

响应面法优化微波辅助提取香茅精油工艺研究

孙毅^{1,2}, 张峻松^{1*}, 罗海涛³, 刘思奎³ (1. 郑州轻工业大学, 河南郑州 450002; 2. 云南瑞升烟草技术(集团)有限公司, 云南昆明 650106; 3. 江西中烟工业有限责任公司, 江西南昌 330096)

摘要 [目的]研究微波辅助提取香茅精油的工艺条件。[方法]采用微波辅助法提取香茅草,在单因素试验的基础上,选取提取时间、微波功率、液固比3个主要因素,采用响应面法分析这3个因素对精油提取率的影响,并拟合二次多项式回归方程的预测模型。[结果]微波辅助提取香茅精油的最佳工艺条件为提取时间128 min,微波功率472 W,液固比为12.5:1,在此条件下香茅精油平均得率为1.40%,与模型的理论预测值(1.406%)基本吻合。[结论]该研究确定了微波辅助提取香茅精油的最佳工艺条件。

关键词 香茅精油;微波辅助提取;响应面法;优化

中图分类号 TS201.1 文献标识码 A

文章编号 0517-6611(2019)17-0190-04

doi:10.3969/j.issn.0517-6611.2019.17.054

开放科学(资源服务)标识码(OSID):



Study on the Optimization of Microwave-assisted Extraction of Citronella Oil from Cymbopogon by Response Surface Methodology
SUN Yi^{1,2}, ZHANG Jun-song¹, LUO Hai-tao³ et al (1. Zhengzhou University of Light Industry, Zhengzhou, Henan 450002; 2. Yunnan Reascend Tobacco Technology (Group) Co., Ltd., Kunming, Yunnan 650106; 3. China Tobacco Jiangxi Industry Co., Ltd., Nanchang, Jiangxi 330096)

Abstract [Objective] To study the the extraction technology of citronella oil from Cymbopogon by microwave-assisted extraction. [Method] The citronella oil was extracted from Cymbopogon by using microwave-assisted extraction. Based on the results of single factor experiment, three factors of extraction time, microwave extraction power and liquid-solid ratio as independent variables, the effects of these three factors on the yield of citronella oil were analyzed by using response surface methodology (RSM) and the prediction model of quadratic polynomial regression equation was simulated. [Result] The optimum conditions of citronella oil by using microwave-assisted extraction were extraction time of 128 min, microwave extraction power of 472 W, liquid-solid ratio of 12.5:1. Under these conditions, the yield of citronella oil reached 1.40%, which was close to the theoretical predicted value (1.406%) of this model. [Conclusion] This study identified the optimum microwave-assisted extraction of citronella oil from Cymbopogon.

Key words Citronella oil; Microwave-assisted extraction; Response surface method; Optimization

香茅属(*Cymbopogon*)隶属禾本科(Gramineae),为多年生草本植物,主要分布于东半球的热带及亚热带地区,我国各地共有野生及人工栽培品种20余种^[1],主要在云南、广西和广东等地区大面积种植,具有一定的经济价值,主要用于香料和药物前体物的提取和制备,也是西南地区少数民族传统使用的食用香料。从香茅中提取的香茅油已被国家卫生健康委员会发布标准作为一种许可使用的食品添加剂,具有抗菌作用^[2-6]、抗氧化活性^[7-10]、抗疟作用^[11]、免疫调节和肿瘤抑制作用^[12-14]和抗炎等作用^[15-17]。

微波辅助提取(microwave-assisted extraction, MAE),又称为微波萃取,作为20世纪后期发展起来的一种高效提取技术,其原理是使用食品工业中常用的2450 MHz的高频电磁波穿透提取容器,容器内材料的分子间随之产生的高频运动使微波能迅速转化为热能,加速了材料自身的细胞破裂,同时高频电磁波形成的磁场加速材料中有效组分分子由内部向固液界面扩散,因此具有萃取速度快、加热均匀性好、高效节能、易于控制、无污染等优点。目前,微波辅助提取已被广泛应用于油脂加工、天然药物提取、天然香料提取等领域。笔者在单因素试验的基础上采用中心组合设计(BBD)试验和响应面法(RSM)研究微波辅助提取香茅精油的最佳工艺条件^[18-19],以为微波辅助提取香茅精油的规模化工业应用

提供借鉴。

1 材料与方法

1.1 材料

1.1.1 材料。香茅草(*Cymbopogon winterianus* Jowitt),产地为云南省德宏州盈江弄璋镇种植农户,经鉴定为禾本科植物香茅干燥全草。

1.1.2 主要仪器。Milestone NEOS-GR微波快速无溶剂萃取系统(意大利Milestone公司,频率2450 MHz);AR2130电子天平(梅特勒-托利多仪器上海有限公司)。

1.2 香茅精油的提取方法将晒干的香茅草剪短至约2 cm长后混匀,称取100 g干草放入微波萃取系统玻璃容器中,加入不同量常温蒸馏水进行微波萃取,萃取结束待精油冷却至常温后分液计量。将提取到的香茅精油用无水硫酸钠干燥24 h后过滤,置于4℃环境中避光冷藏。按以下公式计算精油得率:精油得率=精油体积量(mL)/香茅草质量(g)×100%。

1.3 单因素试验

1.3.1 提取时间。按照“1.2”的方法,在加入800 g水(液固比为8:1)、微波功率450 W的条件下,提取时间分别设置为60、75、90、105、120、135、150 min,提取香茅精油。

1.3.2 微波功率。按照“1.2”的方法,在加入800 g水[液固比为8:1(mL:g)]、提取时间为120 min条件下,微波功率分别设置为300、375、450、525、600、675、750 W,提取香茅精油。

1.3.3 液固比。按照“1.2”的方法,在香茅草分别加入8、9、10、11、12、13、14倍重量的水(液固比),在微波功率450 W、

作者简介 孙毅(1975—),男,云南昆明人,高级工程师,硕士,从事烟草薄片产品开发和工艺研究。*通信作者,教授,博士,硕士生导师,从事烟草、烟气化学与香精香料研究。

收稿日期 2019-03-11

提取时间 120 min 的条件下进行香茅精油提取。

1.4 响应面试验 在单因素试验结果的基础上,以对香茅精油得率有明显影响的提取时间、微波功率和液固比这 3 个因素为自变量,以精油得率(Y)为响应值,采用 Box-Behnken 中心组合设计,使用 Design-Expert 11.1.2 软件设计 3 因素 3 水平的响应面试验,具体因素与水平设计见表 1。

表 1 响应面试验因素与水平设计

水平 Level	因素 Factor		
	A 提取时间 Extraction time min	B 微波功率 Microwave extraction power//W	C 液固比 Liquid-solid ratio
-1	90	300	10:1
0	120	450	12:1
1	150	600	14:1

2 结果与分析

2.1 单因素试验结果

2.1.1 提取时间。香茅精油在不同提取时间的得率如图 1 所示。从图 1 可看出,当提取时间少于 105 min 时,精油得率随提取时间的增加而大幅提升;当提取时间超过 120 min 后,精油得率随着提取时间的增加呈缓慢下降趋势,其主要原因是精油在提取后期不再馏出,而不断蒸馏出的冷凝水在循环过程中会将少量的精油带回至提取容器中后继续被加热分解,造成精油的损失。因此,后续响应面试验中提取时间选用 90、120、150 min 3 个水平进行分析。

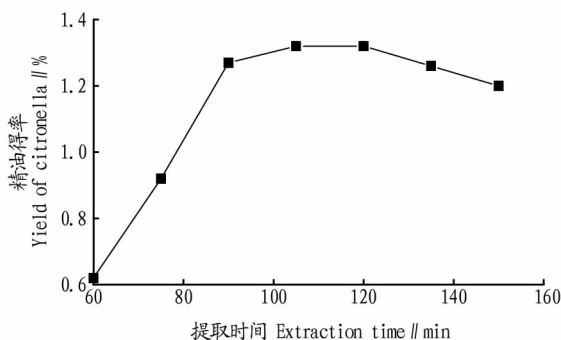


图 1 不同提取时间对香茅精油得率的影响

Fig. 1 The effects of different extraction time on the yield of citronella oil

2.1.2 微波功率。不同微波功率提取的香茅精油得率如图 2 所示。从图 2 可以看出,当提取功率低于 450 W 时,精油得率随微波功率的增加而大幅提升;当微波功率超出 525 W 后,精油得率随着时间的增加呈下降趋势,当微波功率达到 600 W 后精油得率趋于稳定后不再降低。微波的主要作用就是微波扰动,使提取体系中的物质传递得到加强,当微波功率相对较低时,微波能不足以使香茅草细胞壁充分破裂,其中的脂溶性成分未能得到充分有效释放。当微波功率逐渐升高后,体系内会产生较高的压力使细胞壁破裂程度加强,进而使得细胞内的油脂得到充分释放,因此精油得率快速上升。当微波功率超过 525 W 后,体系内的大部分挥发性精油已经被提取出来,过高的功率反而会使提取体系内活性

成分遭到破坏。因此,后续响应面优化试验中微波功率选用 300、450、600 W 3 个水平进行分析。

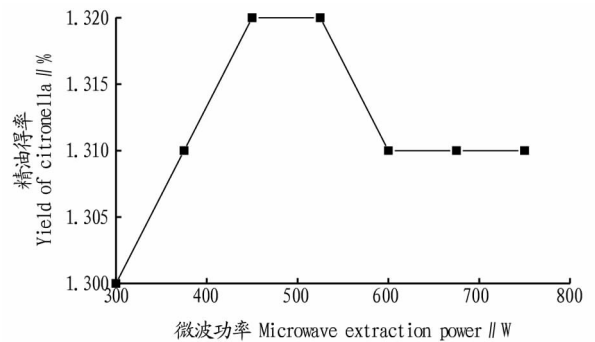


图 2 不同微波功率对香茅精油得率的影响

Fig. 2 The effects of microwave extraction power on the yield of citronella oil

2.1.3 液固比。不同液固比提取的香茅精油得率如图 3 所示。从图 3 可以看出,在保证物料被水充分浸润的前提下,当液固比逐渐增加时,香茅精油得率随所用水量的增加呈上升趋势,当液固比为 12:1 时达到最高值,此后呈现降低趋势。究其原因,是因为香茅精油随提取所用水量的增加更充分地被水蒸气带馏出来,但其在水中有一定的溶解性,较多的水会导致精油更多地溶解其中,从而导致精油得率降低。因此,后续响应面试验中液固比选用 10:1、12:1、14:1 3 个水平进行分析。

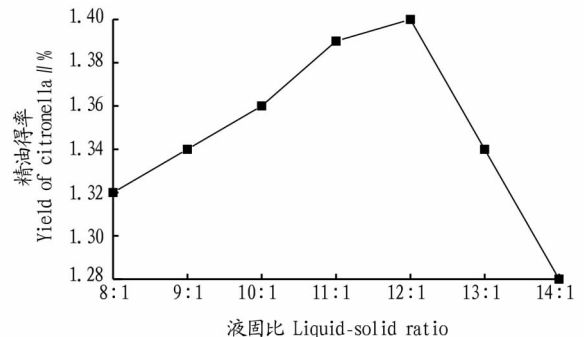


图 3 不同液固比对香茅精油得率的影响

Fig. 3 The effects of liquid-solid ratio on the yield of citronella oil

2.2 响应面试验结果

2.2.1 响应面试验结果。对试验数据进行二次多项式回归拟合分析,以香茅精油得率为响应值,得到自变量与因变量的二次多项式回归模型如下: $Y = 1.39 + 0.0875A + 0.0563B + 0.0088C - 0.01AB + 0.03AC + 0.0175BC - 0.1738A^2 - 0.1913B^2 - 0.0562C^2$ 。式中, Y 为香茅精油得率(%); A 为提取时间(min); B 为微波功率(W); C 为液固比。该二次多项式回归模型的因变量与自变量间的相关性达到极显著水平($P = 0.0002 < 0.01$),失拟项不显著($P = 0.0624 > 0.05$),说明所得到的自变量与因变量的二次多项式回归模型可靠,并可用于香茅精油提取工艺的优化分析。响应面试验设计与结果见表 2。

方差分析表明,该模型的 F 值为 23.37, P 为 0.0002 ($P < 0.01$),说明该模型显著性极高; R^2 为 0.9678,说明该模型因变量变化有 96.78%来自所对应的自变量,模型中 Adeq Pre-

cision 为 15.247, 大于 4, 说明模型的回归方程可信度高, 误差小。根据各因子 F 值 A(31.13)、B(12.86)、C(0.3113)、AB(0.2033)、AC(1.83)、BC(0.6225)、 A^2 (64.59)、 B^2 (78.26)、 C^2 (6.77) 的大小, 可知各因子对香茅精油得率的影响从大到小依次为 B^2 、 A^2 、A、B、 C^2 、AC、BC、C、AB, 所选各因素对香茅精油得率的影响从大到小依次为提取时间、微波功率、液固比。因素 A、B、 A^2 、 B^2 对香茅精油得率的影响极显著 ($P < 0.01$), 因素 C^2 对其影响达到显著水平 ($0.01 < P < 0.05$), 去除不显著因素 C 后, 多元回归方程优化如下: $Y = 1.37 + 0.0875A + 0.0563B - 0.01AB - 0.1767A^2 - 0.1942B^2$ 。

对模型进行优化后得到最佳工艺条件如下: 提取时间 127.861 min, 微波功率 472.189 W, 液固比 12.341:1, 在此条件下香茅精油得率的模型预测值为 1.406%。

2.2.2 最佳工艺条件验证。 为了验证最佳工艺条件, 同时考虑工艺实际操作的可行性, 将最佳工艺条件设置为提取时间 128 min, 微波功率 472 W, 液固比为 12.5:1, 在此条件下验证所得到的香茅精油平均得率为 1.40%, 为预测值的 99.57%, 说明经过优化后的二次多项式回归方程对香茅精油得率的预测是可靠的, 该试验条件可用于微波辅助香茅精油的提取优化。

2.2.3 各因素交互作用分析。 响应曲面图可直观地反映各试验因素对香茅精油得率的影响, 响应曲面越陡峭说明该图中的 2 因素交叉影响越大, 响应曲面越平缓说明该图中的 2

因素交叉影响越小。图 4 中提取时间和微波功率的等高线接近圆形, 说明这 2 个因素的交叉影响较小; 从图 5 和图 6 可以看出, 提取时间和液固比、微波功率和液固比的等高线呈现明显的椭圆形, 表明这 2 个因素的交叉影响较大。这与上述方差分析结果相一致。

表 2 响应面试验设计与结果

Table 2 The design and results of response surface experiment

编号 No.	A	B	C	精油得率 Yield of citronella oil/%	预测精油得率 Predicted yield of citronella oil/%
1	-1	0	-1	1.08	1.09
2	1	-1	0	1.06	1.07
3	0	-1	1	1.07	1.08
4	0	-1	-1	1.06	1.09
5	-1	1	0	1.01	1.00
6	1	1	0	1.11	1.16
7	0	0	0	1.40	1.39
8	0	0	0	1.43	1.39
9	0	0	0	1.37	1.39
10	0	0	0	1.38	1.39
11	0	1	1	1.26	1.23
12	0	0	0	1.37	1.39
13	1	0	1	1.30	1.29
14	-1	-1	0	0.92	0.87
15	1	0	-1	1.25	1.21
16	-1	0	1	1.01	1.05
17	0	1	-1	1.18	1.17

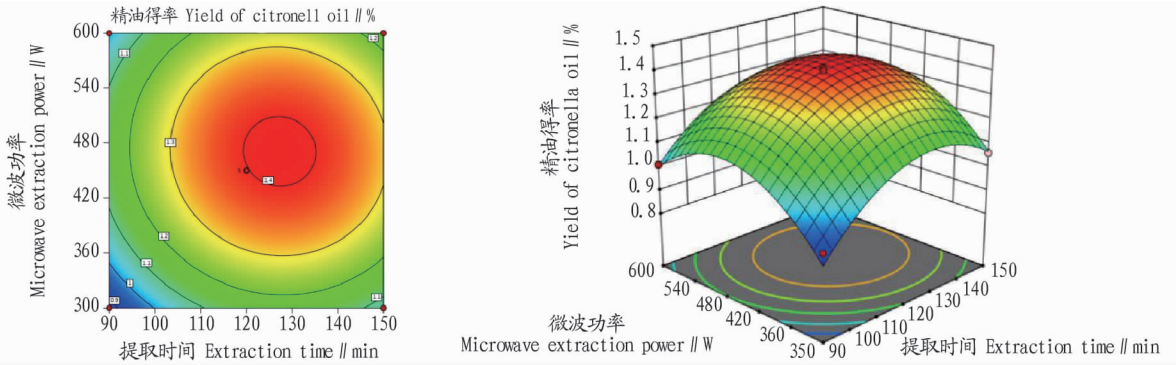


图 4 提取时间与微波功率的交互作用对香茅精油得率影响的等高线图和响应面图

Fig. 4 Contour map and response surface map for the effects of the interaction between extraction time and microwave extraction power on the yield of citronella oil

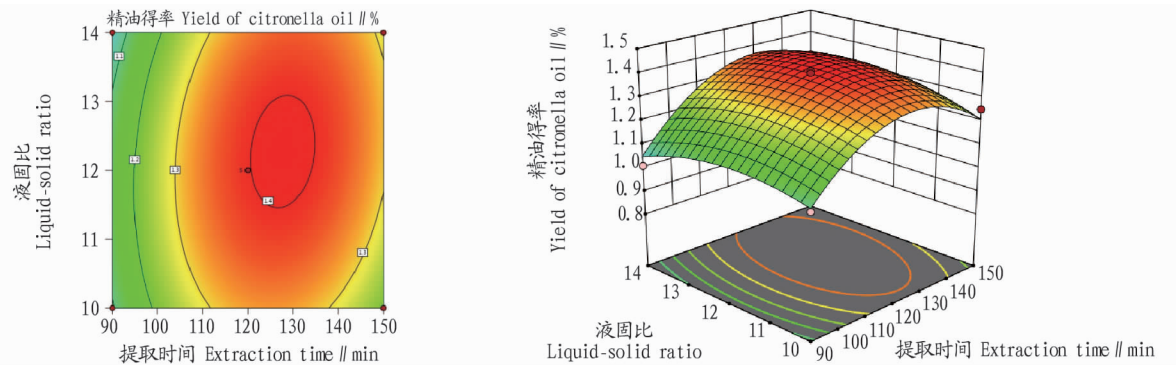


图 5 提取时间与液固比的交互作用对香茅精油得率影响的等高线图和响应面图

Fig. 5 Contour map and response surface map for the effects of the interaction between extraction time and liquid-solid ratio on the yield of citronella oil

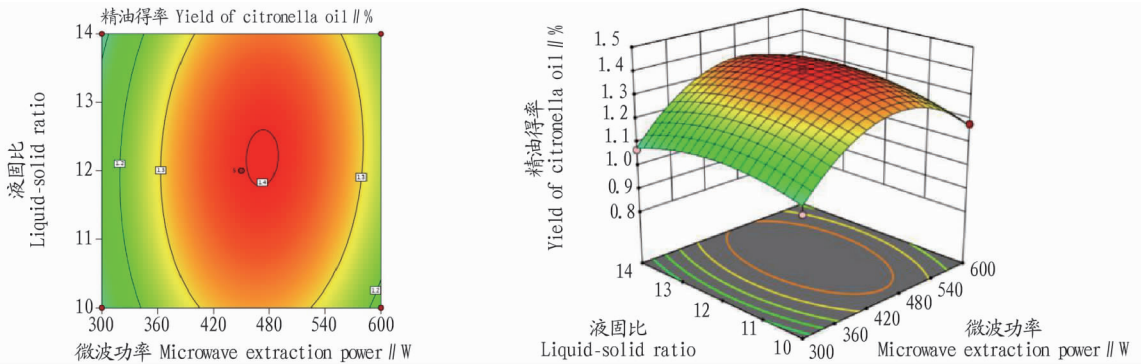


图6 微波功率与液固比的交互作用对香茅精油得率影响的等高线图和响应面图

Fig. 6 Contour map and response surface map for the effects of the interaction between microwave extraction power and liquid-solid ratio on the yield of citronella oil

3 结论

通过微波辅助提取香茅精油,在单因素试验和响应面法的基础上,根据回归模型方差分析和最佳条件验证,再考虑到实际可行的操作条件,确定了微波辅助提取香茅精油的最优工艺条件为提取时间 128 min,微波功率 472 W,液固比为 12.5:1,在此条件下验证所得到的香茅精油得率为 1.40%,为预测值的 99.57%。微波辅助提取香茅精油技术提取设备简单、效率高、节能无污染、生产可控性好。通过对此提取方法的研究,为目前香茅精油提取方法的改进和工业经济效益的提升提供一定的理论依据和技术支持。

参考文献

- [1] 中国科学院《中国植物志》编辑委员会. 中国植物志: 第 10 卷 第 2 分册 [M]. 北京: 科学出版社, 1997: 188-209.
- [2] NAKAHARA K, ALZOREKY N S, YOSHIHASHI T, et al. Chemical composition and antifungal activity of essential oil from *Cymbopogon nardus* (Citronella grass) [J]. Japan agricultural research quarterly, 2003, 37(4): 249-252.
- [3] Koba K, Sanda K, Raynaud C D, et al. Antimicrobial activities of essential oils from tree African *Cymbopogon* against microorganisms pathogenic in pets [J]. Annales de médecine vétérinaire, 2004, 148(4): 202-206.
- [4] 佟琴琴. 迷迭香和柠檬草的挥发性成分及其抗抑郁、抑菌作用的研究 [D]. 上海: 上海交通大学, 2009.
- [5] JEONG M R, PARK P B, KIM D K, et al. Essential oil prepared from *Cymbopogon citratus* exerted an antimicrobial activity against plant pathogenic and medical microorganisms [J]. Mycobiology, 2009, 37(1): 48-52.
- [6] 赵杰, 周超英, 顾振芳, 等. 柠檬草精油对 9 种植物病原菌的抑菌活性 [J]. 上海交通大学学报(农业科学版), 2011, 29(4): 72-74, 86.
- [7] 杨欣, 姜子涛, 李荣, 等. 分段提取的爪哇香茅挥发油抗氧化性能及清除自由基能力的比较 [J]. 中国食品学报, 2011, 11(1): 34-39.
- [8] 赵琳静, 王斌, 乔妍, 等. 香茅叶挥发油的化学成分及其体外抗氧化活

- 性 [J]. 中成药, 2016, 38(4): 841-845.
- [9] 赵建芬, 李妍, 张素斌, 等. 香茅精油的超临界 CO₂ 萃取及其抗氧化活性的研究 [J]. 中国食品添加剂, 2015(12): 98-103.
- [10] RORIZ C L, BARROS L, CARVALHO A M, et al. Scientific validation of synergistic antioxidant effects in commercialised mixtures of *Cymbopogon citratus* and *Pteropartum tridentatum* or *Gomphrena globosa* for infusions preparation [J]. Food chemistry, 2015, 185: 16-24.
- [11] TCHOUMBOUGNANG F, ZOLLO P H, DAGNE E, et al. In vivo antimalarial activity of essential oils from *Cymbopogon citratus* and *Ocimum gratissimum* on mice infected with *Plasmodium berghei* [J]. Planta medica, 2005, 71(1): 20-23.
- [12] 廉晓红, 李德山, 窈玉琴, 等. 香茅草提取物的免疫调节作用与肿瘤抑制作用 [J]. 沈阳药科大学学报, 2005, 22(4): 295-297.
- [13] TIWARI M, DWIVEDI U N, KAKKAR P. Suppression of oxidative stress and pro-inflammatory mediators by *Cymbopogon citratus* D. Stapf extract in lipopolysaccharide stimulated murine alveolar macrophages [J]. Food chemical toxicology, 2010, 48(10): 2913-2919.
- [14] BAO X L, YUAN H H, WANG C Z, et al. Polysaccharides from *Cymbopogon citratus* with antitumor and immunomodulatory activity [J]. Pharmaceutical biology, 2015, 53(1): 117-124.
- [15] BOUKHATEM M N, FERHAT M A, KAMELI A, et al. Lemon grass (*Cymbopogon citratus*) essential oil as a potent anti-inflammatory and antifungal drugs [J]. Libyan journal of medicine, 2014, 9: 1-10.
- [16] FIGUEIRINHA A, CRUZ M V, LOPES M C, et al. Anti-inflammatory activity of (*Cymbopogon citratus*) leaf infusion in lipopolysaccharide-stimulated dendritic cells; Contribution of the polyphenols [J]. Journal of medicinal food, 2010, 13(3): 681-690.
- [17] FRANCISCO V, FIGUEIRINHA A, NEVES B M, et al. *Cymbopogon citratus* as source of new and safe anti-inflammatory drugs; Bio-guided assay using lipopolysaccharide-stimulated macrophages [J]. Journal of ethnopharmacology, 2011, 133(2): 818-827.
- [18] 徐向宏, 何明珠. 试验设计与 Design-Expert, SPSS 应用 [M]. 北京: 科学出版社, 2010.
- [19] 岳金霞, 彭丹, 徐晓辉. 响应面法优化微波辅助提取奇亚籽油工艺 [J]. 河南工业大学学报(自然科学版), 2018, 39(2): 72-77.