

本文引用:李想,陈洁,张惠萍,何蝶,陈湘柳,周一苗,肖作为.茯苓健脾速溶茶原料及成品吸湿性比较研究[J].湖南中医药大学学报,2022,42(9): 1465-1469.

茯苓健脾速溶茶原料及成品吸湿性比较研究

李想^{1,2,3},陈洁¹,张惠萍¹,何蝶¹,陈湘柳¹,周一苗²,肖作为^{1,2,3*}

(1.湖南中医药大学药学院药食同源实验室,湖南长沙410208;2.湖南中医药大学药学重点学科,湖南长沙410208;
3.湖南中医药大学食品药品工程系,湖南长沙410208)

[摘要] 目的 确定茯苓健脾速溶茶原料在制备过程中需要达到的相对湿度(relative humidity, RH)条件,并且求出其在对应的RH条件下进行加工制备需要的最长时间,对成品制备过程中需要的原料和其最终产品进行吸湿性研究。**方法** 测定茯苓健脾速溶茶(粉剂)原料及成品在不同湿度溶液中的吸湿速率,计算原料及成品的临界相对湿度(critical relative humidity, CRH)。根据吸湿速率,建立数学模型,绘制曲线,求出在吸湿速率参数和吸湿率都是5%时所需的相对湿度条件以及工艺时间,再用解析几何求算CRH。**结果** 25℃时,在RH=66.0%、77.0%、88.2%、99.0%的条件下,茯苓健脾速溶茶(粉剂)原料和成品吸湿百分率达到5%所需要的时间为其在空气中暴露3.25 h和56.26 h,2.56 h和25.84 h,2.02 h和19.17 h,1.90 h和5.03 h;25℃时,茯苓健脾速溶茶(粉剂)原料和成品的CRH为44.19%和67.33%,操作最长时间不超过4.04 h、4.87 h;可保证茯苓健脾速溶茶原料和制剂的吸水量低于5%,不影响制剂操作,使其顺利成型;加入辅料使吸湿百分率达到5%所需要的时间延长,速溶茶成品分别为原料的17.29倍(RH=66.0%)、10.08倍(RH=77.0%)、9.50倍(RH=88.2%)、2.65倍(RH=88.2%)。**结论** 茯苓健脾速溶茶(粉剂)成品的吸湿性远远低于原料,说明本品加入的辅料改善了原料的吸湿性。本实验结果可为确定工业化生产过程中茯苓健脾速溶茶(粉剂)原料及制备产品的加工环境的湿度和可以暴露在空气中的最长时间提供依据。

[关键词] 茯苓健脾速溶茶;吸湿性;吸湿百分率;吸湿速度;临界相对湿度;数学模型

[中图分类号]R283

[文献标志码]A

[文章编号]doi:10.3969/j.issn.1674-070X.2022.09.008

Comparative study one the hygroscopicity of raw materials and finished products of Fuling Jianpi instant tea

LI, Xiang^{1,2,3}, CHEN Jie¹, ZHANG Huiping¹, HE Die¹, CHEN Xiangliu¹, ZHOU Yimiao², XIAO Zuowei^{1,2,3*}

(1. Medicine and Food Homology Laboratory, School of Pharmacy, Hunan University of Chinese Medicine, Changsha, Hunan 410208, China; 2. Key Department of Pharmacy, Hunan University of Chinese Medicine, Changsha, Hunan 410208, China;
3. Department of Food and Drug Engineering, Hunan University of Chinese Medicine, Changsha, Hunan 410208, China)

[Abstract] **Objective** To determine the relative humidity (RH) conditions of the raw materials for Fuling Jianpi instant tea in the preparation; to obtain the longest time required for processing and preparation under the corresponding RH conditions; to explore the hygroscopicity of the raw materials needed in the preparation of finished products and the final product.

[收稿日期]2022-03-29

[基金项目]湖南省中医药管理局科技研发重点项目(201923);长沙市科技局2019年科技项目(18B249)。

[第一作者]李想,女,硕士研究生,研究方向:药学制剂。

[通信作者]*肖作为,男,副教授,硕士研究生导师,E-mail:574512660@qq.com。

Methods The moisture absorption rate of the raw materials and finished products of Fuling Jianpi instant tea (powder) in different humidity solutions was determined, and the critical relative humidity (CRH) of the raw materials and finished products of Fuling Jianpi instant tea (powder) was calculated. According to the moisture absorption rate, a mathematical model was established, and the curve was drawn. The relative humidity condition and the required processing time were calculated when the moisture absorption rate parameter and the moisture absorption rate were both 5%, and then the analytical geometry was used to calculate the CRH. **Results** At 25 °C, under the conditions of RH (relative humidity)=66.0%, 77.0%, 88.2% and 99.0%, the time required for the moisture absorption percentage of raw materials and finished products of Fuling Jianpi instant tea (powder) to reach 5% was 3.25 h and 56.26 h, 2.56 h and 25.84 h, 2.02 h and 19.17 h, 1.90 h and 5.03 h after exposure to air; at 25 °C, the CRH of raw materials and finished products of Fuling Jianpi instant tea (powder) was 44.19% and 67.33%, and the longest operation time did not exceed 4.04 h and 4.87 h; with the water absorption lower than 5%, the operation of the preparation could not be affected and the raw materials and preparations of Fuling Jianpi instant tea could form smoothly; the time required for the addition of auxiliary materials to reach 5% of the moisture absorption percentage was 17.29 times that of the raw materials (RH=66.0%), 10.08 times (RH=77.0%), 9.50 times (RH=88.2%), and 2.65 times (RH=88.2%). **Conclusion** The hygroscopicity of the finished product of Fuling Jianpi instant tea (powder) is far lower than that of the raw material, indicating that the added auxiliary materials in this product can improve the hygroscopicity of the raw materials. The research can provide a basis for determining the humidity conditions and the longest time of exposure to the air in the operating environment of the raw materials and product of Fuling Jianpi instant tea (powder) in the industrial production process.

[Keywords] Fuling Jianpi instant tea; hygroscopicity; moisture absorption percentage; moisture absorption rate; critical relative humidity; mathematical model

茯苓健脾速溶茶处方来源于湖湘地区著名的药食同源中医药膳方,由茯苓、蒲公英、枸杞子、黄精、山楂组合而成,此方中所用原料均为药食两用原料,可以增强免疫力,具有益气健脾、补肾壮骨、强正补虚以及平衡阴阳的功效,此配方也可以减少或消除与癌症相关的疲劳^[1-2]。茯苓健脾速溶茶中的主要活性成分与多糖和人参皂苷 R1、Rg1、Rb1 有关,而这些活性物质能够达到抗肿瘤、加强免疫力的功能,并且多糖和人参皂苷 R1、Rg1、Rb1 都能与水互溶^[3-4],在工艺流程中通常把水作为溶剂,经过一系列操作如提取、过滤、浓缩,低温喷雾干燥,最后干燥提取物粉末,所以茯苓健脾速溶茶原料含有大量多糖、淀粉等黏性成分,暴露在空气中中药粉与空气接触面积大,易吸湿,必须加入防潮性好的辅料制成粉剂。本实验对茯苓健脾速溶茶(粉剂)原料及制剂进行吸湿性研究,求算吸湿速度及临界相对湿度(critical relative humidity, CRH)参数,目的是提供生产依据,确定茯苓健脾速溶茶原料及制剂成品在暴露的空气中进行制备操作时的相对湿度(relative humidity, RH)条件,并且求出在此条件下进行加工所需要的最长时间^[5-6]。

1 仪器与试药

1.1 仪器

MA110 型电子分析天平(上海市第二天平厂);ZK-82A 型真空干燥箱(上海市实验仪器总厂);SHH-150L 型生化培养箱(重庆四达实验有限公司);RHP-400 型高速多功能粉碎机(浙江永康市荣浩工业有限公司)。

1.2 试药

茯苓健脾速溶茶原料及成品(自制);五氧化二磷(天津市科密欧化学试剂有限公司,批号:20130927);溴化钠(国药集团化学试剂有限公司,批号:20150612);氯化钾(广东光华科技股份有限公司,批号:20150825);氯化钠(湖南汇虹试剂有限公司,批号:20140102);硝酸钾(西陇化工股份有限公司,批号:140120);浓硫酸(株洲石英化玻有限公司,批号:2013110506)。

2 方法与结果

2.1 不同湿度环境溶液的配制^[7-10]

2.1.1 不同浓度硫酸溶液配制 分别于 89.80、102.0、110.20 mL 蒸馏水中缓慢倒入量取好的 98%

浓硫酸 110.20、97.96、89.80 mL, 直至搅拌均匀, 放置在干燥器中进行密闭保存, 然后置于恒温干燥箱中在 25 ℃下干燥, 反复多次测得平均 RH 分别为 24.2%、28.6%、37.1%, 分别制得 54.0%、48.0%、44.0% 硫酸溶液。

2.1.2 溴化钠饱和溶液的配制 称取适量溴化钠倒入 200 mL 蒸馏水中, 搅匀, 有少量溴化钠晶体未能完全溶解, 在干燥器内将量取好的 200 mL 饱和溶液(带少量未溶解晶体)进行密闭保存, 然后放置到恒温干燥箱中在 25 ℃下干燥, 反复多次测得平均 RH 为 66.0%。

2.1.3 氯化钠饱和溶液的配制 称取适量氯化钠倒入 200 mL 蒸馏水中, 搅匀, 有少量氯化钠晶体未能完全溶解, 在干燥器内将量取好的 200 mL 饱和溶液(带少量未溶解晶体)进行密闭保存, 然后放置到恒温干燥箱中在 25 ℃下干燥, 反复多次测得平均 RH 为 80.8%。

2.1.4 氯化钾饱和溶液的配制 称取适量氯化钾倒入 200 mL 蒸馏水中, 搅匀, 有少量氯化钾晶体未能完全溶解, 在干燥器内将量取好的 200 mL 饱和溶液(带少量未溶解晶体)进行密闭保存, 然后放置到恒温干燥箱中在 25 ℃下干燥, 反复多次测得平均 RH 为 88.2%。

2.1.5 硝酸钾饱和溶液的配制 称取适量硝酸钾倒入 200 mL 蒸馏水中, 搅匀, 有少量硝酸钾晶体未能完全溶解, 在干燥器内将量取好的 200 mL 饱和溶液(带少量未溶解晶体)进行密闭保存, 然后放置到恒温干燥箱中在 25 ℃下干燥, 反复多次测得平均 RH 为 99.0%。

2.2 吸湿速度及 RH 测定方法

2.2.1 吸湿速度的测定方法^[5-6] 将茯苓健脾速溶茶样品(粉剂)放置在五氧化二磷干燥器中, 干燥 72 h 恒定重量。含有不同湿度介质溶液的干燥器在 25 ℃ 的培养箱中恒温 24 h, 确定含有不同湿度介质溶液的干燥器的相对湿度。取适量茯苓健脾速溶茶(粉剂)在研钵中研成粉, 称量 1 g, 平行称取 7 份, 置于称量瓶中, 将样品置于已恒定湿度的干燥器内, 在称量瓶底部放入厚度约 2 mm 的样品, 准确称重后置于干燥器内(称量瓶盖打开)置于 25 ℃ 恒温培养箱内保存, 不同时间称重, 每份重复 3 次, 计算吸湿率平均值[吸湿率=(吸湿后重量-吸湿前重量)/吸湿前重量], 以吸湿率(%)为纵坐标, 时间(h)为横坐标作图, 建立数学模型, 确定吸湿率参数, 从而确定生产和储

存过程中空气湿度的控制范围以及操作条件。

2.2.2 RH 测定方法^[13-15] 茯苓健脾速溶茶(粉)烘干至恒重, 准确称量后分别放置在封闭的含有 7 种不同浓度的硫酸和盐过饱和溶液的干燥器内(称量瓶盖打开), 在 25 ℃ 恒温培养箱中称量 6.5 d, 每个样品重复 3 次, 计算以 RH 为横坐标, 以干浸膏粉吸湿率为纵坐标绘制吸湿率平均值。

2.3 吸湿速度及 RH 测定结果

2.3.1 吸湿速度测定结果 茯苓健脾速溶茶原料及制剂吸湿速度测定结果见表图 1、图 2。可看出随着时间的增加, 原料吸湿速度曲线在不断上升, 在 150 h 时吸湿百分率达到最大, 相同时间下, 吸湿率达到 99.0% 用时最长。成品吸湿百分率随着时间的增长上升较慢, 说明加入辅料后成品更易保存, 不易吸湿受潮。

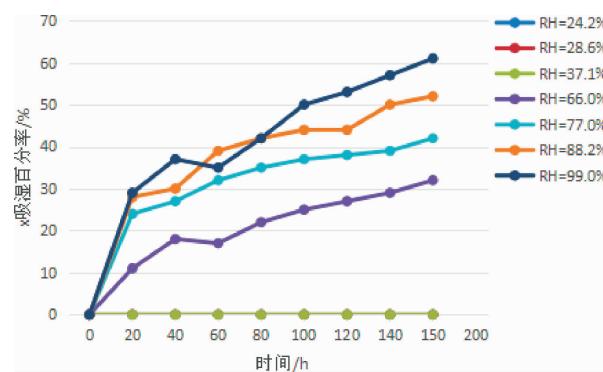


图 1 茯苓健脾速溶茶(粉剂)原料吸湿速度曲线图

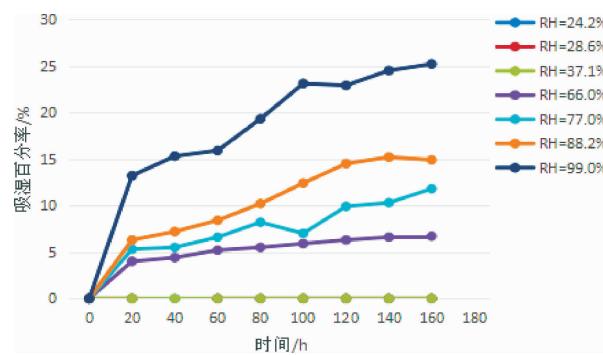


图 2 茯苓健脾速溶茶(粉剂)成品吸湿速度曲线图

2.3.2 建立茯苓健脾速溶茶(粉剂)原料及制剂吸湿速度的动力学模型 用几种比较接近的数学模型对在不同湿度下测定的茯苓健脾速溶茶(粉剂)原料及制剂吸湿百分率与时间的函数关系进行拟合(使用 DPS 统计软件 9.5 版处理)^[11-12], 找出与其最接近的数学模型以及对应的数学表达式, 见表 1、表 2。

2.3.3 吸湿百分率为 5% 所需要的时间及 95% 置信区间(误差范围) 固体粉末含水量<5%, 所以求

表1 茯苓健脾速溶茶(粉剂)原料吸湿速度的动力学模型

RH	数学模型名称	数学表达式	R ²	F	P
66.0%	Michaelis-Menten	$Y=\frac{32.15X}{(X+18.59)}$	0.972	4	528.98
77.0%	Michaelis-Menten	$Y=\frac{46.86X}{(X+22.58)}$	0.995	3	3196
88.2%	Michaelis-Menten	$Y=\frac{51.32X}{(X+19.67)}$	0.984	4	945.6
99.0%	Michaelis-Menten	$Y=\frac{68.28X}{(X+25.33)}$	0.994	2	2581

注:R².拟合度、F.方差比、P.显著性水平。

表2 茯苓健脾速溶茶(粉剂)成品吸湿速度的动力学模型

RH	数学模型名称	数学表达式	R ²	F	P
66.0%	幂函数	$Y=1.271X^{0.335}$	0.987	3	1162
77.0%	幂函数	$Y=0.900 \cdot 9X^{0.518}$	0.993	9	2451
88.2%	幂函数	$Y=0.859 \cdot 3X^{0.586}$	0.995	5	3307
99.0%	幂函数	$Y=0.286X^{0.469}$	0.993	8	2405

95%置信区间($\alpha=0.05, n=3, df=2$),则需要在Y=5%时,计算动力学方程中的X,见表3。

表3 不同湿度下各样品吸湿百分率为5%所需要的时间及95%置信区间

RH	茯苓健脾速溶茶原料		茯苓健脾速溶茶制剂	
	t _{5%} /h	95%置信区间/h	t _{5%} /h	95%置信区间/h
66.0%	3.42	3.25~3.59	59.20	56.26~62.14
77.0%	2.70	2.56~2.83	27.19	25.84~28.54
88.2%	2.12	2.02~2.23	20.17	19.17~21.17
99.0%	2.00	1.90~2.10	5.30	5.03~5.56

从表3中的结果来看,茯苓健脾速溶茶(粉剂)原料吸湿率为5%所需要的时间中RH=66.0%的95%置信区间与RH=77.0%的95%置信区间未重叠,可说明茯苓健脾速溶茶(粉剂)原料吸湿性随环境湿度增大而明显增大,RH=88.2%、RH=99.0%的95%置信区间重叠,说明茯苓健脾速溶茶(粉剂)原料吸湿性在RH=88.2%~RH=99.0%之间相差不大,也可能系实验误差所致;同理,茯苓健脾速溶茶(粉剂)制剂成品在吸水率为5%时所需要的时间都没有在95%置信区间内重叠,说明随环境的湿度增大茯苓健脾速溶茶(粉剂)制剂成品吸湿性也显著地增加。

将茯苓健脾速溶茶(粉剂)原料与制剂成品的t_{5%}(h)比较,t_{5%}(h)在各湿度下95%置信区间都没有重叠,差异具有统计学意义,原料的吸湿性比成品大,成品中由于加入防潮性好的辅料使吸湿率达到5%所需要的时间延长,分别为原料的17.29倍(RH=66.0%)、10.08倍(RH=77.0%)、9.50倍(RH=88.2%)、2.65倍(RH=99.0%)。按统计学原则,吸湿率达到5%时

所需要的时间应取下限,因此,25℃时,茯苓健脾速溶茶(粉剂)原料在RH=66.0%、77.0%、88.2%、99.0%的条件下,分别暴露空气中3.254、2.563、2.017、1.902 h,吸湿百分率可以达到5%;同理,25℃时,茯苓健脾速溶茶(粉剂)制剂成品RH=66.0%、77.0%、88.2%、99.0%的条件下,分别在空气中暴露56.26、25.84、19.17、5.03 h吸湿百分率就会达到5%。

本实验结果可为工业化生产过程中茯苓健脾速溶茶(粉剂)原料和制剂成品两道工序操作环境的湿度条件和操作的最长时间的确定提供依据和参考^[10-13]。

2.3.4 RH的测定结果 茯苓健脾速溶茶(粉剂)原料和制剂成品临界RH测定结果见图3。可以看出原料的吸湿率明显大于成品,说明原料在经过工艺加工后,成品产品性能得到较大提升。

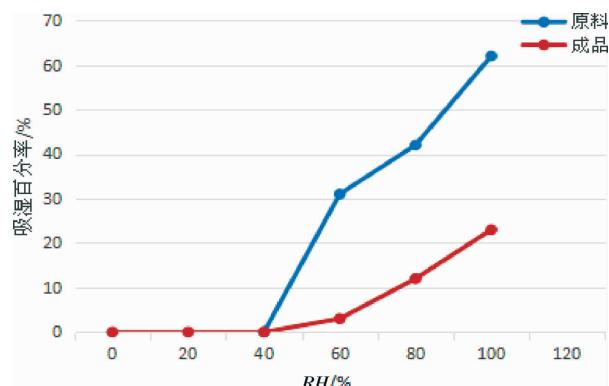


图3 不同相对湿度条件下茯苓健脾速溶茶原料和成品的吸湿百分率

2.3.5 在吸湿百分率为5%的条件下建立其时间与RH变化的函数关系,计算不同RH下吸湿百分率为5%时所需要的时间,详见表4。

表4 吸湿百分率为5%时对应的时间与RH数据表

RH	原料吸湿百分率为5%时所需时间/h	成品吸湿百分率为5%时所需时间/h
66.0%	3.25	56.26
77.0%	2.56	25.84
88.2%	2.02	19.17
99.0%	1.90	5.03

采用DPS统计软件9.5版找出最接近的数学表达式表达茯苓健脾速溶茶(粉剂)原料和制剂成品在吸湿百分率为5%时对应的时间(Y)与RH(X)的关系,见式(1)(2)。

$$Y=5.886-0.04182X, R^2=0.9267, F=25.30, P=0.0373 \quad (1)$$

$$Y=146.7-1.455 \cdot 00X, R^2=0.917 \quad 6, F=22.27, P=0.042 \quad 1 \quad (2)$$

2.3.6 *RH* 的计算 以 *RH*(%)为横坐标,吸湿率(%)为纵坐标。见图 3。*RH* CRH(%)为曲线两端切线交点对应的横坐标,即在茯苓健脾速溶茶原料(粉剂)前 3 点建立的第一个线性方程为: $Y_1=0.002 \cdot 204X-0.014 \cdot 65 (R^2=0.993 \cdot 7)$; 成品后 3 点建立的第二条直线方程为: $Y_2=1.1X-48.54 (R^2=0.991 \cdot 4)$; $Y_1=Y_2$ 则: $X=CRH=44.19\%$ 。

同理,茯苓健脾速溶茶(粉剂)成品前 3 点建立的第一条直线方程为: $Y_1=0.011 \cdot 36X-0.274 \cdot 9 (R^2=0.995 \cdot 3)$; $Y_2=0.745 \cdot 4X-49.69 (R^2=0.994 \cdot 8)$ 为成品后 3 点建立的第二条直线方程; $Y_1=Y_2$ 则: $X=CRH=67.33\%$ 。

为保证茯苓健脾速溶茶(粉剂)原料和制剂成品吸水量低于 5%。将茯苓健脾速溶茶(粉剂)原料和制剂成品的 $CRH=44.19\%$ 和 $CRH=67.33\%$ 代入式(1)和式(2)中计算出如果暴露在空气中那么操作进行的最长时间不超过 4.038 h 和 4.873 h。

3 讨论

水溶性药物吸湿性的一个特征参数是 *RH*。茯苓健脾速溶茶(粉)的原料和成品均为混合物,没有典型的 *RH*。即使 *RH* 发生变化,吸湿率也没有明显的转折点^[16-17],解析几何得到的 *CRH* 只是一个近似值。固体原料粉末与粉剂质量标准中的含水量一般应控制在 5%以下,所以为了防止固体原料粉末与粉剂吸湿,难以制成固体制剂,保证成品质量,生产中环境湿度的控制指标应取含水量在 5%时对应的相对湿度及操作的最长时间下限。

本实验结果说明,通过参考文献选择加入防潮性好的辅料可以降低原料的吸湿性,提高 *CRH* 值,茯苓健脾速溶茶成品的 *CRH* 值比原料大 1.524 倍,即 *CRH* 从 44.19% 提高到 67.33%,有效地降低了茯苓健脾速溶茶原料的吸湿性。数学模型及数学表达式反映固体物料的吸湿机制,即固体物料吸湿随时间变化的规律,为了预测工艺操作中暴露在空气中的最长时间,需要通过建立数学模型及数学表达式求算吸湿速度和吸湿量参数。受实验条件限制,未

考察不同温度条件下茯苓健脾速溶茶(粉剂)原料和制剂成品的吸湿速度及 *RH*,从而获得更加完整的吸湿性参数。

参考文献

- [1] 乔绚.速溶红茶浸提工艺与微胶囊化的制备及其品质特性研究[D].杭州:浙江工商大学,2020.
- [2] 游昕,熊大国,郭志斌,等.茯苓多种化学成分及药理作用的研究进展[J].安徽农业科学,2015,43(2):106-109.
- [3] 葛瑞宏,李鹏冲,王永,等.黑苦荞黄酮提取工艺及其胶囊制备研究[J].农产品加工,2020(5):36-42,45.
- [4] 肖俊勇,熊瑜,徐路,等.香菇多糖的干法制粒工艺优化及其对吸湿性和流动性的影响[J].食品科技,2018,43(11):202-208.
- [5] 李紫嫣,赵婷,刘芳,等. D-最优混料设计优化独活寄生颗粒成型工艺的研究[J].食品与药品,2021,23(4):317-321.
- [6] 刘晓燕,何雁,韩修林,等.中药浸膏粉吸湿动力学曲线模型适应性评价[J].中国实验方剂学杂志,2011,17(6):1-6.
- [7] 蒋逸凡,金梦圆,周选国.茯苓多糖及其免疫调节功能研究进展[J].食用菌学报,2021,28(2):130-139.
- [8] 王淑惠,杨小斌,罗旭洮,等.蓝圆鲹鱼油微胶囊稳定性分析及其货架期预测模型的建立与评价[J].食品科学,2020,41(21):66-72.
- [9] 王晴,徐冰,王芬,等.桂枝茯苓胶囊内容物吸湿性预测建模研究[J].中国中药杂志,2020,45(1):242-249.
- [10] 熊瑜,肖俊勇,甘祥俊,等.灵芝多糖制粒工艺对吸湿性和流动性的影响研究[J].中国药师,2020,23(6):1201-1204,1207.
- [11] 胡伟,赵仁亮,姜依何,等.湖南黑毛茶等温吸湿模型建立及霉变安全性研究[J].食品科学,2018,39(7):27-32.
- [12] CHEN Y, YU Z Y, YE Y H, et al. Superelastic, hygroscopic, and ionic conducting cellulose nanofibril monoliths by 3D printing[J]. ACS Nano, 2021, 15(1): 1869-1879.
- [13] 蒋星,刘平安,田慧,等.参山颗粒原料和成品的吸湿性比较研究[J].中国药师,2022,25(8):1328-1333.
- [14] 祁立波,郭敏强,姜鹏飞,等.响应面法优化海带原料制作海苔的吸湿性[J].大连工业大学学报,2019,38(6):391-397.
- [15] MEYER N K, DUPLISSY J, GYSEL M, et al. Analysis of the hygroscopic and volatile properties of ammonium sulphate seeded and unseeded SOA particles[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2009, 9(2): 721-732.
- [16] 陈光宇,饶智,瞿昊宇,等.五汁饮颗粒处方优化及其吸湿性[J].中成药,2021,43(8):2157-2160.
- [17] 雷声,刘秀明,李源栋,等.不同植物多糖对烟丝吸湿性和保润性的影响及其作用机制[J].食品与机械,2019,35(8):49-54.

(本文编辑 苏维)