

PŘEHLEDY A ODBORNÁ SDĚLENÍ

Pokroky ve využití instrumentálního měření barevnosti ve vývoji, výrobě a v kontrole jakosti léčiv, léčivých přípravků a farmaceutických pomocných látek II*

Advances in the use of instrumental measurement of colour in the development, production and quality control of drugs, medicinal preparations and pharmaceutical auxiliary substances II*

Jan Šubert • Jozef Čižmárik

Došlo 17. dubna 2014 / Přijato 15. května 2014

Souhrn

Příspěvek shrnuje využití instrumentálního měření barevnosti v oblasti přírodních léčiv a dalších zdraví prospěšných látek přírodního původu v posledních 10 letech. Nejčastěji se měření barevnosti v této oblasti uplatnilo při sledování různých aspektů procesu sušení léčivých rostlin a jejich částí.

Klíčová slova: měření barevnosti • barevné prostory • léčivé rostliny

Summary

The paper summarizes the use of instrumental colour measurement in the field of pharmaceuticals of natural origin and other substances of natural origin beneficial for health in recent 10 years. Colour measurement in this field was most frequently employed in the monitoring of various aspects of the process of drying of medicinal plants and their parts.

Keywords: colour measurement • colour spaces • medicinal plants

Úvod

Instrumentální měření v trichromatickém systému významně zvyšuje možnosti objektivního posuzování barevnosti a jejích změn. Přesto dosud není ani v oblasti léčiv, léčivých přípravků a dalších zdraví prospěšných látek přírodního původu instrumentální měření barevnosti běžně používanou metodou. Výjimkou je sledování procesů sušení léčivých a dalších rostlin a přípravků obsahujících zdraví prospěšné látky přírodního původu, výsledky z této oblasti však většinou byly publikovány v jiném než farmaceutickém odborném tisku. Příspěvek navazuje na předchozí zpracování problematiky¹⁾ a shrnuje vývojové trendy a aplikace od roku 2004. I v této oblasti převládalo ve sledovaném období využití parametrů barevného prostoru CIE L*a*b*, CIELAB (v polárních souřadnicích CIE L*C*h, CIELCH). Často používán je i zde barevný prostor podle Huntera (Hunter L, a, b). Barevné prostory RGB a CIE XYZ nebyly využívány v aplikacích z dané oblasti často a další barevné prostory, jako ANLAB²⁾, HSV³⁾, YIQ³⁾, CIEDE2000⁴⁾ a YCbCr^{3, 5)} jen ojediněle. Barevné prostory RGB, HSV, YIQ, CIELAB a YCbCr (charakterizace včelích medů³⁾, CIELCH a CIELAB (identifikace některých typů medů⁶⁾, RGB a CIE XYZ (hodnocení jakosti tradičních čínských léčiv⁷⁾ či RGB a YCbCr (identifikace rostlin používaných k léčbě revmatoidní artritidy⁵⁾ byly v kombinaci s dalšími postupy východiskem k novým klasifikačním a kontrolním postupům. Souběžně ale nejsou různé barevné prostory používány velmi často (jako další příklady kdy ano, mohou být prostory CIE XYZ, CIELAB, Hunter L, a, b, ANLAB, CIELCH v práci²⁾ RGB, HSV, YIQ, CIELAB, YCbCr³⁾, CIE XYZ, Yxy, CIELAB, CIELCH, Hunter⁸⁾ nebo RGB, CIE XYZ, CIELAB, CIELCH⁹⁾. Kolorimetrické parametry byly získávány téměř výlučně přímým měřením specializovanými měřidly, výpočtem ze spekter odrazu či prostupu získaných spektrofotometricky jen výjimečně. I v oblasti přírodnin jsou rozvíjeny aplikace založené na obrazové analýze, příklady mohou být práce^{3, 4, 7, 9–11)}.

*Část I: Čes. slov. Farm. 2013; 62, 65–70.

prof. RNDr. Jan Šubert, CSc. (✉)
Dušínova 1512, 664 34 Kuřim
e-mail: jan.subert@gmail.com

Dr.h.c., prof. RNDr. Jozef Čižmárik, PhD.
Univerzita Komenského v Bratislave, Farmaceutická fakulta, Katedra farmaceutickej chémie, SR

Číselný popis barvy léčivých a zdraví prospěšných přírodních produktů a jejich změn v důsledku technologických procesů

Souřadnice barevného prostoru CIELAB a parametr C* byly použity v rámci snahy o standardizaci propolisu k číselnému popisu barvy většího počtu vzorků a jejich rozdělení na dva základní typy lišící se mimo barvu antioxidační aktivitou a obsahem některých důležitých látek¹²⁾. Několik dalších prací bylo věnováno kolorimetrickému popisu a charakterizaci různých typů včelího medu pocházejícího z odlišných zdrojů a lokalit. Uplatnily se přitom parametry barevných prostorů CIELAB^{3, 13, 14)} CIELAB/CIELCH⁶⁾, anebo CIE XYZ a CIELAB/CIELCH¹⁵⁾. Většina aplikací z dané oblasti však byla při popisu a hodnocení barvy plodů či semen léčivých a dalších zdraví prospěšných rostlin. Příkladem mohou být plody bezu černého, jejichž barva byla popsána kolorimetrickými parametry v barevných prostorech CIE XYZ, CIELAB, Hunter L, a, b, ANLAB, CIELCH v práci²⁾, plody 10 genotypů dřínu obecného (popis v prostoru CIELAB hodnotami souřadnic L*, a*, b*¹⁶⁾, dvou druhů dříví popsaných souřadnicemi v barevném prostoru Hunter L, a, b¹⁷⁾ anebo plody šesti kultivarů brusnic v prostorech CIELAB a CIEDE2000⁴⁾. V práci¹⁸⁾ popisují autoři barvy plodů dvou kultivarů zimolezu modrého v průběhu jejich dozrávání hodnotami souřadnic L*, a*, b* v barevném prostoru CIELAB, v další pak barvu plodů a listů čtyř kultivarů temnoplodce černoplodého¹⁹⁾. Zbarvení plodů rakytníku řešetlákového sklizených v různých fázích zralosti je v barevném prostoru CIELAB (hodnoty souřadnic L*, a*, b*) popsáno autory²⁰⁾.

Další skupina prací byla zaměřena na sledování změn zbarvení v průběhu uchovávání plodů či jiného materiálu rostlinného původu. Změny barvy plodů různých kultivarů brusnic při jejich třítydenním uchovávání popisují v práci⁴⁾ hodnoty L* a ΔE_{00} . Podstatně dlouhodobější bylo sledování změn barvy a dalších ukazatelů u kořenů křenu selského uchovávaného 10 měsíců při teplotě 0–1 °C, které popisují autoři²¹⁾ hodnotami souřadnic v barevném prostoru Hunter L, a, b a indexu žlutosti. Změny zbarvení a dalších ukazatelů jakosti potočnice lékařské byly sledovány po jejím blanširování, zmrazení a uchovávání při teplotách –7 až –30 °C porovnáváním hodnot souřadnic a parametru C v barevném prostoru Hunter L, a, b²²⁾. Další práce byly věnovány sledování barevných změn sušeného rostlinného materiálu v závislosti na podmínkách jeho uchovávání. U práškových plodů papriky roční byly zjišťovány barevné změny po zvýšení obsahu vlhkosti o 1–5 % a sledovány v barevných prostorech CIELAB/CIELCH se závěrem, že až +3 % vlhkosti způsobí signifikantní změny hodnot kolorimetrických parametrů²³⁾. U sušeného česneku setého byla sledována kinetika barevných změn při jeho uchovávání v podmínkách teploty 20–50 °C a relativní vlhkosti 30–90 % a popisována souřadnicemi v barevném prostoru Hunter L, a, b, a hodnotami barevného rozdílu $\Delta E^{24)}$. Vliv dlouhodobého (24 týdnů) působení vlhkosti (až 75 %) na důležité obsahové látky, mikrobiologickou čistotu a barvu sušených listů jitrocele kopinatého byl sledován s využitím parametrů barevného prostoru CIELAB v práci²⁵⁾. Ve stejném barevném prostoru autoři²⁶⁾ v rámci

studia složení a fyzikálně chemických charakteristik popsalí hodnotami souřadnic L*, a*, b* barvu oleje ze semen černuchy seté dvojího původu. Vliv stupně fermentace na obsahové látky a další ukazatele byl sledován u čajů z pupečníku asijského, barva vodného výluhu z nefermentovaného, částečně fermentovaného a plně fermentovaného čaje byla popsána hodnotami souřadnic barevného prostoru CIELAB L*, a*, b* a je světlejší než vodné výluhy z čajovníku čínského sledované souběžně²⁷⁾. Obdobný výzkum byl proveden u nálevu z listů čajovníku čínského fermentovaných z 0–80 %, barva vodných výluhů popisovaná hodnotami souřadnic v barevném prostoru CIELAB byla ovlivněna více koncentrací teaflavinu než koncentrací tearubiginu²⁸⁾. V jiné studii kvality nefermentovaných, částečně fermentovaných a fermentovaných čajů z čajovníku čínského (celkem 58 vzorků) byly sledovány hodnoty Δa , Δb a ΔL vodných výluhů sledovaných vzorků čajů se závěrem, že jsou dobře použitelnými ukazateli jakosti čajů a hodnoty Δa výluhů umožňují rozlišení mezi zelenými a černými čaji²⁹⁾. Autoři³⁰⁾ sledovali vliv teploty vody v rozmezí 20–100 °C při extrakci usušené a rozdrobněné kopretiny řimbaby na obsah fenolických látek, parthenolidů a barvu extraktů, k tomu použili kolorimetrické parametry L*, a*, b*, C*, h. Zjistili výraznou změnu barvy extraktů v závislosti na teplotě, při teplotách vody 20–70 °C byly hnědavě zbarvené, při teplotách 80–100 °C byly žlutě zbarvené a světlejší, současně se měnil obsah důležitých účinných látek. Studie³¹⁾ byla zaměřena na hledání optimálních podmínek (teplota a čas) pro extrakci květů ibišku súdánského vodou a pro koncentrování extraktu. Hodnoty souřadnic L*, a*, b* v barevném prostoru CIELAB se měnily více s teplotou než s dobou extrakce.

Jiným typem prací využívajících instrumentálního měření barevnosti je sledování vlivu různých energetických polí, aplikovaných při mikrobiologické dekontaminaci přírodnin či z jiných důvodů, na barvu vzorku. Paprika roční byla po tepelné sterilizaci uchovávána 3 měsíce při 18–20 °C a v chladničce při 4–6 °C, sledovány byly parametry barevného prostoru CIELAB/CIELCH L*, a*, b*, h³²⁾. Kozinec blanitý byl dekontaminován elektronovým paprskem 2–16 kGy, barva vzorků popsána hodnotami souřadnic v barevném prostoru Hunter L, a, b se v dalším tříměsíčním sledování měnila v zanedbatelné míře³³⁾. Ozáření vodných extraktů z usušené a rozdrobněné houby rezavce šikmého gama zářením 3–10 kGy zlepšovalo v míře závislé na dávce záření jejich barevné vlastnosti (nárůst hodnot souřadnic L a b a pokles hodnot souřadnice a v barevném prostoru podle Huntera), mimoto ozáření příznivě ovlivňovalo antioxidační vlastnosti extraktů³⁴⁾. Gama záření (1–50 kGy) bylo použito také k částečné depolymeraci kyseliny hyaluronové, jejíž zbarvení se ozářením měnilo v hodnotách souřadnic barevného prostoru Hunter L, a, b jen mírně³⁵⁾. V další studii byla kyselina hyaluronová depolymerována ozářením elektronovým paprskem, gama zářením, mikrovlnným zářením a teplem a byl sledován vliv těchto zásahů na její zbarvení (Hunter L, a, b) se závěrem, že největší změny (zejména v hodnotě souřadnice b) způsobilo záření mikrovlnné³⁶⁾. Při sledování kinetiky změn barvy ve vodě rozpustných barevných obsahových látek šafránu za zvýšené teploty působením denního světla byly použity

Tab. 1. Využití instrumentálního měření barevnosti při řešení problémů souvisejících se sušením léčivých a dalších zdraví prospěšných rostlin

Rostlina a její část	Použité kolorimetrické parametry a zaměření práce	Lit.
aksamitník vzpřímený (<i>Tagetes erecta</i> L.) květ	L, a, b, ΔE, změny barvy a dalších ukazatelů při různých způsobech sušení	41
aktinidie čínská (<i>Actinidia deliciosa</i> F.C. Liang et A. R. Ferguson) plod	L, a, b, ΔE, h, BI, kinetické modely změn barvy při horkovzdušném sušení	38
bazalka pravá (<i>Ocimum basilicum</i> L.) nať	L, a, b, ΔE, C, h, BI, kinetika změn barvy při mikrovlnném sušení	39
cesmína paraguayská (<i>Ilex paraguariensis</i> A. St. Hil.) list	L, b, vliv přerušovaného sušení na kinetiku, barvu a další ukazatele jakosti L*, a*, b*, sledování mikrovlnného sušení listů a větvíček, změn jejich barvy a dalších ukazatelů	42 43
čajovník čínský (<i>Camellia sinensis</i> L.) nefermentovaný list	L*, a*, b*, ΔE, C*, h, BI, kinetika změn kolorimetrických parametrů při horkovzdušném sušení ΔE, C*, BI, L*, h, vliv podmínek vakuového mikrovlnného sušení na kolorimetrické parametry a další ukazatele	9 40
česnek kuchyňský (<i>Allium sativum</i> L.) cibule	L*, a*, b*, kinetika, spotřeba energie, jakost (včetně barvy) při kombinovaném sušení	44
dříšťál obecný (<i>Berberis vulgaris</i> L.) plod	L, a, b, ΔE, h, kinetika a jakost při horkovzdušném sušení upravených plodů	45
kopr vonný (<i>Anethum graveolens</i> L.) list	L, a, b, a/b, kinetika a vliv podmínek horkovzdušného sušení na barvu	46
kopřiva dvoudomá (<i>Urtica dioica</i> L.) list	L, a, b, C, h, spotřeba energie a barva listů při různých způsobech sušení L*, a*, b*, C*, h, porovnání při různých způsobech sušení	47 48
máta klasnatá (<i>Mentha spicata</i> L.) list	L*, a*, b*, h, ΔE, kinetika mikrovlnného sušení	49
meduňka lékařská (<i>Melissa officinalis</i> L.) list	h, vliv konvektivního sušení na barvu a obsah důležitých látek	50
mochyně peruánská (<i>Physalis peruviana</i> L.) plod	L*, a*, b*, C*, h, vliv různých metod sušení na barvu a další ukazatele jakosti	51
oliva evropská (<i>Olea europea</i> L.) list	L*, a*, b*, barva a další ukazatele u čerstvých a sušených (IR) listů	52
paprika roční (<i>Capsicum annuum</i> L.) plod	C*, změny barvy při horkovzdušném sušení L*, a*, b*, C*, h, vliv způsobu sušení a doby uchovávání L*, a*, b*, C*, h, vliv teploty vzduchu při sušení na barvu a další ukazatele jakosti	53 54 55
pelyněk estragon (<i>Artemisia dracunculus</i> L.) list	L*, C*, h, vliv podmínek sušení na barvu a obsah silice při uchovávání L*, C*, h, vliv podmínek sušení na barvu	56 8
petržel obecná (<i>Petroselinum crispum</i> L.) list	L*, a*, b*, C*, h, vliv podmínek mikrovlnného sušení na barvu L, a, b, a/b, kinetika a vliv podmínek sušení na barvu L*, a*, b*, hodnocení barvy a jiných markerů různých metod sušení	57 46 58
pískavice řecké seno (<i>Trigonella foenum-graecum</i> L.) nať	L*, a*, b*, ΔE, C*, h, vliv různých způsobů sušení na barvu a další ukazatele jakosti	59
pupečník asijský (<i>Centella asiatica</i> L.) nať	L, h, ΔE, vliv teploty a vlhkosti při horkovzdušném sušení	60
rozmáryna lékařská (<i>Rosmarinus officinalis</i> L.) list	L, a, b, a/b, kinetika a vliv způsobu sušení na barvu a obsah některých prvků	61
šalvěj lékařská (<i>Salvia officinalis</i> L.) list	L*, a*, b*, h, C*, ΔE, vliv způsobu sušení na barvu	62
třezalka tečkovaná (<i>Hypericum perforatum</i> L.) nať	L, C, h, vliv způsobu a teploty sušení na barvu a na obsah hypericinu	63
třezalka tečkovaná (<i>Hypericum perforatum</i> L.) list	ΔE, C*, vliv podmínek horkovzdušného sušení na barvu	64
vavřík pravý (<i>Laurus nobilis</i> L.) list	L*, a*, b*, C*, ΔE, vliv podmínek sušení na barvu a na obsah silice	65
všehoj pětilistý (<i>Panax quinquefolius</i> L.) kořen	L*, vliv podmínek sušení na barvu a na obsah ginsenosidů	10
zázvor lékařský (<i>Zingiber officinale</i> Roxb.) oddenek	L*, a*, b*, ΔE, vliv podmínek sušení na barvu, obsah silice a její složení L*, a*, b*, C*, h, kinetika sušení a vliv sušení na kolorimetrické parametry	66 67

parametry barevného prostoru CIELAB/CIELCH a některé další méně běžné kolorimetrické parametry³⁷⁾.

Studium průběhu dehydratace rostlin a jejich částí

Hlavní oblast využití instrumentálního měření barevnosti v oblasti léčiv přírodního původu a jiných zdraví prospěšných přírodnin ve sledovaném období bylo sledování procesů sušení a jiných způsobů dehydratace rostlin a jejich částí. Příklady jsou uvedeny v tabulce 1. Specifickým ukazatelem používaným v některých aplikacích tohoto typu je kolorimetrický index hnědosti BI, který charakterizuje čistotu hnědé barvy jako důležitého ukazatele spojeného s hnědnutím rostlinného materiálu v průběhu jeho sušení. Vyčísluje se jako $BI = [(100(x - 0,31))] / 0,17$ kde $x = (a^* + 1,75L^*) / 5,645L^* + a^* - 3,012b^*$ ^{9, 38–40)}.

Mimo aplikace uvedené v tabulce 1 bylo instrumentální měření barevnosti použito v četných dalších pracích obdobného zaměření, např. u rakytníku řešetlákového (L^* , a^* , b^* , ΔE)⁶⁸⁾, tužebníku jilmového a vrby bílé Hunter (L , a , b , C , h)⁶⁹⁾ a jiných léčivých a zdraví prospěšných rostlin a jejich částí^{70–72)}, anebo z nich připravených přípravků^{73, 74)}.

Analytické aplikace a korelace barevnosti s obsahem důležitých přírodních látek

Dosavadní využití instrumentálního měření barevnosti v oblasti analytiky léčivých rostlin a dalších přírodnin není vzhledem k jejich komplikovanému složení a dalším faktorům srovnatelné s využitím této metody v oblasti analytiky syntetických léčiv a tato léčiva obsahující léčivé přípravky. Do oblasti kvalitativní analytiky přírodnin lze zařadit všechny aplikace popisující číselně barevnost. Pouze v ojedinělých případech^{5, 13, 75)} však autoři zmiňují identifikaci vzorků, častěji je vzhledem k variabilitě složení a vlastností zkoumaného materiálu popsáno pouze typové odlišení a zařazení mezi vzorky obdobného složení či původu, jako např. u včelího medu^{3, 6, 14, 84)} nebo propolisu¹²⁾, účinnou pomůckou je přitom často chemometrie. Např. autoři⁶⁾ popisují použití kolorimetrických parametrů L^* , C^* , h v kombinaci s chemometrií k rozlišení 17 typů jednodruhových medů z různých částí Evropy a ve studii¹⁴⁾ s použitím kolorimetrických parametrů L^* , a^*b^* a HPLC totéž u šesti typů jednodruhových medů z převážně jiné části Evropy. V kvantitativní analytice klasické analytické aplikace instrumentálního měření barevnosti vzhledem ke složitosti a proměnlivosti složení většiny v úvahu přicházejících přírodnin nejsou dosud rozvinuty. Situace je tedy odlišná než u léčiv syntetického původu a z nich odvozených léčivých přípravků. Východiskem pro analytické aplikace v praxi v oblasti rostlin a jejich částí a dalších přírodnin mohou být výsledky studia korelace mezi kolorimetrickými parametry a obsahem důležitých přírodních látek či jejich skupin. Analytickým signálem je v těchto případech vhodně volený kolorimetrický parametr, analytem pak stanovované obsahové látky nebo jejich skupiny a často se jedná o korelace lineární. V řadě případů však hodnoty korelačních koeficientů naznačují možnost nanejvýš jen rychlého semikvantitativního stanovení než cestu pro kvantitativní analýzu. Příkla-

dy analyticky využitelných korelací mohou být korelace hodnot b^* nebo C^* s obsahem karotenoidů a β -karotenu v květech tykve obrovské⁷⁶⁾, korelace hodnot souřadnice x s obsahem β -karotenu ve včelím medu¹⁵⁾, korelace hodnot a^{*4} anebo $(a^*/b^*)^{2,5}$ s obsahem lykopenu v rajčatech⁷⁷⁾, korelace hodnot a^* s obsahem karotenoidů a hodnot b^* anebo C^* s obsahem luteinu v jiném rostlinném materiálu (tykve a dýně *Cucurbita* ssp.)⁷⁸⁾, korelace hodnot souřadnice a^* s obsahem anthokyaninů v plodech bobkovišně lékařské⁷⁹⁾, korelace hodnot C^* s obsahem fenolických látek a flavonoidů v propolisu¹²⁾. U včelích medů s obsahem fenolických látek podle⁸⁰⁾ korelovaly s vyšší hodnotou korelačního koeficientu než hodnoty parametru ΔE hodnoty souřadnice b^* , u medů z jiné části světa korelovaly s obsahem fenolických látek nejlépe hodnoty souřadnice L^* a a^{*3} , ve studii⁸¹⁾ pak hodnoty souřadnice a^* a podle¹⁴⁾ souřadnice a^* a L^* , přičemž i v případě souřadnice b^* byla hodnota korelačního koeficientu statisticky významná ($p < 0,05$)¹⁴⁾. Pro orientační stanovení obsahu polyfenolů v nati kakostu Thumbergova by mohla být užitečná lineární korelace hodnot L^* naměřených po barevné reakci vodného extraktu vzorku s roztokem chloridu železitého⁸²⁾. Korelace kolorimetrických parametrů s antioxidační aktivitou lze využít k rychlému stanovení tohoto důležitého ukazatele. Příkladem v tomto směru může být korelace hodnot L^* , a^* , b^* s antioxidační aktivitou (FRAP) rajčat⁸³⁾ anebo hodnot b^* s antioxidační aktivitou (TEAC) včelího medu⁸⁰⁾. U medů z jiné části světa korelovaly s antioxidační aktivitou (FRAP) nejlépe hodnoty souřadnice L^* ³⁾. Ve studii⁸¹⁾ korelovaly s antioxidační aktivitou (FRAP, DPPH) nejlépe hodnoty souřadnice a^* , podle¹⁴⁾ korelovaly s antioxidační aktivitou (FRAP, DPPH) lépe než souřadnice b^* hodnoty souřadnic a^* a L^* , resp. L^* a a^* . Zajímavá je také korelace hodnot souřadnice L^* s koncentrací As, Cd, Fe, Pb, S a Ca u tmavých typů včelího medu, zatímco u světlejších medů je situace odlišná⁸⁴⁾.

Střet zájmů: žádný.

Autoři děkují PharmDr. M. Potužákovi za korekturu botanických názvů rostlin a za další připomínky k textu příspěvku.

Literatura

1. Šubert J., Čížmárik J. Application of instrumental colour measurement in development and quality control of drugs and pharmaceutical excipients. *Pharmazie* 2008; 63, 331–336.
2. Vulič J. J., Vračar L. O., Šumič Z. M. Chemical characteristics of cultivated elderberry fruit. *APTEFF* 2008; 39, 85–90.
3. Shafiee S., Minaei S., Moghaddam-Charkari N., Barzegar M. Honey characterization using computer vision system and artificial neural networks. *Food Chem.* 2014; 159, 143–150.
4. Matiacevich S., Cofré D. C., Silva P., Enrione J., Osorio F. Quality parameters of six cultivars of blueberry using computer vision. *Int. J. Food Sci.* 2013; Article ID 419535, 8 pages. <http://dx.doi.org/10.1155/2013/419535> (12. 4. 2014).
5. Nandyal S., Bagewadi S. Automated identification of plant species from images of leaves and flowers used in the diagnosis of arthritis. *IJREAT* 2013; 1(5), 1–10. www.ijreat.org (12. 4. 2014).
6. Tuberoso C. I. G., Jerković I., Sarais G., Congiu F., Marijanović Z., Kuš P. M. Color evaluation of seventeen European unifloral honey types by means of spectrophotometrically determined CIEL* C^*_{ab} h°_{ab} chromaticity coordinates. *Food Chem.* 2014; 145, 284–291.

7. Wang J., Zeng L., Zang Q., Gong Q., Li B., Zhang X., Chu X., Zhang P., Zhao Y., Xiao X. Colorimetric grading scale can promote the standardization of experiential and sensory evaluation in quality control of traditional Chinese medicines. *PLoS ONE* 2012; 7(11), e48887. doi:10.1371/journal.pone.0048887 (12. 4. 2014).
8. Arabhosseini A., Padhye S., Huisman W., van Boxtel A., Müller J. Effect of drying on the color of tarragon (*Artemisia dracunculoides* L.) leaves. *Food Bioprocess Technol.* 2011; 4, 1281–1287.
9. Shahabi M., Rafiee S., Mohtasebi S. S., Hosseinpour S. Image analysis and green tea color change kinetics during thin-layer drying. *Food Sci. Technol. Int.* 2013; June 10, doi:10.1177/1082013213492524.http://fst.sagepub.com/ (12. 4. 2014).
10. Davidson, V. J., Li, X., Brown, R. B. Forced-air drying of ginseng root: 1. Effects of air temperature on quality. *J. Food Eng.* 2004; 63, 361–367.
11. Fathi M., Mohebbi M., Razavi S. M. A. Application of image analysis and artificial neural network to predict mass transfer kinetics and color changes of osmotically dehydrated kiwifruit. *Food Bioprocess Technol.* 2011; 4, 1357–1366.
12. Falcão S. I., Freire C., Vilas-Boas M. A proposal for physicochemical standards and antioxidant activity of Portuguese propolis. *J. Am. Oil Chem. Soc.* 2013; 90, 1729–1741.
13. Kasperová J., Nagy J., Popelka P., Dičáková Z., Nagyová A., Malá P. Physico-chemical indicators and identification of selected Slovak honeys based on colour measurement. *Acta Vet. Brno* 2012; 81: 057–061; doi:10.2754/avb201281010057 (12. 4. 2014).
14. Kuś P. M., Congiu F., Teper D., Sroka Z., Jerković I., Tuberoso C. I. G. Antioxidant activity, color characteristics, total phenol content and general HPLC fingerprints of six Polish unifloral honey types. *LWT Food Sci. Technol.* 2014; 55, 124–130.
15. Nikolova K., Gentsheva G., Ivanova E. Survey of the mineral content and some physico-chemical parameters of Bulgarian bee honeys. *Bulg. Chem. Commun.* 2013; 45, 244–249.
16. Vidrih R., Čejčić Ž., Hribar J. Content of certain food components in flesh and stones of the cornelian cherry (*Cornus mas* L.) genotypes. *Croat. J. Food Sci. Technol.* 2012; 4, 64–70.
17. Ardestani S. B., Sahari M. A., Barzegar M., Abbasi, S. Some physicochemical properties of Iranian native barberry fruits (*abi* and *poleoi*): *Berberis integerrima* and *Berberis vulgaris*. *J. Food Pharm. Sci.* 2013; 1, 60–67.
18. Ochmian I., Skupien K., Grajkowski J., Smolik M., Ostrowska K. Chemical composition and physical characteristics of fruits of two cultivars of blue honeysuckle (*Lonicera caerulea* L.) in relation to their degree of maturity and harvest date. *Not. Bot. Horti Agrobot. Cluj-Napoca* 2012; 40, 155–162.
19. Ochmian I., Grajkowski J., Smolik M. Comparison of some morphological features, quality and chemical content of four cultivars of chokeberry fruits (*Aronia melanocarpa*). *Not. Bot. Horti Agrobot. Cluj-Napoca* 2012; 40, 253–260.
20. St. George S. D., Cenkowski S. Influence of harvest time on the quality of oil-based compounds in sea buckthorn (*Hippophae rhamnoides* L. ssp. *sinensis*) seed and fruit. *J. Agric. Food Chem.* 2007; 55, 8054–8061.
21. Kosson R., Horbowicz M. Effect of long term storage on some nutritive components and isothiocyanates content in roots of two horseradish types. *Veget. Crops Res. Bull.* 2008; 69, 155–164. doi:10.2478/v10032-008-0030-3 (12. 4. 2014).
22. Gonçalves E. M., Cruz R. M. S., Abreu M., Brandão T. R. S., Silva C. L. Biochemical and colour changes of watercress (*Nasturtium officinale* R. Br.) during freezing and frozen storage. *J. Food Eng.* 2009; 93, 32–39.
23. Horvath Z. H., Hodur C. Colour of paprika powders with different moisture content. *Int. Agrophys.* 2007; 21, 67–72.
24. Prachayawarakorn S., Sawangduanpen S., Saynampheung S., Poolpatarachewin T., Soponronnarit S., Nathakarakule A. Kinetics of colour change during storage of dried garlic slices as affected by relative humidity and temperature. *J. Food Eng.* 2004; 62, 1–7.
25. Gonda S., Tóth L., Gyémánt G., Braun M., Emri T., Vasas G. Effect of high relative humidity on dried *Plantago lanceolata* L. leaves during long-term storage: Effects on chemical composition, colour and microbiological quality. *Phytochem. Anal.* 2012; 23, 88–93.
26. Cheikh-Rouhou S., Besbes S., Hentati B., Blecker C., Deroanne C., Attia H. *Nigella sativa* L.: Chemical composition and physicochemical characteristics of lipid fraction. *Food Chem.* 2007; 101, 673–681.
27. Kaur C. S. H., Huda B. N., Karim A. A., Fazilah A. Effect of fermentation on the composition of *Centella asiatica* teas. *Am. J. Food Technol.* 2011; 6, 581–593. doi:10.3923/aft.2011.561.593 (12. 4. 2014).
28. Kim Y., Goodner K. L., Park J. D., Choi J., Talcott S. T. Changes in antioxidant phytochemicals and volatile composition of *Camellia sinensis* by oxidation during tea fermentation. *Food Chem.* 2011; 129, 1331–1342.
29. Liang Y., Lu J., Zhang L., Wu S., Wu Y. Estimation of tea quality by infusion colour difference analysis. *J. Sci. Food Agric.* 2005; 85, 286–292.
30. Marete E. N., Jacquier J. C., O’Riordan D. Effects of extraction temperature on the phenolic and parthenolide contents, and colour of aqueous feverfew (*Tanacetum parthenium*) extracts. *Food Chem.* 2009; 117, 226–231.
31. Chumsri P., Sirichote A., Itharat A. Studies on the optimum conditions for the extraction and concentration of roselle (*Hibiscus sabdariffa* Linn.) extract. *Songklanakarin J. Sci. Technol.* 2008; 30 (Suppl. 1), 133–139.
32. Vračar L. O., Tepić A. N., Vujičić B. L., Šolaja S. Influence of the heat treatment on the color of ground pepper (*Capsicum annum*). *APTEFF* 2007; 38, 53–58.
33. Jin Y. Y., Shin H., Ku K., Song K. B. Effect of electron beam irradiation on microbial growth and qualities in *Astragalus membranaceus*. *Agric. Chem. Biotechnol.* 2006; 49, 176–179.
34. Kim J. H., Sung N. Y., Kwon S. K., Srinivasan P., Song B. S., Choi J. I., Lee J. W. γ -Irradiation improves the color and antioxidant properties of chaga mushroom (*Inonotus obliquus*) extract. *J. Med. Food* 2009; 12, 1343–1347.
35. Kim J. K., Srinivasan P., Kim J. H., Choi J. I., Park H. J., Byun M. W., Lee J. W. Structural and antioxidant properties of gamma irradiated hyaluronic acid. *Food Chem.* 2008; 109, 763–770.
36. Choi J. I., Kim J. K., Kim J. H., Kweon D. K., Lee J. W. Degradation of hyaluronic acid powder by electron beam irradiation, gamma ray irradiation, microwave irradiation and thermal treatment: A comparative study. *Carbohydr. Polym.* 2010; 79, 1080–1085.
37. Haro M. D. R., Escobar D., Bueno C., Ayuso J. Kinetic study of the photodecoloration of the saffron. *Acta Hort.* 2004; 650, 313–319.
38. Mohammadi A., Rafiee S., Emam-Djomeh Z., Keyhani A. Kinetic models for colour changes in kiwifruit slices during hot air drying. *World J. Agric. Sci.* 2008; 4, 376–383.
39. Demirhan E., Özbek B. Color change kinetics of microwave-dried basil. *Drying Technol.* 2009; 27, 156–166.
40. Hirun S., Utama-ang N., Vuong Q. V., Scarlett C. J. Investigating the commercial microwave vacuum drying conditions on physicochemical properties and radical scavenging ability of Thai green tea. *Drying Technol.* 2014; 32, 47–54.
41. Siriamornpun S., Kaisoon O., Meeso N. Changes in colour, antioxidant activities and carotenoids (lycopene, β -carotene, lutein) of marigold flower (*Tagetes erecta* L.) resulting from different drying processes. *J. Funct. Foods* 2012; 4, 757–766.
42. Ramallo L. A., Lovera N. N., Schmalko M. E. Effect of the application of intermittent drying on *Ilex paraguariensis* quality and drying kinetics. *J. Food Eng.* 2010; 97, 188–193.
43. Passardi R. L., Schvezov C. E., Schmalko M. E., Gonzalez A. D. Drying of *Ilex paraguariensis* Saint Hilaire by microwave radiation. *Drying Technol.* 2006; 24, 1437–1442.
44. Calín-Sánchez Á., Figiel A., Wojdyło A., Szarycz M., Carbonell-Barrachina Á. A. Drying of garlic slices using convective pre-drying and vacuum-microwave finishing drying: Kinetics, energy consumption, and quality studies. *Food Bioprocess Technol.* 2014; 7, 398–408.

45. **Gorjian S., Tavakkoli Hashjin T., Khoshtaghaza M. H., Nikbakht A. M.** Drying kinetics and quality of barberry in a thin layer dryer. *J. Agr. Sci. Tech.* 2011; 13, 303–314.
46. **Doymaz I., Tugrul N., Pala M.** Drying characteristics of dill and parsley leaves. *J. Food Eng.* 2006; 77, 559–565.
47. **Alibas I.** Energy consumption and colour characteristics of nettle leaves during microwave, vacuum and convective drying. *Biosystems Eng.* 2007; 96, 495–502.
48. **Alibas I.** Determination of drying parameters, ascorbic acid contents and color characteristics of nettle leaves during microwave-, air- and combined microwave-air drying. *J. Food Process Eng.* 2010; 33, 213–233.
49. **Soysal Y.** Mathematical modeling and evaluation of microwave drying kinetics of mint (*Mentha spicata* L.). *J. Applied Sci.* 2005; 5, 1266–1274.
50. **Argyropoulos D., Müller J.** Effect of convective drying on quality of lemon balm (*Melissa officinalis* L.). *Procedia Food Sci.* 2011; 1, 1932–1939.
51. **İzli N., Yıldız G., Ünal H., Işık E., Uylaşer V.** Effect of different drying methods on drying characteristics, colour, total phenolic content and antioxidant capacity of goldenberry (*Physalis peruviana* L.). *Int. J. Food Sci. Technol.* 2014; 49, 9–17.
52. **Boudhrioua N., Bahloul N., Ben Slimen I., Kechau N.** Comparison on the total phenol contents and the color of fresh and infrared dried olive leaves. *Ind. Crops Prod.* 2009; 29, 412–419.
53. **Simal S., Garau C., Femenia A., Rosselló, C.** Drying of red pepper (*Capsicum annuum*): Water desorption and quality. *Int. J. Food Eng.* 2005; 1(4), 1022. doi:10.2202/1556–3758.1022 (12. 4. 2014).
54. **Topuz A., Feng H., Kushad, M.** The effect of drying method and storage on color characteristics of paprika. *LWT Food Sci. Technol.* 2009; 42, 1667–1673.
55. **Vega-Gálvez A., Di Scala K., Rodríguez K., Lemus-Mondaca R., Miranda M., López J., Perez-Won M.** Effect of air-drying temperature on physico-chemical properties, antioxidant capacity, colour and total phenolic content of red pepper (*Capsicum annuum* L. var. Hungarian). *Food Chem.* 2009; 117, 647–653.
56. **Arabhosseini A., Huisman W., Van Boxtel A., Müller, J.** Long-term effects of drying conditions on the essential oil and color of tarragon leaves during storage. *J. Food Eng.* 2007; 79, 561–566.
57. **Soysal Y.** Microwave drying characteristics of parsley. *Biosystems Eng.* 2004; 89, 167–173.
58. **Lechtenberg M., Zumdick S., Gerhards C., Schmidt T. J., Hensel A.** Evaluation of analytical markers characterising different drying methods of parsley leaves (*Petroselinum crispum* L.). *Pharmazie* 2007; 62, 949–954.
59. **Naidu M. M., Khanum H., Sulochanamma G., Sowbhagya H. B., Hebbar U. H., Prakash M., Srinivas P.** Effect of drying methods on the quality characteristics of fenugreek (*Trigonella foenum-graecum*) greens. *Drying Technol.* 2012; 30, 808–816.
60. **Yahya M.** Effect of air drying temperatures on the quality of *Centella asiatica* L. dried products. *Jurnal Teknik. Mesin.* 2012; 1(2), 15–23. <http://ejournal.itp.ac.id/index.php/tmesin/article/view/53/50> (12. 4. 2014).
61. **Arslan D., Musa Özcan M.** Evaluation of drying methods with respect to drying kinetics, mineral content and colour characteristics of rosemary leaves. *Energy Convers. Manage* 2008; 49, 1258–1264.
62. **Esturk O.** Intermittent and continuous microwave-convective air-drying characteristics of sage (*Salvia officinalis*) leaves. *Food Bioprocess Technol.* 2012; 5, 1664–1673.
63. **Martinov M., Mujic I., Müller J.** Impact of drying air temperature on course of drying and quality of *Hypericum perforatum* L. *Z. Arznei.-Gewürzpfl.* 2007; 12, 136–140.
64. **Chenarbon H. A., Minaei S., Bassiri A. R., Almassi M., Arabhosseini A., Motevali A.** Effect of drying on the color of St. John's wort (*Hypericum perforatum* L.) leaves. *Int. J. Food Eng.* 2012; 8(4), 1556–3758, doi:10.1515/1556–3758.2545 (12. 4. 2014).
65. **Demir V., Gunhan T., Yağcioglu A. K., Degirmencioglu A.** Mathematical modelling and the determination of some quality parameters of air-dried bay leaves. *Biosystems Eng.* 2004; 88, 325–335.
66. **Kubra I. R., Rao L. J.** Effect of microwave drying on the phytochemical composition of volatiles of ginger. *Int. J. Food Sci. Technol.* 2012; 47, 53–60.
67. **Hoque M. A., Bala B. K., Hossain M. A., Uddin M. B.** Drying kinetics of ginger rhizome (*Zingiber officinale*). *Bangladesh J. Agril. Res.* 2013; 38, 301–319.
68. **Kyriakopoulou K., Pappa A., Krokida M., Detsi A., Kefalas P.** Effects of drying and extraction methods on the quality and antioxidant activity of sea buckthorn (*Hippophae rhamnoides*) berries and leaves. *Drying Technol.* 2013; 31, 1063–1076.
69. **Harbourne N., Marete E., Jacquier J. C., O'Riordan D.** Effect of drying methods on the phenolic constituents of meadowsweet (*Filipendula ulmaria*) and willow (*Salix alba*). *LWT Food Sci. Technol.* 2009; 42, 1468–1473.
70. **Müller J., Heindl A.** Drying of medicinal plants. In: Bogers R. J., Craker L. E., Lange D. (eds.) *Medicinal and aromatic plants*. Heidelberg: Springer Verlag 2006; 237–252.
71. **Puranik V., Chauhan D. K., Mishra V., Rai G. K.** Effect of drying techniques on the physicochemical and bioactive components of selected medicinal herbs. *Ann. Phytomedicine* 2012; 1(2), 23–29.
72. **Sledz M., Witrowa-Rajchert D.** Influence of microwave-convective drying of chlorophyll content and colour of herbs. *Acta Agrophys.* 2012; 19, 865–876.
73. **Harbourne N., Jacquier J. C., O'Riordan D.** Optimisation of the extraction and processing conditions of chamomile (*Matricaria chamomilla* L.) for incorporation into a beverage. *Food Chem.* 2009; 115, 15–19.
74. **Miranda M., Maureira H., Rodriguez K., Vega-Gálvez A.** Influence of temperature on the drying kinetics, physicochemical properties, and antioxidant capacity of aloe vera (*Aloe barbadensis* Miller) gel. *J. Food Eng.* 2009; 91, 297–304.
75. **Beceanu D., Niculaua M., Anghel R. M.** Valorization technologies of some horticultural plants with medicinal usage. *Cercetari Agronomice in Moldova* 2007; 40(4/132), 43–58. [http://www.ua-iasi.ro/CERCET_AGROMOLD/en-V4 2007 \(12. 4. 2014\)](http://www.ua-iasi.ro/CERCET_AGROMOLD/en-V4 2007 (12. 4. 2014)).
76. **Seroczyńska A., Korzeniewska A., Sztangret-Wisniewska J., Niemirowicz-Szczytt K., Gajewski M.** Relationship between carotenoids content and flower or fruit flesh colour of winter squash (*Cucurbita maxima* Duch.). *Folia Horticulturae* 2006; 18(1), 51–61.
77. **Hyman J. R., Gaus J., Foolad M. R.** A rapid and accurate method for estimating tomato lycopene content by measuring chromaticity values of fruit puree. *J. Amer. Soc. Hort. Sci.* 2004; 129, 717–723.
78. **Itle R. A., Kabelka E. A.** Correlation between L* a* b* color space values and carotenoid content in pumpkins and squash (*Cucurbita* spp.). *HortScience* 2009; 44, 633–637.
79. **Kasim R., Sülüşoğlu M., Kasim M. U.** Relationship between total anthocyanin level and colour of natural cherry laurel (*Prunus laurocerasus* L.) fruits. *Afr. J. Plant Sci.* 2011; 5, 323–328.
80. **Zalibera M., Staško A., Šleboďová A., Jančovičová V., Čermáková T., Brezová V.** Antioxidant and radical-scavenging activities of Slovak honeys. An electron paramagnetic resonance study. *Food Chem.* 2008; 110, 512–521.
81. **Perna A., Simonetti A., Intaglietta I., Gambacorta E.** Antioxidant properties, polyphenol content and colorimetric characteristics of different floral origin honeys from different areas of southern Italy. *J. Life Sci.* 2013; 7, 428–436.
82. **Anjiki N., Togashi M., Yoshimatsu M., Kawahara N., Mikage M.** Evaluation of the crude drugs by means of colorimeter. Part 6.: Correlation between the color and total polyphenol content of Geranium Herb. *J. Trad. Med.* 2007; 24, 67–71.
83. **Wold A. B., Rosenfeld H. J., Holte K., Baugerød H., Blomhoff R., Haffner K.** Colour of postharvest ripened and vine ripened tomatoes (*Lycopersicon esculentum* Mill.) as related to total antioxidant capacity and chemical composition. *Int. J. Food Sci. Technol.* 2004; 39, 295–302.
84. **González-Míret M. L., Terrab A., Hernanz D., Fernandez-Recales M. A., Heredia F. J.** Multivariate correlation between color and mineral composition of honeys and by their botanical origin. *J. Agric. Food Chem.* 2005; 53, 2574–2580.