

不同基原和规格化橘红的质量差异分析[△]

高泽林^{1*}, 张晓营^{1,2}, 麦宝愉¹, 林霞婷^{1,3}, 方家祺^{1,4}, 钟嘉锐¹, 詹若挺^{1,5}, 肖凤霞^{1,5#} (1. 广州中医药大学中药学院, 广州 510006; 2. 华润三九医药贸易有限公司, 广东深圳 518000; 3. 广东一方制药有限公司, 广东佛山 528226; 4. 北京中医药大学深圳医院药学部, 广东深圳 518000; 5. 岭南现代农业科学与技术广东省实验室茂名分中心, 广东茂名 525099)

中图分类号 R917;R282 文献标志码 A 文章编号 1001-0408(2022)07-0825-05
DOI 10.6039/j.issn.1001-0408.2022.07.10



摘要 目的 研究不同基原、规格化橘红的质量差异, 为化橘红产业的有序发展提供参考。方法 以不同基原[化州柚 *Citrus grandis* 'Tomentosa' 或柚 *Citrus grandis* (L.) Osbeck]、不同规格(橘红胎、柚果、“爪”等)的93批化橘红药材(饮片)为样品, 采用高效液相色谱法测定样品中柚皮苷、野漆树苷的含量, 并通过R语言的pheatmap参数按药材基原和规格[胎(幼)果和“爪”]绘制2种成分的含量热图。结果 93批样品中柚皮苷、野漆树苷的含量范围分别为16.52~214.64、1.03~10.96 mg/g; 在不同商品规格中, 以橘红胎中柚皮苷和野漆树苷含量均值最高(2种成分的含量均值分别为108.96、6.30 mg/g)。含量热图分析结果显示, 基原为化州柚的样品(毛橘红)中柚皮苷、野漆树苷的含量整体高于基原为柚的样品(光橘红); 且在2种基原化橘红药材的不同商品规格中, 均以胎(幼)果类样品中柚皮苷、野漆树苷的含量相对较高。结论 以化州柚为基原、商品规格为橘红胎的化橘红质量相对较好。

关键词 化橘红; 基原; 规格; 柚皮苷; 野漆树苷; 橘红胎; 含量测定; 质量评价

Analysis of quality difference of different specifications and different origins of Citri Grandis Exocarpium

GAO Zelin¹, ZHANG Xiaoying^{1,2}, MAI Baoyu¹, LIN Xiating^{1,3}, FANG Jiaqi^{1,4}, ZHONG Jiarui¹, ZHAN Ruoting^{1,5}, XIAO Fengxia^{1,5} (1. School of Traditional Chinese Medicine, Guangzhou University of Chinese Medicine, Guangzhou 510006, China; 2. China Resources Sanjiu Medical & Pharmaceutical Co., Ltd., Guangdong Shenzhen 518000, China; 3. EFONG Pharmaceutical Co., Ltd., Guangdong Foshan 528226, China; 4. Dept. of Pharmacy, Shenzhen Hospital of Beijing University of Chinese Medicine, Guangdong Shenzhen 518000, China; 5. Maoming Branch, Guangdong Laboratory for Lingnan Modern Agriculture, Guangdong Maoming 525099, China)

ABSTRACT OBJECTIVE To study the quality difference of different specifications of Citri Grandis Exocarpium from different origins, and to provide reference for the orderly development of Citri Grandis Exocarpium industry. **METHODS** Different specifications [*Citrus grandis* 'Tomentosa' young fruit, *Citrus grandis* (L.) Osbeck young fruits, exocarp] of 93 batches of Citri Grandis Exocarpium medicinal materials (decoction pieces) from different origins [*Citrus grandis* 'Tomentosa' or *Citrus grandis* (L.) Osbeck] were taken as samples. The contents of naringin and rhoifolin in samples were determined by HPLC. Through pheatmap parameters of R language, heatmap was drawn for the contents of naringin and rhoifolin according to origins and specifications (young fruit and exocarp). **RESULTS** Of 93 batches of samples, the contents of naringin and rhoifolin were 16.52-214.64 and 1.03-10.96 mg/g, respectively. Among different specifications, the contents of naringin and rhoifolin in the young fruit were the highest (their average contents were 108.96 and 6.30 mg/g respectively). Heatmap analysis of R language content showed that the contents of naringin and rhoifolin in Citri Grandis Exocarpium from origin of *C. grandis* 'Tomentosa' were generally higher than those from origin of *C. grandis* (L.) Osbeck. Of different specifications of Citri Grandis Exocarpium from 2

[△] 基金项目: 广东省农村科技特派员重点派驻任务项目(No. KTP20200136); 广东省岭南中药材规范化生产技术人才培养专项(No. 粤财社[2017]60号); 广东省现代农业产业技术体系创新团队项目(No. 粤农农函[2019]1019号); 广州中医药大学“专创融合”课程建设项目(No. 广中医校办[2020]53号)

* 硕士研究生。研究方向: 中药资源开发与新药研究。E-mail: gzlgz16789@163.com

通信作者: 教授, 博士生导师, 博士。研究方向: 中药资源开发与新药研究。E-mail: xfx92@163.com

origins, the contents of naringin and rhoifolin were higher in young fruit relatively. **CONCLUSIONS** The quality of Citri Grandis Exocarpium from origin of *C. grandis* 'Tomentosa' with the young fruit as specification is the best.

KEYWORDS Citri Grandis Exocarpium; origin; specification; naringin; rhoifolin; Citrus Grandis Tomentosa young fruit; content determination; quality evaluation

化橘红药用历史悠久,为广东化州的道地药材。2020年版《中国药典》(一部)规定:化橘红为芸香科植物化州柚 *Citrus grandis* 'Tomentosa' 或柚 *Citrus grandis* (L.)Osbeck 的未成熟或近成熟的干燥外层果皮^[1],前者习称“毛橘红”,后者习称“光橘红”,产地加工常压制为“五爪”或“七爪”(文中分别称为“毛橘红爪”和“光橘红爪”)。《新编中国药材学》中化橘红增录了橘红胎,指化州柚 *C. grandis* 'Tomentosa' 的干燥幼果^[2],《广东省地产药材商品规格目录》(1965年版)、《广东省中药炮制规范》(1984年版)、《广东中药志(第一卷)》(1994年版)也同样收录化州柚的干燥幼果为橘红胎;2021年,《广东省中药材标准》收录化州柚的干燥幼果为“化橘红胎(化橘红珠)”(后文统一称为“橘红胎”)^[3]。此外,《广东省中药材标准(第二册)》(2011年版)收录柚 *C. grandis* (L.)Osbeck 的幼果为“柚果”,指柚及其变种的干燥未成熟果实^[4]。

受化州柚资源濒危的影响,1977年版《中国药典》将柚增设为了化橘红药用基原。但随着国家中医药政策利好及化州道地药材产区的建设,到2021年,化州柚在化州地区的种植面积已达到11.2万亩^[5],种植规模足以满足市场的用药需求。目前,市场上流通的化橘红规格中不仅有国家药品标准中的“爪”,传统的“橘红胎”也重新成为化橘红的主流商品规格。因此,完善现有化橘红的质量评价标准已经成为产业发展的迫切需求。虽然有学者分别从药用基原、含量指标、药材直径、外果皮茸毛疏密程度等角度研究了不同因素对化橘红质量的影响^[6-12],但均不够全面、系统。鉴于此,本课题组较为全面地收集了市场上流通的93批不同基原和商品规格的化橘红药材(饮片),以柚皮苷和野漆树苷含量为评价指标,分析不同基原和规格化橘红的质量差异,以期促进化橘红产业有序发展。

1 材料

1.1 主要仪器

本研究所用的主要仪器有E2695型高效液相色谱(HPLC)仪(美国Waters公司),MILLI-Q型超纯水仪(德国Merk Millipore公司),KQ-3000B型超声波清洗机(郑州南北仪器设备有限公司),HHS-21-6型恒温水浴锅(上海博讯实业有限公司医疗设备厂),JY1001T型电子天平(上海衡平仪器仪表厂),AUY120型分析天平(瑞士Precisa公司),DQ-103/104/105型切片机、DFT-100型粉碎机(温岭市林大机械有限公司),MB25型红外水分测定仪[奥豪斯仪器(常州)有限公司]。

1.2 主要药品与试剂

本研究共收集了93批化橘红样品,包括药材46批、饮片47批,经广州中医药大学中药学院肖凤霞教授鉴定,基原为芸香科植物化州柚 *C. grandis* 'Tomentosa' 或柚 *C. grandis* (L.)Osbeck。根据药用基原,将化州柚的药材和饮片归为“毛橘红”,将柚的药材和饮片归为“光橘红”;根据采收期的不同确定商品规格,将干燥幼果分为“橘红胎”和“柚果”,将干燥外层果皮(包括部分中果皮)分为“爪”(按果皮割成5瓣或7瓣分为“五爪”或“七爪”)。93批化橘红药材(饮片)信息见表1。

表1 93批化橘红药材(饮片)信息

编号	名称	产地	规格	颜色	编号	名称	产地	规格	颜色
1	毛橘红药材	广东化州	橘红胎	黄绿	48	毛橘红饮片	广东化州	丝	棕色
2	毛橘红药材	广东化州	橘红胎	黄绿	49	毛橘红饮片	广东化州	丝	棕色
3	毛橘红药材	广东化州	橘红胎	黄绿	50	毛橘红饮片	广东化州	丝	棕色
4	毛橘红药材	广东化州	橘红胎	黄绿	51	毛橘红饮片	广东化州	丝	棕色
5	毛橘红药材	广东化州	橘红胎	黄绿	52	毛橘红饮片	广东化州	丝	棕色
6	毛橘红药材	广东化州	橘红胎	黄绿	53	毛橘红饮片	广东化州	丝	棕色
7	毛橘红药材	广东化州	橘红胎	黄绿	54	毛橘红饮片	广东化州	类圆片	黄棕
8	毛橘红药材	广东化州	五爪	黄绿	55	毛橘红饮片	广东化州	类圆片	黄棕
9	毛橘红药材	广东化州	七爪	黄绿	56	毛橘红饮片	广东化州	类圆片	黄棕
10	毛橘红药材	广东化州	七爪	黄绿	57	毛橘红饮片	广东化州	类圆片	黄棕
11	毛橘红药材	广东化州	五爪	黄绿	58	毛橘红饮片	广东化州	丝	棕色
12	毛橘红药材	广东化州	七爪	黄绿	59	毛橘红饮片	广东化州	丝	棕色
13	毛橘红药材	广东化州	五爪	黄绿	60	光橘红饮片	广西玉林	丝	棕色
14	毛橘红药材	广东化州	橘红胎	棕褐	61	光橘红饮片	广西河池	丝	黄棕
15	毛橘红药材	广东化州	橘红胎	棕褐	62	光橘红饮片	广西玉林	丝	黄棕
16	毛橘红药材	广东化州	七爪	黄绿	63	光橘红饮片	广东化州	丝	黄棕
17	毛橘红药材	广东化州	橘红胎	黄棕	64	光橘红饮片	广东化州	丝	黄棕
18	毛橘红药材	广东化州	七爪	黄绿	65	光橘红饮片	广东化州	丝	黄棕
19	毛橘红药材	广东化州	橘红胎	黄绿	66	光橘红饮片	广东化州	丝	黄棕
20	毛橘红药材	广东化州	橘红胎	黄绿	67	光橘红饮片	广东化州	丝	黄棕
21	毛橘红药材	广东化州	橘红胎	黄绿	68	光橘红饮片	广东化州	丝	黄棕
22	毛橘红药材	广东化州	橘红胎	黄绿	69	光橘红饮片	广东化州	片	黄棕
23	光橘红药材	广东化州	柚果	黄棕	70	光橘红饮片	广西玉林	片	黄棕
24	光橘红药材	广西河池	七爪	黄棕	71	光橘红饮片	广西玉林	片	黄棕
25	光橘红药材	广东化州	七爪	黄绿	72	光橘红饮片	广西玉林	片	黄棕
26	光橘红药材	广东化州	七爪	黄绿	73	光橘红饮片	广西玉林	片	黄棕
27	光橘红药材	广西玉林	七爪	黄棕	74	光橘红饮片	广西玉林	片	黄棕
28	光橘红药材	广东化州	七爪	黄棕	75	光橘红饮片	广西玉林	片	黄棕
29	光橘红药材	广东化州	七爪	黄绿	76	光橘红饮片	云南昆明	片	黄棕
30	光橘红药材	广东化州	七爪	黄棕	77	光橘红饮片	云南昆明	片	黄棕
31	光橘红药材	广东化州	七爪	黄绿	78	光橘红饮片	云南昆明	片	黄棕
32	光橘红药材	广西玉林	七爪	黄棕	79	光橘红饮片	云南昆明	片	黄棕
33	光橘红药材	广东化州	七爪	黄棕	80	光橘红饮片	云南昆明	片	黄棕
34	光橘红药材	广西玉林	柚果	棕褐	81	光橘红饮片	云南昆明	丝	黄棕
35	光橘红药材	广西玉林	柚果	棕褐	82	光橘红饮片	产地不详	丝	黄棕
36	光橘红药材	广西玉林	柚果	棕褐	83	光橘红饮片	产地不详	丝	黄棕
37	光橘红药材	广西玉林	柚果	棕褐	84	光橘红饮片	产地不详	丝	黄棕
38	光橘红药材	广西玉林	柚果	棕褐	85	光橘红饮片	产地不详	片	黄棕
39	光橘红药材	广西玉林	柚果	棕褐	86	光橘红饮片	产地不详	丝	黄棕
40	光橘红药材	广西玉林	柚果	棕褐	87	光橘红饮片	产地不详	丝	黄棕
41	光橘红药材	广西玉林	柚果	棕褐	88	光橘红饮片	产地不详	丝	黄棕
42	光橘红药材	广西玉林	柚果	棕褐	89	光橘红饮片	产地不详	丝	黄棕
43	光橘红药材	云南昆明	柚果	黄绿	90	光橘红饮片	产地不详	丝	黄棕
44	光橘红药材	广西玉林	柚果	黄绿	91	光橘红饮片	产地不详	丝	黄棕
45	光橘红药材	广东化州	柚果	黄棕	92	光橘红饮片	产地不详	丝	黄棕
46	光橘红药材	广东化州	柚果	黄绿	93	光橘红饮片	产地不详	丝	黄棕
47	毛橘红饮片	广东化州	丝	棕色					

柚皮苷对照品(批号110722-201815,纯度 $\geq 98\%$)、野漆树苷对照品(批号111919-201503,纯度 $\geq 98\%$)均购自中国食品药品检定研究院;冰乙酸、甲醇为色谱纯,其余试剂均为分析纯,水为超纯水。

2 方法与结果

2.1 药材(饮片)中水分含量测定

取表1中样品,除杂后处理成合适大小,粉碎,过3号筛,即得样品粉末。取样品粉末1.0 g,精密称定,置于红外水分测定仪中,于105℃下测定样品中水分的含量,每个样品平行测定3次,取平均值。结果显示,爪类药材的水分含量为6.64%~10.14%,均值为9.01%;橘红胎的水分含量为6.75%~8.73%,均值为8.28%;柚果的水分含量为5.50%~9.76%,均值为8.59%;饮片的水分含量为7.35%~10.34%,均值为8.49%。以上结果均符合相关标准规定(爪类药材的水分含量不高于11.0%^[1],橘红胎的水分含量不高于9.0%^[3],柚果的水分含量不高于13.0%^[1,4],饮片的水分含量不高于13.0%^[1])。结果见表2。

表2 化橘红药材(饮片)中水分含量及化橘红药材(饮片对应药材)的直径测定结果

编号	水分含量/%	直径/cm	编号	水分含量/%	直径/cm	编号	水分含量/%	直径/cm	编号	水分含量/%	直径/cm
1	8.46	5	25	9.35	14	49	10.05	—	73	7.39	5
2	8.52	4	26	8.78	15	50	10.34	—	74	8.42	5
3	8.52	6	27	7.92	21	51	10.10	—	75	7.82	7
4	8.47	7	28	9.62	21	52	9.22	—	76	8.78	6
5	8.37	5	29	9.85	19	53	9.36	—	77	8.82	7
6	8.52	5	30	6.64	20	54	7.77	—	78	8.96	7
7	8.42	4	31	9.13	18	55	8.17	—	79	9.00	7
8	9.38	15	32	10.14	20	56	7.88	—	80	8.91	7
9	9.73	20	33	8.21	21	57	7.82	—	81	7.35	6
10	10.09	21	34	8.74	6	58	8.17	—	82	8.29	7
11	8.81	13	35	8.33	6	59	8.33	—	83	8.57	7
12	9.51	17	36	8.78	6	60	8.02	—	84	8.06	8
13	8.51	17	37	9.76	10	61	7.51	—	85	8.06	—
14	7.39	3	38	8.78	6	62	7.98	—	86	8.25	—
15	6.75	3	39	9.63	7	63	8.10	7	87	9.27	—
16	9.13	18	40	8.37	5	64	7.94	7	88	9.80	—
17	8.19	6	41	8.49	3	65	7.73	6	89	9.62	—
18	8.36	18	42	7.98	5	66	7.88	7	90	9.18	—
19	8.73	3	43	9.09	8	67	7.77	7	91	8.17	—
20	8.53	5	44	9.22	6	68	8.02	6	92	8.21	—
21	8.40	4	45	5.50	8	69	8.82	5	93	8.57	—
22	8.67	6	46	7.98	7	70	8.54	4			
23	9.57	5	47	8.74	—	71	8.52	4			
24	9.09	20	48	8.65	—	72	7.88	5			

—:收集样品为饮片,未能测得原药材直径

2.2 药材直径测量

参照文献[12]方法,使用游标卡尺测量46批药材和22批饮片对应原药材的直径。其中,橘红胎、柚果药材采用横向与纵向直径的平均值代表其直径;五爪、七爪压片类药材通过测量周长计算其直径。结果显示,68批样品的直径为3~21 cm,均值为9.1 cm。其中橘红胎的直径为3~7 cm,均值为4.7 cm;柚果的直径为3~10 cm,均值为6.3 cm;毛橘红爪的直径为13~21 cm,均值为17.4 cm;光橘红爪的直径为14~21 cm,均值为18.9 cm。结果见表2。

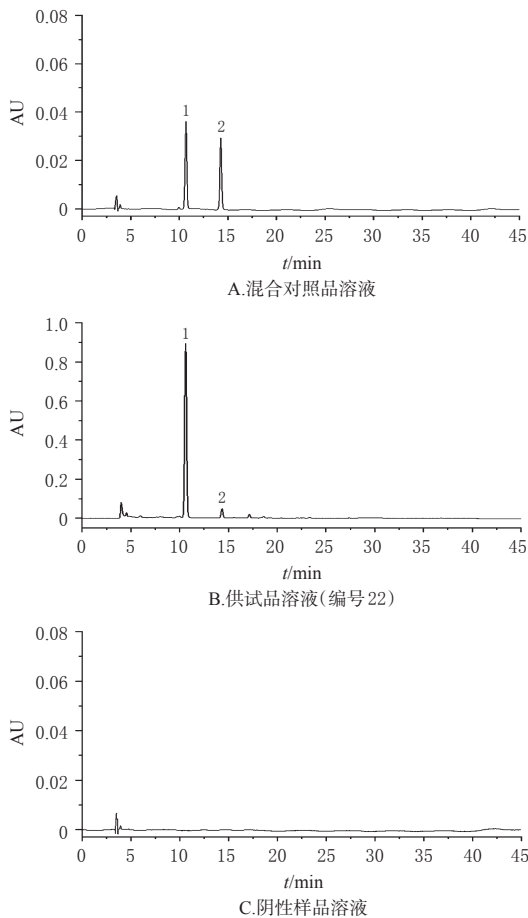
2.3 HPLC法测定柚皮苷和野漆树苷含量

2.3.1 溶液的制备 (1)混合对照品溶液:精密称取柚皮苷、野漆树苷对照品各适量,置于同一10 mL量瓶中,以甲醇溶解并定容,制备成上述成分质量浓度分别为2.08、1.03 mg/mL的混合对照品溶液,使用0.22 μm微孔滤膜过滤,收集滤液,即得。(2)供试品溶液:取表1中样品的粉末各0.5 g,精密称定,置于100 mL具塞锥形瓶中,精密加入石油醚50 mL,超声(功率500 W,频率40 kHz,下同)处理30 min,静置20 min,弃去上清液,置于80℃恒温水浴锅中挥干瓶中剩余的石油醚,精密加入甲醇50 mL,称定质量,超声,静置,冷却至室温;再次称定质量,并以甲醇补足减失的质量,摇匀,用0.22 μm微孔滤膜滤过,取续滤液,即得。(3)阴性样品溶液:取甲醇适量,用0.22 μm微孔滤膜滤过,取续滤液,即得。

2.3.2 色谱条件与系统适用性试验 色谱条件参考文献[13]设置。采用Thermo Bos Hypersil C₁₈色谱柱(250 mm×4.6 mm,5 μm),以甲醇为流动相A、冰乙酸-水(4:61, V/V)为流动相B进行梯度洗脱(0~35 min,25% A→55% A;35~38 min,55% A→25% A;38~45 min,25% A);紫外检测波长为283 nm;柱温为35℃;流速为1.0 mL/min;进样量为10 μL。取“2.3.1”项下各溶液适量,分别按此色谱条件进样测定,记录色谱图(见图1)。结果表明,柚皮苷、野漆树苷的色谱峰峰形良好,与相邻峰间的分离度均大于1.5;理论板数以柚皮苷峰计不低于3 000,对称因子在0.95~1.05之间,且阴性样品溶液对测定无干扰,说明本实验的系统适用性较好。

2.3.3 方法学考察 参考文献[13]以及2020年版《中国药典》(四部)分析方法验证指导原则^[14]进行方法学考察。以各待测成分峰面积的对数值(y)为纵坐标、进样量的对数值(x)为横坐标进行回归方程拟合,得到柚皮苷、野漆树苷的线性回归方程分别为 $y=7.2387x+5.9927$ ($r=0.9995$)、 $y=7.0312x+4.1634$ ($r=0.9995$),线性范围分别为0.02~2.08、0.01~1.03 mg/mL。精密度试验中,柚皮苷、野漆树苷峰面积的RSD分别为1.18%、1.50% ($n=5$),表明仪器精密度良好;重复性试验中,柚皮苷、野漆树苷含量的RSD分别为1.30%、1.44% ($n=6$),表明本方法的重复性良好;稳定性试验(室温放置24 h)中,柚皮苷、野漆树苷峰面积的RSD分别为0.57%、1.58% ($n=6$),表示供试品溶液在24 h内稳定性良好;加样回收率试验中,柚皮苷、野漆树苷的平均加样回收率分别为98.77%、98.43%,RSD分别为0.91%、1.15% ($n=6$),表明本方法的准确度较好;柚皮苷的检测限为3.288 5 μg/mL、定量限为10.951 6 μg/mL,野漆树苷的检测限为0.218 2 μg/mL、定量限为0.717 3 μg/mL,表明本方法的灵敏度较高。

2.3.4 样品含量测定 分别称取93批样品的粉末各0.5 g,分别按“2.3.1(2)”项下方法制备供试品溶液,然后



1: 柚皮苷; 2: 野漆树苷

图1 混合对照品溶液、供试品溶液和阴性样品溶液的HPLC图

按“2.3.2”项下色谱条件进样测定,记录峰面积,并采用外标法计算各成分的含量。每个样品平行测定3次,取平均值。结果显示,93批样品中柚皮苷、野漆树苷的含量范围分别为16.52~214.64、1.03~10.96 mg/g。在不同商品规格中,以橘红胎中柚皮苷、野漆树苷含量的均值最高(柚皮苷含量的均值为108.96 mg/g,野漆树苷含量的均值为6.30 mg/g)。结果见表3。

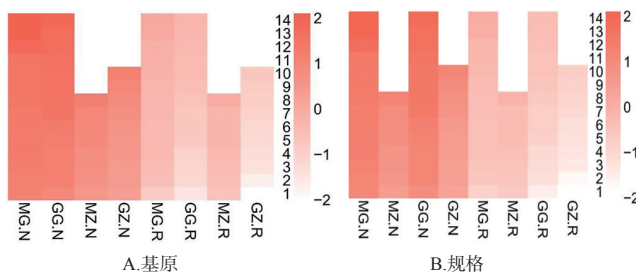
2.4 基原和规格对化橘红药材质量的影响

以46批化橘红药材(包括14批橘红胎、14批柚果、8批毛橘红瓜和10批光橘红瓜)为检测样本,以各样本中柚皮苷、野漆树苷含量为指标(因样品间柚皮苷与野漆树苷含量差异大,需先将原始数据经 \log_2 函数处理),使用R语言的heatmap参数按基原和规格分别绘制2个指标的含量热图(见图2),热图色块深浅表示指标成分含量的高低。由图2A可知,2种化橘红基原的胎(幼)果类和“瓜”类样品比较,橘红胎中柚皮苷、野漆树苷含量整体高于柚果,毛橘红瓜中柚皮苷、柚皮苷含量整体高于光橘红瓜。该结果提示,无论是胎(幼)果类还是“瓜”类药材中,均以毛橘红的质量为佳。由图2B可知,毛橘红不同规格样品中柚皮苷含量高低为橘红胎>毛橘红瓜,野漆树苷含量高低为橘红胎≈毛橘红瓜;光橘红不同规

表3 93批化橘红药材(饮片)中柚皮苷、野漆树苷含量测定结果($n=3$, mg/g)

编号	柚皮苷	野漆树苷	编号	柚皮苷	野漆树苷	编号	柚皮苷	野漆树苷
1	106.0179	6.9929	32	31.3629	2.2317	63	71.6721	1.2944
2	96.4790	5.8140	33	21.9784	2.5824	64	68.2485	1.0932
3	76.2860	7.4778	34	123.1156	5.5476	65	66.7800	1.0297
4	88.0338	10.3310	35	118.8486	4.3595	66	67.7082	1.0832
5	85.7324	2.4362	36	163.7392	6.3097	67	65.0734	1.0302
6	82.2032	6.0391	37	81.4235	3.1813	68	62.3766	1.1455
7	64.0328	7.3127	38	170.0787	5.0889	69	89.7622	1.5958
8	41.2604	4.5025	39	68.6833	1.9034	70	91.3036	1.4487
9	29.3194	4.6712	40	133.6773	3.1247	71	89.0591	1.7514
10	21.2912	3.7042	41	214.6411	5.7488	72	86.3591	1.5351
11	72.1164	8.6459	42	112.1982	2.8710	73	87.3065	1.4147
12	34.4478	6.2724	43	77.9076	3.5810	74	92.3331	1.4914
13	49.2843	6.0136	44	67.0377	1.6113	75	69.5480	3.0285
14	188.6148	4.8245	45	65.1784	1.5266	76	68.5721	3.0711
15	195.8215	4.2371	46	118.2104	5.1515	77	71.1226	3.1197
16	43.9587	6.1518	47	47.1767	3.5833	78	70.9315	3.2282
17	78.7446	5.4140	48	39.4695	1.7513	79	75.0432	3.3339
18	31.8822	5.2830	49	21.0112	2.1520	80	72.9544	3.3989
19	188.3066	10.9632	50	35.0066	1.6607	81	136.6229	4.5861
20	105.5600	5.3114	51	23.2286	2.2977	82	96.2877	1.6354
21	112.8557	5.2156	52	49.0180	6.2427	83	41.3228	1.2485
22	56.6915	5.8558	53	98.5865	3.7800	84	84.1729	2.2754
23	45.5544	1.8577	54	96.2132	8.1429	85	83.6711	7.4471
24	20.5133	3.2319	55	74.8601	5.2682	86	115.3670	4.3652
25	64.2420	1.3939	56	62.4806	6.9859	87	93.1037	3.9088
26	37.9096	1.8398	57	93.4541	10.1327	88	77.9654	2.6801
27	47.6947	1.4854	58	50.4976	1.9301	89	93.4314	3.8095
28	19.7633	1.2602	59	61.1698	6.6021	90	94.2957	3.8566
29	16.5193	1.6683	60	81.3509	2.8651	91	96.2442	4.0707
30	25.6239	1.0356	61	96.5268	7.9588	92	90.6170	3.8321
31	22.6851	1.4120	62	141.3864	4.3845	93	98.4563	4.0273

格样品柚皮苷含量高低为柚果>光橘红瓜,野漆树苷含量高低为柚果>光橘红瓜。该结果提示,在2种基原的化橘红药材中,均以胎(幼)果类样品的质量为佳。综合以上结果可知,在不同基原、不同规格化橘红样品中,以橘红胎的质量最佳。



N: 柚皮苷; R: 野漆树苷; MG: 橘红胎; MZ: 毛橘红瓜; GG: 柚果; GZ: 光橘红瓜

图2 46批化橘红药材中柚皮苷、野漆树苷的含量热图

3 讨论

化橘红药材直径可代表其采收期,而采收期不同会直接导致化学成分累积量的不同^[15],这提示药材直径大小可反映成分含量差异。本课题组通过分析药材直径,发现胎(幼)果类药材的直径普遍小于“瓜”类药材的直

径。水分限量检查是中药材鉴定的必要项目,本研究通过水分测定发现,93批不同基原和规格的化橘红药材(饮片)中水分含量均符合相关规定^[1,3]。

化橘红中主要含黄酮类化合物,其中又以柚皮苷、野漆树苷含量较高;同时,二者也是化橘红的主要药理活性成分^[6,16],所以本研究选择柚皮苷、野漆树苷含量作为质量评价指标。本研究同时收集了化橘红爪、橘红胎、柚果等不同规格的样品,与现有研究相比,收集的样品更全面、更具有代表性。含量测定结果显示,在不同规格样品中,以橘红胎中柚皮苷、野漆树苷的含量整体最高。目前,橘红胎已成为市场主流商品规格,并且在以前就已经出现将化州柚幼果炮制加工为橘红胎的记载^[17]。因此,笔者建议在下一版《中国药典》中收录橘红胎。

R语言是一种非编译型矩阵运算语言,其在数据探索、分析和作图方面具有一定优势,已被应用于生物信息学、医药学等多个领域^[18-20]。本研究运用R语言运算得到的含量热图显示,毛橘红和光橘红中柚皮苷、野漆树苷的含量存在差异,并且以毛橘红的质量为佳。并且,吴孟华等^[21]从性味理论的角度进行分析后认为毛橘红性温、光橘红性寒,说明这2种基原的药材不仅指标成分含量存在差异,其性味也存在差异。因此,笔者建议下一版《中国药典》可根据基原将毛橘红和光橘红加以区别或分列。

综上所述,本研究证实了以化州柚为基原的毛橘红质量为优,在众多商品规格中以橘红胎质量为最优。本课题组后续将探讨加工炮制、茸毛密度、颜色、仓储等因素对化橘红质量的影响,进一步完善化橘红的质量评价体系,从而保证化橘红产业更有序地发展。

参考文献

[1] 国家药典委员会.中华人民共和国药典:一部[S]. 2020年版.北京:中国医药科技出版社,2020:76.

[2] 黄璐琦,潘超美,杨全.新编中国药材学:第六卷[M].北京:中国医药科技出版社,2020:138-140.

[3] 广东省药品检验所.广东省地方中药材化橘红胎(化橘红珠)质量标准(草案)的公示[EB/OL]. (2020-12-24)[2022-01-19]. http://gdidc.gd.gov.cn/gdidc/notice/paper/content/post_3157342.html.

[4] 广东省食品药品监督管理局.广东省中药材标准:第二册[S].广州:广东科技出版社,2011:240-244.

[5] 化州市人民政府办公室.化州市人民政府办公室关于印发《化州特色农业发展总体规划(2018—2035)》《化州市化橘红(化州橘红)产业发展总体规划(2018—2035)》的

通知:化府办[2020]38号[EB/OL]. (2020-05-13)[2022-01-19]. http://www.huazhou.gov.cn/zwgk/szfbgswj/content/post_776997.html.

[6] LI P L, LIU M H, HU J H, et al. Systematic chemical profiling of *Citrus grandis* 'Tomentosa' by ultra-fast liquid chromatography/diode-array detector/quadrupole time-of-flight tandem mass spectrometry[J]. *J Pharm Biomed Anal*, 2014, 90: 167-179.

[7] 颀维民,曹宝帅,柳俊萍,等.化橘红药材外观颜色与柚皮苷含量相关性的探讨[J].*山西医药杂志*, 2020, 49(10): 1280-1281.

[8] 李琼霞,黎晓欣,谢承恩,等.不同直径化橘红果实中柚皮苷含量的比较[J].*中国当代医药*, 2018, 25(27): 38-41.

[9] 黄兰珍,梁照恒,林励,等.不同炮制方法对化橘红中柚皮苷含量的影响[J].*中药新药与临床药理*, 2005, 16(1): 59-61.

[10] 徐小飞.化橘红饮片炮制工艺及质量标准研究[D].广州:广州中医药大学,2012.

[11] 王建升,杨辉,刘俊玲.中药饮片的水分含量与储存养护[J].*中医药信息*, 2009, 26(1): 35-36.

[12] 陈小红,陈康,潘超美,等.化橘红药材商品规格等级标准分析[J].*中国实验方剂学杂志*, 2017, 23(11): 23-28.

[13] 李宇邦.基于一测多评法对毛橘红与光橘红的质量比较研究[D].广州:广州中医药大学,2017.

[14] 国家药典委员会.中华人民共和国药典:四部[S]. 2020年版.北京:中国医药科技出版社,2020:480.

[15] 袁旭江,林励,陈志霞.果龄对化橘红化学成分含量的影响[J].*中药新药与临床药理*, 2003, 14(3): 188-190.

[16] 张晓营,文廷芳,张雅洁,等.橘红胎饮片标准汤剂质量评价研究[J].*中药新药与临床药理*, 2021, 32(3): 406-413.

[17] 李泮霖,彭维,吴灏,等.化橘红药典标准的修改建议及其等级标准的建立[J].*中山大学学报(自然科学版)*, 2019, 58(6): 1-13.

[18] 王丽丽,赵娟.统计软件R在数理统计教学中的探索与应用[J].*科技视界*, 2020(36): 128-130.

[19] 黎中彦,陈建超.R语言在《应用多元统计分析》教学中的应用[J].*大众科技*, 2020, 22(9): 120-123.

[20] 雍婧姣,王霞,石思佳,等.基于R语言的近红外光谱对甘草中指标成分定量分析[J].*中国实验方剂学杂志*, 2019, 25(9): 176-181.

[21] 吴孟华,钟楚楚,余品皓,等.橘红与化橘红的古今演变探析[J].*中国中药杂志*, 2021, 46(3): 736-744.

(收稿日期:2021-10-04 修回日期:2022-03-07)

(编辑:林静)