

Chiết xuất tinh dầu Hương thảo bằng phương pháp chưng cất hơi nước

Nguyễn Đình Phúc*, Phạm Hoàng Danh, Triệu Tuấn Anh, Thái Huỳnh Yến Phương

Khoa Kỹ thuật Thực phẩm và Môi trường, Đại học Nguyễn Tất Thành

*ndphuc@ntt.edu.vn

Tóm tắt

Cây Hương thảo du nhập vào Việt Nam khoảng năm 2007. Tinh dầu Hương thảo có các đặc tính chống oxy hóa, kháng khuẩn, kháng nấm; được chiết xuất bằng các phương pháp: chưng cất trực tiếp trong nước, chưng cất hơi nước, chưng cất trực tiếp có sự hỗ trợ của vi sóng hoặc sóng siêu âm. Bài báo nghiên cứu các yếu tố ảnh hưởng đến quá trình chưng cất hơi nước. Hiệu suất tinh dầu thu được là 3,04% với các điều kiện: 300 g nhập liệu Hương thảo khô xay (0,1 - 0,3 cm), nhiệt độ sôi đun 195°C trong 70 phút (cho tốc độ bay hơi 0,045 ml/s). Kết quả phân tích bằng GC-MS cho thấy các thành phần chính có trong tinh dầu: α -pinene 23,63%, 1,8-cineole 15,349%, borneol 5,563% và geraniol 5,517%. Thực hiện so sánh hiệu suất và thành phần tinh dầu thu được với các phương pháp chưng cất trực tiếp trong nước và chưng cất có sự hỗ trợ của vi sóng.

Nhận 25.02.2020

Được duyệt 29.05.2020

Công bố 29.06.2020

Từ khóa

Hương thảo,
chưng cất hơi nước

© 2020 Journal of Science and Technology - NTTU

1 Giới thiệu

Cây Hương thảo du nhập vào Việt Nam khoảng năm 2007, được trồng nhiều tại các tỉnh miền Trung và miền Nam. Tinh dầu Hương thảo được chiết xuất bằng các phương pháp: chưng cất trực tiếp trong nước, chưng cất hơi nước, chưng cất trực tiếp có sự hỗ trợ của vi sóng hoặc sóng siêu âm, chiết bằng dung môi hữu cơ hoặc CO₂ siêu tới hạn.

Tinh dầu Hương thảo có các đặc tính chống oxy hóa, kháng khuẩn, kháng nấm; có khả năng: kích thích mọc tóc, tăng hoạt động trí óc, giảm đau và khắc phục các vấn đề về hô hấp. Theo nghiên cứu của B. Bozin và cộng sự (2007), các hợp chất phenolic có trong cây Hương thảo như carnosol, axit carnosic, rosmanol, rosmadial, epirosmanol, rosmadiphenol, axit rosmarinic... có khả năng chống oxy hóa [1]. O. Y. Celiktaş và cộng sự (2007) khảo sát hoạt tính kháng khuẩn của tinh dầu Hương thảo, cho thấy tinh dầu Hương thảo có thể chống lại các loại vi khuẩn: *Staphylococcus aureus*, *Proteus Vulgaris*, *Pseudomonas aeruginosa*, *Klebsiellapneumonia*, *Enterococcusfaecalis*, *Escherichiacoli*, *Staphylococcus cholermidis*, *Bacillus subtilis* và *Candida albicans* [2]. N. da Silva Bomfim và cộng sự (2014) phát hiện trong tinh dầu Hương thảo có các hợp chất chính như 1,8-cineole (52,2%), camphor (15,2%) và α -pinene (12,4%) cho thấy tinh dầu Hương thảo chống lại nấm *F. verticillioides* bằng cách phá vỡ thành tế bào và các thành phần tế bào, sau đó ức chế sản xuất fumonisin và ergosterol [3]. M. J. Jordán và cộng sự (2013) nghiên cứu

tác động của các thành phần trong tinh dầu Hương thảo (eucalyptol, camphor, α -pinene) lên tính kháng khuẩn của chúng, cho thấy hoạt tính kháng khuẩn mạnh 4 mầm bệnh truyền qua thực phẩm: *Salmonella typhimurium*, *Staphylococcus aureus*, *Listeria monocytogenes* và *Escherichia coli* [4].

Trong lĩnh vực chiết xuất, A. Basile cùng cộng sự (1998) chưng cất tinh dầu Hương thảo bằng hơi quá nhiệt cho mùi thơm hơn so với chưng cất trực tiếp trong nước [5]. Năm 2003, C. Boutekedjiret cùng cộng sự đã so sánh hiệu quả chưng cất tinh dầu Hương thảo bằng phương pháp chưng cất trực tiếp và chưng cất hơi nước. Kết quả cho thấy, chưng cất hơi nước cho hiệu suất cao hơn chưng cất trực tiếp là 0,44% [6]. Năm 2008, N. Bousbia cùng cộng sự đã so sánh phương pháp chưng cất trực tiếp và chưng cất có sự hỗ trợ của vi sóng. Kết quả cho thấy, phương pháp có sự hỗ trợ của vi sóng có nhiều ưu điểm vượt trội hơn, như: thời gian chưng cất ngắn, hoạt tính kháng khuẩn rõ rệt hơn đối với nấm men, giảm chi phí tiêu thụ năng lượng và khả năng tái tạo mùi thơm tự nhiên tốt hơn [7]. Năm 2009, E. Cassel cùng cộng sự đã thực nghiệm sản xuất tinh dầu Hương thảo bằng phương pháp chưng cất hơi nước. Hiệu suất của quá trình là 0,51% [8]. Năm 2017, L. A. Conde-Hernandez cùng cộng sự đã so sánh quá trình chưng cất tinh dầu Hương thảo bằng ba phương pháp: chưng cất trực tiếp trong nước, chưng cất hơi nước và chưng cất bằng CO₂ siêu tới hạn. Hiệu suất của các phương pháp lần lượt là 2%, 2,35% và 4% [9].

Ở Việt Nam, hàng năm phải nhập một lượng tinh dầu Hương thảo khá lớn để đáp ứng nhu cầu tiêu thụ.

Nghiên cứu này thực hiện chiết xuất tinh dầu Hương thảo bằng phương pháp chưng cất hơi nước, so sánh hiệu suất và thành phần hóa học của tinh dầu thu được với các phương pháp khác. Nghiên cứu góp phần tận dụng nguồn nguyên liệu Hương thảo sẵn có tại Việt Nam.

2 Nguyên liệu và phương pháp

2.1 Nguyên liệu

Hương thảo được trồng tại Lâm Hà, Lâm Đồng, Việt Nam, thu hoạch 3 tháng một lần trong thời tiết khô ráo. Sau thu hoạch, rửa sạch đất cát và loại bỏ những cành hư. Tiếp theo, sấy ở nhiệt độ 50°C trong 2 giờ đến khi độ ẩm còn khoảng 10%. Nguyên liệu sau sấy được loại bỏ cành rồi cân 50 g cho vào túi kín và bảo quản nơi khô ráo, tránh ánh nắng trực tiếp.

2.2 Chiết xuất tinh dầu Hương thảo bằng phương pháp chưng cất hơi nước

Lá Hương thảo khô được xay và cân khối lượng xác định trước khi cho vào bình chứa nguyên liệu. Thiết bị chưng cất được gia nhiệt đến nhiệt độ cố định để tạo ra lượng hơi cần thiết. Thời gian chưng được tính từ lúc giọt lỏng đầu tiên xuất hiện. Hỗn hợp gồm tinh dầu và nước ngưng thu được (sau khi qua bộ phận ngưng tụ) được mang đi chiết để loại bỏ nước ngưng. Tinh dầu sau khi tách nước được làm khan bằng Na₂SO₄ khan, sau đó tiến hành lọc để thu tinh dầu nguyên chất.

2.3 Phân tích và đánh giá chất lượng tinh dầu

2.3.1 Phương pháp định tính

Phương pháp định tính được thực hiện bằng cách đánh giá cảm quan màu, mùi, vị của tinh dầu dựa trên quan điểm của người nghiên cứu.

2.3.2 Một số chỉ tiêu hóa lí

Độ ẩm của nguyên liệu được xác định bằng máy đo độ ẩm OHAUS MB 45. Chỉ số acid được xác định bằng phương pháp chuẩn độ với dung dịch KOH 0.1N. Tỉ trọng được xác định bằng phương pháp dùng picnomet.

2.3.3 Thành phần hóa học

Thành phần hóa học của tinh dầu được phân tích bằng phương pháp sắc kí khí ghép khối phổ (GC/MS) tại viện Khoa học và Kỹ thuật Việt Nam (số 1 Mạc Đĩnh Chi, phường Bến Nghé, quận 1, Tp. Hồ Chí Minh). Thiết bị Mark SCION SQ 456-GC. Cột: Rxi-5ms RESTEK performance (30 m x 0,25 mm (i.d.), 0,25 μm df). Chương trình nhiệt: 50°C giữ trong 1 phút, tăng 30°C/phút đến 80°C, tăng 5°C/phút đến 230°C, tăng 25°C/phút đến 280°C giữ trong 3 phút. Khí mang: Helium, tốc độ dòng: 1 ml/phút. Nhiệt độ tiêm mẫu: 250°C, tỉ lệ chia dòng: 30. Phương pháp ion hóa: bắn phá điện tử (EI+), năng lượng ion hóa: 70 eV. Chế độ quét toàn bộ: 50 - 500 amu. Tốc độ quét: 1 s/scan. Nhiệt độ nguồn ion hóa: 250°C.

2.3.4 Hoạt tính chống oxi hóa

Hoạt tính chống oxi hoá được xác định theo phương pháp 2,2 – diphenyl – 1 – picryl hydrazyl radical (DPPH). Hoạt lực bắt gốc tự do được thể hiện trên tỉ lệ phần trăm ức chế và được tính theo công thức:

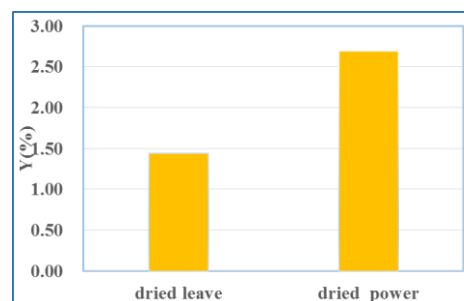
$$\% = \frac{A_0 - A_1}{A_0} \times 100 \quad (1)$$

Trong đó: A₀ là độ hấp thụ của mẫu đối chứng, A₁ là độ hấp thụ của mẫu có dịch chiết.

3 Kết quả và bàn luận

3.1 Ảnh hưởng của kích thước nguyên liệu

Hương thảo khô nguyên lá có độ ẩm trung bình là 8,47% và Hương thảo khô xay kích thước 0,1 - 0,3 cm có độ ẩm trung bình là 8,44%. Cố định khối lượng nhập liệu 300 g, thời gian chưng cất 180 phút tính từ giọt lỏng ngưng tụ đầu tiên và nhiệt độ nồi đun 225°C.

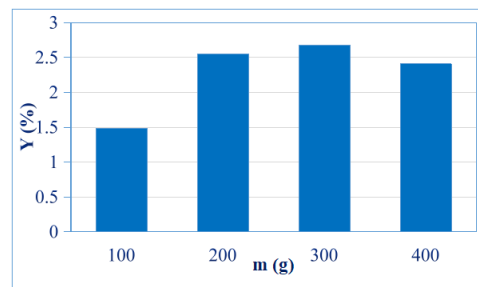


Hình 1 Biểu đồ sự ảnh hưởng của kích thước nguyên liệu.

Hiệu suất tinh dầu đối với lá Hương thảo khô xay là 2,69% và 1,45% đối với Hương thảo khô nguyên lá. Kết quả tương tự được tìm thấy trong nghiên cứu về sấy khô lá Hương thảo trước khi chưng cất và hiệu suất thu được là 1,0% (Ram et.al., tháng 3 năm 2011). Chọn lá Hương thảo xay khô là nguyên liệu đầu vào cho các khảo sát tiếp theo. Một phần vì nguyên liệu tươi khó bảo quản, ảnh hưởng đến thành phần cũng như chất lượng của tinh dầu.

3.2 Ảnh hưởng của khối lượng nguyên liệu

Khối lượng nhập liệu với các giá trị khác nhau 100 g, 200 g, 300 g, 400 g cho hiệu suất 1,48%, 2,55%, 2,68% và 2,41% tương ứng. Cố định thời gian chưng cất là 120 phút tính từ giọt lỏng ngưng tụ đầu tiên và nhiệt độ nồi đun là 225°C.

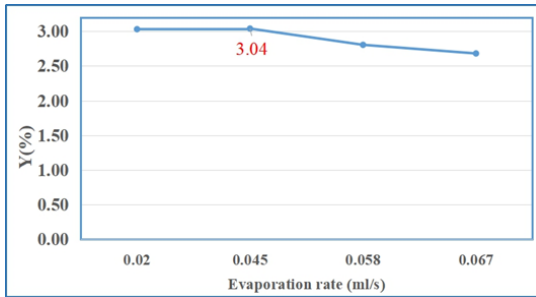


Hình 2 Biểu đồ thể hiện sự ảnh hưởng của khối lượng nguyên liệu.

Kết quả cho thấy khối lượng nhập liệu ảnh hưởng đến hiệu suất rất nhiều, tăng từ 1,48% lên đến 2,68% theo khối lượng vật liệu khô. Với kết quả này, khối lượng nhập liệu 300 g cho hiệu suất cao nhất. Tuy nhiên, không phải nhập nguyên liệu càng nhiều thì hiệu suất càng cao. Việc nhập nguyên liệu quá nhiều làm cho hơi nước không thể thẩm thấu, tiếp xúc với nguyên liệu làm cho việc chiết xuất tinh dầu đạt hiệu quả thấp hơn. Vì vậy, khối lượng nhập liệu 300g là thích hợp cho quá trình chưng cất với bình cầu chứa nguyên liệu thể tích 500 ml.

3.3 Ảnh hưởng của tốc độ hóa hơi

Tiến hành trích li 300 g mẫu Hương thảo khô ở những khoảng nhiệt độ khác nhau trong 180 phút tính từ giọt lỏng ngưng tụ đầu tiên. Kết quả thu được được thể hiện trong Hình 3.



Hình 3 Biểu đồ thể hiện sự ảnh hưởng của tốc độ hóa hơi.

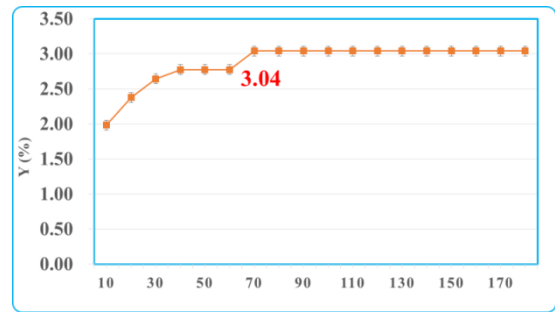
Hiệu suất tinh dầu thu được nhiều nhất là 3,04%. Tốc độ bay hơi giúp thay đổi hiệu suất thu tinh dầu. Khi tốc độ bay hơi phù hợp, lượng tinh dầu sẽ tăng lên. Nhưng tốc độ bay hơi càng nhanh, hiệu suất tinh dầu càng thấp. Bởi vì hơi nước chưa kịp thẩm thấu vào tế bào thực vật để chiết xuất tinh dầu, tốn chi phí và thời gian chưng cất. Vì vậy, chọn tốc độ hóa hơi 0,045 ml/s (ứng với nhiệt độ nôi đun 195⁰C) cho các khảo sát tiếp theo.

3.4 Ảnh hưởng của thời gian chưng cất

Thời gian trích li phụ thuộc vào các yếu tố như trạng thái nguyên liệu, nhiệt độ... Thời gian trích li càng dài thì thu được càng nhiều tinh dầu. Tuy nhiên, khi kéo dài thời gian chưng cất đến một giới hạn nhất định thì lượng tinh dầu thu được không tăng nữa. Đồng thời có thể ảnh hưởng đến chất lượng tinh dầu do một số chất có thể bị biến tính khi tiếp xúc lâu với nhiệt độ cao. Từ những số liệu thực nghiệm cho thấy việc tăng thời gian chiết xuất sẽ làm tăng năng suất của tinh dầu Hương thảo.

Biểu đồ Hình 4, cho thấy hiệu suất tinh dầu thay đổi đáng kể, tăng nhanh từ 30-70 phút, tương ứng với 2,77-3,04%. Ở thời gian chưng cất từ 10-70 phút thì tinh dầu vẫn còn nhiều trong nguyên liệu nên biểu đồ có xu hướng tăng.

Sau 70 phút, đồ thị gần như không thay đổi do lượng tinh dầu trong nguyên liệu đã được lôi cuốn hết ra ngoài. Việc kéo dài thời gian chưng cất không làm cho hiệu suất tăng, ngược lại gây hao phí điện nước dẫn đến tăng chi phí sản xuất. Vì vậy, chọn thời gian chưng cất thích hợp là 70 phút.



Hình 4 Biểu đồ thể hiện sự ảnh hưởng của thời gian chưng cất.

3.5 So sánh hiệu suất và thành phần hóa học của tinh dầu với các phương pháp khác

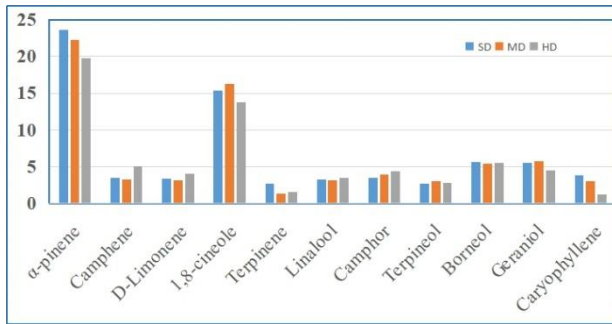
Tinh dầu Hương thảo thu được từ phương pháp chưng cất hơi nước được so sánh với các phương pháp chưng cất trực tiếp trong nước và chưng cất có sự hỗ trợ của vi sóng mà nhóm tác giả đã thực hiện trước đó. 3 phương pháp có sự khác biệt về hiệu suất tinh dầu thu được, lần lượt là 3,04% (chưng cất hơi nước), 4,8% (chưng cất trực tiếp) và 2,7% (chưng cất có sự hỗ trợ của vi sóng). Chưng cất hơi nước cho hiệu suất thấp hơn phương pháp trực tiếp nhưng lại cao hơn so với phương pháp có sự hỗ trợ của lò vi sóng. Điều này là do chưng cất trực tiếp trong nước thì nguyên liệu ngập hoàn toàn trong nước nên khả năng hơi nước thẩm thấu qua các lớp biểu bì chứa tinh dầu lớn hơn. Chưng cất có sự hỗ trợ của vi sóng có thể gia nhiệt nhanh, tiết kiệm được thời gian nhưng hiệu suất trích li kém. Điều này có thể là do khi chiếu vi sóng ở công suất lớn thì vận tốc hóa hơi lớn nên một phần hơi có lẫn tinh dầu bị thất thoát ra ngoài.

Tinh dầu Hương thảo thu được từ 3 phương pháp chưng cất có tính chất hóa lí khá tương đồng với nhau. Kết quả được thể hiện trong Bảng 1.

Bảng 1 Các chỉ tiêu hóa lí của tinh dầu Hương thảo.

Màu	Mùi	Vị	Chỉ số acid	Tỉ trọng
Vàng trong	Thơm dịu	Cay thơm	0,27	0,902

Nhiều nghiên cứu trên thế giới đã chỉ ra rằng các phương pháp chưng cất khác nhau sẽ cho tinh dầu có hàm lượng và chất lượng khác nhau [8,10]. Trong nghiên cứu này, các phương pháp MD, SD, HD tạo ra tinh dầu có hàm lượng các thành phần chính khác nhau như α -Pinene lần lượt là 22,277%, 23,630%, 19,790%; 1,8-cineole là 16,256%, 15,349%, 13,797%; geraniol là 5,705%, 5,517%, 4,442%.



Hình 5 So sánh các thành phần hóa học trong 3 phương pháp chưng cất.

Hình 5 cho thấy thành phần hóa học của tinh dầu Hương thảo được chưng cất bằng ba phương pháp khác nhau. Hợp chất α -Pinene và 1,8-cineole chiếm hàm lượng cao trong tinh dầu Hương thảo. Các thành phần kém phân cực (α -Pinene, Camphene, D-Limonene) trong tinh dầu Hương thảo thu được bằng phương pháp chưng cất trực tiếp có sự hỗ trợ của vi sóng thấp hơn. Ngược lại, những thành phần phân cực cao hơn do có chứa oxi như 1,8-cineole, Camphor, Terpineol lại chiếm hàm lượng

cao hơn, bởi vì vi sóng ưu tiên tác dụng lên những hợp chất phân cực, giúp những thành phần này tăng nhiệt độ rất nhanh, tế bào thoát ra và bị lôi cuốn theo hơi nước dễ hơn. Các thành phần còn lại nhìn chung không có sự khác biệt lớn.

4 Kết luận

Trong nghiên cứu này, tinh dầu Hương thảo được chiết xuất bằng phương pháp chưng cất hơi nước. Khảo sát các yếu tố ảnh hưởng lên quá trình chưng cất nhằm tìm ra các thông số vận hành phù hợp cho kết quả như sau: nguyên liệu khô xay (0,1 - 0,3 cm), khối lượng nhập liệu 300 g, tốc độ bay hơi 0,045 ml/s và thời gian chưng cất 70 phút. So sánh với các phương pháp khác cho thấy có sự khác biệt về hiệu suất và thành phần của tinh dầu thu được, lần lượt là 4,8% (HD), 3,04% (SD) và 2,7% (MD).

Lời cảm ơn

Nghiên cứu được tài trợ bởi Quỹ Phát triển Khoa học và Công nghệ - Đại học Nguyễn Tất Thành, đề tài mã số 2019.01.33 /HĐ-KHCN.

Tài liệu tham khảo

1. B. Bozin, N. Mimica-Dukic, I. Samojlik, and E. Jovin, "Antimicrobial and antioxidant properties of rosemary and sage (*Rosmarinus officinalis* L. and *Salvia officinalis* L., Lamiaceae) essential oils," Journal of agricultural and food chemistry, vol. 55, pp. 7879-7885, 2007.
2. O. Y. Celiktas, E. H. Kocabas, E. Bedir, F. V. Sukan, T. Ozek, and K. Baser, "Antimicrobial activities of methanol extracts and essential oils of *Rosmarinus officinalis*, depending on location and seasonal variations", Food Chemistry, vol. 100, pp. 553-559, 2007.
3. N. da Silva Bomfim, L. P. Nakassugi, J. F. P. Oliveira, C. Y. Kohiyama, S. A. G. Mossini, R. Grespan, et al., "Antifungal activity and inhibition of fumonisin production by *Rosmarinus officinalis* L. essential oil in *Fusarium verticillioides* (Sacc.) Nirenberg", Food chemistry, vol. 166, pp. 330-336, 2015.
4. M. J. Jordán, V. Lax, M. C. Rota, S. Lorán, and J. A. Sotomayor, "Effect of bioclimatic area on the essential oil composition and antibacterial activity of *Rosmarinus officinalis* L", Food Control, vol. 30, pp. 463-468, 2013.
5. A. Basile, M. M. Jiménez-Carmona, and A. A. Clifford, "Extraction of rosemary by superheated water", Journal of Agricultural and Food Chemistry, vol. 46, pp. 5205-5209, 1998.
6. C. Boutekedjiret, F. Bentahar, R. Belabbes, and J. Bessiere, "Extraction of rosemary essential oil by steam distillation and hydrodistillation", Flavour and Fragrance Journal, vol. 18, pp. 481-484, 2003.
7. N. Bousbia, M. A. Vian, M. A. Ferhat, E. Petitcolas, B. Y. Meklati, and F. Chemat, "Comparison of two isolation methods for essential oil from rosemary leaves: Hydrodistillation and microwave hydrodiffusion and gravity", Food Chemistry, vol. 114, pp. 355-362, 2009.
8. E. Cassel, R. Vargas, N. Martinez, D. Lorenzo, and E. Dellacassa, "Steam distillation modeling for essential oil extraction process" Industrial crops and products, vol. 29, pp. 171-176, 2009.
9. L. A. Conde-Hernández, J. R. Espinosa-Victoria, A. Trejo, and J. Á. Guerrero-Beltrán, "CO₂-supercritical extraction, hydrodistillation and steam distillation of essential oil of rosemary (*Rosmarinus officinalis*)", Journal of food engineering, vol. 200, pp. 81-86, 2017.
10. Á. Calín-Sánchez, A. Szumny, A. Figiel, K. Jałoszyński, M. Adamski, and Á. A. Carbonell-Barrachina, "Effects of vacuum level and microwave power on rosemary volatile composition during vacuum-microwave drying", Journal of Food Engineering, vol. 103, pp. 219-227, 2011.

The extraction of rosemary essential oil by steam distillation method

Dinh Phuc Nguyen*, Hoang Danh Pham, Tuan Anh Trieu, Huynh Yen Phuong Thai

Faculty of Environmental and Food Engineering, Nguyen Tat Thanh University

*ndphuc@ntt.edu.vn

Abstract Rosemary was introduced to Vietnam in around 2007. Rosemary essential oil has some useful properties such as antioxidant, antibacterial, and antifungal; It is extracted by several methods: hydrodistillation, steam distillation, and microwaves/ultrasonic waves assisted hydrodistillation. This study researched the factors influencing the steam distillation process. The yield of obtained essential oil is 3.04% with the conditions: 300 g input of dried and blended rosemary leaf (0.1-0.3cm), the temperature of the boiler at 195°C for 70 minutes (for the evaporation rate of 0.045 ml/s). Analysis results by GC-MS showed that the main components in essential oils: 23,630% of α -pinene, 15,349% of 1,8-cineole, 5,563% of borneol, and 5,517% of geraniol. The performance and composition of rosemary essential oil were compared to the hydrodistillation and the microwave-assisted hydrodistillation methods.

Keywords rosemary, steam distillation