

文章编号:1001-6880(2017)8-1403-07

永州薄荷精油微波辅助提取工艺及具 驱蚊功效空气清新剂研究

闫荣玲,廖 阳*,王 静,何福林*

湖南科技学院 化学与生物工程学院 湘南优势植物资源综合利用省重点实验室,永州 425199

摘要:本文研究了永州薄荷精油的微波辅助提取工艺,并基于所得精油进行了植物源天然空气清新剂的研制。结果发现:(1)永州薄荷精油的最佳微波辅助水蒸气蒸馏提取工艺为料液比1:8、微波时间250 s、微波功率300 W、蒸馏时间2.5 h,在此最优条件下永州薄荷精油平均得率达3.3%;(2)基于薄荷精油与永州另一优势植物资源香姜精油复配研制植物源空气清新剂,发现基于二者的复方精油配方除臭效果优于各自的单方精油,且在二者配比为2:1(薄荷精油:香姜精油),总体积分数为6%时对臭气分子清除作用最佳,并表现出良好的趋蚊功效。结果表明,微波辅助可以获得较高的薄荷精油得率,所获精油搭配香姜精油开发多功能空气清新剂可行性强且效果好,研究结果可为永州地方优势植物资源综合利用提供参考。

关键词:永州薄荷;姜精油;微波辅助;水蒸气蒸馏;空气清新剂

中图分类号:Q945.1

文献标识码:A

DOI:10.16333/j.1001-6880.2017.8.024

Microwave-assisted Extraction of Essential Oil from Yongzhou *Mentha haplocalyx* and Formulation Development of Air Freshener with Mosquito Repelling Function

YAN Rong-ling, LIAO Yang*, WANG Jing, HE Fu-lin*

Key Laboratory of Comprehensive Utilization of Dominant Plant Resources in Southern Hunan, College of Life Sciences and Chemistry Engineering, Hunan University of Science and Engineering, Yongzhou 425199, China

Abstract: In this study, microwave-assisted steam distillation extraction technology was developed and optimized for the extraction of essential oil from Yongzhou *Mentha haplocalyx* and a formulation of air refreshing agent with mosquito repelling function was developed. Results showed that, (1) the optimal extraction process of essential oil from Yongzhou *M. haplocalyx* were solid/liquid ratio of 1:8, microwave time of 250 s, microwave power of 300 W, distillation time of 2.5 h, the maximum yield of essential oil were 3.3% under the optimized conditions. (2) A air freshener was developed based on essential oil extracted from Yongzhou *M. haplocalyx* and *R. zingiberis* which was another local dominant plant resource, the formula showed the best performance of air freshening when the essential oil ratio was 2:1 (mint: ginger) and the total volume fraction of essential oil was 6%. In addition, it had an efficient and lasting mosquito repelling effect. The results indicated that, a higher extraction rate of essential oil from Yongzhou *M. haplocalyx* can be obtained by microwave-assisted extraction and the development of multi-functional air freshener based on the plant essential oil was feasible and effective. The results of this study can provide some reference for the comprehensive utilization of local plant resources in Yongzhou of Hunan province.

Key words: Yongzhou *Mentha haplocalyx*; essential oil; microwave assisted; steam distillation; air freshener

植物精油由于具独特气味并表现出多样的生物学活性而被人们广泛用于日化、食品、药品及农业病

虫防治等领域^[1,2]。薄荷 (*Mentha haplocalyx*) 为唇形科薄荷属草本植物,具有适应性强、分布广等特征^[1]。其次生代谢产生的薄荷精油清香浓郁并可提神、抑菌、解毒^[2,3]。永州为薄荷重要产区,种植历史悠久,所产薄荷特称“永叶薄荷”,如何通过综合利用提高其经济价值,改变目前主要以原料形式廉价出口的尴尬局面是亟待解决的迫切问题。

水蒸气蒸馏法由于其成本低、操作简单、安全系

收稿日期:2017-01-09 接受日期:2017-06-06

基金项目:湖南省创新团队(2012-318);湘南优势植物资源综合利用湖南省重点实验室研究项目(XNZW15C10,XNZW15C18);2015年湖南省重点研发计划(2015CK3002);永州市科科技局科研项目(2015-10);湖南省大学生研究型学习与创新性实验项目(2016-28)

*通信作者 E-mail:liaoyang1127@163.com;hefulin0012@163.com

数高而成为植物精油提取最常用手段,但其也存在出油率低,蒸馏时间长,高温致精油分解等弊端^[4]。微波具有良好穿透性,可通过增加提取过程中的细胞破碎程度来提高植物组织中活性成分的释放率并降低其上述弊端。微波辅助水蒸气蒸馏提取工艺在柚皮、香附等多种植物精油提取中的研究已有报道,但还未见其应用于薄荷精油提取工艺的报道^[5,6]。基于此,本研究摸索了永州薄荷精油的微波辅助水蒸气蒸馏提取工艺,为其进一步开发及进行不同产区薄荷精油指纹图谱比较奠定了条件。

日常生活中众多场所的空气受到了不同程度的污染,对空气进行杀菌、消毒、除臭是净化空气与预防疾病的重要措施。化学空气清新剂多采用醛类、醇类和双氧水等物质作为功能成分,长期使用会对家居用品以及人体健康造成伤害^[7]。因此,开发天然无毒环保型空气清新剂是今后的重点发展方向^[8,9]。国内外大量研究已证实,植物提取物具有显著的除臭效果,人们已经从菊科、山茶科等上百种植物获得了具除臭效果的提取物^[10,11]。植物精油对臭气具有一定的遮蔽效应,且含有可与臭气分子发生反应的复杂活性成分中,从而起到净化空气的作用^[11,12]。随着人们生活水平的提高,植物源天然空气清新剂将越来越受到人们的欢迎,开展植物源空气清新剂的研究具有重要的经济与社会价值。但目前国内基于植物精油研制空气清新剂的报道还不多。除薄荷外,生姜也是永州地区的优势资源与著名特产,产于江永县的生姜被誉为“江永五香”之一。二者的精油均具有独特清香,且富含能与臭气分子发生化学反应的活性物质^[11,13]。本研究拟利用薄荷及香姜精油开发一种植物源新型空气清新剂,为当地优势植物资源薄荷、生姜的综合利用提供些许参考。

1 材料与方法

1.1 材料与仪器

当年收永州薄荷(烘干)地上部分,洗净、烘干、粉碎备用。实验所涉重要仪器包括:WG-71型电热恒温鼓风干燥箱、XH-MC-1型微波合仪、PG610型便携式气体探测器、透明玻璃箱(自制)。

1.2 永州薄荷精油微波辅助提取

1.2.1 精油的水蒸气蒸馏提取、称重与得率计算

精确称取 20 g 永州薄荷粉末,置于 500 mL 烧瓶中,加入一定体积的蒸馏水密封浸泡 12 h,再放入

微波合成仪中,经微波处理一定时间后进行水蒸气蒸馏提取,之后向所获馏液加入适量无水乙醚萃取,用医用注射器吸取上层有机相转移至干净试管中,并加入无水硫酸钠干燥,过滤得到薄荷精油转入精油瓶中,称重计算得率并保留备用,得率的计算公式为: 精油得率 (%) = 精油质量/原料质量 × 100^[13,14]。

1.2.2 单因素实验确定各因素对精油得率的影响

参考已有文献^[14],在料液比分别为 1:2、1:4、1:6、1:8、1:10、1:15,微波时间为 50、100、150、200、250、300 s,微波功率分别为 200、250、300、350、400、450 W,蒸馏时间为 1、1.5、2、2.5、3.0、3.5 h 条件下考察料液比、微波时间、微波功率、蒸馏时间等几个因素对薄荷精油得率的影响。在考察某一特定因素对得率的影响时,则保持其他因素保持不变,不同情况下料液比、微波时间、微波功率、蒸馏时间分别设置为 1:8、200 s、300 W、2 h。

1.2.3 正交实验优化提取工艺

根据单因素实验结果,选取上述 4 个因素的各 3 个较好水平按照 L₉(3⁴) 进行正交实验,优化得到最佳微波辅助精油提取工艺。

1.3 空气清新剂研制

1.3.1 净化效果评价

参考已有文献以 H₂S 作为对象研究净化效果^[15]。实验在 50 × 50 × 50 cm 的透明玻璃箱中进行,箱中置 PG610 便携式气体探测器一台。箱壁其中一个侧面的中央位置留一个可开闭小口,以便进行注入臭气、单方薄荷精油、单方生姜精油及复方空气净化剂的喷雾操作,分别在喷完后 10 min 记录箱内 H₂S 浓度以计算臭气清除率。

另选取一间普通医院病房,选取嗅觉 6 名嗅觉正常的志愿者采取评分法对空气净化效果进行评价,评分在单方薄荷精油、单方生姜精油、及复方空气净化剂喷雾处理 10 min 后进行,分别以 5、4、3、2、1 进行计分,分数越高,空气质量感官评价越好,即净化效果越佳。各志愿者所打分数平均值为最后得分。

1.3.2 组分与配方

通过前期预实验以及感官评价,确定薄荷精油(本研究提取获得)与姜精油(由永州和广生物科技有限公司提供)总体积分数在 1% 至 10% 区间,二者配比在 3:1 至 1:4 区间波动,乙醇体积分数 20% 较为合适。基于此,设置配方总体积为 30 mL,乙醇体

积分数为 20%, 在精油总体积分数分别为 1%、2%、4%、6%、8%、10% (复方空清新剂中二者配比为 1:1), 以及精油配比分别为 4:1、3:1、2:1、1:1、1:2、1:3 (精油总体积分数为 4%) 条件下, 分别考察精油体积分数与精油配比对除臭效果的影响, 各实验条件下总体积不足部分均由乳化剂 β -环糊精饱和溶液补齐。

1.3.3 配方优化

根据单因素实验结果, 选取精油总体积分数以及配比中的较好水平组合进行优化实验以获得最佳配方。

1.4 驱蚊效果评价

参考已有文献对得到最佳配方后的空气清新剂进行驱蚊效果评价^[16]。选取若干志愿者在其双手手背皮肤上画出 5×5 cm 区域, 其余部分使用医用胶布进行严密遮蔽处理。将双手放入蚊笼中 1 min (笼中蚊子共 100 只, 且经饥饿处理), 记录蚊子在两只手背皮肤上的停落次数 (每名志愿者配一名观察计数搭档), 选取停落次数较多的 12 名志愿者计算停落次数的平均值, 并由这 6 名志愿者完成后续实验。确定后的 12 名志愿者被随机分为 4 组, 每组

3 人, 分别在双手皮肤暴露处进行 20% 乙醇、复方空气清新剂喷雾处理。4 组均在喷雾组处理完成后的 5、20、35、50、80、120 min 时, 把手伸入蚊笼观察记录双手在笼中持续 1 min 过程中蚊子停落次数并求平均值 (四舍五入取整数), 此前未进行喷雾处理时所得到的停落次数计为第 0 min 时的数据。

1.5 数据处理

数据经 Excel2003、SPSS19.0 以及 Sigma-plot10.0 等软件进行整理、分析与作图。

2 实验结果

2.1 永州薄荷精油的微波辅助提取工艺

单因素实验结果发现, 料液比、微波时间、微波功率以及蒸馏时间均对永州薄荷精油的得率有明显影响作用。随着四个因素所设实验水平的增加, 精油得率均表现出先增加后减少的总体变化趋势, 单因素方差分析发现四个因素下各组间精油得率存在显著性差异 (One way ANOVA, $P < 0.05$), 但不同因素下曲线特征各不相同, 且分别在料液比 1:6, 微波时间 250 s, 微波功率 300 W, 蒸馏时间 2.5 h 条件下, 精油得率最高, 具体如图 1 所示。

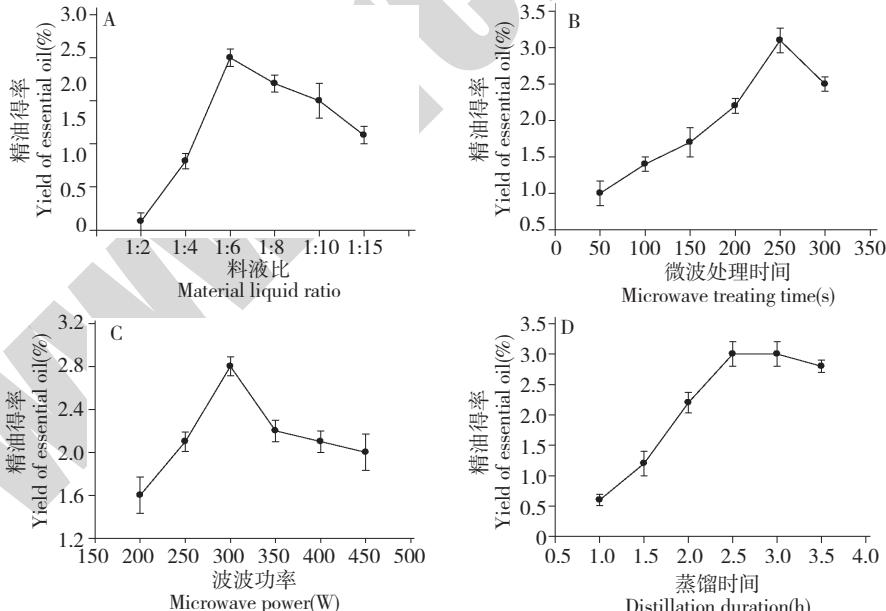


图 1 料液比 (A)、微波处理时间 (B)、微波功率 (C) 及蒸馏时间 (D) 对永州薄荷精油得率的影响

Fig. 1 Effect of material/liquid ratio (A), microwave treating time (B), microwave power (C) and distillation duration (D) on the extraction yield of essential oil of *Yongzhou M. haplocalyx*

基于单因素实验的结果进行正交优化, 结果如表 1 所示。由表可知, 几个因素对永州薄荷精油得

率的影响大小依次为料液比 > 蒸馏时间 > 微波功率 > 微波时间, 最佳提取工艺组合为 $A_2B_2C_3D_2$, 即料

液比 1:8、微波时间 250 s、微波功率 300 W、蒸馏时间 2.5 h。在此最优工艺条件下永州薄荷精油平均得率为 3.3%。

表 1 正交实验结果
Table 1 Results of orthogonal experiments

实验号 No.	(A) 料液比 Material liquid ratio	(B) 微波时间 Microwave treating time (s)	(C) 微波功率 Microwave power (W)	(D) 蒸馏时间 Distillation duration (h)	精油得率 Yield of essential oil (%)
1	1:6	200	250	2.0	1.1
2	1:6	250	300	2.5	1.5
3	1:6	300	350	3.0	1.3
4	1:8	200	300	2.0	1.1
5	1:8	250	350	3.0	3.2
6	1:8	300	250	2.5	3.0
7	1:10	200	350	2.5	2.2
8	1:10	250	250	3.0	1.7
9	1:10	300	300	2.0	1.4
k_1	1.3	1.5	1.9	1.2	
K_2	2.4	2.1	1.5	2.2	
K_3	1.8	1.9	2.2	2.1	
R	1.1	0.6	0.8	1.0	

2.2 基于薄荷精油的空气清洗剂配方

在固定精油配比条件下,1% 至 10% 几种不同总体积分数的复方精油配方均对玻璃箱中臭气产生了不同程度的清除效应,且随着体积分数的增加,清除率逐渐增加,但在 6% 之后,增加十分微弱;室内试验结果表明,在 6%、8%、10% 条件下时,净化效果得分较高,其中 6% 条件下得分最高。单方薄荷精油与单方生姜精油条件下,臭气清除率及感官评

价得分随精油体积分数的变化趋势与复方精油基本类似,但单方薄荷精油的臭气清除率较单方生姜精油效果佳,而感官评价则相反,后者得分高于前者。单因素方差分析发现,不同精油配方条件下,各体积分数的清除率或感官评价得分均存在显著性差异,6%、8%、10% 三种精油体积分数时,不同配方之间的清除率及评分也差异显著(One way ANOVA, $P < 0.05$) ;具体见图 2 所示。

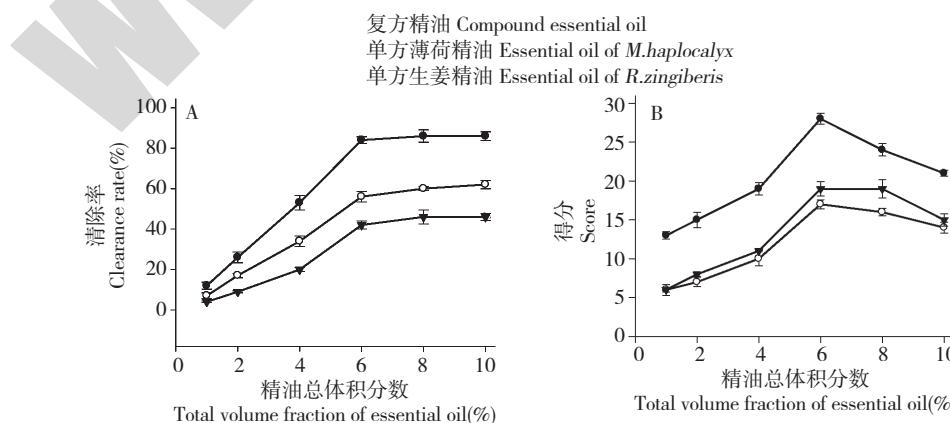


图 2 精油不同总体积分数下除臭效果

Fig. 2 Deodorant effect under different total volume fraction of essential oil

如图3所示,固定精油总体积分数,薄荷精油与香姜精油配比为3:1时对玻璃箱中的清除率最高,2:1与1:1次之;室内感官评价实验时,2:1配比下得分最高,3:1与1:1次之。可见,不管是玻璃箱实验

还是室内实验,均在1:1至3:1区间表现出较好效果。单因素方差分析发现,各组间差异显著(One way ANOVA, $P < 0.05$)。

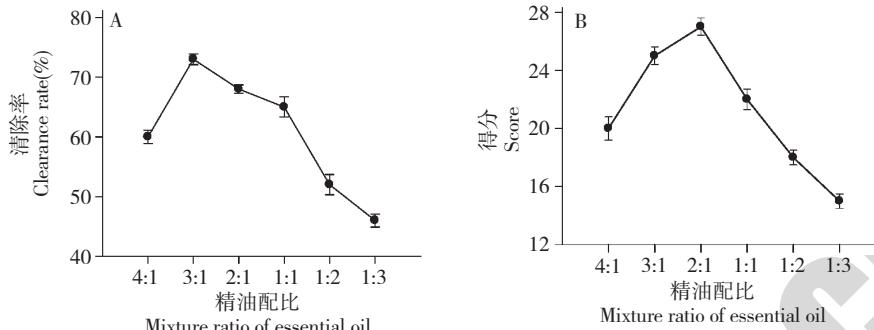


图3 精油不同配比下除臭效果比较

Fig. 3 Deodorant effect under different mixture ratio of essential oil

根据上述单因素实验结果,综合成本与效果等因素,选取6%精油总体积分数,以及1:1、2:1、3:1的精油配比进行交叉分组实验,确定空气清新剂的

最佳配方。结果发现,配比为2:1时效果最佳,具体见表2所示。

表2 空气清新剂配方优化结果

Table 2 Optimization results of air refreshing agent formula

实验序号 No.	总体积分数 Total volume fraction	精油配比(薄荷: 香姜) (mint: ginger)	除臭效果 Deodorant effect	
			玻璃箱实验清除率 Clearance rate in glass box (%)	室内试验得分 Score of indoor test
1	6%	1:1	70	23
2	6%	2:1	86	29
3	6%	3:1	76	25

2.3 空气清新剂的驱蚊效果

由图4可知,喷20%乙醇的对照组,仅在喷雾后5 min略微减少了蚊子在手背的停落次数,之后停落次数回升甚至超过未进行任何处理的初始水平。与对照相比,手背皮肤经前述所研制空气清新

剂喷雾处理后,表现出十分明显的趋避效果,蚊子停落次数急剧减少,虽随时间推移,停落次数有回升趋势,但即使在120 min时依然表现出良好趋避作用。

3 讨论与结论

薄荷次生代谢所产生的精油是其主要活性物质,不同地区所产同一植物资源的株体特征、组织结构、物质含量等可能存在较大差异^[14,15],因此建立适合永州薄荷精油的科学合理提取工艺十分必要。本研究建立了永州薄荷微波辅助提取工艺,在料液比1:8,持续2.5 h蒸馏条件下,辅以250 s、300 W的微波处理可获最佳提取效果,工艺简单有效、可行性,且在此提取工艺下薄荷精油得率达到3.3%。可见辅以微波处理较好地避免了水蒸气蒸馏直接提取法存在的弊端且效果良好,这为永州薄荷精油的

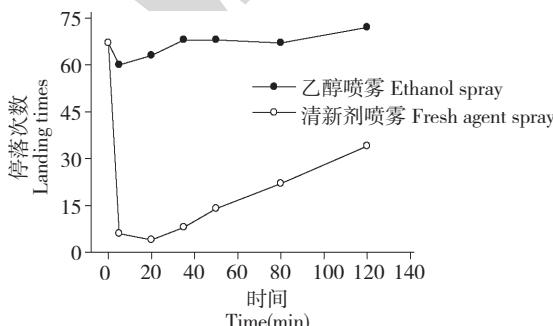


图4 空气清新剂的驱蚊效果

Fig. 4 Mosquito repellent effect of the air refreshing agent

后续开发利用奠定了条件^[16,17]。

空气污染的不乐观形势以及人们对生活质量逐渐提高的要求,使空气清新剂在人们的生活中将发挥更为重要的作用。目前市场所售空气清新剂大多基于化学合成物质制成,对人体健康存在较大威胁,因此,基于天然活性成分开发新型空气清新剂成了近年的研究热点^[8,9]。植物精油在适量范围内对人体无任何毒副作用,对臭气具有一定的遮蔽作用,并含有能与硫化氢等臭气分子发生酸碱中和、催化氧化、氧化还原反应的生物碱、烯、醇、酮、酯等活性成分,因此可以用于空气清新剂的开发^[11,12,18]。本研究基于永州薄荷精油及当地另一优势植物资源香姜的精油进行植物源空气清新剂的研制发现,两种植物精油均具有一定的除臭效果,但薄荷精油对臭气分子的清除效果优于生姜精油,说明两种精油中均含有能与硫化氢反应的活性物质,但薄荷精油中这些活性物质含量相对更多。另一方面,两种精油的复合配方较任意单方精油的除臭效果要好,说明两种精油混合后可能发生了某些化学反应,产生了更易与硫化氢反应的物质。感官评价上,复方精油得分高于单方精油,姜精油优于薄荷精油,提示姜精油对空气不良气体的遮蔽效果较薄荷精油好,可带来更好的嗅觉感受。当薄荷精油与香姜精油二者配比为2:1,总体积分数为6%时可获得最佳的除臭效果及感官评价,可见精油总体积分数及所含精油的配比均会显著影响空气清新剂的功效,精油的组分、含量、配比是在植物源空气清新剂研制的关键因素。

值得注意的是,大多数植物精油都具有不同程度的驱蚊功效^[13,19]。本研究发现,基于薄荷与香姜精油配置的空气清新剂表现出了显著的驱蚊效应,与对照相比,经空气清新剂喷雾处理后,测试者皮肤遭受蚊子侵袭的几率显著降低。相对于目前大部分驱蚊产品均基于驱蚊胺、除虫菊酯等非天然活性成分开发,本研究的配方中功能与辅助成分均无毒无害且精油含量低,因此即使在密闭空间使用也不会对呼吸道及皮肤等部位产生刺激作用,使用时甚至可以直接喷洒于皮肤表面,充分发挥其在特殊环境(如丛林)的趋避作用。而空气清新剂在喷至手背皮肤120 min后仍对蚊子有较好的趋避效应,可能是由于配方中添加的乳化剂β-环糊精饱和溶液起到了缓释作用,使精油的释放更平缓、持久^[20]。

综上所述,永州薄荷具有较高精油含量,微波辅助可帮助人们简单高效地获得薄荷精油,基于薄荷

精油与香姜精油开发的空气清新剂高效无毒、成本低廉且兼具驱蚊功效,具有很好的开发潜力。

参考文献

- 1 Yu QY(于清跃),Zhu XB(朱新宝). Research advances in the planting of *Mentha haplocalyx* and extraction of peppermint essential oil. *Anhui Agri Sci Bull*(安徽农业科学),2012,40:7911-7913.
- 2 Mine SE,Soylu S,Kurt S. Antimicrobial activities of the essential oil of various plants against tomato late blight diseases agent *phytophthora infestans*. *Mycopathologia*, 2006, 161: 119-128.
- 3 Wang JY(王巨媛),Zhai S(翟胜). Application and development prospects of essential oils. *Jiansu Agric Sci Bull*(江苏农业科学),2010,4:1-3.
- 4 Bao LH(包丽华),Wang LH(王林和),Zhang GS(张国盛),et al. Study on the extraction of essential oil from *Sabina vulgaris* Ant. Leaves and thin tress by steam distillation. *Anhui Agri Sci Bull*(安徽农业科学),2009,37:4121-4123.
- 5 Gong SS(龚盛昭),Cheng J(程江),Yang ZR(杨卓如). Microwave-assisted extraction of essential oil from *Citrus grandis* peel. *Chem Ind For Prod*(林产化学与工业),2005, 25(4):67-70.
- 6 Gong SS(龚盛昭),Cheng J(程江),Yang ZR(杨卓如). Optimization on microwave-assisted extraction of essential oil from *Cyperus rotundus* L. *Chem Ind For Prod*(林产化学与工业),2006,26:100-104.
- 7 Fu XX(付晓辛),Wang XM(王新明),Francois bernard. Volatile organic compounds in airfresheners and their potential impacts in indoor air quality. *Envir chem*(环境化学), 2012,31:243-248.
- 8 Wu HQ(吴慧清),Wu QP(吴清平),Shi LS(石立三),et al. Study on formula of air disinfectant made from plant essential oil and its effect evaluation. *Food Sci*(食品科学), 2008,29:161-164.
- 9 Sun YF(孙延芳),Liang ZS(梁宗锁),Liu XT(刘新桐),et al. Study on formula of a new type of air disinfectant made from essential oil of *Artemisia anethoides* Mattf. *Appl Chem Ind*(应用化工),2011,40:1861-1863.
- 10 Gao Y(高燕). Study on the extraction and seperation of wild mint essential oil and its antioxidant activity. Shihezi:Shihezi University, MSc. 2015.
- 11 Yang J(阳杰). Study on preparation and application of a new type of green deodorizer. Changsha: Hunan Agriculture University, MSc. 2013.
- 12 Shimizu K,Maeda Y. Deodorizing effect of cacao polyphenols against methyl mercaptan. *J Japan Soc Food Sci Technol*, 1999,46:484-486.