.49 ± 0.358 <sup>d</sup>	12.24 ± 0.148 <sup>f</sup>	19.81 ± 0.780 <sup>c</sup>	22.03 ± 0.637 <sup>b</sup>	23.49 ± 1.023 <sup>a</sup>	16.56 ± 0.196 <sup>e</sup>	12.09 ± 0.161 <sup>f</sup>
50	18.26 ± 0.603 <sup>c</sup>	13.47 ± 0.013 <sup>f</sup>	14.13 ± 0.832 <sup>ef</sup>	17.89 ± 0.038 <sup>c</sup>	14.66 ± 0.209 <sup>e</sup>	12.43 ± 0.084 <sup>g</sup>	16.90 ± 0.765 <sup>d</sup>	20.73 ± 0.529 <sup>b</sup>	21.84 ± 0.552 <sup>a</sup>	11.40 ± 0.227 <sup>h</sup>	8.512 ± 0.215 <sup>i</sup>
75	16.35 ± 0.527 <sup>b</sup>	14.02 ± 0.255 <sup>d</sup>	19.56 ± 0.178 <sup>a</sup>	7.870 ± 0.182 <sup>g</sup>	13.39 ± 0.161 <sup>e</sup>	15.81 ± 0.727 <sup>c</sup>	15.70 ± 0.141 <sup>c</sup>	19.23 ± 0.120 <sup>a</sup>	9.467 ± 0.181 <sup>f</sup>	9.174 ± 0.105 <sup>f</sup>	8.144 ± 0.178 <sup>g</sup>

注:含量 = 均值 ± 标准差。

Note:Content = mean ± standard deviation.

### 2.1.3 大黄素成分含量测定结果

不同切片厚度唐古特大黄药材中大黄素含量如表4所示。在相同温度下,唐古特大黄大黄素含量的变化随切片厚度增加同样呈双峰变化。25  $^{\circ}\text{C}$ 、3 cm时,50  $^{\circ}\text{C}$ 和75  $^{\circ}\text{C}$ 、2 cm时出现第一个峰值。此后大黄素含量随着厚度的增加而下降,25  $^{\circ}\text{C}$ 、50

$^{\circ}\text{C}$ 、5 cm时,75  $^{\circ}\text{C}$ 、4 cm时大黄素含量达最低值。25  $^{\circ}\text{C}$ 、75  $^{\circ}\text{C}$ 、7 cm时,50  $^{\circ}\text{C}$ 、8 cm出现第二个峰值。

大黄素的功效诸如抗菌、镇咳、抗肿瘤、抗痉挛、抗高血压、利尿等,以其为主要成分入药的话,建议采用高温烘干且切片厚度 2 cm 或 6 ~ 7 cm;或在中温下烘干,切片 8 cm;或在低温下烘干,切片 0.4 ~ 3 cm。

表4 唐古特大黄药材不同切片厚度大黄素含量的测定结果( $n=5$ )Table 4 Content of emodin detected in different thickness of the *R. tanguticum* ( $n=5$ )

温度 Temperature ( $^{\circ}\text{C}$ )	含量 Content(mg/g)										
	0.4 cm	1 cm	2 cm	3 cm	4 cm	5 cm	6 cm	7 cm	8 cm	9 cm	10 cm
25	5.434 ± 0.041 <sup>b</sup>	5.726 ± 0.133 <sup>a</sup>	5.470 ± 0.052 <sup>b</sup>	5.850 ± 0.058 <sup>a</sup>	3.650 ± 0.079 <sup>e</sup>	2.572 ± 0.044 <sup>g</sup>	3.853 ± 0.081 <sup>d</sup>	4.287 ± 0.039 <sup>e</sup>	4.197 ± 0.124 <sup>c</sup>	3.023 ± 0.050 <sup>f</sup>	3.900 ± 0.052 <sup>d</sup>
50	4.437 ± 0.051 <sup>c</sup>	4.497 ± 0.041 <sup>c</sup>	4.700 ± 0.145 <sup>b</sup>	4.548 ± 0.028 <sup>c</sup>	4.026 ± 0.092 <sup>d</sup>	2.481 ± 0.116 <sup>f</sup>	3.348 ± 0.110 <sup>e</sup>	4.207 ± 0.045 <sup>d</sup>	6.382 ± 0.952 <sup>a</sup>	3.330 ± 0.040 <sup>e</sup>	3.215 ± 0.015 <sup>e</sup>
75	4.781 ± 0.096 <sup>d</sup>	4.974 ± 0.057 <sup>c</sup>	6.214 ± 0.233 <sup>b</sup>	3.519 ± 0.052 <sup>f</sup>	2.821 ± 0.026 <sup>h</sup>	3.350 ± 0.030 <sup>g</sup>	6.268 ± 0.031 <sup>b</sup>	6.837 ± 0.032 <sup>a</sup>	2.436 ± 0.056 <sup>i</sup>	3.935 ± 0.057 <sup>e</sup>	2.981 ± 0.089 <sup>h</sup>

注:含量 = 均值 ± 标准差。

Note:Content = mean ± standard deviation.

### 2.1.4 大黄素甲醚成分含量测定结果

唐古特大黄药材在不同切片厚度的情况下,大黄素甲醚含量如表5所示。在相同温度下,唐古特

大黄素甲醚含量的变化随切片厚度增加呈双峰变化。25  $^{\circ}\text{C}$ 和50  $^{\circ}\text{C}$ 的第一个峰值出现在3 cm时,75  $^{\circ}\text{C}$ 出现在2 cm时。之后,大黄素甲醚的含量随

厚度的增加而降低,温度为 25 ℃,厚度 5 cm;50、75 ℃,厚度 4 cm 时含量达最低值。25 ℃ 和 75 ℃ 的第二个峰值出现在 7 cm 时,50 ℃ 出现在 8 cm 时。

大黄素甲醚体外抗菌作用显著,若取其为主要

成分入药的话,建议高温下烘干厚度控制在 2 cm 或 6~7 cm;中温下烘干含量较低,但是建议切片 8 cm;低温下烘干建议切割 0.4~3 cm。

表 5 唐古特大黄药材不同切片厚度大黄素甲醚含量的测定结果( $n=5$ )

Table 5 Content of physcion detected in different thickness of the *R. tanguticum* ( $n=5$ )

温度 Temperature (℃)	含量 Content(mg/g)										
	0.4 cm	1 cm	2 cm	3 cm	4 cm	5 cm	6 cm	7 cm	8 cm	9 cm	10 cm
25	16.34 ± 0.630 <sup>b</sup>	16.40 ± 0.459 <sup>b</sup>	16.24 ± 0.087 <sup>b</sup>	18.57 ± 0.188 <sup>a</sup>	13.95 ± 0.208 <sup>d</sup>	9.905 ± 0.102 <sup>f</sup>	14.76 ± 0.358 <sup>c</sup>	16.22 ± 0.125 <sup>b</sup>	12.43 ± 0.289 <sup>c</sup>	10.06 ± 0.031 <sup>f</sup>	10.27 ± 0.311 <sup>f</sup>
50	10.08 ± 0.059 <sup>f</sup>	11.45 ± 0.168 <sup>d</sup>	10.26 ± 0.222 <sup>f</sup>	11.50 ± 0.053 <sup>d</sup>	9.691 ± 0.229 <sup>e</sup>	10.670 ± 0.212 <sup>e</sup>	13.73 ± 0.553 <sup>c</sup>	15.96 ± 0.348 <sup>b</sup>	20.72 ± 0.872 <sup>a</sup>	9.139 ± 0.221 <sup>b</sup>	8.467 ± 0.030 <sup>i</sup>
75	10.96 ± 0.156 <sup>g</sup>	14.01 ± 0.476 <sup>e</sup>	20.27 ± 0.490 <sup>b</sup>	15.06 ± 0.018 <sup>d</sup>	12.20 ± 0.259 <sup>f</sup>	15.33 ± 0.087 <sup>d</sup>	19.54 ± 0.194 <sup>c</sup>	22.35 ± 0.177 <sup>a</sup>	10.93 ± 0.252 <sup>g</sup>	9.813 ± 0.115 <sup>b</sup>	9.122 ± 0.229 <sup>i</sup>

注:含量 = 均值 ± 标准差。

Note:Content = mean ± standard deviation.

### 2.1.5 大黄酚成分含量测定结果

不同切片厚度唐古特大黄大黄酚含量如表 6 所示。在相同温度下,唐古特大黄大黄酚含量的变化随切片厚度的增加也呈现出双峰变化。25 ℃、50 ℃ 在 3 cm 时出现第一个高峰,75 ℃ 是在 2 cm 时。此后大黄酚含量随着厚度的增加而下降,25 ℃、5 cm,50 ℃、6 cm,75 ℃、4 cm 时含量达最低值。25

℃、75 ℃ 下在 7 cm 时出现第二个高峰,50 ℃ 在 8 cm 时。

大黄酚的功效诸如镇咳、抗菌、利尿、促肠管蠕动、神经刺激和肌肉麻痹等,若取其为主要成分入药的话,建议高温下烘干切片 2 cm 或 6~7 cm;中温下烘干切片 0.4~3 cm 或 8 cm;低温下烘干含量较低,不宜采用。

表 6 唐古特大黄药材不同切片厚度大黄酚含量的测定结果( $n=5$ )

Table 6 Content of chrysophanol detected in different thickness of the *R. tanguticum* ( $n=5$ )

温度 Temperature (℃)	含量 Content(mg/g)										
	0.4 cm	1 cm	2 cm	3 cm	4 cm	5 cm	6 cm	7 cm	8 cm	9 cm	10 cm
25	7.393 ± 0.373 <sup>ab</sup>	7.555 ± 0.252 <sup>ab</sup>	7.332 ± 0.236 <sup>ab</sup>	7.750 ± 0.207 <sup>a</sup>	6.235 ± 0.336 <sup>c</sup>	3.983 ± 0.214 <sup>c</sup>	7.195 ± 0.314 <sup>b</sup>	7.767 ± 0.226 <sup>a</sup>	6.216 ± 0.419 <sup>c</sup>	4.723 ± 0.306 <sup>d</sup>	4.010 ± 0.202 <sup>e</sup>
50	8.724 ± 0.223 <sup>c</sup>	8.751 ± 0.229 <sup>c</sup>	8.897 ± 0.457 <sup>bc</sup>	9.188 ± 0.159 <sup>b</sup>	8.116 ± 0.094 <sup>d</sup>	8.232 ± 0.112 <sup>d</sup>	7.836 ± 0.263 <sup>d</sup>	7.310 ± 0.303 <sup>c</sup>	10.38 ± 0.712 <sup>a</sup>	4.880 ± 0.123 <sup>f</sup>	4.383 ± 0.099 <sup>g</sup>
75	8.746 ± 0.336 <sup>c</sup>	8.707 ± 0.138 <sup>cd</sup>	10.26 ± 0.500 <sup>ab</sup>	6.500 ± 0.086 <sup>f</sup>	4.973 ± 0.136 <sup>e</sup>	8.317 ± 0.028 <sup>d</sup>	9.925 ± 0.177 <sup>b</sup>	10.42 ± 0.334 <sup>a</sup>	4.283 ± 0.161 <sup>h</sup>	6.906 ± 0.106 <sup>e</sup>	4.921 ± 0.221 <sup>g</sup>

注:含量 = 均值 ± 标准差。

Note:Content = mean ± standard deviation.

### 2.2 总蒽醌含量测定结果

在不同烘干温度下,不同切片厚度唐古特大黄药材总蒽醌含量如表 7 所示。在相同温度下,唐古特大黄总蒽醌含量随切片厚度增加呈双峰变化,同单项目蒽醌含量变化表现出基本一致的变化规律。25 和 50 ℃ 时总蒽醌含量第一个峰值出现在厚度 3 cm,75 ℃ 时第一个峰值出现在厚度 2 cm。此后,总蒽醌含量随着厚度的增加而下降,温度 25 ℃ 和 50 ℃,厚度 5 cm;75 ℃,厚度 4 cm 时总蒽醌含量降至最低。然后,随着厚度的增加,三个温度下的含量都随之升高,25 ℃ 和 75 ℃,厚度 7 cm;50 ℃,厚度 8 cm 时出现第二个峰值。

唐古特大黄在不同温度 25、50、75 ℃ 烘干条件下,总蒽醌含量随切片厚度的变化规律是一致的。

5 种蒽醌的含量:大黄酸 > 大黄素甲醚 > 大黄酚 > 芦荟大黄素 > 大黄素。

比较 25、50、75 ℃ 烘干时不同切片厚度总蒽醌的含量,75 ℃ 烘干时,切片 2 cm 和 7 cm 时总蒽醌含量最高,但耗能较大。25 ℃ 时总蒽醌含量较 75 ℃ 稍低,25 ℃ 烘干耗能最低。综上所述,唐古特大黄产地加工,烘干温度 25 ℃ 和 50 ℃ 时 0.4~3 cm 以及 6~8 cm,或 75 ℃ 时切片厚度 0.4~2 cm 以及 6~7 cm,蒽醌含量最高。

表7 唐古特大黄药材在不同切片厚度和不同烘干温度时总蒽醌含量( $n=5$ )Table 7 Content of anthraquinone derivatives detected in different thickness of the *R. tanguticum* ( $n=5$ )

温度 Temperature ( $^{\circ}\text{C}$ )	含量 Content (%)										
	0.4 cm	1 cm	2 cm	3 cm	4 cm	5 cm	6 cm	7 cm	8 cm	9 cm	10 cm
25	2.741 $\pm$ 0.037 <sup>ab</sup>	2.725 $\pm$ 0.021 <sup>ab</sup>	2.670 $\pm$ 0.079 <sup>b</sup>	2.795 $\pm$ 0.071 <sup>ab</sup>	2.340 $\pm$ 0.108 <sup>c</sup>	1.635 $\pm$ 0.029 <sup>e</sup>	2.648 $\pm$ 0.174 <sup>b</sup>	2.899 $\pm$ 0.112 <sup>a</sup>	2.798 $\pm$ 0.213 <sup>ab</sup>	2.108 $\pm$ 0.068 <sup>d</sup>	2.550 $\pm$ 0.112 <sup>b</sup>
	50	2.420 $\pm$ 0.099 <sup>cd</sup>	2.264 $\pm$ 0.049 <sup>d</sup>	2.267 $\pm$ 0.024 <sup>d</sup>	2.493 $\pm$ 0.035 <sup>c</sup>	2.146 $\pm$ 0.163 <sup>d</sup>	1.906 $\pm$ 0.020 <sup>e</sup>	2.366 $\pm$ 0.169 <sup>cd</sup>	2.787 $\pm$ 0.162 <sup>b</sup>	3.383 $\pm$ 0.284 <sup>a</sup>	1.703 $\pm$ 0.221 <sup>f</sup>
75		2.367 $\pm$ 0.117 <sup>e</sup>	2.390 $\pm$ 0.150 <sup>e</sup>	3.175 $\pm$ 0.180 <sup>b</sup>	1.922 $\pm$ 0.102 <sup>f</sup>	1.897 $\pm$ 0.084 <sup>f</sup>	2.575 $\pm$ 0.050 <sup>d</sup>	2.953 $\pm$ 0.040 <sup>c</sup>	3.363 $\pm$ 0.111 <sup>a</sup>	1.567 $\pm$ 0.035 <sup>h</sup>	1.768 $\pm$ 0.325 <sup>g</sup>

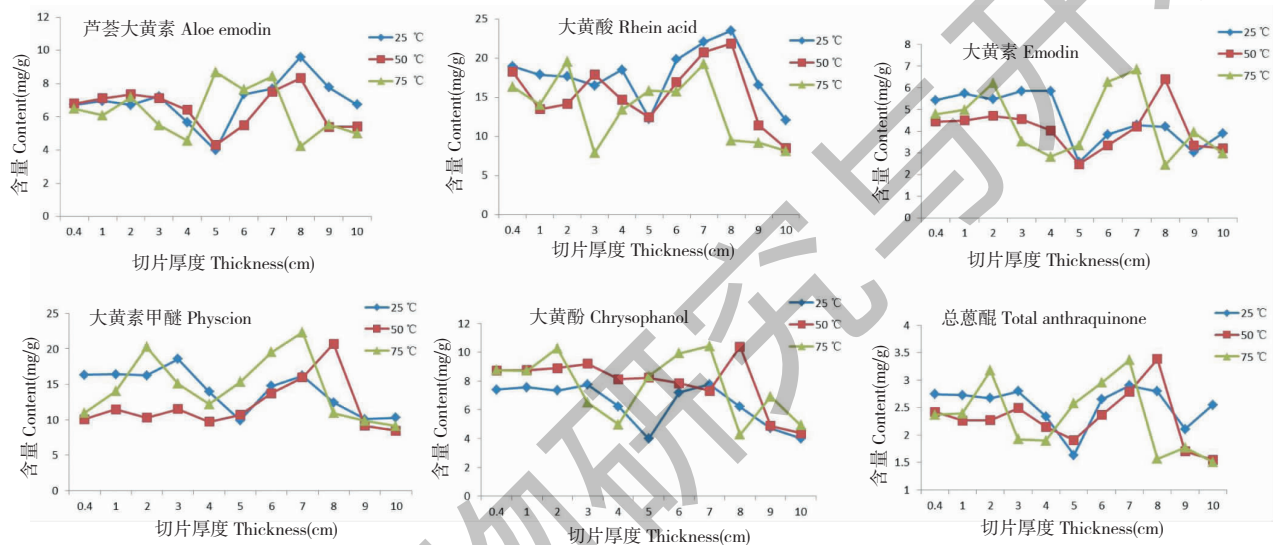
注:含量 = 均值  $\pm$  标准差。Note: Content = mean  $\pm$  standard deviation.

图2 不同厚度、不同烘干温度唐古特大黄药材的总蒽醌含量示意图

Fig. 2 The content of anthraquinone derivatives under different thickness of *R. tanguticum*

### 3 讨论

《中国药典》(2015年版)规定:按干燥品计算,大黄药材中含大黄素甲醚、大黄酚、大黄素、大黄酸以及芦荟大黄素的总量不得少于1.5%。由表7可见,本实验所采药材唐古特大黄所含蒽醌总量均高于药典规定,且部分切片厚度的总蒽醌含量高达药典规定的2~3倍,这也充分证明了青海省唐古特大黄药材的优质和道地性。

新鲜中、藏药材在原产地就趁鲜切制成片,不仅缩短了加工环节,节约了能源,而且保持了良好的色泽和气味<sup>[6]</sup>。《中国药典》关于大黄“刮去外皮,切瓣或段,绳穿成串干燥或直接干燥”的加工规定,表述模糊或不确定性高<sup>[1,14,15]</sup>。近年来甘肃大黄药材产区,在继承传统加工方法的基础上,重视大黄产地加工方法的研究,把甘肃种植掌叶大黄做为研究对象,采用现代设备在切制、干燥等加工方法进行探

讨<sup>[7-11,14,15]</sup>。切制方面,对于大黄切片厚度的研究,Song<sup>[7]</sup>、Li<sup>[8]</sup>曾以2~4 mm的厚度进行研究;Dai<sup>[9]</sup>、Tang<sup>[10]</sup>曾以2~3 cm的厚度对其研究;其他或切长条5 cm<sup>[9]</sup>或采用传统加工方法——药材不切片仅将体积特别大的主根截成长约10~13 cm段或者纵剖为两半<sup>[1]</sup>、或分薄中厚切片研究<sup>[11]</sup>。得出的结论也不尽相同,如Xu<sup>[11]</sup>在不同切制条件对掌叶大黄的影响中得出的结论是薄片和中片较好,但是薄片和中片范围模糊,产地加工时难以界定和操作。参照上述研究,除Tang<sup>[10]</sup>和Xu<sup>[11]</sup>对掌叶大黄的加工有稍微明确的加工条件外,其他的研究结果并不明确。由于掌叶大黄和唐古特大黄的产地和品质的不同,掌叶大黄的加工方法并不一定适用唐古特大黄。

### 4 结论

本实验对唐古特大黄加工时建议,烘干温度25和50 $^{\circ}\text{C}$ 时0.4~3 cm以及6~8 cm,或75 $^{\circ}\text{C}$ 切片厚

度 0.4 ~ 2 cm 以及 6 ~ 7 cm, 蒽醌含量最高。在实际的加工生产过程中, 根茎类药材饮片加工既包括切片也包括切段: 如果切片, 即 0.4 ~ 3 cm 是推荐厚度; 如果切段, 则 6 ~ 8 cm 是推荐厚度。药材的产地加工需要根据实际情况进行标准化, 以确保产品质量符合标准要求。不同切片厚度结合高中低三种烘干温度, 总蒽醌和五种蒽醌的含量及变化趋势呈现出了一定的相似性, 总蒽醌和五种蒽醌相互证实, 证明了规律的可信度。

#### 参考文献

- Chinese Pharmacopoeia Commission. Pharmacopoeia of the People's Republic of China: Vol I (中华人民共和国药典: 第一部) [M]. Beijing: China Medical Science Press, 2015: 23.
- Northwest Institute of Plateau Biology, Chinese Academy of Sciences. Tibetan Medicine Glossary(藏药志) [M]. Xining: Qinghai People's Publishing House, 1991.
- Liu SW. Flora Qinghai: Vol 1(青海植物志: 第一卷) [M]. Xining: Qinghai People's Publishing House, 1997: 165.
- Li H, Hei XB, Li YM, et al. Accumulation profile of nine constituents in different years old stage and part of *Rheum palmatum* L. by HPLC analysis [J]. Nat Prod Res Dev(天然产物研究与开发), 2019, 31: 923-931.
- Duan JA, Su SL, Lyu JL, et al. Traditional experiences and modern cognition on primary processing of traditional chinese medicinal materials [J]. China J Chin Mater Med(中国中药杂志), 2009, 12: 3151-3157.
- Yang JJ, Zhang ZL. Purpose and significance of processing the medicinal plants in the producing area [J]. Lishizhen Med Mater Med Res(时珍国医国药), 2005, 16: 323-324.
- Song PS, Jin XJ, Zhao JB, et al. Influence on content of anthraquinones, phenolic acids by different processing methods in rhubarb [J]. Mod Chin Med(中国现代医药), 2012, 14(6): 46-49.
- Li Y, Miao XL, Wu PA, et al. Influences of different initial processing methods on *Rheum palmatum* [J]. J Chin Med Mater(中药材), 2011, 34: 1196-1199.
- Dai WY, Sun WH, Mao SJ, et al. Origin processing method research of Shuanshui rhubarb [J]. Chin J Exp Tradit Med Form(中国实验方剂学), 2010, 7: 90-93.
- Tang WW. Studies on drying methods and quality keep storage conditions of *Radix Et Rhizoma Rhei* [D]. Gansu: Gansu Agricultural university(甘肃农业大学), 2012.
- Xu DR, Qi H, Zhang M, et al. Contents of anthraquinone in processed rhubarbs obtained under different processing conditions [J]. Chin Wild Plant Res(中国野生植物资源), 2004, 6: 49-51.
- Rao WW, Zhou WJ. Research progress on standardization of traditional Chinese medicine production [J]. Chin J Inform TCM(中国中医药信息杂志), 2012, 19: 106-109.
- Tang LY, Wang ZJ, Song BS. Study on feasibility of cutting process of fresh *Angelica sinensis* Radix [J]. China J Chin Mater Med(中国中药杂志), 2010, 35: 3147-3140.
- Liu HC, Zhou GY, Nie XQ, et al. Drying method of *Rheum tanguticum* Maxim. ex Balf. [J]. Nat Prod Res Dev(天然产物研究与开发), 2017, 29: 1658-1665.
- Liu HC, Zhou GY, Nie XQ, et al. Dynamic change characteristics of rhubarb polysaccharide and anthraquinone derivatives content in cultivated *Rheum tanguticum* [J]. Chin J Pharm Anal(药物分析杂志), 2018, 38: 782-789.
- Zhang PZ, Su MS, Wang YQ, et al. Chemical constituents from *Gymnothecha involucreata* [J]. Chin Tradit Herb Drugs(中草药), 2016, 47: 3366-3369.
- Wei PY, Cui XC, Yang CG, et al. Secondary metabolites of *Paecilomyces verticillatus* [J]. Asia-Pacific Tradit Med(亚太传统医药), 2014, 10: 27-28.
- Li XF, Jee HJ, Lee KT, et al.  $\gamma$ -pyrone derivatives, kojio acid methyl ethers from a marine-derived fungus *Altenaria* sp. [J]. Arch Pharm Res, 2003, 26: 532-534.
- Song HC, Shen WY, Dong JY. Nematicidal metabolites from *Gliocladium roseum* YMF1.00133 [J]. Appl Biochem Micro, 2016, 52: 324-330.
- Wang B, Liu P, Shen YM, et al. Studies on the chemical constituents from herb of *Rhodobryum roseum* [J]. China J Chin Mater Med(中国中药杂志), 2005, 30: 895-897.
- Kokubun T, Kite GC, Veitch NC, et al. Amides and an alkaloid from *Portulaca oleracea* [J]. Nat Prod Comm, 2012, 7: 1047-1050.
- Nishihara Y, Takase S, Tsujii E, et al. New anti-influenza agents, FR198248 and its derivatives II. Characterization of FR198248, its related compounds and some derivatives [J]. J Antibiot, 2001, 54: 297-303.
- Pedras MSC, Yu Y, Liu J, et al. Metabolites produced by the phytopathogenic fungus *Rhizoctonia solani*: isolation, chemical structure determination, syntheses and bioactivity [J]. Z Naturforsch, 2005, 9: 717-722.

(上接第 2086 页)