

超临界CO₂萃取大蒜油的工艺研究

李 祯

(咸阳职业技术学院 医药化工学院, 陕西 咸阳 712000)

摘要: 在单因素试验的基础上, 利用响应面法对超临界CO₂萃取大蒜精油工艺进行了优化。结果表明: 超临界CO₂萃取大蒜精油的最优工艺条件为萃取压力35 MPa、萃取温度45 °C、萃取时间90 min, 在此条件下, 大蒜精油平均收率为0.74 %。

关键词: 大蒜精油; 超临界CO₂; 响应面法; 萃取

中图分类号: G712

文献标识码: A

文章编号: 94047-(2020)01-049-04

大蒜精油是从大蒜鳞茎中提取的含多种天然物质的混合物, 不同提取方法得到的大蒜精油成分和比例存在较大差异, 但主要成分均为含硫化合物^[1], 具有杀毒、杀菌作用外^[2], 还可提高机体免疫功能, 降低血压、血脂, 组织癌细胞扩散, 对糖尿病、冠心病有一定作用^[3]。目前已广泛应用于食品、保健品、临床、及畜牧养殖业。

目前, 大蒜精油的提取主要通过水蒸气蒸馏^[4], 溶剂浸提法^[5]等, 超临界流体萃取技术具有操作温度和操作压力较低的特点, 能够防止热敏性物质的分解, 且无溶剂残留, 能够实现连续化生产, 特别适用于天然产物的提取^[6-8]。

本文采用响应面法对超临界CO₂流体萃取大蒜精油进行工艺优化^[9-11], 为实现清洁、连续性、工业化生产提供依据。

1 材料与方法

1.1 材料与仪器

新鲜大蒜, 市场购买; 二氧化碳气体, 纯度99.99%, 食品级, 西安亚太液化气有限公司。

HA221-50-06型超临界CO₂萃取装置, 江苏南通华安超临界萃取有限公司; FA1004B型电子分析天平。

1.2 实验方法

1.2.1 大蒜预处理 选取新鲜大蒜, 去皮, 洗净, 粉碎至3mm左右粒度后待用。

1.2.2 超临界二氧化碳萃取大蒜精油 准确称量100 g大蒜 (m₁) 置于萃取釜中, 将CO₂经过液化换热后进入萃取釜内, 待达到试验设定温度及设定压力, 开始连续萃取, 最后分离、收集并精确称量大蒜精油质量 (m₂)。大蒜精油收率 (Yield) 计算公式如下:

$$Yield = \frac{m_2}{m_1} \times 100\%$$

设计单因素试验, 考察萃取压力、萃取温度、萃取时间对大蒜精油收率的影响。在单因素试验的基础上, 利用响应面分析法设计试验, 进行三因素三水平试验分析, 以获得超临界二氧化碳萃取大蒜精油的最佳工艺条件。

2 结果与讨论

2.1 单因素试验

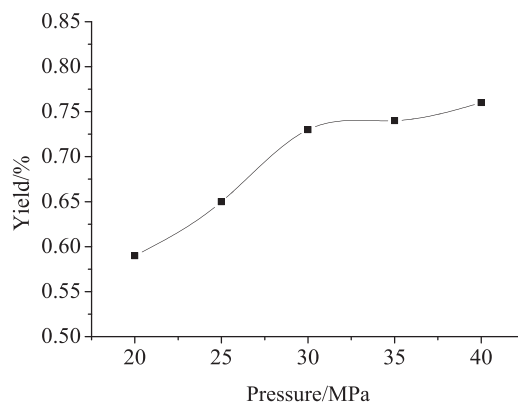


图1 萃取压力对大蒜精油收率的影响

收稿日期: 2019-12-18

作者简介: 李祯 (1984—), 女, 讲师, 硕士, 研究方向为超临界流体技术及天然产物提取。

2.1.1 萃取压力对大蒜精油收率的影响 萃取温度45℃、萃取时间80 min, 考察20–40 MPa范围内萃取压力对大蒜精油收率的影响, 结果如图1所示。

由图1可知, 大蒜精油的收率随萃取压力升高增幅较快, 当萃取压力增加至30 MPa后精油收率平缓上升。这主要是因为压力升高, 溶剂密度增大, 传质速率增大, 溶剂溶解度增大, 因此升高压力有利于提高溶解度, 但同时压力过高会增加设备投资、操作费用, 存在安全隐患。因此, 选择30 MPa作为最佳萃取压力。

2.1.2 萃取温度对大蒜精油收率的影响 萃取压力30 MPa、萃取时间80 min, 考察35–55℃范围内萃取压力对大蒜精油收率的影响, 结果如图2所示。

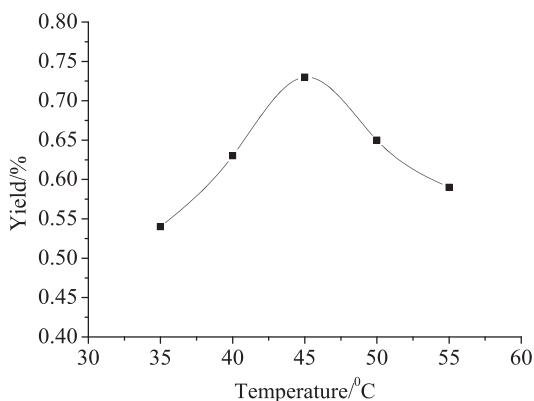


图2 萃取温度对大蒜精油收率的影响

由图2可知, 大蒜精油的收率随萃取温度的升高呈现先上升再降低的趋势, 当萃取温度为45℃时, 收率最高。这主要是因为温度升高, 溶剂黏度降低, 传质能力增强, 溶质溶解度增加; 当温度继续升高超临界CO₂密度降低, 溶剂化能力降低, 溶质溶解度下降。因此, 选择45℃为最佳萃取温度。

2.1.3 萃取时间对大蒜精油收率的影响 萃取压力30

MPa、萃取温度45℃, 考察20–100 min范围内萃取时间对大蒜精油收率的影响, 结果如图3所示。

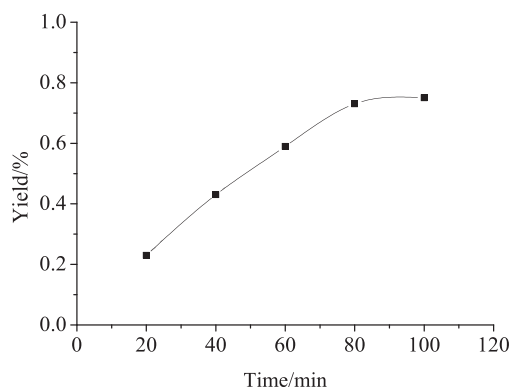


图3 萃取时间对大蒜精油收率的影响

由图3可知, 大蒜精油的收率随萃取时间增加逐渐上升, 80 min后趋于平缓。这主要是因为刚刚开始试验时, 溶质在超临界CO₂中的未能充分溶解, 因此收率较低; 随着时间延长, 逐渐达到充分溶解, 因此80 min后大蒜精油收率趋于稳定。因此, 选择80 min为最佳萃取时间。

2.2 响应面优化试验

2.2.1 响应面试验结果 在单因素实验的基础上, 以萃取压力、萃取温度、萃取时间为因素, 大蒜精油收率为指标, 采用Box–Behnken响应曲面法进行试验优化。响应面试验因素水平见表1, 试验设计及结果见表2, 各因素方差分析见表3。

表1 响应面试验因素水平

试验水平	萃取压力 A/MPa	萃取温度 B/°C	萃取时间 C/min
-1	25	40	60
0	30	45	80
1	35	50	100

表2 超临界CO₂萃取大蒜精油响应面试验设计及结果

试验号	A	B	C	收率 Y/%
1	1	1	0	0.67
2	1	0	-1	0.72
3	0	1	-1	0.59
4	-1	0	-1	0.62
5	0	0	0	0.73
6	0	0	0	0.74
7	0	-1	1	0.65
8	0	1	1	0.66
9	-1	1	0	0.62
10	1	0	1	0.75

11	-1	0	1	0.66
12	1	-1	0	0.65
13	0	-1	-1	0.60
14	0	0	0	0.71
15	-1	-1	0	0.58

2.2.2 模型的建立及显著性检验 对萃取压力、萃取温度、萃取时间进行三因素三水平拟合后, 所得回归方程如下。

$$Y = 0.7267 + 0.0388A + 0.0075B + 0.0238C - 0.005AB - 0.0025AC + 0.005BC - 0.0171A^2 - 0.0796B^2 - 0.0221C^2$$

表3 各因素方差分析

方差来源	平方和	自由度	均方	F 值	p 值	显著性
模型	0.041 9	9	0.004 7	12.64	0.006 1	**
A	0.012	1	0.012	32.61	0.002 3	**
B	0.000 5	1	0.000 5	1.22	0.319 4	
C	0.004 5	1	0.004 5	12.25	0.017 3	*
AB	0.000 1	1	0.000 1	0.271 5	0.624 6	
AC	0	1	0	0.067 9	0.804 8	
BC	0.000 1	1	0.000 1	0.271 5	0.624 6	
A?	0.001 1	1	0.001 1	2.93	0.147 9	
B?	0.023 4	1	0.023 4	63.49	0.000 5	**
C?	0.001 8	1	0.001 8	4.89	0.078	*
残差	0.001 8	5	0.000 4			
失拟项	0.001 4	3	0.000 5	1.96	0.354 9	不显著
纯误差	0.000 5	2	0.000 2			
总离差	0.043 7	14				
相关系数(R ²)	0.957 9					
校正决定系数(R ² _{adj})	0.882 1					

注: ***极显著 (p<0.000 1); **较显著 (p<0.01); *显著 (p<0.05)。

由表3可知, 模型P=0.006 1, 小于0.05, 极显著, 表明该模型具有统计学意义; 失拟项P=0.354 9, 大于0.05, 不显著, 说明无失拟因素; R²=0.957 9, 响应值变化有95.79%来源于所选因素; R²_{adj}=0.882 1, 大于0.80, 说明该模型拟合程度较好, 因此该回归方程可用于对超临界CO₂萃取大蒜精油的工艺条件进行预测。由F值可知, 影响大蒜精油收率各因素主次顺序为萃取压力>萃取时间>萃取温度。

2.2.3 最优工艺条件的确定及验证试验 利用Design Expert 11软件进一步分析, 得到超临界CO₂萃取大蒜精油最优工艺条件为: 萃取压力35.00 MPa, 萃取温度45.16 ℃, 萃取时间89.71 min, 大蒜精油收率

预测值为0.754%。考虑到试验的可操作性, 将工艺条件圆整为: 萃取压力35 MPa, 萃取温度45 ℃, 萃取时间90 min, 在此条件下进行3次重复试验, 大蒜精油的平均收率为0.74%, 与响应面预测值基本吻合, 说明响应面法优化的工艺条件可靠, 具备使用价值。

3 结论

采用超临界CO₂萃取大蒜精油, 在单因素试验的基础上利用响应面法分析了萃取压力、萃取温度、萃取时间对精油收率的影响, 取得最优工艺条件: 萃取压力35 MPa, 萃取温度45℃, 萃取时间

90min。在此条件下，大蒜精油的平均收率为 0.74%，与响应面预测值基本吻合，证明响应面分析法结果可靠，具备使用价值，可为工业化生产提供参考。

参考文献

- [1]王新芳,董岩,刘洪玲.大蒜挥发油化学成分的气相色谱-质谱联用法测定[J].时珍国医国药,2008(01):71-72.
- [2]张雅晴,卢士玲,黄发添,郑婷婷,代娜娜,李彬彬.大蒜精油对屎肠球菌和粪肠球菌产苯乙胺和酪胺的影响[J].现代食品科技,2016,32(11):117-122+84.
- [3]钱岳晟,徐定海,王崇行,沙大昌.大蒜对高血压患者血脂、血糖、血压作用的临床研究[J].浙江中医学院学报,1999(04):45-46.
- [4]金建忠.大蒜精油化学成分研究[J].浙江农业学报,2006(06):462-465.
- [5]梁永海,李凤林,于加平,张丽丽,齐俊生.不同方法萃取大蒜油生产工艺的研究及其成分的分析[J].中国粮油学报,2006(02):69-71.
- [6]侯彩霞,李淑芬.挥发油的超临界流体萃取与分离进展[J].化工进展,2007(01):42-46.
- [7]SATO M, KONDO M, GOTO M. Fractionation of citrus oil by super-critical countercurrent extractor with side-stream with drawl[J]. J. Su-percrit. Fluids 1998, 13:311-317.
- [8]柴倩,乔宇,范刚,潘思轶.超临界CO₂流体及夹带剂萃取锦橙精油研究[J].食品科学,2007(12):205-207.
- [9]吴晓宗,郝莉花,赵光远,纵伟.响应面法优化超临界CO₂萃取金花葵籽油工艺[J].中国油脂,2017,42(07): 15-18.
- [10]GIRONI F, MASCHIETTI M. Phase equilibrium of the system supercritical carbon dioxide lemon essential oil: New experimental data and thermodynamic modelling[J]. J. of Supercritical Fluids, 2012(70):8-16.
- [11]GIRONI F, MASCHIETTI M. Continuous countercurrent deterpenation of lemon essential oil by means of supercritical carbon dioxide: Experimental data and process modelling[J]. Chemical Engineering Science, 2008(63):651-661.

[责任编辑 王军利]

A study on extraction technology of garlic oil by supercritical CO₂

LI Zhen

(school of Medicine and Chemical Technology, Xianyang Vocational & Technical College, Xianyang, Shaanxi 712000)

Abstract: Based on the single factor test, the supercritical CO₂ extraction process of garlic essential oil was optimized by response surface method. The results show that the optimal process conditions for supercritical CO₂ extraction of garlic essential oil are as follows, extraction pressure 35 MPa、 extraction temperature 45℃, extraction time 90 mins, with which, the average yield of garlic essential oil is 0.74%.

Key words: galic essential oil, supercritical CO₂, response surface method, extraction