

# Tối ưu hóa các thông số kỹ thuật chưng cất tinh dầu sả hương Tây Giang theo phương pháp chưng lôi cuốn bằng hơi nước trực tiếp

Mã Thị Bích Thảo\*, Nguyễn Phương, Trần Hà, Nguyễn Thị Hồng, Vũ Văn Liệu

Trung tâm Ươm tạo công nghệ và Doanh nghiệp khoa học công nghệ, Viện Ứng dụng Công nghệ

Ngày nhận bài 1/7/2022; ngày chuyển phản biện 5/7/2022; ngày nhận phản biện 20/7/2022; ngày chấp nhận đăng 25/7/2022

## Tóm tắt:

Ở Việt Nam đã có nhiều công trình nghiên cứu về chưng cất tinh dầu từ lá sả bằng hơi nước trực tiếp, tuy nhiên chủ yếu tập trung vào nghiên cứu ảnh hưởng của nhiệt độ, áp suất và thời gian chưng cất tới hiệu suất thu hồi tinh dầu, với mục tiêu chính là giảm thời gian chưng cất mà chưa quan tâm tới thành phần các cấu tử trong tinh dầu sả thu được. Trong tinh dầu sả chứa không dưới 20 cấu tử tinh dầu, trong đó 3 cấu tử quan trọng nhất là citronellal, geraniol và citronellol. Theo TCVN 11426:2016 (tương đương với ISO 3848:2016) áp dụng cho tinh dầu sả Java xuất khẩu quy định hàm lượng: citronellal 31-40%, geraniol 20-25% và citronellol 8,5-14%. Tinh dầu sả Java hiện nay có hàm lượng geraniol thường nhỏ hơn 20% nên chưa đáp ứng được theo tiêu chuẩn ISO 3848:2016. Mục đích của nghiên cứu này là tối ưu hóa quá trình chưng cất các thông số: nhiệt độ, áp suất và thời gian chưng cất tinh dầu từ lá sả hương Tây Giang bằng phương pháp chưng cất lôi cuốn theo hơi nước trực tiếp, đạt hàm mục tiêu: hàm lượng tinh dầu thu được lớn nhất và hàm lượng geraniol không nhỏ hơn 20%. Kết quả nghiên cứu đã xác định được các thông số kỹ thuật tối ưu cho chưng cất tinh dầu sả hương Tây Giang: nhiệt độ  $116 \pm 1^\circ\text{C}$ , áp suất  $1,2 \pm 0,05 \text{ atm}$ , thời gian  $126 \pm 1$  phút, hàm lượng tinh dầu thu được là 0,94% và geraniol là 20,17%. Các kết quả nghiên cứu thực nghiệm rất hữu ích để xác định công nghệ cho việc sản xuất tinh dầu sả hương Tây Giang quy mô công nghiệp phục vụ xuất khẩu.

**Từ khóa:** chưng cất tinh dầu, geraniol, sả hương Tây Giang, tinh dầu sả, tối ưu hóa quá trình chưng cất.

**Chỉ số phân loại:** 2.8

## Đặt vấn đề

Cây sả có tên khoa học là *Cymbopogon*, thuộc họ hòa thảo (*Poaceae*) có nguồn gốc ở vùng nhiệt đới và ôn đới ẩm. Thành phần quan trọng nhất của cây sả là tinh dầu, tinh dầu tập trung chủ yếu ở lá và thân. Lá sả là nguyên liệu chính cho sản xuất tinh dầu [1, 2]. Tinh dầu sả được sử dụng rộng rãi trên thế giới trong nhiều lĩnh vực của đời sống xã hội như: công nghiệp thực phẩm, dược phẩm, mỹ phẩm và nông nghiệp [3]. Tinh dầu sả ở nước ta chủ yếu gồm 2 loại chính là tinh dầu sả chanh và sả Java. Việc xuất khẩu chủ yếu là tinh dầu sả Java với sản lượng rất nhỏ so với lượng tinh dầu sả nhập khẩu của các nước trên thế giới. Để tách tinh dầu từ lá sả, hiện nay các địa phương sử dụng 3 phương pháp chính: (1) Chưng cất trực tiếp với nước; (2) Chưng cất bằng hơi nước; (3) Chưng cất bằng hơi nước trực tiếp. Với phương pháp (1) và (2), thời gian chưng cất kéo dài nên tiêu tốn năng lượng, chất lượng tinh dầu không ổn định, năng suất thấp, thường áp dụng quy mô vừa và nhỏ. Phương pháp (3) mặc dù vốn đầu tư ban đầu cao nhưng khắc phục được các nhược điểm của phương pháp (1) và (2), đáp ứng yêu cầu sản xuất tinh dầu quy mô công nghiệp [4].

Hiện nay, trên thế giới chủ yếu sử dụng phương pháp chưng cất bằng hơi nước trực tiếp để chiết tách tinh dầu sả, quá trình chưng cất tiến hành ở nhiệt độ, áp suất cao nên rút ngắn được thời gian chưng cất. Tùy vào từng loại nguyên

liệu và thành phần cấu tử tinh dầu có trong nguyên liệu để điều chỉnh thông số nhiệt độ, áp suất và thời gian chưng cất đáp ứng yêu cầu sản phẩm [5, 6].

Ở Việt Nam, đã có nhiều công trình nghiên cứu về chưng cất tinh dầu từ lá sả bằng hơi nước trực tiếp, tuy nhiên các nghiên cứu tập trung vào xác định ảnh hưởng của nhiệt độ (áp suất tuyến tính theo nhiệt độ) và thời gian chưng cất tới hiệu suất thu hồi tinh dầu, với mục đích chính là giảm thời gian chưng cất mà chưa quan tâm tới thành phần các cấu tử trong tinh dầu sả thu được. Trong tinh dầu sả chứa không dưới 20 cấu tử tinh dầu, trong đó 3 cấu tử quan trọng nhất được quy định về hàm lượng có trong tinh dầu sả cho xuất khẩu là: citronellal 31-40%, geraniol 20-25% và citronellol 8,5-14% (TCVN 11426:2016, tương đương với ISO 3848:2016 - áp dụng cho tinh dầu sả Java) [7]. Với tinh dầu sả Java hiện nay của Việt Nam, hàm lượng citronellal và citronellol đều nằm trong tiêu chuẩn, riêng hàm lượng geraniol thường nhỏ hơn 20% (thấp hơn so với tiêu chuẩn) nên chất lượng không cao.

Cây sả hương Tây Giang mới được phát hiện trong những năm gần đây tại huyện Tây Giang, tỉnh Quảng Nam (người dân địa phương gọi là sả hương Tây Giang). Sả hương Tây Giang là giống sả rất phù hợp với điều kiện thổ nhưỡng và khí hậu của huyện Tây Giang, cây phát triển tốt có chiều cao 1,5-2 m, lá to hơn lá sả thường. Lá sả hương Tây Giang

\*Tác giả liên hệ: Email: bicthaoensh@gmail.com

# Optimisation of distillation process parameters for extraction of Tay Giang citronella essential oil by direct steam distillation method

Thi Bich Thao Ma\*, Phuong Nguyen, Ha Tran,  
Thi Hong Nguyen, Van Lieu Vu

Nacentech Technology and Business Incubator Center,  
National Center for Technological Progress

Received 1 July 2022; accepted 25 July 2022

## Abstract:

In Vietnam, there were several research on essential oil extraction from citronella leaves by direct steam distillation. However, most studies focused on the effects of temperature, pressure, and distillation time on essential oil yield, mainly aiming to reduce distillation time with little attention to the chemical composition of the citronella oil obtained. Meanwhile, citronella essential oil contains no fewer than 20 constituents with the 3 most important constituents being citronellal, geraniol, and citronellol. The Vietnamese National Standard 11426:2016 (equal to ISO 3848:2016) regulates the chemical content of Java citronella essential oil for export as citronellal 31-40%, geraniol 20-25%, and citronellol 8.5-14%. The current Java citronella oil often has a citronellol content below 20%, thus failing to meet the standard in ISO 3848:2016. The aims of this research were to optimise the distillation process parameters, including temperature, pressure, and distillation time for extraction of citronella essential oil from Tay Giang citronella by direct steam distillation method in order to maximise yield and maintain geraniol content above 20%. The research results have determined the following optimal technical parameters for the extraction of Tay Giang citronella essential oil: temperature  $116 \pm 1^\circ\text{C}$ , pressure  $1.2 \pm 0.05 \text{ atm}$ , and distillation time  $126 \pm 1 \text{ min}$  to obtain an essential oil yield of 0.94% with a geraniol content of 20.17%. These results can be used to identify the technology for industrial-scale production of Tay Giang citronella essential oil for export purposes.

**Keywords:** citronella essential oil, distillation of essential oil, distillation process optimisation, geraniol, Tay Giang citronella.

**Classification number:** 2.8

tích tụ hàm lượng tinh dầu cao, có mùi thơm ngọt dịu rất đặc trưng, do vậy rất cần được nghiên cứu để chiết tách tinh dầu phục vụ thị trường trong nước và xuất khẩu.

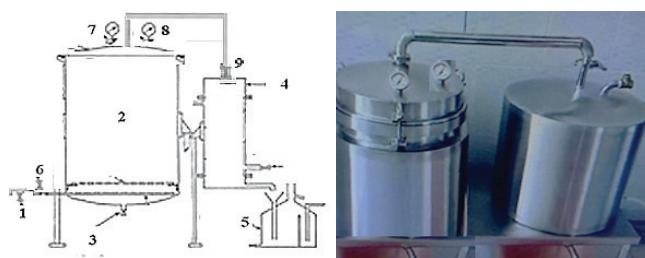
Mục đích của nghiên cứu này là tối ưu hóa các thông số: nhiệt độ, áp suất và thời gian chưng cất tinh dầu từ lá sả hương Tây Giang bằng phương pháp chưng cất lôi cuốn theo hơi nước trực tiếp đạt hàm mục tiêu: hàm lượng tinh dầu thu được lớn nhất và geraniol không nhỏ hơn 20%. Nội dung của nghiên cứu bao gồm: 1) Xác định các yếu tố ảnh hưởng tới quá trình chưng cất; 2) Xây dựng mô hình toán học theo Box-Behnken; 3) Tối ưu hóa các thông số kỹ thuật: nhiệt độ, áp suất, thời gian thích hợp cho chưng cất tinh dầu sả hương Tây Giang; 4) Thực nghiệm kiểm tra lại kết quả tối ưu hóa.

## Đối tượng và phương pháp nghiên cứu

### Đối tượng

Đối tượng nghiên cứu là lá sả hương Tây Giang được lấy tại xã Tr' Hy, huyện Tây Giang, Quảng Nam, thu hoạch từ tháng 8-9/2021, mẫu được lấy ngẫu nhiên loại bỏ các lá khô, bị hỏng, sau đó đóng túi PE, sử dụng cho thí nghiệm không quá 7 ngày.

Thiết bị sử dụng cho thí nghiệm là hệ thống chưng cất tinh dầu theo phương pháp chưng cất lôi cuốn bằng hơi nước trực tiếp dạng pilot dung tích 100 l, 50 kg lá sả/lần thí nghiệm (hình 1). Nồi chưng cất được chế tạo trong nước, vật liệu chế tạo là inox 304 dày 3 mm, chịu được áp lực 3 kg/cm<sup>2</sup>, nhiệt cung cấp là hơi quá nhiệt cung cấp từ nồi hơi bên ngoài 100 kg/h, khí nén được cung cấp bởi máy nén khí.



Hình 1. Hệ thống chưng cất tinh dầu theo phương pháp chưng cất lôi cuốn bằng hơi nước trực tiếp.

Nguyên lý hoạt động là lá sả đưa vào nồi chưng cất (2), sau đó đóng nắp siết đai ốc. Hơi nước bão hòa được cấp vào nồi chưng cất từ đầu cấp hơi (1) và nhiệt độ được kiểm soát nhờ đồng hồ đo nhiệt độ (7), áp suất được kiểm soát nhờ đồng hồ đo áp suất (8). Áp suất trong nồi chưng cất được cân chỉnh nhờ van khí nén (6) và van xả hơi (9). Hơi nước có chứa tinh dầu sả được ngưng tụ trong bình ngưng (4) và sau đó tinh dầu sả được tách ra qua bộ thu tinh dầu (5). Khi kết thúc quá trình chưng cất, đóng van cấp hơi (1), mở van khí nén (6) để loại hết hơi nước có chứa tinh dầu sả trong nồi chưng cất sang bình ngưng giúp giảm tổn thất thu hồi tinh dầu, đồng thời giúp làm nguội lá sả sau chưng cất giúp

thuận tiện cho vận hành mẻ sau. Van xả đáy (3) được mở khi kết thúc quá trình chưng cất.

Từ nguyên lý hoạt động của hệ thống chưng cất tinh dầu bằng hơi nước trực tiếp cho thấy, ngoài yếu tố nguyên liệu là lá sả thì quá trình chưng cất thu tinh dầu sả được thực hiện trong nồi chưng cất (2) phụ thuộc vào 3 yếu tố: nhiệt độ, áp suất và thời gian chưng cất. Với hệ thống chưng cất bằng hơi nước trực tiếp thông thường thì nhiệt độ và áp suất là tuyến tính (ở mỗi nhiệt độ tương ứng với một giá trị của áp suất). Nhưng việc sử dụng khí nén đưa vào nồi chưng cất để điều chỉnh áp suất thì tuyến tính giữa nhiệt độ và áp suất bị phá vỡ.

#### Phương pháp xác định độ ẩm của lá sả [8].

Xác định độ ẩm của lá sả theo phương pháp dùng dung môi (Dược điển Việt Nam IV, phụ lục 12,13, trang PL-240). Độ ẩm (X%) của lá sả được tính theo công thức sau:

$$X\% = \frac{m_1 - m_2}{p} \times 100$$

trong đó:  $m_1$ : khối lượng nước cất được sau lần cất 1 (g);  $m_2$ : khối lượng nước cất được sau lần cất 2 (g); p: khối lượng mẫu (g).

#### Phương pháp xác định hàm lượng tinh dầu trong lá sả [9].

Xác định hàm lượng tinh dầu trong lá sả bằng phương pháp chưng cất lôi cuốn theo hơi nước trực tiếp (Dược điển Việt Nam III, phụ lục 9, trang PL-141). Sử dụng phương pháp chưng cất lôi cuốn theo hơi nước trực tiếp thu hồi tinh dầu từ lá sả. Tinh dầu được tách và loại sạch nước bằng muối  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  khan. Hàm lượng tinh dầu thu hồi được tính theo công thức:

$$Y\% = \frac{m_{\text{eo}}}{m(1-X)} \times 100$$

trong đó:  $m_{\text{eo}}$ : khối lượng tinh dầu sả thu được (g); m: khối lượng lá sả (g); X: độ ẩm của lá sả (%).

#### Phương pháp xác định hàm lượng geraniol có trong tinh dầu sả [10].

Hàm lượng geraniol có trong tinh dầu sả được xác định bằng phương pháp sắc ký khí nối ghép khối phổ GC/MS. Sử dụng cột mao quản HP5-MS (60 m x 0,25 mm x 0,25  $\mu\text{m}$ ), khí mang: He. Inlet: 250°C, chương trình nhiệt độ (60-240°C, tăng 4°C/phút), năng lượng ion hóa 70 eV, quét mảnh từ 35-450 m/z. Điều kiện sắc ký khí nối ghép detector ion hóa ngọn lửa (GC-FID): cột mao quản HP5-MS (60 m x 0,25 mm x 0,25  $\mu\text{m}$ ), khí mang: He. Inlet: 250°C, chương trình nhiệt độ (60-240°C, tăng 40/phút), khí make up  $\text{N}_2$ , khí đốt  $\text{O}_2$  và  $\text{H}_2$ . Thư viện phổ HPCH1607, W09N08, NIST chemistry WebBook. Hàm lượng geraniol (%) trong tinh dầu sả là phần trăm diện tích pic của geraniol so với tổng diện tích các chất bay hơi của tinh dầu sả.

#### Phương pháp toán học [11, 12].

Phương pháp thực nghiệm đơn yếu tố: các yếu tố ảnh hưởng tới quá trình chưng cất tinh dầu sả được xác định gồm: nhiệt độ, áp suất và thời gian. Các thông số được khảo sát theo phương pháp luân phiên từng biến. Yếu tố nghiên cứu sau khi đã chọn được giá trị thích hợp sẽ được giữ cố định trong các thí nghiệm khảo sát các yếu tố khác tiếp theo. Từ đó xác định điểm tối ưu (trung tâm) và miền biến thiên (cận dưới và cận trên) của các yếu tố ảnh hưởng đến quá trình chưng cất (bảng 1).

**Bảng 1. Các thông số được khảo sát theo phương pháp luân phiên từng biến.**

| Yếu tố ảnh hưởng    | Miền biến thiên                            |
|---------------------|--------------------------------------------|
| A: nhiệt độ (°C)    | 95, 100, 105, 110, 115, 120, 125, 130, 135 |
| B: áp suất (atm)    | 0,9, 1, 1,1, 1,2, 1,3, 1,4, 1,5            |
| C: thời gian (phút) | 90, 100, 110, 120, 130, 140, 150           |

Phương pháp quy hoạch thực nghiệm, xây dựng ma trận thực nghiệm bậc 2 Box-Behnken.

Các yếu tố ảnh hưởng: A: nhiệt độ chưng cất; B: áp suất chưng cất và C: thời gian chưng cất.

Các chỉ tiêu tối ưu:  $Y_1$ : hàm lượng tinh dầu (%) đạt max và  $Y_2$ : hàm lượng geraniol  $\geq 20\%$ .

Tối ưu hóa các thông số sử dụng phần mềm “Design-Expert 7.1”.

#### Kết quả và bàn luận

##### Xác định các yếu tố ảnh hưởng tới quá trình chưng cất tinh dầu sả hương Tây Giang

**Nhiệt độ chưng cất:** Kết quả khảo sát ảnh hưởng của nhiệt độ chưng cất đến hàm lượng tinh dầu và geraniol thu được (cố định áp suất 1,2 atm và thời gian 120 phút) được thể hiện ở bảng 2.

**Bảng 2. Kết quả khảo sát ảnh hưởng của nhiệt độ chưng cất đến hàm lượng tinh dầu và geraniol thu được.**

| Mẫu       | Nhiệt độ (°C) | Hàm lượng tinh dầu (%) | Hàm lượng geraniol (%) |
|-----------|---------------|------------------------|------------------------|
| A1        | 95            | 0,79                   | 17,81                  |
| A2        | 100           | 0,86                   | 19,26                  |
| A3        | 105           | 0,9                    | 19,52                  |
| A4        | 110           | 0,91                   | 19,77                  |
| A5        | 115           | 0,93                   | 20,19                  |
| A6        | 120           | 0,93                   | 20,2                   |
| A7        | 125           | 0,93                   | 20,2                   |
| A8        | 130           | 0,94                   | 20,23                  |
| A9        | 135           | 0,94                   | 20,23                  |
| $\bar{A}$ | 0,903         | 115                    | 19,712                 |
| $\delta$  | 0,002         | 187,5                  | 0,637                  |
| SD        | 0,049         | 13,693                 | 0,798                  |

Kết quả bảng 2 cho thấy, hàm lượng tinh dầu tăng dần khi tăng nhiệt độ chưng cất và đạt giá trị cao nhất 0,94%. Ở nhiệt độ 95°C, hàm lượng tinh dầu thu được thấp (0,79%). Nhiệt độ 100-115°C, hàm lượng tinh dầu tăng đáng kể, từ 0,86 đến 0,93% (tăng 0,07%), nhưng khi nhiệt độ tăng từ 115 đến 130°C, hàm lượng tinh dầu chỉ tăng 0,01% và không thay đổi khi tăng nhiệt độ lên 135°C. Hàm lượng geraniol tăng mạnh khi nhiệt độ tăng từ 100 đến 130°C. Ở nhiệt độ 95°C, hàm lượng geraniol thu được thấp (17,81%), còn ở nhiệt độ 135°C, hàm lượng geraniol không tăng so với ở nhiệt độ 130°C. Có thể thấy, nhiệt độ chưng cất tinh dầu tối ưu là 115-120°C. Lựa chọn điểm trung tâm: 115°C; miền biến thiên 100-130°C.

**Áp suất chưng cất:** Kết quả khảo sát ảnh hưởng của áp suất chưng cất đến hàm lượng tinh dầu và geraniol thu được (cố định nhiệt độ 115°C và thời gian 120 phút) được thể hiện trong bảng 3.

**Bảng 3. Kết quả khảo sát ảnh hưởng của áp suất chưng cất đến hàm lượng tinh dầu và geraniol thu được.**

| Mẫu       | Áp suất (atm) | Hàm lượng tinh dầu (%) | Hàm lượng geraniol (%) |
|-----------|---------------|------------------------|------------------------|
| B1        | 0,9           | 0,81                   | 18,76                  |
| B2        | 1             | 0,89                   | 19,71                  |
| B3        | 1,1           | 0,91                   | 19,75                  |
| B4        | 1,2           | 0,93                   | 20,19                  |
| B5        | 1,3           | 0,93                   | 20,21                  |
| B6        | 1,4           | 0,94                   | 20,23                  |
| B7        | 1,5           | 0,94                   | 20,23                  |
| $\bar{B}$ | 0,907         | 1,2                    | 19,868                 |
| $\delta$  | 0,002         | 0,046                  | 0,291                  |
| SD        | 0,046         | 0,216                  | 0,539                  |

Kết quả bảng 3 cho thấy, hàm lượng tinh dầu thu nhận tăng khi tăng áp suất và đạt cao nhất là 0,94%. Hàm lượng tinh dầu tăng nhanh khi tăng áp suất tăng từ 1 đến 1,2 atm (tăng 0,04%). Hàm lượng tinh dầu cao nhất là 0,94% ở áp suất 1,4 atm. Sau đó, hàm lượng tinh dầu thu nhận không thay đổi mặc dù tăng áp suất lên 1,5 atm. Hàm lượng geraniol tăng khi áp suất tăng từ 1 đến 1,4 atm. Ở áp suất 0,9 atm, hàm lượng geraniol thu được thấp (18,76%), còn ở áp suất 1,5 atm, hàm lượng geraniol không tăng so với ở áp suất 1,4 atm. Khi tăng áp suất, giúp quá trình phá vỡ cấu trúc túi tinh dầu trong tế bào, làm tinh dầu dễ dàng thoát ra bên ngoài. Như vậy, áp suất chưng cất tinh dầu tối ưu là 1,2 atm. Lựa chọn điểm trung tâm: 1,2 atm; miền biến thiên 1-1,4 atm.

**Thời gian chưng cất:** Kết quả khảo sát ảnh hưởng của thời gian chưng cất đến hàm lượng tinh dầu và geraniol thu được (cố định nhiệt độ 115°C và áp suất 1,2 atm) được thể hiện ở bảng 4.

**Bảng 4. Kết quả khảo sát ảnh hưởng của thời gian chưng cất đến hàm lượng tinh dầu và geraniol thu được.**

| Mẫu       | Thời gian (phút) | Hàm lượng tinh dầu (%) | Hàm lượng geraniol (%) |
|-----------|------------------|------------------------|------------------------|
| C1        | 90               | 0,81                   | 17,32                  |
| C2        | 100              | 0,9                    | 19,95                  |
| C3        | 110              | 0,92                   | 20,18                  |
| C4        | 120              | 0,93                   | 20,23                  |
| C5        | 130              | 0,93                   | 20,23                  |
| C6        | 140              | 0,94                   | 19,91                  |
| C7        | 150              | 0,94                   | 19,91                  |
| $\bar{C}$ | 0,91             | 120                    | 19,675                 |
| $\delta$  | 0,002            | 466,666                | 1,100                  |
| SD        | 0,046            | 21,602                 | 1,049                  |

Kết quả bảng 4 cho thấy, ở thời gian chưng cất là 90 phút, hàm lượng tinh dầu và geraniol thu được thấp. Khi tăng thời gian chưng cất từ 100 đến 140 phút, hàm lượng tinh dầu tăng lên rõ rệt và đạt giá trị (0,93%) ở thời gian 120-130 phút, sau đó hàm lượng tinh dầu tăng hầu như không đáng kể (0,94%) ở thời gian 140 phút và không thay đổi ở 150 phút. Hàm lượng geraniol thay đổi không đáng kể ở trong thời gian chưng cất 100-140 phút, dao động trong khoảng 19,95-20,23%. Như vậy, thời gian chưng cất ít ảnh hưởng tới hàm lượng geraniol. Thời gian chưng cất tối ưu là 120 phút. Lựa chọn điểm trung tâm: 120 phút; miền biến thiên 100-140 phút.

#### Xây dựng mô hình toán học theo Box-Behnken

Nhân tố và các mức độ bố trí theo mô hình Box-Behnken được thể hiện ở bảng 5.

**Bảng 5. Nhân tố và các mức độ bố trí theo mô hình Box-Behnken.**

| Nhân tố (biến)  | Mức độ các biến được mã hóa |     |     |     |
|-----------------|-----------------------------|-----|-----|-----|
|                 | Ký hiệu                     | -1  | 0   | +1  |
| Nhiệt độ (°C)   | A                           | 100 | 115 | 130 |
| Áp suất (atm)   | B                           | 1   | 1,2 | 1,4 |
| Thời gian (min) | C                           | 100 | 120 | 140 |

Kết quả thực nghiệm quá trình chưng cất tinh dầu sả theo quy hoạch thực nghiệm bậc 2 Box-Behnken với 3 yếu tố. Tiến hành xây dựng hàm hồi quy bậc 2 cho hàm mục tiêu như sau:

$$Y_i = b_0 + b_1A + b_2B + b_3C + b_{12}AB + b_{13}AC + b_{23}BC + b_{11}A^2 + b_{22}B^2 + b_{33}C^2$$

trong đó:  $b_0, b_1, b_2, b_3, b_{11}, b_{12}, b_{13}, b_{22}, b_{23}, b_{33}$ : các hệ số hồi quy; A, B, C: yếu tố thí nghiệm cân tối ưu;  $Y_i$ : là hàm mục tiêu.

Kết quả xây dựng ma trận thực nghiệm tối ưu hoá theo Box-Behnken được thể hiện ở bảng 6.

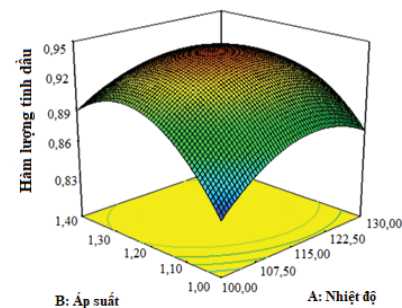
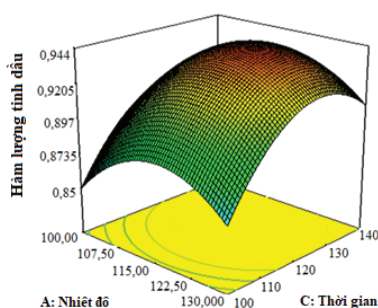
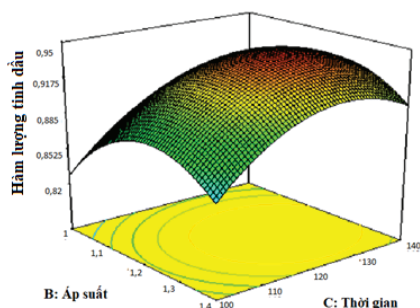
**Bảng 6. Ma trận thực nghiệm tối ưu hoá theo Box-Behnken.**

| TT | A: nhiệt độ (°C) | B: áp suất (atm) | C: thời gian (min) | Y <sub>1</sub> : hàm lượng tinh dầu (%) | Y <sub>2</sub> : geraniol (%) |
|----|------------------|------------------|--------------------|-----------------------------------------|-------------------------------|
| 1  | 100              | 1                | 120                | 0,84                                    | 17,54                         |
| 2  | 130              | 1                | 120                | 0,87                                    | 19,05                         |
| 3  | 100              | 1,4              | 120                | 0,89                                    | 17,53                         |
| 4  | 130              | 1,4              | 120                | 0,88                                    | 19,12                         |
| 5  | 100              | 1,2              | 100                | 0,85                                    | 17,73                         |
| 6  | 130              | 1,2              | 100                | 0,86                                    | 19,26                         |
| 7  | 100              | 1,2              | 140                | 0,89                                    | 17,88                         |
| 8  | 130              | 1,2              | 140                | 0,91                                    | 19,44                         |
| 9  | 115              | 1                | 100                | 0,83                                    | 19,71                         |
| 10 | 115              | 1,4              | 100                | 0,86                                    | 19,81                         |
| 11 | 115              | 1                | 140                | 0,87                                    | 19,93                         |
| 12 | 115              | 1,4              | 140                | 0,9                                     | 19,91                         |
| 13 | 115              | 1,2              | 120                | 0,94                                    | 20,21                         |
| 14 | 115              | 1,2              | 120                | 0,93                                    | 20,19                         |
| 15 | 115              | 1,2              | 120                | 0,95                                    | 20,23                         |

### Mô hình hàm lượng tinh dầu

Kiểm tra sự có ý nghĩa của mô hình và các hệ số được tiến hành bằng phân tích hồi quy (bảng 7). Chuẩn F=71,69 cho thấy mô hình hoàn toàn có ý nghĩa thống kê với độ tin cậy 99,99% ( $p < 0,0001$ ). Các giá trị  $p < 0,05$  cho biết các hệ số hồi quy có nghĩa và được giữ lại trong mô hình để tiến hành tối ưu hóa. Chuẩn F cho “sự không tương thích” của mô hình là 0,1 ( $p = 0,9821$ ) cho thấy mô hình hoàn toàn tương thích với thực nghiệm. Hệ số  $R^2 = 0,9601$  cho thấy, mô hình mô tả đến 96,01% sự thay đổi của hàm mục tiêu phụ thuộc vào các biến ảnh hưởng. Như vậy, hàm lượng tinh dầu được biểu diễn bằng mô hình bậc 2 như sau:

$$Y_1 = 0,94 + 6,25E-03A + 0,015B + 0,021C - 1,00E - 02AB - 0,029A^2 - 0,041B^2 - 0,034C^2$$

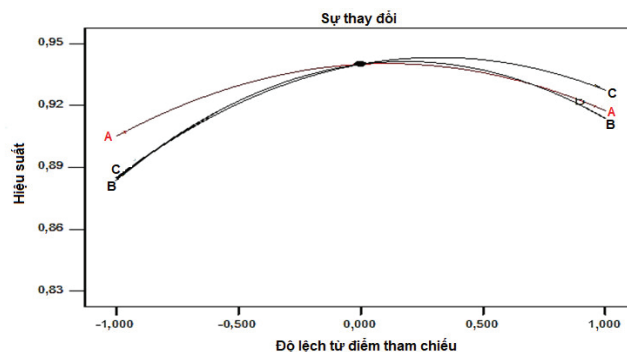


**Hình 3. Bề mặt đáp ứng của hàm lượng tinh dầu.**

**Bảng 7. Kết quả phân tích hồi quy hàm lượng tinh dầu.**

| Source      | Sum of squares | df | Mean of square | F value | p-value (prob>F) | Ghi chú         |
|-------------|----------------|----|----------------|---------|------------------|-----------------|
| Model       | 0,018          | 7  | 2,56E-03       | 71,69   | <0,0001          | significant     |
| A-Nhiệt độ  | 3,13E-04       | 1  | 3,13E-04       | 8,75    | 0,0212           |                 |
| B-Ap suất   | 1,80E-03       | 1  | 1,80E-03       | 50,4    | 0,0002           |                 |
| C-Thoigian  | 3,61E-03       | 1  | 3,61E-03       | 101,15  | <0,0001          |                 |
| AB          | 4,00E-04       | 1  | 4,00E-04       | 11,2    | 0,0123           |                 |
| A^2         | 3,05E-03       | 1  | 3,05E-03       | 85,45   | <0,0001          |                 |
| B^2         | 6,28E-03       | 1  | 6,28E-03       | 175,92  | <0,0001          |                 |
| C^2         | 4,21E-03       | 1  | 4,21E-03       | 117,76  | <0,0001          |                 |
| Residual    | 2,50E-04       | 7  | 3,57E-05       |         |                  |                 |
| Lack of fit | 5,00E-05       | 5  | 1,00E-05       | 0,1     | 0,9821           | not significant |
| Pure error  | 2,00E-04       | 2  | 1,00E-04       |         |                  |                 |
| Cor total   | 0,018          | 14 |                |         |                  |                 |

Xét ảnh hưởng của từng yếu tố (khi các yếu tố khác giữ ở mức trung tâm) (hình 2) đến hàm lượng tinh dầu nhận thấy: Hàm lượng tinh dầu chịu ảnh hưởng mạnh nhất bởi nhiệt độ (A), áp suất (B) và thời gian (C), khi các chỉ số này tăng thì hàm lượng tinh dầu tăng mạnh đến giới hạn. Kết quả được thể hiện ở hình 2 và 3.



**Hình 2. Ảnh hưởng của các yếu tố đến hàm lượng tinh dầu.**

### Mô hình hàm lượng geraniol

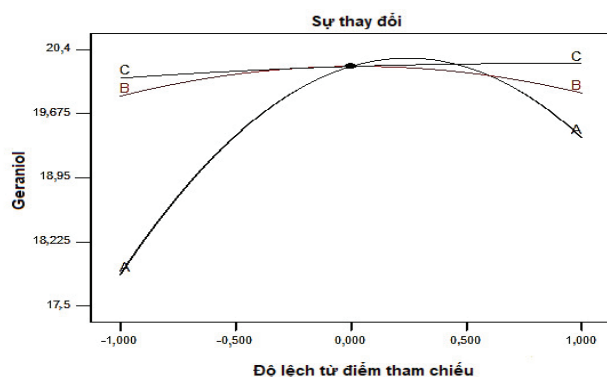
Kiểm tra sự có nghĩa của mô hình và các hệ số được tiến hành bằng phân tích hồi quy (bảng 8). Chuẩn F=9717,95 cho thấy mô hình hoàn toàn có ý nghĩa thống kê với độ tin cậy 99,99% ( $p < 0,0001$ ). Các giá trị  $p < 0,05$  cho biết các hệ số hồi quy có nghĩa và được giữ lại trong mô hình để tiến hành tối ưu hóa. Chuẩn F cho “sự không tương thích” của mô hình là 0,19 ( $p = 0,9256$ ) cho thấy mô hình hoàn toàn tương thích với thực nghiệm. Hệ số  $R^2 = 0,9997$  cho thấy mô hình mô tả đến 99,97% sự thay đổi của hàm mục tiêu phụ thuộc vào các biến ảnh hưởng. Như vậy, hàm lượng geraniol được biểu diễn bằng mô hình bậc 2 như sau:

$$Y_2 = 20,21 + 0,77A + 0,017B + 0,081C + 0,02AB - 0,03BC - 1,58A^2 - 0,32B^2 - 0,051C^2$$

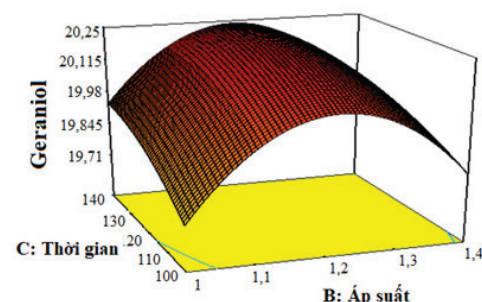
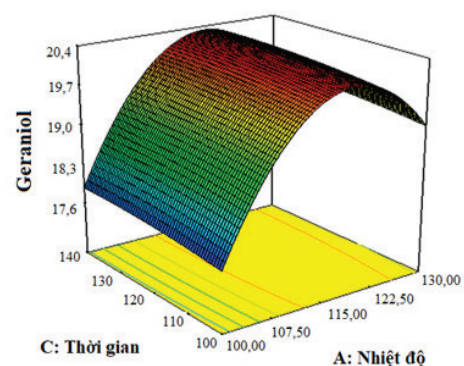
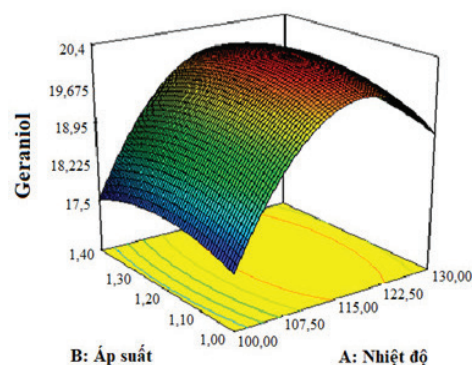
**Bảng 8.** Kết quả phân tích hồi quy hàm lượng geraniol.

| Source         | Sum of squares | df | Mean of square | F value  | p-value (prob>F) | Ghi chú         |
|----------------|----------------|----|----------------|----------|------------------|-----------------|
| Model          | 14,25          | 8  | 1,78           | 9717,95  | <0,0001          | significant     |
| A-Nhiệt độ     | 4,79           | 1  | 4,79           | 26124,61 | <0,0001          |                 |
| B-Áp suất      | 2,45E-03       | 1  | 2,45E-03       | 13,36    | 0,0106           |                 |
| C-Thời gian    | 0,053          | 1  | 0,053          | 288,07   | <0,0001          |                 |
| AB             | 1,60E-03       | 1  | 1,60E-03       | 8,73     | 0,0255           |                 |
| BC             | 3,60E-03       | 1  | 3,60E-03       | 19,64    | 0,0044           |                 |
| A <sup>2</sup> | 9,23           | 1  | 9,23           | 50356,73 | <0,0001          |                 |
| B <sup>2</sup> | 0,38           | 1  | 0,38           | 2046,24  | <0,0001          |                 |
| C <sup>2</sup> | 9,70E-03       | 1  | 9,70E-03       | 52,9     | 0,0003           |                 |
| Residual       | 1,10E-03       | 6  | 1,83E-04       |          |                  |                 |
| Lack of fit    | 3,00E-04       | 4  | 7,50E-05       | 0,19     | 0,9256           | not significant |
| Pure error     | 8,00E-04       | 2  | 4,00E-04       |          |                  |                 |
| Cor total      | 14,25          | 14 |                |          |                  |                 |

Xét ảnh hưởng của từng yếu tố (khi các yếu tố khác giữ ở mức trung tâm) (hình 4) đến hàm lượng geraniol cho thấy: Hàm lượng geraniol chịu ảnh hưởng mạnh nhất bởi nhiệt độ (A), áp suất (B), thời gian (C), khi các chỉ số này tăng thì hàm lượng geraniol tăng mạnh đến giới hạn. Khi nhiệt độ, áp suất, thời gian tiếp tục tăng, hàm lượng geraniol giảm. Kết quả được thể hiện ở hình 4 và 5.



**Hình 4.** Ảnh hưởng của các yếu tố đến hàm lượng geraniol.

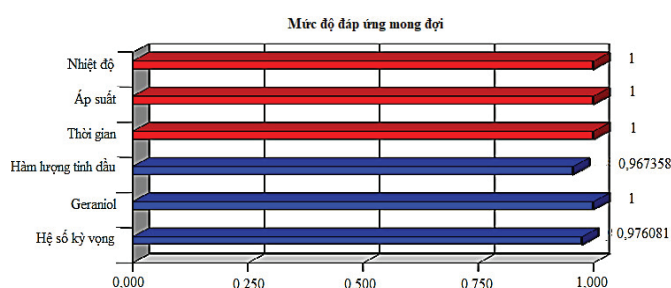


**Hình 5.** Bề mặt đáp ứng của hàm lượng geraniol.

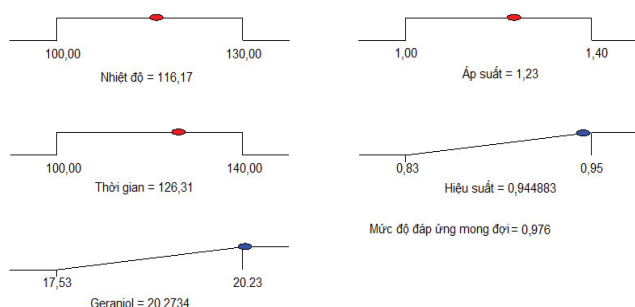
**Tối ưu hóa các thông số kỹ thuật (nhiệt độ, áp suất, thời gian) thích hợp cho chưng cất tinh dầu sả hương Tây Giang**

Quá trình thu hồi tinh dầu được tiến hành sao cho thu được hàm lượng tinh dầu lớn nhất và geraniol không nhỏ hơn 20%. Tiến hành giải bài toán tối ưu bằng cách chấp mục tiêu theo thuật toán “hàm mong đợi” được đưa ra bởi Derringer và Suich. Kết quả tối ưu hóa bằng phần mềm Design-Expert 7.1 được thể hiện ở hình 6 và 7.

Kết quả hình 6 cho thấy, khi các yếu tố như: nhiệt độ, áp suất và thời gian đạt được 100% thì khả năng đạt được hàm mục tiêu: hàm lượng tinh dầu 96,7% và geraniol 100%. Hàm mong đợi đạt được 97,6% là khá cao, như vậy đã đạt được mục tiêu đặt ra.



Hình 6. Mức độ đáp ứng sự mong đợi của các thông số công nghệ và các hàm mục tiêu.



Hình 7. Kết quả tối ưu hóa của mô hình.

Kết quả hình 7 cho thấy, quá trình chưng cất tinh dầu được tiến hành ở nhiệt độ 116,17°C, áp suất 1,23 atm thời gian 126,31 phút, hàm lượng tinh dầu đạt được là 0,945%, hàm lượng geraniol đạt 20,27% với mức độ đáp ứng sự mong đợi là 97,60%.

#### Thực nghiệm kiểm tra lại kết quả tối ưu hóa

Thực nghiệm được lặp lại 3 lần với thông số tối ưu, điều chỉnh thông số nhiệt độ, áp suất và thời gian phù hợp với thực tế. Các giá trị thu được cho thấy kết quả thực nghiệm (bảng 9) gần với giá trị chạy mô hình tối ưu hóa.

Bảng 9. Kết quả thực nghiệm chưng cất tinh dầu sả ở điều kiện tối ưu.

| Số TN                               | Nhiệt độ (°C) | Áp suất (atm) | Thời gian (phút) | Hàm lượng tinh dầu (%) | Hàm lượng geraniol (%) |
|-------------------------------------|---------------|---------------|------------------|------------------------|------------------------|
| 1                                   | 116±1         | 1,2±0,05      | 126±1            | 0,93                   | 20,10                  |
| 2                                   | 116±1         | 1,2±0,05      | 126±1            | 0,93                   | 20,19                  |
| 3                                   | 116±1         | 1,2±0,05      | 126±1            | 0,95                   | 20,23                  |
| Giá trị thực nghiệm trung bình      |               |               |                  | 0,94±0,0001            | 20,17±0,0044           |
| Giá trị dự báo theo bài toán tối ưu |               |               |                  | 0,945                  | 20,27                  |

Kết quả thu được từ thực nghiệm: hàm lượng tinh dầu 0,94% và geraniol 20,17%. Giá trị dự báo theo bài toán tối ưu: hàm lượng tinh dầu 0,945% và geraniol 20,07% gần tương đương nhau, như vậy mô hình thực nghiệm phù hợp với thực tế.

#### Kết luận

Nghiên cứu đã xác định miền biến thiên của 3 yếu tố ảnh hưởng tới quá trình chưng cất tinh dầu sả hương Tây Giang là nhiệt độ, áp suất, thời gian và đã xây dựng mô hình toán học

cho bài toán tối ưu với 3 yếu tố: nhiệt độ, áp suất, thời gian cũng như xác định được 2 hàm mục tiêu: hàm lượng tinh dầu cao nhất và geraniol không nhỏ hơn 20% cho chưng cất tinh dầu bằng phương pháp chưng lôi cuốn theo hơi nước trực tiếp từ lá cây sả hương Tây Giang. Từ kết quả nghiên cứu đã xây dựng được ma trận thực nghiệm tối ưu hoá theo Box-Behnken.

Đã tối ưu hóa các thông số kỹ thuật thích hợp cho chưng cất tinh dầu sả hương Tây Giang, kết quả thực nghiệm phù hợp với bài toán tối ưu cho thấy mô hình thực nghiệm phù hợp với thực tế, qua đó đã xác định các thông số kỹ thuật tối ưu cho chưng cất tinh dầu sả hương Tây Giang: nhiệt độ 116±1°C, áp suất 1,2±0,05 atm, thời gian 126±1 phút để đạt hàm lượng tinh dầu 0,94% và geraniol 20,17%.

Trong quá trình nghiên cứu còn có những hạn chế như: Thiết bị chưng cất bằng hơi nước chế tạo trong nước quy mô nhỏ, chưa tự động hóa được các thông số nhiệt độ, áp suất dẫn đến có sự sai lệch các lần thí nghiệm. Kết quả nghiên cứu này cung cấp cơ sở khoa học về hàm lượng tinh dầu và geraniol trong lá cây sả hương Tây Giang, các thông số kỹ thuật cho việc tách và thu nhận tinh dầu bằng phương pháp lôi cuốn hơi nước trực tiếp giúp doanh nghiệp có thêm dữ liệu trong việc khai thác, sản xuất tinh dầu sả từ cây sả hương Tây Giang.

#### LỜI CẢM ƠN

Nghiên cứu được thực hiện từ tài trợ của Bộ Khoa học và Công nghệ thông qua đề tài mã số: ĐTĐL.CN-2020. Nhóm tác giả xin trân trọng cảm ơn.

#### TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] Mona El Shazly, et al. (2017), "Effect of planting density and biofertilization on growth and productivity of *Cymbopogon citratus* (DC.) Stapf. (Lemongrass) plant under Siwa Oasis conditions", *Journal of Medicinal Plants Studies*, **5**(2), pp.195-203.
- [2] Lê Đình Mối và cs (2001), *Tài nguyên thực vật có tinh dầu ở Việt Nam*, 443tr, Nhà xuất bản Nông nghiệp.
- [3] Nguyễn Năng Vinh, Nguyễn Thị Minh Tú (2009), *Công nghệ chất thơm thiên nhiên*, 113tr, Nhà xuất bản Bách khoa Hà Nội.
- [4] Đỗ Tất Lợi (1962), *Các phương pháp tinh chế tinh dầu*, 81tr, Nhà xuất bản Khoa học và Kỹ thuật.
- [5] T.A. Hegazy, et al. (2013), "Effect of biofertilizers and/or urea on growth, yield, essential oil and chemical compositions of *Cymbopogon citratus* plants", *Journal of Applied Sciences Research*, **9**(1), pp.309-320.
- [6] K. Nakahara, et al. (2003), "Chemical composition and antifungal activity of essential oil from *Cymbopogon nardus* (Citronella Grass)", *Janpan Agricultural Research Quarterly*, **37**(4), pp.249-252.
- [7] Tiêu chuẩn Quốc gia (tinh dầu sả Java) TCVN 11426:2016 (ISO 3848:2016).
- [8] Bộ Y tế (2017), *Dược điển Việt Nam IV, tập II*, Nhà xuất bản Y học.
- [9] Bộ Y tế (2017), *Dược điển Việt Nam III, tập II*, Nhà xuất bản Y học.
- [10] R.P. Adams (2017), *Identification of Essential Oil Components by Gas Chromatography/Mas Spectrometry*, Allured Publishing Corporation.
- [11] Nguyễn Minh Tuyên (2005), *Quy hoạch thực nghiệm*, 227tr, Nhà xuất bản Khoa học và Kỹ thuật.
- [12] G. Derringer, R. Suich (1980), "Simultaneous optimization of several responses variables", *Journal of Quality Technology*, **12**(4), pp.214-219.