

超临界萃取红茶致香成分的研究 及在烟草中的应用

陈景正, 杨运红, 苏洪军, 解 民

(河北中烟工业公司技术中心, 河北 石家庄 050051)

摘 要: 研究了超临界萃取红茶致香成分的方法, 应用 GC/MS 鉴定了化学成分, 并进行了卷烟加香实验. 评吸结果表明, 红茶萃取物能增加卷烟烟香, 使烟气甜润, 细腻柔和, 掩盖杂气, 减少刺激, 明显提高卷烟抽吸品质.

关键词: 红茶; 超临界萃取; 气相色谱/质谱仪; 卷烟; 加香

中图分类号: O657.32

文献标识码: A

文章编号: 1006-3757(2010)01-0048-04

茶叶中存在着许多与烟草相同的香气成分, 将茶叶提取物应用于卷烟中具有较好的香味补偿作用^[1-4]. 近几十年来, 超临界流体萃取技术在食品、医药、香精香料及化妆品领域已得到普遍应用^[5-6], 在烟草中的应用也日渐广泛^[7-21], 但超临界萃取红茶并将其萃取物应用于卷烟加香中的研究却未见报道. 本文建立了超临界流体萃取红茶的方法, 萃取物经 GC/MS 分析获得了香味成分的基础数据, 并进行了卷烟加香对比试验.

1 实验

1.1 仪器与试剂

HA120-50-01 超临界萃取装置 (南通市华安超临界萃取有限公司); HP6890N/5973N 气相色谱/质谱仪 (美国安捷伦), 7863 自动进样器, 5 μ L 进样针; OHAUS-AP250D 分析天平 (感量 0.01 mg). 无水甲醇 (分析纯); 红茶 (云南滇红); 烟丝样品 (本厂中试叶组).

1.2 超临界流体萃取

按照文献 [22] 的方法对红茶样品进行处理, 准确称取 150 g 红茶粉末置于 1 L 萃取釜. 以萃取率为主要指标进行萃取条件的优化. 最佳萃取条件为: 萃取压力 25 MPa, 萃取温度 40 $^{\circ}$ C, 分离压力 8 MPa, 分离温度 35 $^{\circ}$ C; CO₂ 流速约为 20 L/h, 夹带剂 (甲醇)

加入量 200 mL. 连续萃取时间 2.5 h. 按照优化后的萃取条件进行萃取, 并按下式计算萃取率:

$$\text{萃取率 } X(\%) = \frac{\text{萃取物质量 (g)}}{\text{原料质量 (g)}} \times 100\% \quad (1)$$

结果表明, 150 g 红茶萃取物质量为 8.25 g, 萃取率为 5.5%.

2 结果与讨论

2.1 超临界流体萃取条件的研究

2.1.1 萃取时间对萃取率的影响

在压力与温度一定的情况下, 萃取率随时间的变化见图 1. 由图 1 可以看出, 开始时溶剂和溶质

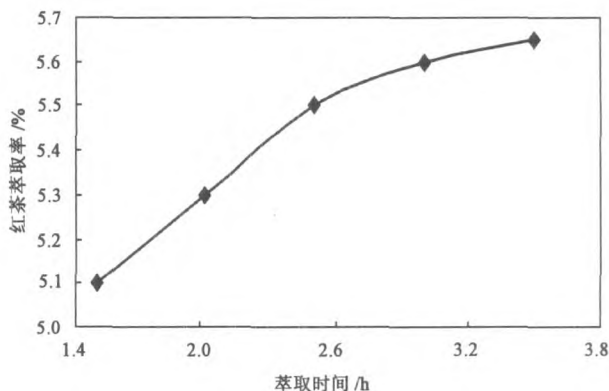


图 1 萃取时间对红茶萃取率的影响

Fig 1 Effect of time on extraction rate of black tea

收稿日期: 2009-11-27; 修订日期: 2010-01-21.

作者简介: 陈景正 (1977-), 男, 工程师, 学士, 主要从事卷烟工艺技术研究和管理工. Tel: 0311-66617840, E-mail:

cjz770129@sina.com

不能达到良好接触, 单位时间出料量小. 随着时间的延长, 超临界 CO_2 与被萃取物的传质逐渐达到平衡状态, 萃取率也随之提高, 但在萃取时间达到 2.5 h 后, 随着时间的进一步延长, 萃取率增加很少, 但能量消耗较大, 故萃取时间以 2.5 h 为宜.

2.1.2 萃取压力对萃取率的影响

萃取压力是影响萃取率的一个重要参数. 从图 2 看出, 在萃取时间与温度一定的情况下, 随着萃取压力的升高, 萃取率不断上升, 当超过 25 MPa 时, 萃取率增长缓慢, 同时压力太高也增加了不安全的因素, 因此萃取压力以 25 MPa 为宜.

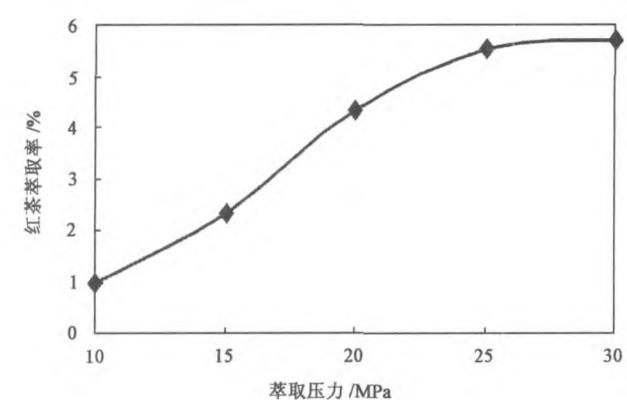


图 2 萃取压力对红茶萃取率的影响

Fig 2 Effect

of pressure on extraction rate of black tea

2.1.3 夹带剂用量对红茶萃取率的影响

在时间、压力与温度一定的情况下, 萃取率随夹带剂用量的变化见图 3. 由图 3 可以看出, 随着夹带剂用量的不断增加, 其萃取率不断提高, 当夹带剂

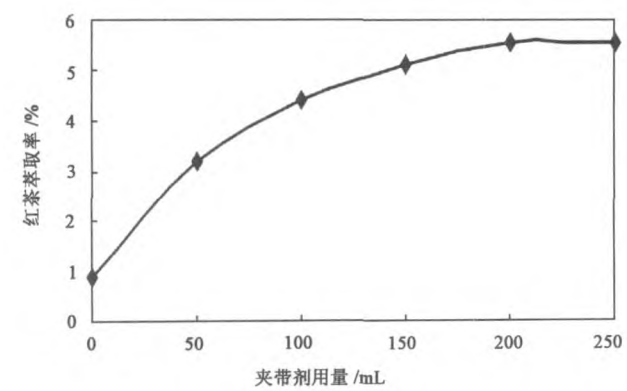


图 3 夹带剂用量与红茶萃取率的关系

Fig 3 Effect of rate

of entrainer on extraction rate of black tea

用量为 200 mL 时萃取率最大, 故夹带剂用量定为 200 mL.

2.1.4 温度对红茶萃取率的影响

超临界萃取温度也是影响萃取率的一个重要参数. 在一定的时间和压力下, 温度上升, 超临界流体粘度降低, 其扩散力增强, 萃取物在 CO_2 中的溶解度增加, 萃取率提高; 另一方面, 温度升高, CO_2 密度下降, 萃取物溶解力下降, 萃取率降低. 温度对萃取率的影响是这两方面因素综合作用的结果. 由图 4 可以看出, 当温度为 40℃ 时萃取率接近最大, 故萃取温度定为 40℃.

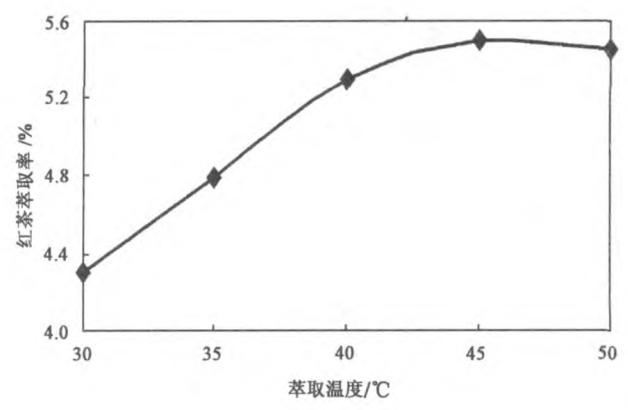


图 4 萃取温度对红茶萃取率的影响

Fig 4 Effect of

tempera ture on extraction rate of black tea

2.2 气相色谱/质谱分析

气相色谱/质谱条件: NNOWAX 毛细管柱 (30 m × 0.25 mm × 0.25 μm); 进样口温度 250℃; 进样量 1.0 μL, 快速分流进样, 分流比 10:1; 载气为氦气, 恒流流速 1.3 mL/min; 程序升温: 初始温度 60℃, 以 3℃/min 升至 230℃, 保持 2 min; 传输线温度 220℃; 离子源温度 200℃; 电离电压 70 V; 全离子扫描范围 33~350 u 采用 NIST/WILEY 谱库串联检索定性, 并结合标准质谱图和有关文献确认, 面积归一化法定量. 42 种挥发性成分的定量结果见表 1.

结果表明红茶 CO_2 超临界萃取物挥发性成分中主要的致香成分有: 棕榈酸 22.33%、四氢三甲基苯并呋喃 10.92%、己酸 6.85%、糠醛 6.78%、苯甲醇 6.48%、糠醇 3.62%、苯甲醛 3.27%、氧化苯乙烯 3.06%、β-紫罗兰酮 2.35%、芳樟醇氧化物 2.99%、芳樟醇 2.17%、环氧芳樟酯 1.69%、α-紫罗兰酮 1.69%. 这些致香成分主要作用是丰富烟香, 使烟香和谐, 在一定程度上增加烟气细腻程度.

表 1 红茶萃取物中主要挥发性化学成分
Table 1 Volatile compositions of the black tea

保留时间 /min	香味成分	匹配度	相对含量 /%
13.682	芳樟醇氧化物	98	2.99
14.825	糠醛	80	6.78
16.906	苯甲醛	94	3.27
18.377	芳樟醇	91	2.17
19.192	5-甲基糠醛	90	0.31
20.065	3,5-二甲苯环己醇	87	0.87
21.055	三烯甘油酯	80	0.50
21.266	丁内酯	80	0.38
22.030	氧化苯乙烯	91	3.06
23.326	糠醇	96	3.62
26.273	环氧芳樟醇	80	0.74
26.812	戊酸	83	0.91
27.431	环氧芳樟酯	90	1.69
30.371	α -紫罗兰酮	90	1.69
30.466	尼古丁	87	0.19
30.939	法尼基丙酮	78	0.71
31.230	己酸	90	6.85
31.840	N-乙基琥珀酰亚胺	91	0.49
31.965	苯甲醇	97	6.48
33.887	β -紫罗兰酮	93	2.35
35.480	庚酸	72	0.66
35.670	乙酰基吡咯	91	0.79
36.390	二氢大马酮	87	0.56
37.358	苯酚	80	1.03
38.537	反式橙花叔醇	76	0.45
39.571	辛酸	80	0.84
41.412	6,10,14-三甲十五酮	72	0.48
42.278	α -戊基环戊烯	70	1.61
43.479	壬酸	72	0.48
44.738	棕榈酸甲酯	93	0.58
45.241	邻氨基苯甲酸甲酯	93	1.62
47.846	四氢三甲基苯并呋喃	96	10.92
51.107	苯并呋喃	76	0.94
51.267	愈创木酚	78	0.27
52.201	吲哚	90	0.85
57.745	咖啡因	84	1.58
57.978	植醇	87	1.11
59.724	茴	81	0.46
60.780	肉豆蔻酸	86	0.45
66.857	棕榈酸	99	22.33
70.554	对苯酚	94	0.49
79.562	亚油酸	92	1.17

1% 溶液, 然后分别配制成 2.5、10、20.0 $\mu\text{g/mL}$ 3 个不同浓度的溶液, 均匀添加于烟丝中, 将烟丝置于 25 $^{\circ}\text{C}$ 和 RH 60% 的环境中放置 2 h, 卷制成烟, 在恒温恒湿 (22 $\pm$ 1 $^{\circ}\text{C}$, 相对湿度 60 $\pm$ 2%) 条件下平衡 48 h, 并取空白烟丝卷制成烟作为对照样品. 评吸所用卷烟主要叶组配方见表 2, 结果见表 3.

表 2 卷烟样品配方
Table 2 Tobacco blend of samples

叶组配方	用量 /%	叶组配方	用量 /%
云南楚雄 CXC2F	15	云南大理 DLC2L	15
云南曲靖 QJB3F	3	云南马龙 CFL43	9
湖南郴州 CZC2L	15	贵州安顺 ASC3F	15
湖南永州 YZC3F	6	福建龙岩 LYCF23	9
福建漳州 ZZC3L	6	四川会理 C2L	7

表 3 不同添加量加香试验对比评吸结果
Table 3 Result of smoking quality of cigarette

用量 /($\mu\text{g/mL}$)	评吸结果
空白烟丝	香气略显淡薄, 口腔、鼻腔有明显、毛刺、干刺感, 香气欠丰满, 略粗糙.
2.5	香气量略增, 具有醇和的酿甜香气, 甜润感和细腻程度略增加, 杂气稍有, 余味欠舒适.
10	香气量丰富, 具有醇和的酿甜香气, 甜润感和细腻程度增加明显, 刺激性降低, 香气和谐, 余味舒适.
20	加香感稍重, 吸味的甜润感和细腻感增加, 显著降低刺激性, 烟香部分被掩盖.

由表 3 结果可以看出, 使用效果优劣排序依次为: 10.0 $\mu\text{g/mL}$ 组、2.5 $\mu\text{g/mL}$ 组、20.0 $\mu\text{g/mL}$ 组、空白烟丝组. 评吸结果 (表 3) 表明, 添加红茶萃取物的样品卷烟感官质量均比空白烟丝样品好, 表明红茶萃取物能明显改善卷烟的吸味, 增加卷烟烟香, 使烟气甜润, 细腻柔和, 掩盖杂气, 减少刺激, 明显提高卷烟抽吸品质.

3 结论

(1) 红茶超临界 CO_2 萃取物中鉴定出 42 种主要的致香成分, 主要有 8 种酸、6 种醇、2 种烯、5 种酮、5 种酯、3 种醛、3 种酚、2 种呋喃.

(2) 红茶超临界 CO_2 萃取物能明显改善卷烟的吸味, 增加香气量, 柔和香气, 降低刺激性和杂气.

2.3 加香试验

将红茶萃取物超临界萃取产物用乙醇稀释成

参考文献:

- [1] 李拥军, 施兆鹏. 炒青绿茶加工中香气的动态变化 [J]. 茶叶科学, 2001, 21(2): 124- 129
- [2] 游小清, 王华夫. 福鼎大白茶在各引种地的香型及香气品质表现 [J]. 中国茶叶, 1993, 15(5): 6- 7.
- [3] 王华夫, 竹尾忠一, 伊奈何夫. 祁门红茶的香气特征 [J]. 茶叶科学, 1993, 13(1): 61- 68
- [4] 戴素贤. 七种高香型乌龙茶香气成分的主成分分析 [J]. 华南农业大学学报, 1999, 20(1): 113- 117.
- [5] 朱自强. 超临界流体技术 - 原理和应用 [M]. 北京: 化学工业出版社, 2002 223- 225.
- [6] 金闻博, 张悠金. 烟用香精香料 [M]. 合肥: 合肥经济技术学院, 1992 129- 134
- [7] 李烈, 马振元, 丛晓东. 超临界 CO₂ 从烟叶中萃取茄尼醇的工艺研究 [J]. 中国药科大学学报, 2002, 33(4): 351- 353
- [8] 张歆, 倪晋仁, 黄文. 超临界萃取烟草中茄尼醇 [J]. 精细化工, 2006, 23(5): 480- 482
- [9] 位华, 宓鹤鸣, 柳正良. 超临界流体萃取结合柱色谱法从废次烟叶中分离纯化茄尼醇的研究 [J]. 中草药, 2005, 36(5): 690- 692
- [10] 田景州, 金革, 马亚萍, 等. 用 CO₂ 溶剂从烟草 (烟末) 中萃取烟精的研究 [J]. 中国烟草学报, 1995, 2(4): 75- 79.
- [11] 高勇, 朱友民, 吴庆之. 烟草净油的超临界流体技术提取 [J]. 烟草科技: 烟草化学, 1995, (5): 28- 30
- [12] 张明福, 张建平. 烟草二氧化碳超临界萃取物的初步研究 [J]. 烟草科技: 烟草化学, 2001, (8): 24- 27.
- [13] 李雪梅, 杨叶昆, 徐若飞, 等. 利用超临界流体萃取技术制备烟草净油的研究 [J]. 中国烟草学报, 2004, 10(3): 1- 6
- [14] 朱仁发, 杨俊, 张悠金. 夹带剂在烟草超临界萃取中的应用力. 烟草科技: 烟草化学, 1999 (3): 35- 36
- [15] 王海涛, 杨虹, 胡根英, 等. 超临界萃取麦芽浸膏中致香成分的研究及在卷烟加香中的应用 [J]. 分析测试技术与仪器, 2006 12(2): 95- 97
- [16] 戴勇, 张晓霞, 李炎强, 等. 无花果精油香味成分的分析及在卷烟中的应用 [J]. 烟草科技: 烟草化学, 2003, (8): 23- 36
- [17] 廖华卫, 吕华冲, 李晓莹. 烟草中尼古丁的分离和鉴定 [J]. 广东药学院学报, 2002, 18(3): 176- 177.
- [18] 杨叶昆, 李雪梅, 周瑾, 等. 超临界流体萃取树苔净油研究 [J]. 烟草科技: 烟草化学, 2004, (2): 23- 26
- [19] 熊安盲, 马林. 高良姜精油的制备及加香试验 [J]. 烟草科技: 烟草工艺, 2003, (12): 11- 12 [20] 董超宇, 赵辉, 张镭. 超临界 CO₂ 从烟草中提取天然烟碱 [J]. 化学工程师, 1998, (5): 51- 52
- [21] 廖华卫, 吕华冲, 李晓蒙. 超临界流体萃取烟草中天然烟碱 [J]. 广东药学院学报, 2002, 18(2): 89.
- [22] 马字平, 岳田利, 毛多斌. 湖南毛尖香味成分的超临界 CO₂ 萃取及在烟草中的应用 [J]. 烟草科技: 烟草化学, 2006 (6): 30- 34

Extraction of Black Tea Absolute with Supercritical Fluid CO₂ and its Application in Tobacco

CNEN Jing- zheng YANG Yun- hong SU Hong- jun XIE M in

(Technology Center of Hebei Branch of China Tobacco Industrial Corporation, Shijiazhuang 050051, China)

Abstract Conditions for extraction of Black tea absolute from malt concrete with supercritical fluid CO₂ have been studied. Its chemical compositions were identified by GC/MS. The Black tea absolute was then added into cigarettes as tobacco flavoring and evaluated by panellists. The result indicated that the offensive odor of cigarette smoke was effectively reduced and the smoking quality was improved.

Key words Black tea SCFE; GC/MS; cigarette; flavoring

Classifying number: O657. 32