

## 基于中药水提液浓缩过程溶液环境特征参数相关性的瞬时能耗计算方法探索——以玉屏风散水提液为例

钟文蔚<sup>1,2</sup>, 黎万钰<sup>1,3</sup>, 丁 菲<sup>4</sup>, 李除夕<sup>4</sup>, 郑东阳<sup>1</sup>, 郭立玮<sup>1,5,6\*</sup>

1. 广州中国科学院先进技术研究所 中药与天然产物研发部, 广东 广州 511458
2. 广州南沙资讯科技园有限公司博士后科研工作站, 广东 广州 511458
3. 悉尼大学, 澳大利亚新南威尔士州 悉尼 2006
4. 江苏扬子江药业集团 南京海陵药业有限公司 中药制药工艺技术国家工程研究中心, 江苏 南京 210000
5. 南京中医药大学 植物药深加工工程研究中心, 江苏 南京 210023
6. 广州白云山汉方现代药业有限公司 中药提取分离过程现代化国家工程研究中心, 广东 广州 510240

**摘要:** **目的** 寻找中药水提液浓缩过程瞬时能耗计算简便方法。**方法** 以玉屏风散为模型药物, 测定其水提液浓缩过程中多种溶液环境特征参数的动态变化数据, 构建中药溶液环境特征参数白利度(简便、易测、准确)与浓缩能耗计算需要的相关参数的相关性模型。**结果** 白利度与固含率、密度、比热容、导热率等具有优越的线性相关, 相关系数( $R^2$ )均高达 0.99 左右。**结论** 可通过测定白利度及构建与其他物理参数如比热容( $C_p$ )、导热率( $k_f$ )等关系模型, 计算浓缩的动态能耗; 为中药制药过程工程原理研究开辟新思路。

**关键词:** 玉屏风散; 浓缩; 溶液环境; 特征参数; 白利度; 瞬时能耗; 相关性; 固含率; 密度; 比热容; 导热率

**中图分类号:** R283.6 **文献标志码:** A **文章编号:** 0253-2670(2021)07-1937-08

**DOI:** 10.7501/j.issn.0253-2670.2021.07.010

## Dynamic energy estimation with key parameters of aqueous environment of traditional Chinese medicine extracts incorporated——example given in concentration process of Yupingfeng Powder extracts

ZHONG Wen-wei<sup>1,2</sup>, LI Wan-yu<sup>1,3</sup>, DING Fei<sup>4</sup>, LI Chu-xi<sup>4</sup>, ZHENG Dong-yang<sup>1</sup>, GUO Li-wei<sup>1,5,6</sup>

1. Department of Traditional Chinese Medicine and Natural Medicine, Guangzhou Institute of Advanced Technology, Chinese Academy of Sciences, Guangzhou 511458, China
2. Guangzhou Nansha Information Technology Park Post-Doctoral Scientific Research Station, Guangzhou 511458, China
3. The University of Sydney, Camperdown NSW 2006, Australia
4. Traditional Chinese Medicine Manufacturing Technology National Engineering Research Center, Nanjing Hailing Pharmaceutical Co., Ltd., Yangtze River Pharmaceutical Group., Nanjing 210000, China
5. Jiangsu Botanical Medicine Refinement Engineering Research Center, Nanjing University of Chinese Medicine, Nanjing 210023, China
6. National Engineering Center for Modernization of Extraction and Separation Processing of Traditional Chinese Medicine, Guangzhou Hanfang Pharmaceutical Co., Ltd., Guangzhou 510240, China

**Abstract: Objective** To estimate the minimum energy requirement for the concentration of traditional Chinese medicine extract with case. **Method** Yupingfeng Powder was chosen as the model formula. The selected key parameters were measured during the

收稿日期: 2020-11-21

**基金项目:** 国家科技部重点研发计划“中医药现代化研究”重点专项(2019YFC1711300); 国家博士后科学基金第 67 批面上资助(2020M672575); 国家博士后科学基金第 13 批特别资助(2020T130130)

**作者简介:** 钟文蔚, 博士后, 助理研究员, 主要研究方向为反渗透与膜蒸馏浓缩、中药制药工程。E-mail: ww.zhong@giat.ac.cn

**\*通信作者:** 郭立玮, 南京中医药大学教授、广州中国科学院先进技术研究所客座研究员, 从事以膜技术为核心的中药复方分离工程研究。

E-mail: guoliwei815@126.com

concentration process. Correlations between Brix and other key parameters were established. The significance of predicting the selected key parameters in this study were emphasized with the fundamental energy equations of the concentration processes. **Result** Brix had a strong correlation with the selected key parameters as the following: solid fractions, density, heat capacity, and thermal conductivity with a high value of  $R^2$  greater than 0.99. **Conclusion** By establishing the appropriate relationships between the measured Brix and other key parameters such as heat capacity ( $C_p$ ), and thermal conductivity ( $k_f$ ), the dynamic energy consumption of the concentration processes of traditional Chinese medicine by conventional thermal process or novel membrane process, can be achieved. This will provide valuable insights into the fundamental study in pharmaceutical process engineering of traditional Chinese medicine.

**Key words:** Yupingfeng Powder; concentration; aqueous environment; key parameters; Brix; dynamic energy calculation; correlation; solid fraction; density; heat capacity; thermal conductivity

传统中药制药过程中,提取、浓缩、干燥等工段都需要使用大量蒸汽<sup>[1]</sup>。其中,中药浓缩工段的能耗惊人,浓缩工段所用蒸汽量占总蒸汽量 60%以上<sup>[2]</sup>。膜浓缩(反渗透、膜蒸馏等)比一般热法浓缩如单效、双效蒸发节能 50%<sup>[3]</sup>。而近期 Weaver 等<sup>[4]</sup>发现,使用反渗透预浓缩技术可比单独用热效浓缩技术节省能耗 85%以上。

物料浓缩的原理是实现水(或其他溶剂)与可溶性物质(溶质)的分离,目前常见的产业化浓缩技术有热法蒸发(单效、多效蒸发),膜技术(纳滤、反渗透、膜蒸馏等),均属于物理分离过程。热法、膜法浓缩是海水淡化的常见手段,已有比较成熟的能耗计算与评估方法。但中药制药领域因缺乏相关决策研究,无法采用这些现有的方法。如研究表明中药与相关天然产物的浓缩过程远比海水淡化过程复杂,其主要特征是物料的溶液环境特征参数发生了明显的动态变化,因此海水淡化能耗计算方法对于中药水提液体系存在较大误差<sup>[5-6]</sup>。因此,亟需提出一种将中药溶液环境特征参数变化融入到浓缩能耗计算的新方法。

溶液环境是指溶液体系所具有的电导率、折光指数(实际应用中常换算成白利度)、黏度、pH 值、离子强度等特征性质。在中药应用领域,精制、浓缩等制药工艺过程所面对的溶液环境体系即为中药液体物料。上述溶液环境特征参数,虽然彼此间存在大量非线性、高噪声、多因子的复杂关系,但借助理论化学对简单物质研究的成果,可从中抽提出若干参数和概念,进而运用人工智能技术,从已知数据和实验事实中抽提规律性,用于简化中药制药过程所采用膜分离等先进技术的工艺优化设计。如张刘红等<sup>[7]</sup>已建立渗透压与电导率相关性模型,借助中药物料浓缩过程中电导率的变化推测其他特征参数的变化,可实现中药溶液环境各相关特征参数

的在线实时监测,为中药制药的智能监控提供更简便、经济的手段,并为中药绿色节能膜浓缩技术的推广应用提供有力的计算依据与理论支持<sup>[7-10]</sup>。

中药物料的浓缩过程还涉及到其浓度变化所带来的比热容、固体含量变化以及密度等溶液环境表征参数的变化。其中,折光指数是国内外评判天然产物及中药浓缩物料常用的检测指标<sup>[11-13]</sup>,也是中药制药工业检测物料比重所用传感器不可或缺的重要参数<sup>[14-15]</sup>。利用白利度的变化推测其他物理参数的变化,对中药制药在线检测和浓缩所需能耗计算可达到事半功倍的作用。但过去的研究中并未对特征参数如何影响中药物料浓缩工段的能耗变化做出详细说明(尤其是中药物料的膜浓缩能耗计算)。

多年来中药制药工程设计中,因缺乏基本的中药物性数据(如不同中药物料的密度、黏度、表面张力、导热系数、扩散系数等)<sup>[10]</sup>,往往凭经验或采用经验方式估算,甚至用相近物质的物性代替,其结果必然导致工艺技术选择或设计的失真甚至失败。从而使中药生产的规范化、现代化难以付诸现实。本实验拟以玉屏风散为模型药物,探讨浓缩过程对中药溶液环境特征参数的影响及各特征参数的相关性,指出相关特征参数变化与中药物料浓缩工段能耗的关系,为中药浓缩工艺的瞬时能耗计算提供一种简便的模式,同时也为探讨中药制药过程工程原理开辟新视野。

## 1 仪器与材料

### 1.1 药材

防风购于安徽道源堂中药饮片有限公司,批号 200501,白术购于亳州市永刚饮片厂有限公司,批号 200203,蜜炙黄芪购于赤峰荣兴堂药业有限责任公司蒙中药饮片厂,批号 2005046,上述 3 味药材经本课题组郭立玮教授鉴定,分别为伞形科防风属植物防风 *Saposhnikovia divaricata* (Turcz.) Schischk.

的干燥根；菊科苍术属植物白术 *Atractylodes macrocephala* Koidz. 的干燥根茎；豆科黄芪属植物膜荚黄芪 *Astragalus membranaceus* (Fisch.) Bge. 干燥根的炮制（蜜炙）加工品。

## 1.2 仪器

BSA224S-CW 型电子分析天平，赛多利斯科学仪器（北京）有限公司；LC-DRT-948 数显折射仪、NDJ-5S 数显黏度计，上海力辰邦西仪器科技有限公司；TP101 笔式探针数显温度计，测量范围-50~300 ℃，苏泊尔 C22-IH66E8 电磁炉，2200 W，浙江苏泊尔生活电器有限公司；简悠便携式炆火电陶炉 1200 W，中山市诺洁仕电器有限公司；DHG-9145A 电热鼓风干燥箱，上海恒勤仪器设备有限公司；OM819C 渗透压仪，北京雅森博科科学仪器有限公司。

## 2 方法

### 2.1 提取方法

参照“十二五”普通高等教育本科国家级规划教材《方剂学》中玉屏风散方各药味的剂量比<sup>[16-17]</sup>，准确称取药材如下：防风 50.0 g、白术 100.0 g、蜜炙黄芪 100.0 g。用 2500 mL 纯净水（经过实验室反渗透滤膜制备的纯净水）煎煮 1 h，分离药渣与提取液。再在药渣中加入 2500 mL 纯净水煎煮 1 h，分离药渣与提取液。将 2 次提取液均匀混合后，150 目纱布滤过，收集滤液备用。

### 2.2 中药物料浓缩实验

采用敞口锅（直径为 24 cm，容积为 6800 mL 的实验室用小型敞口锅）对上述滤液加热蒸发进行浓缩。采集不同时间段浓缩物料，进行标记，按照“2.3”项所述方法检测相应的溶液环境特征参数。

### 2.3 溶液环境特征参数测试

**2.3.1 白利度** 量筒量取 100 mL 样品，其中 1~2 mL 样品用来测量白利度，分 2 组样品测试读数，由机器分别自动读取 15 次数据，直到数据稳定不再记录数值。取得的 2 组数值记录下来，并且算得平均值。由于实验室采用的是离线折光仪，需要取样读数，而样品数量仅需 1~2 滴，因此样品温度很快就被降至室温。为了统一样品折光度与白利度读数温度，此研究的白利度测试均在室温（30±5）℃下进行。

**2.3.2 黏度** 待同一批次取得的物料温度降至室温（30±5）℃，用黏度计读取物料的电导率和黏度，读取 3 组数据取得平均值。

**2.3.3 密度** 将干燥好的烧杯放置天平上清零。从上述同一批次取的物料中，用量取精准量取一定体积的物料并记录体积并倒入干燥的烧杯中。密度测量时物料温度为（45±5）℃。将称有物料的烧杯放置天平上，准确称量其质量并记录。同一批次、浓度物料的密度可用传统密度定义公式算得。

**2.3.4 固含率** 烘干玻璃培养皿并进行准确称定质量，记为  $m_1$ 。将同一批次取得的物料放入烘干的玻璃培养皿，并准确称定质量，记为  $m_2$ 。将已称定质量的物料与玻璃培养皿放入电热鼓风干燥机中，设置 50 ℃干燥 4 h 以上确保水份完全蒸发。待干燥的物料与玻璃培养皿放置室温后，准确称定质量，记为  $m_3$ 。此样品的固含率可用公式（1）计算。

$$\text{固含率} = (m_3 - m_2) / (m_2 - m_1) \quad (1)$$

**2.3.5 物料比热容（ $C_p$ ）与导热率（ $k_f$ ）** 浓缩中的物料比热容与导热性变化由此部分实验操作得到。比热容是由热量（ $Q$ ）、质量（ $M$ ）和温度变化（ $\Delta T$ ）的比值而定义的<sup>[18]</sup>。

$$C_p = Q / M \Delta T \quad (2)$$

在同一组测量实验中准确称量相同质量的水和物料。水与物料在相同时间内得到的热量一样（均被同样加热设备加热），根据已知纯水的比热容 [ $C_{pw}$ , 4.18 kJ/(kg·K)]，利用同样质量的水和物料在相同时间内的温度变化比，用以下推导得到的公式（6）可以算得采集到的物料的  $C_p$ 。

$$Q_p = Q_{pw} \quad (3)$$

$$Q_p = C_p (T_3 - T_1) \quad (4)$$

量取物料被加热前的温度（ $T_1$ ），被加热一段时间（ $t$ ）后量取其即时温度记录为  $T_3$ ；水被加热前的温度为  $T_2$ ，同理水被加热一段时间  $t$  后量取其即时温度记为  $T_4$ ，则有：

$$Q_{pw} = C_{pw} (T_3 - T_1) \quad (5)$$

联立（3）、（4）和（5）得到公式（6）。

$$C_p = C_{pw} (T_4 - T_2) / (T_3 - T_1) \quad (6)$$

为控制水和物料都得到相同的热量，实验设计水和物料均被电陶炉（选择 70 W）加热 240 s（ $t=240$  s）。

另外，根据传统传热学中导热率的定义，一个体系的导热率（ $k$ ）如下<sup>[18]</sup>。

$$k = Q \Delta x / A \Delta T \quad (7)$$

同理可推得，同一组实验已经称得的相同质量的水和物料都得到相同的输入热量（ $Q$ ）、加热接触面积（ $A$ ）和热量传递距离（ $\Delta x$ ），物料的  $k_f$  可用已

知的水的导热率 ( $k_w$ ) 根据公式 (8) 计算得到。

$$k_r = k_w(T_4 - T_2)/(T_3 - T_1) \quad (8)$$

$k_w$  选择 0.640 W/(m·K), 水在 50 °C 的导热率

**2.3.6 渗透压 ( $\pi_r$ )** 按照 YASN OM819 型渗透压仪操作手册执行, 由扬子江药业集团南京海陵中药制药工艺技术国家工程研究中心检测。每次测量样品需 10 mL, 因此, 每组样品收集 30 mL, 共测量 3 组数据, 取平均值, 得到渗透浓度  $b_0$  (mOsm/kg)。根据公式 (9) 算得渗透压 (kPa)。

$$\pi_r = b_0 RT \quad (9)$$

$R$  为摩尔气体常数 8.314 J/(K·mol),  $T$  为开氏温度, 所有数据在 25 °C (298.15 K) 时测量得到

### 3 结果与分析

#### 3.1 白利度与固含率相关性研究

白利度<sup>[19-20]</sup>最早被定义为溶液中蔗糖的质量分数, 后被广义定义为与蔗糖质量分数相等的溶液中可溶性固形物质量分数, 被广泛运用在浓缩行业(如果汁浓缩和凉茶浓缩)的物料浓度。白利度一般用折射仪测得折射指数, 并换算成 °Bx 或 %。其中, 可溶性固形物也包括溶解性物质与胶态物质。

溶液中固含率定义一般为固体成分质量分数, 包括了可溶性与不可溶固形物。因此一个系统里的白利度与固含率不一定相同; 一般可认为固含率要比白利度高。本实验中, 所得到的同一时间点的白利度与固含率相近(表 1), 而测得的白利度基本比固含率低, 并且呈现出较好的线性关系, 回归方程为  $y = 0.0115x + 0.0017$ ,  $R^2 = 0.9988$ ,  $y$  代表固含率,  $x$  代表白利度。因此, 在玉屏风散的浓缩过程中, 可以利用白利度去预测玉屏风散的固含率。除了经典复方玉屏风散在浓缩过程中具有白利度与固含率的上述关系外, 此前 Criscuoli 等<sup>[11]</sup>也考察了

表 1 浓缩过程中同一时间点的溶液环境特征参数白利度与固含率实测数据

Table 1 Experimental data of Brix and solid fractions of traditional Chinese medicine extracts during concentration process

| 白利度/°Bx | 固含率/% | 白利度/°Bx | 固含率/% |
|---------|-------|---------|-------|
| 2.6     | 2.5   | 7.8     | 10.1  |
| 4.0     | 4.1   | 12.4    | 15.4  |
| 5.6     | 2.5   | 17.8    | 21.6  |
| 6.1     | 7.5   | 21.4    | 25.9  |
| 6.6     | 7.5   | 37.7    | 42.5  |
| 7.7     | 9.1   | 66.1    | 76.0  |

枣汁的膜蒸馏浓缩过程中白利度与固含率之间的关系, 得出类似结果。

需要特别指出的是, 中药制药工艺往往涉及澄清、精制工段, 淀粉、蛋白质等大分子杂质在浓缩工段之前已被去除。因此中药物料中一些大分子物质可能因为加热等问题引起的析出影响可被忽略。

#### 3.2 浓缩过程中中药物料溶液环境表征参数的相关性研究

**3.2.1 白利度与密度、黏度的关系** 浓缩过程中同一时间点玉屏风散物料的溶液环境特征参数白利度与密度、黏度关系的实测数据分别如表 2、3 所示。

表 2 浓缩过程中同一时间点的溶液环境特征参数白利度与密度实测数据

Table 2 Experimental data of Brix and density of traditional Chinese medicine extracts during concentration process

| 白利度/°Bx | 密度/(kg·m <sup>-3</sup> ) | 白利度/°Bx | 密度/(kg·m <sup>-3</sup> ) |
|---------|--------------------------|---------|--------------------------|
| 2.6     | 1 092.0                  | 7.8     | 1 106.0                  |
| 4.0     | 1 094.0                  | 12.4    | 1 121.6                  |
| 4.3     | 1 092.8                  | 17.8    | 1 143.5                  |
| 5.6     | 1 095.6                  | 21.4    | 1 162.0                  |
| 6.1     | 1 087.6                  | 37.7    | 1 245.8                  |
| 6.6     | 1 094.0                  | 66.1    | 1 350.0                  |
| 7.7     | 1 108.8                  |         |                          |

表 3 浓缩过程中同一时间点的溶液环境特征参数白利度与黏度实测数据

Table 3 Experimental data of Brix and viscosity of traditional Chinese medicine extracts during concentration process

| 白利度/°Bx | 黏度/(mPa·s <sup>-1</sup> ) | 白利度/°Bx | 黏度/(mPa·s <sup>-1</sup> ) |
|---------|---------------------------|---------|---------------------------|
| 2.37    | 6.24                      | 10.73   | 12.80                     |
| 3.20    | 6.36                      | 14.90   | 32.20                     |
| 5.03    | 7.16                      | 16.03   | 53.55                     |
| 8.17    | 8.34                      | 17.10   | 55.53                     |

根据密度的基本定义, 物质的密度可以用质量除以体积算得。中药水提液物料的浓缩过程, 可认为是一个去除水, 留下固体溶质的过程。一般认为固体溶质的密度比水密度大, 因此, 除水过程中物料的密度应呈上升趋势。玉屏风散浓缩过程中, 物料的白利度与密度呈现优越的线性相关, 回归方程为  $y = 4.2661x + 1 072.3$ ,  $R^2 = 0.9932$ ,  $y$  代表密度,  $x$  代表白利度。

黏度是流体的一种特性，客观地表达了流体对流动的阻力，在中药水提液浓缩体系中则反映了水分子在运动过程中的受阻程度。白利度与黏度是 2 个不同的物理概念，没有直接的关联。本实验所得到的白利度与黏度的关系方程为  $y=3.3619 e^{15.593x}$ ,  $R^2=0.9331$ ,  $y$  代表黏度,  $x$  代表白利度。根据二者的关系方程, 虽不能由白利度准确计算物料体系的黏度, 但是能粗略地估算玉屏风散物料的黏度。中药液体物料黏度的数值主要是用来计算流体体系的雷诺数, 以预测流体的分类(湍流、层流), 为膜蒸馏浓缩中药物料的即时能耗动态计算提供一个重要的选取依据。

**3.2.2 白利度与比热容、导热率的关系** 从物质比热容定义及公式(2)可知, 某体系的比热容是指在该体系中单位质量的物质改变单位温度(1 K)时需要吸收或释放的热量。而在本研究中的比热容, 特指定压比热容(在同一压强下)。

一般认为一个复杂体系中, 比热容与混合物质质量呈一定比例。因此在中药溶液环境的复杂体系中, 水的去除应该使物料比热容的大小有所改变。浓缩过程中同一时间点的溶液环境特征参数白利度与比热容、导热率的实测数据分别见表 4、5。白利度与玉屏风散溶液环境中比热容的关系方程为  $y=$

$0.044x+4.0397$ ,  $R^2=0.9879$ ,  $y$  代表比热容,  $x$  代表白利度; 在实验初始白利度为  $2.6^{\circ}\text{Bx}$  时, 溶液的比热容与水的比热容非常接近  $[4.18 \text{ kJ}/(\text{kg}\cdot\text{K})]$ , 而比热容随着水分的减少而增加。比热容是能耗测算公式的关键参数, 但因为中药水提液物料体系是一种高度多维的复杂系统, 其比热容难于测定。因此利用白利度去预测不同浓度溶液下的比热容, 对浓缩能耗计算具有填补空白的突破性意义。

导热率(又称导热系数)是一个形容系统热传导能力的物理量, 由其计算公式(7)可知, 导热率即为在相同的热量传导条件下, 温差为 1 K 的单位厚度的系统在传热为单位面积单位时间条件下的传热量, 导热率与系统的成分组成、状态等有关系。根据公式(8)可推知, 本研究测试的玉屏风散系统中导热率与系统物料温差成正比。利用白利度与导热率的关系方程( $y=0.0067x+0.6191$ ,  $R^2=0.9879$ ,  $y$  代表导热率,  $x$  代表白利度), 可以成功地预测出玉屏风散在不同浓度溶液下的导热率。

**3.2.3 白利度与渗透压的关系** 浓缩过程中同一时间点的溶液环境特征参数白利度与渗透压实测数据见表 6; 白利度与渗透压的关系方程为  $y=160.54x-366.66$ ,  $R^2=0.9650$ ,  $y$  代表渗透压,  $x$  代表白利度。

表 4 浓缩过程中同一时间点的溶液环境特征参数白利度与比热容实测数据

Table 4 Experimental data of Brix and heat capacity of traditional Chinese medicine extracts during concentration process

| 白利度/<br>$^{\circ}\text{Bx}$ | 比热容/<br>$(\text{kJ}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1})$ | 白利度/<br>$^{\circ}\text{Bx}$ | 比热容/<br>$(\text{kJ}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1})$ |
|-----------------------------|------------------------------------------------------------|-----------------------------|------------------------------------------------------------|
| 2.60                        | 4.18                                                       | 7.30                        | 4.40                                                       |
| 3.25                        | 4.14                                                       | 13.55                       | 4.58                                                       |
| 5.40                        | 4.29                                                       | 23.10                       | 5.08                                                       |

表 5 浓缩过程中同一时间点的溶液环境特征参数白利度与导热率实测数据

Table 5 Experimental data of Brix and thermal conductivity of traditional Chinese medicine extracts during concentration process

| 白利度/<br>$^{\circ}\text{Bx}$ | 导热率/<br>$(\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1})$ | 白利度/<br>$^{\circ}\text{Bx}$ | 导热率/<br>$(\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1})$ |
|-----------------------------|----------------------------------------------------------|-----------------------------|----------------------------------------------------------|
| 2.60                        | 0.6406                                                   | 7.30                        | 0.6740                                                   |
| 3.25                        | 0.6350                                                   | 13.55                       | 0.7019                                                   |
| 5.40                        | 0.6573                                                   | 23.10                       | 0.7782                                                   |

表 6 浓缩过程中同一时间点的溶液环境特征参数白利度与渗透压实测数据

Table 6 Experimental data of Brix and osmotic pressure of traditional Chinese medicine extracts during concentration process

| 白利度/ $^{\circ}\text{Bx}$ | 渗透压/ $\text{kPa}$ | 白利度/ $^{\circ}\text{Bx}$ | 渗透压/ $\text{kPa}$ |
|--------------------------|-------------------|--------------------------|-------------------|
| 2.6                      | 360.28            | 7.8                      | 839.54            |
| 4.0                      | 471.83            | 12.4                     | 1332.03           |
| 5.6                      | 642.05            | 17.8                     | 2054.24           |
| 6.1                      | 742.86            | 21.4                     | 2535.16           |
| 6.6                      | 690.81            | 37.7                     | 6213.95           |
| 7.7                      | 906.48            |                          |                   |

渗透压是与单位体积溶剂中溶质微粒的浓度有关, 可以理解一个溶液系统的渗透压是由溶解性溶质产生。因此在玉屏风散的物料体系中, 可以观察到白利度与渗透压呈现良好的线性关系, 而白利度表示一个溶液体系的溶解性固体物质量分数。溶解性固体物质量分数增加, 渗透压也随着增加, 符合理论期待值。实验中观察到在白利度高于  $10^{\circ}\text{Bx}$  时,

测得的渗透压比线性方程预测的数值稍微低一些,这可能是因为物料中有些物质经过一段时间(样品由广州寄往南京期间)储存后沉淀析出,导致了测得的渗透压比样品收集时的渗透压稍低。利用液体物料白利度可以较好地推算中药物料的瞬时渗透压,对反渗透膜浓缩在中药物料浓缩中的瞬时能耗变化和总能耗计算有重要意义。

### 3.3 基于本研究结果的热法浓缩及膜蒸馏浓缩的能耗计算

**3.3.1 热法浓缩能耗计算相关性** 如热法单效蒸发浓缩中药物料,需要大量蒸汽或者电转化成热能,因此,计算单效蒸发最低所需热能( $Q_T$ )的公式如下<sup>[3]</sup>。

$$Q_T = Q_v + Q_L \quad (10)$$

$$Q_v = M_v(\Delta H_v - \Delta H_f) \quad (11)$$

$$Q_L = M_L C_p \Delta T \quad (12)$$

式(10)中,总能耗 $Q_T$ 由 $Q_L$ 与 $Q_v$ 组成,分别代表物料升温需要的能量以及蒸发需要的能量。 $M_v$ 代表水挥发速率, $\Delta H_v$ 代表水蒸气在此压强、温度下的焓, $\Delta H_f$ 代表饱和水蒸气在此压强、温度下的焓。物料守恒定律,可以算得浓缩物料的水挥发速率,见式(13)。

$$M_v = M_L(1-x) \quad (13)$$

式(13)中, $M_L$ 代表物料进入单效浓缩器中的速率, $x$ 代表物料固含率。其中,物料固含率会随着物料浓缩过程变化。此时,根据测得物料的白利度读数,可用“3.1”项得到的白利度与固含率关系模型得到某一时刻的固含率,从而算出 $M_v$ 。

另外,式(12)中 $C_p$ (物料的比热容)会随着中药物料的浓缩过程而变化<sup>[3]</sup>。因此 $Q_L$ 也会随浓缩过程中,中药物料浓度升高而变化。根据“3.2”项中白利度与热容率的关系,可计算出热法单效浓缩的能耗。

**3.3.2 膜蒸馏能耗计算相关性** 同理,膜蒸馏浓缩中药物料的能耗也与中药浓缩物料特征有关系。膜蒸馏 MD 理论最低所需能耗( $Q_f$ )计算公式如下<sup>[21]</sup>。

$$Q_f = A h_f (T_{fb} - T_{fm}) \quad (14)$$

式(14)中, $A_f$ 代表膜接触物料端面积, $h_f$ 代表中药物料端热对流导热系数, $T_{fb}$ 代表中药物料端温度以及 $T_{fm}$ 代表中药物料端膜表面温度。其中,膜蒸馏物料端膜表面的温度 $T_{fm}$ 不能被直接测出来,因此,需要根据物料衡算和传热传质模型的推

导。膜表面温度 $T_{fm}$ 可用以下公式进行计算<sup>[22]</sup>。

$$T_{fm} = [k_m(T_{p,b} + h_f T_{fb}/h_p)/\delta + h_f T_{fb} - J \Delta H_{latent}]/[k_m(1 + h_f h_p)/\delta + h_f] \quad (15)$$

式(15)中, $k_m$ 表示膜的导热系数, $\delta$ 表示膜的厚度, $T_{p,b}$ 代表纯水透过液端的温度, $T_{fb}$ 代表中药浓缩物料端的温度, $h_f$ 代表物料端的热对流传热系数, $h_p$ 代表纯水透过液端的热对流传热系数。 $J$ 代表膜通量,以及 $\Delta H_{latent}$ 代表饱和和液体水蒸发成水蒸气的汽化潜热。

其中,物料端的膜表面表面温度也需要得到物料的热对流传热系数 $h_f$ 。然而根据经典流体力学和传热理论,计算热对流的导热系数 $h_f$ 需要物料的比热容 $C_p$ 、密度 $\rho$ 、黏度 $\mu$ 和物料导热率 $k_f$ 等浓缩过程变化的物理特征,涉及公式(16)~(20)等复杂、繁琐的较多计算过程如下<sup>[22]</sup>。

根据(17),首先利用浓缩物料膜端的水力直径 $d_h$ 、物料端流速 $v$ 、物料的黏度 $\mu$ 以及物料的密度 $\rho$ 算出雷诺数 $Re$ 。再用(18)与物料的比热容 $C_p$ 、物料的粘度 $\mu$ 与物料导热率 $k_f$ 算出普朗特数 $Pr$ 。根据 $Re$ 与 $Pr$ 数,利用(19)或(20)算出新的努塞耳数 $Nu_f$ 。利用 $Nu_f$ 代入(16)中,算出新的物料的热对流的导热系数 $h_f$ 。

$$h_f = Nu_f k_f / d_h \quad (16)$$

$$Re = d_h v \rho / \mu \quad (17)$$

$$Pr = \mu C_p / k_f \quad (18)$$

$$Nu_f = 1.62(Re Pr d_h / L)^{1/3} Re < 2300 \quad (19)$$

$$Nu_f = 0.023 Re^{4/5} Pr^{1/3} Re > 2300 \quad (20)$$

利用“3.2”项得出白利度与其他物理参数如 $C_p$ 、 $k_f$ 等关系模型,计算膜蒸馏浓缩中药的能耗。

**3.3.3 反渗透能耗相关性** 反渗透浓缩中药物料的能耗的计算必须根据物料浓缩过程中渗透压的变化来计算反渗透技术最低所需能耗( $W_{min}$ )计算公式如下<sup>[22]</sup>。

$$W_{min} = V_0 \int_0^R \Delta \pi dR \quad (21)$$

$V_0$ 代表中药物料初始体积, $R$ 代表浓缩率, $\Delta \pi$ 代表物料端与渗透液端渗透压差

$$\Delta \pi = \pi_f - \pi_p \approx \pi_f \quad (22)$$

$\pi_f$ 为物料渗透压, $\pi_p$ 为渗透液端(清水)渗透压

物料的渗透压( $\pi_f$ )会随着物料浓缩的浓度上升而上升。根据白利度与渗透压的关系方程,可利用测得的白利度得到某时反渗透浓缩中药物料的瞬时能耗,从而计算出整个浓缩过程的总能耗。

## 4 讨论

### 4.1 有关溶液环境特征参数的讨论

本实验所发现的中药水提液浓缩过程中若干“溶液环境”特征参数的相关性,有关文献亦有过相关报道<sup>[9,17]</sup>。这是一种偶然现象,还是具有普遍意义的规律,尚有待进一步深入系统的研究。中药溶液环境的黏度、pH 值、离子强度等表征参数,既来源于中药水提液中各种物质的化学组成,又是水提液体系中各种物质不同表现的综合反馈,当然也必定与制药分离过程物料体系中各种物质的热力学和传递性质、多相流、多组分传质等影响分离的因素密切相关<sup>[23]</sup>。本团队将在进一步开展系统实验研究的基础上,借助现代分离科学与物理化学等多学科交叉研究的方法,从理论上加以诠释。

### 4.2 化工过程控制原理是探讨中药制药过程工程原理的重要基石

化工过程控制原理提出:对于复杂的化工过程,不能满足于在现有装置上通过测试获得所需的对象动态特性知识,更重要的是在对象处于设计阶段,就能利用计算方法预估其特性,以改变黑匣无知状态,指导工艺设计中的原理性设计。

中药水提液由几十甚至上百种小分子化合物(包括挥发油、氨基酸及生物碱、有机酸、黄酮类、皂苷等化学成分)和生物大分子物质(包括肽、蛋白、糖肽及多糖等)组成,是一种典型的高度复杂的大系统客体,因此,十分有必要引入现代自然科学化工过程控制的方法对其进行研究。

节能减排是中药绿色制造的核心目标,智能制造则是中药现代化的重要内容。而传统的浓缩能耗计算公式涉及多达近 10 个物料理化参数和浓缩过程工艺参数,其中部分参数采集方法繁琐、缺乏精准性,且无法实现在线检测,加上繁琐的推算过程,难以在大生产中推广应用。

本研究将化工过程控制基本原理引入中药生产工艺,结合数学建模的基本方法,将原型的某一部分信息简化、压缩、提炼而构造成的原型替代物,在开展中药制剂、分析化学、现代分离科学及计算机技术等多学科联合攻关的基础上,对中药制药浓缩过程进行深入系统的基础研究。

本研究提出的能耗方法,仅需对某一常年生产的大品种建立以白利度为核心参数,与物料黏度、渗透压、比热容、密度和导热率等参数的相关性模型,采用有关算法编制相关软件,即可根据实时采

集的白利度数据,得出瞬时能耗及同一时刻的物料溶液环境各相关特征参数,为膜浓缩这一绿色制造先进技术在大规模生产中的推广应用,也为中药生产过程实现在线监测、智能控制提供技术支撑。

**利益冲突** 所有作者均声明不存在利益冲突

### 参考文献

- [1] 王晖,王积清.医药企业热能利用及节能措施[J].应用能源技术,2001(1):24-25.
- [2] 潘林梅,石飞燕,郭立玮.基于膜蒸馏的中药水提液浓缩技术应用前景及问题探讨[J].南京中医药大学学报,2014,30(1):97-100.
- [3] 宋晓燕,罗爱勤,刘洁瑜,等.肾石通颗粒提取浓缩工艺和节能性研究[J].中国执业药师,2013,10(7):28-31.
- [4] Weaver N J, Wilkin G S, Morison K R, et al. Minimizing the energy requirements for the production of maple syrup[J]. *J Food Eng*, 2020, 273: 109823.
- [5] 于洋,侯一哲,余河水,等.甘草酸溶液浓缩过程中浓度-沸点-饱和蒸汽压三者关系研究[J].中草药,2018,49(1):142-150.
- [6] 侯一哲,李正,余河水,等.甘草水提液浓缩过程动态仿真模拟研究[J].中草药,2019,50(2):364-374.
- [7] 张刘红,钱余义,王筱剑,等.中药水提液在反渗透膜过程中渗透压与电导率相关性模型的构建[J].中国实验方剂学杂志,2015,21(12):1-4.
- [8] 曹光明.中药工程学[M].第2版.北京:中国医药科技出版社,2001:9.
- [9] 张刘红.中药水提液渗透压及其与反渗透动力学过程的相关性研究[D].南京:南京中医药大学,2015.
- [10] 郭立玮.中药分离原理与技术[M].北京:人民卫生出版社,2010.
- [11] Criscuoli A, Drioli E. Date juice concentration by vacuum membrane distillation[J]. *Sep Purif Technol*, 2020, 251: 117301.
- [12] 胡蔓,王建青.折光率检测用于中药膏方质量控制的可行性研究[J].中国药业,2016,25(14):51-52.
- [13] 徐惠芳,石新华,艾伟霞,等.用测折光率的方法检测中药汤剂浓度的研究[J].中国医药指南,2010,8(14):51-52.
- [14] 欧祖勇,高锡斌.传感器技术在中药智能制造中的应用[J].自动化应用,2018(11):126-127.
- [15] 龚学智,甘丽琴.中药行业几种浓缩设备药液密度检测方式分析[J].自动化与仪器仪表,2013(4):204-205.
- [16] 邓中甲.方剂学习题集[M].北京:中国中医药出版社,2003.

- [17] 李冀. 方剂学 [M]. 第 3 版. 北京: 中国中医药出版社, 2012.
- [18] Kayode Coker A. *Fortran Programs for Chemical Process Design, Analysis, and Simulation* [M]. Houston: Gulf Professional Publishing, 1995: 590-720.
- [19] 董行健. 关于“白利糖度”(Brix) [J]. 中国南方果树, 2005, 34(1): 49.
- [20] Lewis M J. *Physical Properties of Foods and Food Processing Systems* [M]. Cambridge, United Kingdom: Woodhead Publishing, 1990: 51-68.
- [21] Qtaishat M, Matsuura T, Kruczek B, *et al.* Heat and mass transfer analysis in direct contact membrane distillation [J]. *Desalination*, 2008, 219(1/2/3): 272-292.
- [22] Liu C, Rainwater K, Song L F. Energy analysis and efficiency assessment of reverse osmosis desalination process [J]. *Desalination*, 2011, 276(1/2/3): 352-358.
- [23] 郭立玮, 朱华旭. 基于膜过程的中药制药分离技术: 基础与应用 [M]. 北京: 科学出版社, 2019: 65-104.

[责任编辑 郑礼胜]