

# 超临界 CO<sub>2</sub> 萃取鱼腥草的挥发油成分

曾虹燕<sup>1</sup>, 蒋丽娟<sup>2</sup>, 施风姿<sup>1</sup>

(1. 湘潭大学生物技术研究所, 湖南 湘潭 411105; 2. 湖南林业科学院, 湖南 长沙 410004)

**摘要:** 从萃取的压力、温度、流量和时间等条件探讨超临界 CO<sub>2</sub> 萃取对鱼腥草 (*Houttuynia cordata* Thunb.) 挥发油萃取率的影响, 确定最佳萃取条件为萃取压力 20 mPa、温度 35℃、CO<sub>2</sub> 流量 40 kg/h 和萃取时间 80 min, 鱼腥草挥发油得率为 1.76%。而水蒸气蒸馏提取和石油醚提取的得率分别为 0.05% 和 0.08%。超临界 CO<sub>2</sub> 法萃取的鱼腥草挥发油收率高, 萃取时间短。

**关键词:** 鱼腥草; 挥发油; 超临界 CO<sub>2</sub> 萃取

**中图分类号:** Q946.85 **文献标识码:** A **文章编号:** 1004-0978(2003)02-0010-04

**The volatile oils from *Houttuynia cordata* with supercritical CO<sub>2</sub> extraction** ZENG Hong-yan<sup>1</sup>, JIANG Li-juan<sup>2</sup>, SHI Feng-zi<sup>1</sup> (1. Biotechnology Research Institute, Xiangtan University, Xiangtan 411105, China; 2. Hu'nan Academy of Forestry, Changsha 410004, China), *J. Plant Resour. & Environ.* 2003, 12(2): 10-13

**Abstract:** The effects of the pressure, temperature, CO<sub>2</sub> flowing rate and extracting time to the extraction rate of the volatile oil of *Houttuynia cordata* Thunb. by supercritical CO<sub>2</sub> extraction were researched. The optimal extracting conditions were the pressure 20 mPa, temperature 35℃, CO<sub>2</sub> flowing rate 40 kg/h and the extracting time 80 min. The extraction rates of volatile oils obtained with supercritical CO<sub>2</sub>, steam distillation and petroleum ether extraction were 1.76%, 0.05% and 0.08% respectively. The results showed that the extracting rate of the supercritical CO<sub>2</sub> extraction is the highest and extracting time is the shortest.

**Key words:** *Houttuynia cordata* Thunb.; supercritical CO<sub>2</sub> extraction; volatile oil

超临界流体萃取 (Supercritical Fluid Extraction, SFE) 技术是近 20 年来国际上发展迅速的新一代化工分离技术, 已广泛应用于医药、食品和香料等行业。CO<sub>2</sub> 是最常用的超临界流体。超临界 CO<sub>2</sub> 萃取应用于中药领域, 与传统方法比较, 有许多独特的优点, 如操作温度低、分离效率高且无溶剂残留, 对实现中药现代化具有重要的意义和可观的应用前景。

鱼腥草 (*Houttuynia cordata* Thunb.) 又名蕺菜, 为三白草科 (Saururaceae) 多年生草本, 广泛分布于我国南方各省区, 为重要传统的食药两用植物。鱼腥草具有清热解毒、消肿排脓、利尿通淋及止痰止咳等功效, 并对多种细菌有抑制作用; 其挥发油对于上呼吸道感染、支气管炎、肺炎、慢性气管炎、慢性宫颈炎和百日咳等均有较好的疗效; 对急性结膜炎和尿路感染等也有一定疗效。其挥发油中的主要有效成分为鱼腥草素 (houttuyninum), 深受人们的关注<sup>[1-3]</sup>。本文首次在我国采用超临界 CO<sub>2</sub> 萃取技术提取鱼腥草

挥发油, 并就萃取压力、温度、CO<sub>2</sub> 流量和萃取时间对萃取结果的影响进行了比较和分析, 以确定其最佳工艺条件, 为更好地开发利用我国现有资源及超临界 CO<sub>2</sub> 萃取鱼腥草挥发油技术在工业上的应用提供了实验基础。

## 1 材料与方 法

### 1.1 实验仪器与材料

1.1.1 实验材料 鱼腥草 (*Houttuynia cordata* Thunb.) (全草) 干品, 购自湖南邵东廉桥。用刀切成段后, 用小型粉碎机粉碎成粉状 (40 目) 样品。CO<sub>2</sub> 为食品级。

收稿日期: 2003-01-20

基金项目: 湖南省科技厅重点项目 (02SSY1001-11)

作者简介: 曾虹燕 (1963-), 女, 河南洛阳人, 博士, 副教授, 长期从事植物资源和植物有效成分的分 离提取工作。

1.1.2 主要仪器与试剂 HA221-50-06 超临界萃取装置(江苏南通华安超临界萃取有限公司);瑞士 BUCH 公司 HE-250 型旋转蒸发器;所用试剂均为分析纯。

## 1.2 实验方法

1.2.1 水蒸气蒸馏法 将鱼腥草 1 000 g 置于挥发油提取器中,加水蒸馏 6 h,得挥发油 0.50 g,为金黄色,具有特殊鱼腥气味,萃取率为 0.05%。

1.2.2 有机溶剂提取法 鱼腥草共 1 091.8 g 用石油醚索氏提取 12 h,减压脱除石油醚得膏状物质。加入无水乙醇,在 -15℃ 下冷冻分层,抽滤,减压除乙醇得挥发油 0.90 g,为深黄色,萃取率为 0.08%。

1.2.3 超临界 CO<sub>2</sub> 萃取法 设定分离 I 的压力 7~8 mPa,温度 60℃。分离 II 的压力 4~6 mPa,35℃。称取鱼腥草 1 000 g,装入 5 L 的萃取罐内,超临界 CO<sub>2</sub> 萃取。在 2 h 内,每 20 min 收集提取物,称其重量,计算萃取率。

1.2.4 实验设计 以萃取压力、温度、流量为 3 参数,设计 3 因素 4 水平正交试验表(见表 1)。

表 1 超临界 CO<sub>2</sub> 萃取鱼腥草挥发油的正交试验设计表  
Table 1 Orthogonal experimental design on the volatile oil of *Houttuynia cordata* Thunb. obtained with supercritical CO<sub>2</sub>

水平 Level	因素 Factor		
	压力 Pressure A (mPa)	温度 Temperature B (°C)	CO <sub>2</sub> 流量 CO <sub>2</sub> Flux C (kg/h)
1	10	35	30
2	15	45	40
3	20	55	50
4	25	65	60

以萃取压力、温度、CO<sub>2</sub> 流量 3 因素为变量,实验得到最佳条件后,再以此条件进行鱼腥草挥发油提取实验,得出其最佳条件下的萃取率。

## 2 结果与分析

### 2.1 实验数据分析

超临界 CO<sub>2</sub> 萃取鱼腥草挥发油的正交试验结果见表 2。从正交试验分析结果可知,萃取压力、温度、CO<sub>2</sub> 流量 3 个因素的离差值分别为 1.194、0.236 和 0.453,表明萃取压力对挥发油萃取率的影响大大超过了萃取温度和 CO<sub>2</sub> 流量的影响,其顺序为:压力 > CO<sub>2</sub> 流量 > 温度。萃取压力对挥发油萃取率影

响最大。

### 2.2 压力对萃取率的影响

压力是影响萃取率最主要因素之一。从图 1 中可知,当压力在 20 mPa 以下时,压力增加,CO<sub>2</sub> 密度增加,使溶解度增大。但压力超过 20 mPa 后萃取率则有所下降,其原因为增加压力过大,扩散系数减小,阻碍了传质。说明超临界 CO<sub>2</sub> 萃取与压力密切相关,但并非压力越高越好,在鱼腥草挥发油萃取实验中,萃取压力为 20 mPa 时萃取率最佳。

表 2 超临界 CO<sub>2</sub> 萃取鱼腥草挥发油的正交试验结果<sup>1)</sup>  
Table 2 Results of orthogonal experimental design on the volatile oil of *Houttuynia cordata* Thunb. obtained with supercritical CO<sub>2</sub><sup>1)</sup>

序号 No.	压力 (mPa) Pressure	温度 (°C) Temperature	流量 (kg/h) Flux	萃取率 (%) Rate of extraction
1	10	35	30	0.776
2	10	45	40	0.549
3	10	55	50	0.130
4	10	65	60	0.620
5	15	35	40	1.100
6	15	45	50	1.090
7	15	55	60	1.960
8	15	65	30	0.970
9	20	35	50	1.450
10	20	45	60	1.540
11	20	55	30	1.880
12	20	65	40	1.980
13	25	35	60	1.450
14	25	45	30	1.290
15	25	55	40	1.440
16	25	65	50	1.090
I	2.075	4.776	4.936	
II	5.120	4.469	5.069	
III	6.850	5.410	3.760	
IV	5.270	4.660	5.570	
K1	0.519 0	1.194	1.229	
K2	1.280 0	1.117	1.267	
K3	1.713 0	1.353	0.940	
K4	1.320 0	1.165	1.393	
R	1.194	0.236	0.453	

<sup>1)</sup> 萃取时间为 80 min。The time of extraction is 80 min.

### 2.3 流量对萃取率的影响

CO<sub>2</sub> 流量是生产实际中一个十分重要的参数。CO<sub>2</sub> 流量对萃取率的影响有二个方面的因素:一方面,当 CO<sub>2</sub> 流量增大时,CO<sub>2</sub> 与物料接触时间减少,不利于萃取能力提高;另一方面,随着 CO<sub>2</sub> 流量增大,传质推动力加大,传递系数增加,有利于萃取。从图 2 可知,CO<sub>2</sub> 流量对鱼腥草挥发油萃取率影响不明

显,在 CO<sub>2</sub> 流量为 50 kg/h 时,萃取率下降,至 CO<sub>2</sub> 流量达 60 kg/h 时萃取率又回升,可能在 CO<sub>2</sub> 流量 50 kg/h 时,第一因素占主要地位,从而使萃取率下降;而到 CO<sub>2</sub> 流量 60 kg/h 时,第二因素占主要地位,故萃取率又回升,其原因有待于进一步研究。同时因 CO<sub>2</sub> 流量增加,CO<sub>2</sub> 耗量也随之增加,从成本等因素综合考虑,本实验选用每 1 000 g 原料,CO<sub>2</sub> 流量为 40 kg/h。

#### 2.4 温度对萃取率的影响

萃取温度是超临界 CO<sub>2</sub> 萃取的另一重要因素。温度对超临界 CO<sub>2</sub> 溶解能力的影响也比较复杂:在一定压力下,温度升高会使 CO<sub>2</sub> 密度下降,其溶解能力也相应下降;同时温度升高,会使溶质挥发加剧和扩散速度提高,而有利于萃取。温度对萃取效果的影响是这 2 个因素综合作用的结果。因此,萃取温度对萃取效率的影响常常有一个最佳值。对于分子

量大或极性强的化合物,较高的萃取温度通常效果较好。从图 3 可以看出,不同温度对鱼腥草挥发油的萃取率影响差异不大,35~65℃ 的萃取率差异较小,可能是由于鱼腥草挥发油中的分子量较小且为非极性物质,所以温度对的萃取率影响不明显。由于温度越高,对其他溶质的萃取率也会相应提高,这样挥发油的杂质也较多,同时也考虑能源因素,所以最佳萃取温度选定为 35℃。

#### 2.5 时间对萃取率的影响

随着萃取时间的延长萃取量逐渐增大。本实验在进行正交实验的过程中,每一实验均隔 20 min 取样 1 次,前 3 次(60 min)取样会得到较多的萃取物,第 4 次(80 min)取样产物就较少,以后几无产物萃出。从图 4 中可知,在 80 min 时产物几乎萃取完全,因此为了提高效率,节省能源,萃取时间以 80 min 为宜。

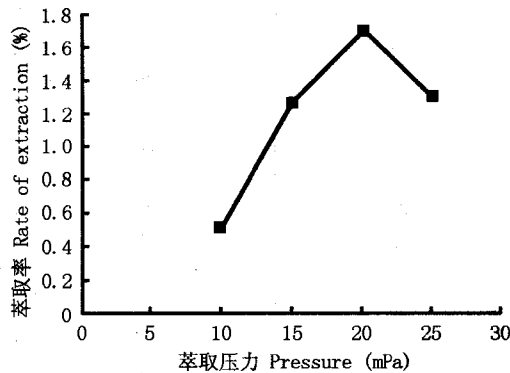


图 1 萃取压力对鱼腥草挥发油萃取率的影响  
Fig. 1 The effect of pressure on the extraction rate of the volatile oil of *Houttuynia cordata* Thunb.

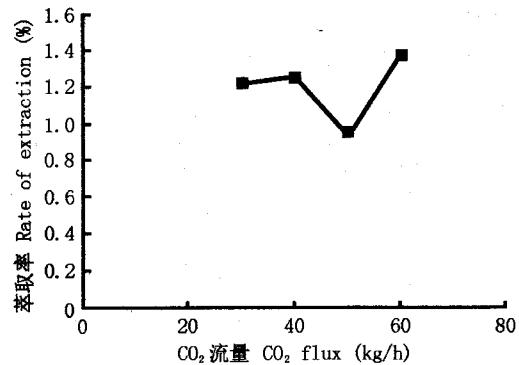


图 2 CO<sub>2</sub> 流量对鱼腥草挥发油萃取率的影响  
Fig. 2 The effect of CO<sub>2</sub> flowing rate on the extraction rate of the volatile oil of *Houttuynia cordata* Thunb.

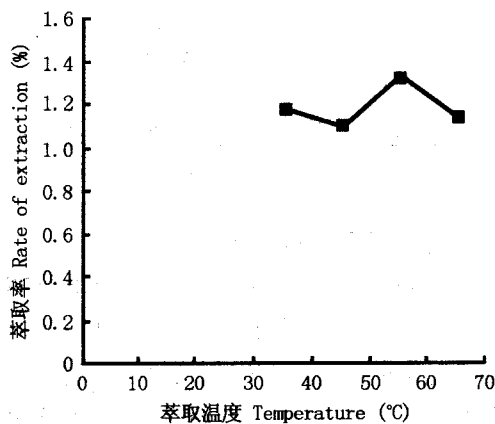


图 3 温度对鱼腥草挥发油萃取率的影响  
Fig. 3 The effect of temperature on the extraction rate of the volatile oil of *Houttuynia cordata* Thunb.

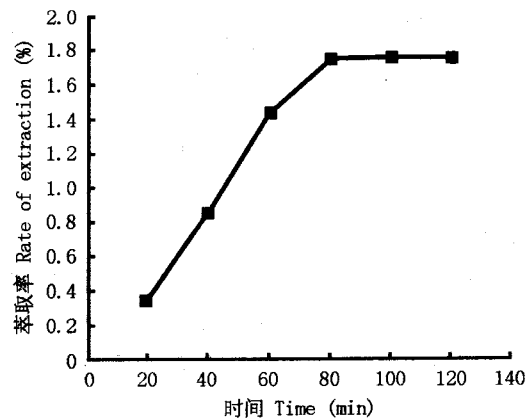


图 4 萃取时间对鱼腥草挥发油萃取率的影响  
Fig. 4 The effect of time on the extraction rate of the volatile oil of *Houttuynia cordata* Thunb.

## 2.6 最佳工艺条件分析

根据以上实验结果以及考虑各工艺因素,鱼腥草挥发油超临界 CO<sub>2</sub> 萃取的最佳工艺条件(原料粒度 40 目,萃取时间 80 min)为:萃取压力 20 mPa,温度 35℃,CO<sub>2</sub> 流量 40 kg/h。再以超临界 CO<sub>2</sub> 萃取最佳条件进行提取鱼腥草挥发油的实验,得最佳条件下萃取率为 1.76%。

表 3 不同提取方法对鱼腥草挥发油萃取率的影响

Table 3 The effects of different methods on extraction rate of *Houttuynia cordata* Thunb.

实验方法 Method	颜色 Colour	气味 Odor	时间(h) Time	萃取率(%) Extraction rate
水蒸气蒸馏 steam distillation extraction	深黄色 dark yellow	很浓 very strong	6.00	0.05
石油醚提取 petroleum ether extraction	淡黄色 light yellow	较浓 strong	12.00	0.08
超临界 CO <sub>2</sub> 萃取 supercritical CO <sub>2</sub> extration	橙黄色 orange yellow	纯正 purity	1.33	1.76

## 3 讨论和结论

### 3.1 影响超临界 CO<sub>2</sub> 萃取鱼腥草挥发油的因素

超临界 CO<sub>2</sub> 萃取鱼腥草挥发油受很多因素的影响,主要有压力、CO<sub>2</sub> 流量、温度、时间等,在本实验中,压力的影响至关重要。

### 3.2 鱼腥草挥发油超临界 CO<sub>2</sub> 萃取最佳工艺条件评价

鱼腥草挥发油组分比较复杂,对于不同组分,其最佳条件也不同。在笔者所选的实验条件范围内,当原料粒度 40 目、萃取压力 20 mPa、温度 35℃、CO<sub>2</sub> 流量 40 kg/h 和萃取时间为 80 min 时,鱼腥草挥发油的总萃取率较高(1.76%),其多数组分都有较好的萃取效果。如将其放大到工业化生产规模,应根据鱼腥草挥发油的用途、生产设备以及生产效益等情况综合考虑,进一步摸索出适宜工业化生产的工艺条件。

### 3.3 鱼腥草挥发油超临界 CO<sub>2</sub> 萃取的优势

(1)超临界 CO<sub>2</sub> 萃取鱼腥草挥发油,萃取率可达

### 2.7 不同提取方法对萃取率的影响

用水蒸气蒸馏、石油醚提取和超临界 CO<sub>2</sub> 萃取 3 种方法提取鱼腥草挥发油,其结果见表 3。由表 3 可知:超临界 CO<sub>2</sub> 萃取鱼腥草挥发油无论在颜色、气味、萃取率和时间上都优于其他 2 种传统方法,而且不存在有机溶剂残留所带来的一系列问题。

1.76%,萃取时间为 80 min,和常规方法相比,收率、萃取时间和原料的利用率都大大提高。

(2)超临界 CO<sub>2</sub> 萃取鱼腥草挥发油,其操作温度低,不会影响热敏性物质的天然活性。本实验所得到的鱼腥草挥发油的香气更接近天然香味。因此,超临界 CO<sub>2</sub> 萃取尤其适用于热敏性天然物质的提取。

(3)本实验所用的 CO<sub>2</sub> 为食品级,故所得的鱼腥草挥发油无毒,无有机溶剂残留。

综上所述,超临界 CO<sub>2</sub> 萃取在鱼腥草挥发油的深加工方面有诸多优点,随着 SFE 工业设备和技术的逐渐完善,在鱼腥草挥发油及其他中药有效成分的提取方面有着广阔的应用前景。

#### 参考文献:

- [1] 李 爽,于庆海,金佩珂. 鱼腥草的有效成分、药理作用及临床应用的研究进展[J]. 沈阳药科大学学报,1997,14(2):144-147.
- [2] 吴 卫. 鱼腥草的研究进展[J]. 中草药,2001,32(4):367-368.
- [3] 赵彩云. 中药鱼腥草的研究概况[J]. 基层中药杂志,1995,9(4):3-4.