

不同工艺提取金花茶叶子中精油的实验

郑亭亭, 梁林富, 陈洪

(中南林业科技大学 材料科学与工程学院, 湖南 长沙 410018)

摘要: 以金花茶叶子为研究对象,用精油得油率作为衡量提取工艺的指标,研究金花茶叶子精油提取工艺.在单因素实验基础上,研究超声提取法、水蒸气蒸馏法和超临界 CO₂ 萃取法 3 种方法提取金花茶叶子精油的工艺条件,考虑各因素对提取效果的影响,确定各因素的最佳工艺水平,筛选出得油率高的精油提取工艺.结果表明:超临界 CO₂ 萃取法的得油率相对其他两种方法要好.

关键词: 金花茶; 叶; 精油; 超临界 CO₂ 萃取法; 超声提取法; 水蒸气蒸馏法

中图分类号: TQ 914.1

文献标志码: A

金花茶(*Cuminum chrysantha*)为常绿灌木或小乔木,是国家一级保护植物^[1],主要分布在广西西南部,对热量要求较高,属热带性树种^[2].据报道,金花茶含有降血糖、降血脂、降胆固醇、抑制肿瘤生长等多种生理功能^[3-4]的活性成分,以及多种微量元素.黄永林等^[5]通过利用高脂血症模型证明金花茶叶提取物具有降血脂作用.夏星等^[6]利用糖尿病小鼠模型证明其叶提取物可改善胰腺结构和功能.精油是存在于叶等器官中的一类拥有特殊香味,具有常温下易挥发性的油状液体的总称,由相对分子质量较小的简单化合物组成^[7].精油易溶于有机溶剂和乙醇,不溶于水,对光和热较敏感,易变质^[8-9].受地理分布影响,国内相关研究工作的开展集中于国内广西及周边高校,主要研究工作集中于金花茶黄酮、多糖类混合物的提取工艺上,但国外在金花茶的药用价值和化学成分研究工作几乎未见报道^[10].此外,目前国内关于金花茶叶子精油的研究尚未见报道.本文借鉴其他植物精油的提取方法,综合考虑各方面因素,研究水蒸气蒸馏法、超声波提取法和超临界流体萃取法这 3 种提取方法的工艺条件.

1 材料与方法

1.1 材料与仪器

金花茶(*Cuminum chrysantha*)叶;无水硫酸钠、氯化钠、石油醚、乙酸乙酯、丙酮,均为分析纯.水蒸气蒸馏装置;油水分离器;SB-5200 DTD 型超声波清洗仪;RE-52A 型旋转蒸发器;加压硅胶柱;硅胶板;超临界 CO₂ 萃取装置.

1.2 金花茶叶子精油提取工艺

1.2.1 水蒸气蒸馏法 将一定质量的金花茶叶粉末置于 2 000 mL 单口烧瓶中,加入一定量的水,浸泡一定时间,进行水蒸气蒸馏,连续收集直到无液滴流下为止;向油水混合物中加入一定量 NaCl,用有机溶剂进行萃取,无水硫酸钠干燥后浓缩萃取液,得到浅黄色精油^[11-16].

1.2.2 超声波提取法 称取一定量金花茶叶粉末,放入具塞锥形瓶,加入提取液乙酸乙酯(金花茶叶和乙酸乙酯的体积质量比为 1:4),放入超声清洗仪进行萃取^[17-23].萃取完成后过滤,滤液用旋转蒸发器常温浓缩;然后,再向浓缩液中加入适量丙酮二次浓缩.采用色谱法去除浓缩液中色素;最后,浓缩得到

收稿日期: 2016-03-09

通信作者: 陈洪(1966-),男,教授,博士,主要从事新能源材料、仿生材料和材料表面工程、林业生物质资源的开发与综合利用的研究. E-mail:chenhongcs@126.com.

基金项目: 湖南省自然科学基金资助项目(2015JJ3176);中南林业科技大学引进高层次人才科研启动项目(2013YJ049)

金花茶叶精油.

1.2.3 超临界 CO₂ 萃取法 实验前采用 CO₂ 清洗装置管路和萃取釜, 时间为 0.5 h. 然后, 称取 50 g 金花茶叶粉末, 加入萃取釜中, 开启装置, 待压力和温度达到设定值, 萃取一定时间, 收集产品.

2 结果与分析

2.1 水蒸气蒸馏法影响精油得率的主要因素

研究发现在水蒸气蒸馏法提取金花茶叶精油的过程中, 蒸馏时间、料液比和 NaCl 质量分数是影响精油得率的主要因素.

2.1.1 蒸馏时间 固定金花茶叶粉末质量为 50 g, 加入 700 mL 蒸馏水和质量分数为 2% 的 NaCl, 考察不同蒸馏时间对金花茶叶精油提取效果的影响, 结果如图 1(a) 所示. 图 1(a) 中: η 为精油得率; t_1 为蒸馏时间.

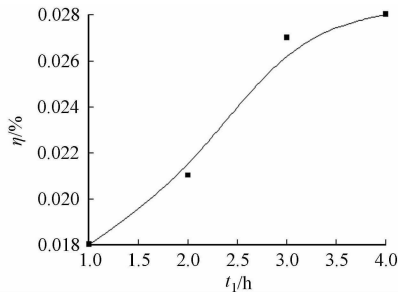
由图 1(a) 可知: 精油得油率(γ)随蒸馏时间延长而增加, 但到 3 h 后增加速度明显下降. 时间太短, 水分不能充分渗透到金花茶叶组织的各个部位, 与活性物质接触, 提取会不完全, 通过延长提取时间可使提取更彻底, 效果更好; 但时间太长, 要消耗更多能源. 因此, 从精油得率和节约能源两方面考虑, 提取时间以 3 h 为宜.

2.1.2 料液比 固定金花茶叶粉末质量为 50 g, NaCl 的质量分数为 2%, 蒸馏时间为 3 h, 考察不同料液比对金花茶叶精油提取效果的影响, 结果如图 1(b) 所示.

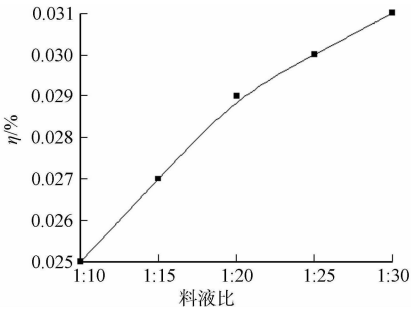
由图 1(b) 可知: 料液比越大, 即水越多, 精油得率越高, 提取越彻底. 然而, 当料液比增加到 1 : 25 时, 精油得率增长速度下降. 对于一定量的物料来说, 精油的质量浓度随着溶剂量的增加而降低, 传质速率随着精油与溶剂二者接触面处的质量浓度差的加大而提高^[24-25]. 同时, 可以让原料得到充分地浸泡, 细胞更容易破裂, 油也更容易渗透出来, 在一定程度上增加提取率; 而当溶剂量过大时, 不仅不能明显提高得率, 反而会造成资源浪费. 所以从降低成本、节省能源及结合最优工艺参数等角度考虑, 提取料液比为 1 : 20 较适宜.

2.1.3 NaCl 质量分数 NaCl 在挥发油蒸馏体系中主要起盐析的作用^[26]. 固定金花茶叶粉末质量为 50 g, 加入蒸馏水为 1 000 mL, 蒸馏时间为 3 h, 考察不同 NaCl 质量分数对金花茶叶精油提取效果的影响, 结果如图 1(c) 所示.

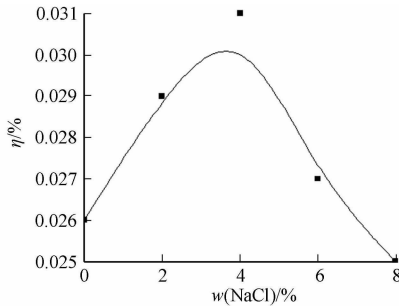
由图 1(c) 可知: 加入 NaCl 溶液可提高出油率, 当 NaCl 浓度超过 4% 时, 精油得率呈明显下降趋势. 在水中加入 NaCl, 可大大提高得油率. 主要因为 NaCl 能减小精油在水中的溶解度, NaCl 溶液在茶叶内外的渗透压差使精油



(a) 蒸馏时间



(b) 料液比



(c) NaCl 质量分数

图 1 水蒸气蒸馏法提取金花茶叶精油的单因素实验

Fig. 1 Single factor experiment of extracting essential oil from the *Cuminum chrysanth*a leaves by vapor distillation

更容易渗出而被蒸出; 而当 NaCl 添加量继续增加时, 其盐析效果减弱. 因此, 选择最佳 NaCl 质量分数为 4%.

2.2 超声波提取法影响精油得率的主要因素

在对该方法的提取工艺进行探索过程中,考察的影响因素主要是提取时间、提取温度和提取功率。
2.2.1 超声时间 固定金花茶叶粉末质量为 50 g,提取温度为 40 ℃,提取功率为 80 W,考察不同提取时间对金花茶叶精油提取效果的影响,结果如图 2(a)所示. 图 2(a)中: t_2 为超声时间.

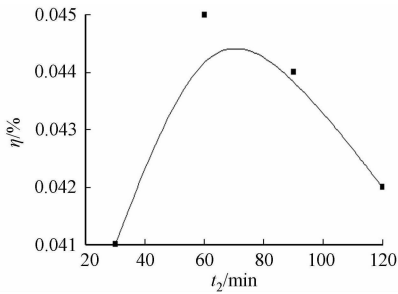
由图 2(a)可知:精油得率随着超声时间的增加先呈现增大的趋势,在超声时间 60 min 时具有最大值,之后,又开始下降. 可能是由于目标物质在长时间的超声波作用下发生降解. 因此. 选择最佳超声时间为 60 min.

2.2.2 超声温度 已有研究成果证实,超声提取过程中产生的空化作用会使介质局部温度升高. 固定金花茶叶粉末质量为 50 g,提取功率为 80 W,提取时间为 90 min,考察提取温度对金花茶叶精油提取效果的影响,结果如图 2(b)所示. 图 2(b)中: θ_1 为提取温度.

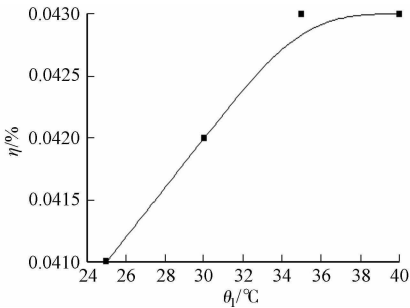
由图 2(b)可知:当以水作介质时,随着温度的逐渐升高,水中小气泡不断增多,空化作用得到增强,使得精油提取率升高;但当温度过高时,气泡中的蒸气压反而过高,导致气泡在闭合过程中的缓冲作用得到了加强,而空化作用却受此减弱,从而引发了精油得率增加速度开始减慢的趋势. 因此,选择最佳超声温度为 40 ℃.

2.2.3 超声功率 固定金花茶叶粉末质量为 50 g,提取温度为 35 ℃,提取时间为 90 min,考察不同提取功率对金花茶叶精油提取效果的影响,结果如图 2(c)所示.

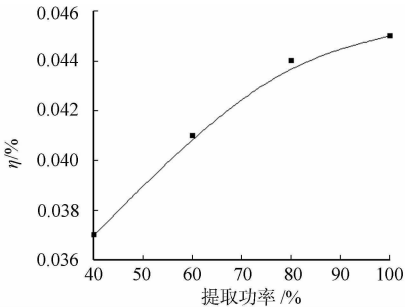
从图 2(c)可知:逐渐加大超声功率,精油提取率呈上升的趋势,当超声功率为从 80 W 加大到 100 W 时,精油的



(a) 提取时间



(b) 超声温度



(c) 超声功率

图 2 超声波提取法提取金花茶叶精油的单因素实验

Fig. 2 Single factor experiment of extracting essential oil from the *Cuminum chrysanth*a leaves by ultrasonic method

提取率几乎没变化. 可能是随着超声功率增大,介质吸收超声波能量增加,将其转化成的热能增加,从而导致物料内部温度升高加快,加速有效成分溶解的,但同时也有破坏. 因此,选择最佳提取功率为 80 W.

2.3 超临界 CO₂ 萃取法

超临界二氧化碳萃取法中,影响提取率的主要因素是萃取压力,但为了验证其他因素是否有影响,同时也设计了萃取温度和萃取时间的单因素实验.

2.3.1 萃取压力 固定萃取温度为 50 ℃,萃取时间为 2 h,分离器压力为 7.5 MPa,考察不同萃取压力对金花茶叶精油提取效果的影响,结果如图 3(a)所示. 图 3(a)中: p 为萃取压力.

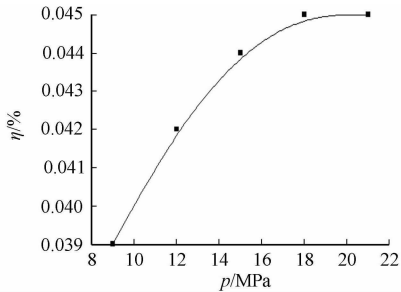
由图 3(a)可知:伴随着萃取压力的提高,精油的提取率也随之增大. 当萃取压力升到 15 MPa 以后,提取率的增加幅度随着压力的提高而变化不大;与此同时,精油产品的色泽随着压力的提高而不断加深. 在萃取压力小于 18 MPa 时,色泽很浅,稍带淡黄;当萃取压力达到 18 MPa 时,颜色为淡黄;而当萃取压力达到 21 MPa 时,产品开始出现混浊. 这是由于萃取压力的提高,使得超临界二氧化碳流体的密度增大,超临界二氧化碳流体被萃取物中的溶解能力随之增加. 此时,在超临界二氧化碳流体中的一些分子质量分数较大的色素和极性较大的物质的溶解量增大,被一同萃出,在较高压力下,产品颜色加深.

还需注意的是,能耗随着压力升高而增大. 因此,综合分析提取率、产品质量和能量消耗等多方面因素,萃取压力的最佳优化工艺条件为 15~18 MPa.

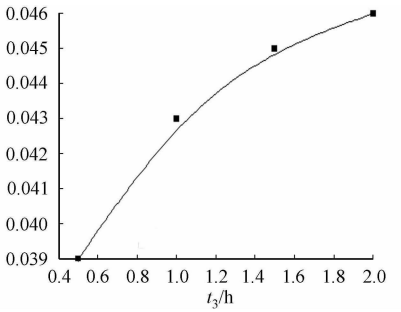
2.3.2 萃取温度 固定萃取压力为 15 MPa,萃取时间为 2 h,分离器压力为 7.5 MPa,考察不同萃取温度对金花茶叶精油提取效果的影响,结果如图 3(b)所示. 图 3(b)中: θ_2 为萃取温度.

由图 3(b)可知:萃取温度对金花茶精油得率的影响并不如萃取压力那么显著. 这主要是受两方面因素的影响:一则是溶质的挥发性和扩散系数;另一则是 CO_2 的溶解度. 在萃取温度比较低时,随着温度的慢慢升高,溶质的挥发性和扩散系数都随之增大,大于 CO_2 受温度升高导致密度下降造成的溶解度的降低,使提取效果增加;而在萃取温度比较高时,溶质的挥发性和扩散系数的增大,不足以补偿由于 CO_2 密度减小所引起的溶解能力的下降趋势,导致提取率变化不再显著. 考虑能耗因素,萃取温度以较低为宜,所以萃取温度的最佳优化工艺条件为 45 $^{\circ}\text{C}$.

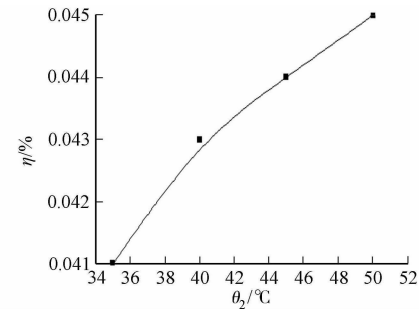
2.3.3 萃取时间 固定萃取温度为 50 $^{\circ}\text{C}$,萃取压力为 15 MPa,考察不同萃取时间对金花茶叶精油提取效果的影响,结果如图 3(c)所示. 图 3(c)中: t_3 为萃取时间.



(a) 萃取压力



(c) 萃取时间



(b) 萃取温度

图 3 超临界 CO_2 萃取法提取金花茶叶精油的单因素实验

Fig. 3 Single factor experiment of extracting essential oil from the *Cuminum chrysantha* leaves by supercritical CO_2 extraction

萃取时间的延长而有较为显著的增大;而当萃取时间大于 1.5 h 后,精油的得率变化很小. 说明此时精油已基本萃取完全,再继续萃取没有意义. 这是由于萃取开始时,超临界 CO_2 流体与溶质接触时间短,未充分接触,导致萃取量少;随着时间的延长,二者接触时间逐渐充分,其中的传质达到良好状态,单位时间内的萃取量不断增大. 考虑能耗因素,确定萃取时间的最佳工艺条件 1.5 h.

3 结束语

由单因素实验得出 3 种不同方法提取金花茶叶子中精油各自最佳工艺条件. 综合以上 3 种方法,超临界 CO_2 萃取法的得油率相对超声提取法和水蒸气蒸馏法要好,所以选取超临界 CO_2 萃取法提取.

参考文献:

[1] 韦霄,蒋水元,蒋运生,等. 珍稀濒危植物金花茶研究进展[J]. 福建林业科技,2006,33(3):169-174.
[2] 韦霄,蒋运生,韦记青,等. 珍稀濒危植物金花茶地理分布与生境调查研究[J]. 生态环境,2007,16(3):895-899.
[3] 秦小明,宁恩创,杨宏. 金花茶叶药用保健成分提取新工艺研究[J]. 食品工业科技,2005,26(10):122-124.
[4] 湛志华. 金花茶叶中黄酮成分的提取与分离[D]. 桂林:广西师范大学,2006:10-11.
[5] 黄永林,陈月圆,文永新,等. 不同溶剂提取及初步纯化的金花茶叶提取物降血脂功能实验研究[J]. 时珍国医国药,2009,20(4):776-777.
[6] 夏星,潘传燊,黄琳,等. 金花茶叶对糖尿病小鼠胰腺功能的影响研究[J]. 时珍国医国药,2013,24(12):2863-2865.
[7] 杨君,张献忠,高宏建. 天然植物精油提取方法研究进展[J]. 中国食物与营养,2012,18(9):31-35.

[8] ERNEST G. Recent developments in essential oil production[J]. *Economic Botany*, 2005, 105(2): 355-378.

[9] PADMA S V. Essential oils and fragrances from natural sources[J]. *Resonance*, 2004, 9(4): 30-41.

[10] 邓桂英. 我国金花茶研究的文献分析[J]. *广西热带农业*, 2001, 24(1): 40-42.

[11] 李之平. 圆柏植物精油: 中国 031440010[P]. 2003-04-25.

[12] 马希汉, 王永红, 尉芹, 等. 玫瑰精油提取工艺研究[J]. *林产化学与工业*, 2004, 24(增刊 1): 80-84.

[13] 吉礼, 车证明, 黄伟, 等. 水蒸汽蒸馏法提取橙皮精油的研究[J]. *食品研究与开发*, 2008, 29(4): 92-94.

[14] 赵华, 张金生, 李丽华, 等. 植物精油提取技术的研究进展[J]. *辽宁石油化工大学学报*, 2006, 26(4): 137-140.

[15] WANG Z. Improved solvent-free microwave extraction of essential oil from dried *Cuminum cyminum* L and *Zanthoxylum bungeanum* Maxim[J]. *Journal of Chromatography A*, 2006, 1102(1/2): 11-17.

[16] 姜子涛, 姜雅静, 聂喜梅. 孜然精油的化学成分及其提取工艺研究[J]. *中国调味品*, 1993, 1(1): 11-13.

[17] KANAKDANDE D. Stability of cumin oleoresin microencapsulated in different combination of gum arabic, maltodextrin and modified starch[J]. *Carbohydrate Polymers*, 2007, 67(4): 536-541.

[18] BEHERA S. Microwave heating and conventional roasting of cumin seeds (*Cuminum cyminum* L) and effect on chemical composition of volatiles[J]. *Food Chemistry*, 2004, 87(1): 25-29.

[19] 郭孝武. 一种提取中草药化学成分的方法超声提取法[J]. *天然产物研究与开发*, 1998, 11(2): 37-40.

[20] 郭孝武, 杨锐. 不同频率超声提取对益母草总碱提出率的影响[J]. *中国医药学杂志*, 1999, 19(8): 465-466.

[21] 朱自强. 超临界流体技术原理和应用[M]. 北京: 化学工业出版社, 2000: 35-42.

[22] 吕维忠, 钟振声, 黄少烈, 等. 超临界 CO₂ 萃取大豆磷脂的工艺研究[J]. *食品科学*, 2000, 26(3): 28-30.

[23] 陈虹, 张承红. 超临界流体萃取及其在我国的研究应用进展[J]. *化工进展*, 1999, 18(3): 227-234.

[24] 陈虹霖, 宋磊. 不同活化方法对开心果壳活性炭的孔结构影响[J]. *华侨大学学报(自然科学版)*, 2014, 35(5): 558-563.

[25] 王卿. 佛手香气成分及其精油的提取和应用研究[D]. 福州: 福建农林大学, 2014: 42-46.

[26] 张鹰, 王满生, 曾新安, 等. 金柚柚皮精油提取条件优化及其抑菌性能研究[J]. *食品工业*, 2014, 35(5): 54-57.

Experiment of Extracting From *Cuminum chrysanth* Leaves by Different Technologies

ZHENG Tingting, LIANG Linfu, CHEN Hong

(College of Material Science and Engineering, Central South University of Forestry and Technology, Changsha 410018, China)

Abstract: With the leaves of *Cuminum chrysanth* as the research object, the essential oil extraction technology was studied by using essential oil extraction rate as index. Based on the single factor experiment, the ultrasonic extraction, vapor distillation and supercritical CO₂ extraction were explored to extract essential oil from the *Cuminum chrysanth* leaves. The process parameters and the influence of different factors on extract efficiency were all investigated and optimized to obtain the optimal extraction technology with high essential oil extraction rate. Results showed that the best essential oil extraction rate could be achieved by supercritical CO₂ extraction comparing with the other two methods.

Keywords: *Cuminum chrysanth*; leaves; essential oil; extraction; supercritical extraction; vapor distillation

(责任编辑: 陈志贤 英文审校: 刘源岗)