



贾学伟,代玉祥,何峰,等.薄荷颗粒香料的干燥工艺及滤棒加香应用研究[J].轻工学报,2024,39(3):62-71.

JIA X W, DAI Y X, HE F, et al. Drying process of peppermint granular spices and its application in flavoring filter rod[J]. Journal of Light Industry, 2024, 39(3): 62-71. DOI: 10. 12187/2024. 03. 008

# 薄荷颗粒香料的干燥工艺及滤棒加香应用研究

贾学伟<sup>1</sup>, 代玉祥<sup>1</sup>, 何峰<sup>2</sup>, 井溢<sup>1</sup>, 李匹克<sup>1</sup>, 冯文宁<sup>2</sup>, 许春平<sup>1</sup>

1. 郑州轻工业大学 烟草科学与工程学院, 河南 郑州 450001;

2. 河北中烟工业有限责任公司 技术中心, 河北 石家庄 050051

**摘要:**为减少薄荷颗粒香料在干燥过程中特征成分的损失,建立了不同干燥条件下(烘箱干燥、微波真空干燥、微波干燥)香料的干燥动力学模型,结合水分分布的变化规律及特征成分的挥发情况优选适宜的香料干燥条件,并考查了薄荷颗粒香料的卷烟滤棒加香效果。结果表明:薄荷颗粒香料在烘箱干燥、微波真空干燥、微波干燥下的干燥时间分别约为60~120 min、20 min、4 min,3种干燥方式的最适动力学模型为Page模型;随着干燥的进行,半结合水转变为结合水和自由水,同时自由水在不断地挥发;薄荷颗粒香料特征成分均随着水分的挥发而降低,干燥温度越高,特征成分散失越明显,特征成分保留量与结合水相对峰面积呈极显著正相关;结合干燥时间及留香效果,确定微波干燥为最佳干燥工艺;薄荷颗粒香料加香后的卷烟烟气中酸类物质和酚类物质含量略有降低,酮类物质含量略有增加,新增3种薄荷特有的特征成分薄荷醇、L-薄荷酮、胡薄荷酮,在保留卷烟原有风格特征的前提下,可为卷烟带来清凉感,降低刺激性,提高卷烟的吸食品质。

**关键词:**颗粒香料;薄荷;干燥工艺;滤棒加香;微波干燥

中图分类号:TS264.3 文献标识码:A 文章编号:2096-1553(2024)03-0062-10

## 0 引言

天然香料除具有毒性低、香味独特等特点之外,还具有抗氧化、抗微生物等合成香料不具备的功效<sup>[1]</sup>,被广泛地应用于食品、医药、化妆品、烟草等多个工业领域<sup>[2]</sup>。薄荷(*Mentha haplocalyx*)属于唇形科植物,是一种重要的天然香料植物<sup>[3]</sup>。研究者通常采用水蒸气蒸馏法从薄荷中提取制得挥发油<sup>[4-5]</sup>,并通过烟丝加香、滤棒加香、卷烟纸加香、成形纸加香、包装材料加香<sup>[6-9]</sup>等方法应用于卷烟中。

薄荷挥发油中含有的功效成分主要有L-薄荷酮、薄荷醇<sup>[10]</sup>、胡薄荷酮等多种单萜类化合物,其中薄荷醇在卷烟中可以起到降低刺激性和青杂气的作用。在卷烟抽吸过程中,薄荷挥发油中的有效成分并不参与燃烧,也不会发生高温裂解,且受到滤嘴截留的影响较少<sup>[11-12]</sup>,仅依靠其挥发性进入烟气中,为烟气带来薄荷特有的清凉感。

固体颗粒香料通常采用挤出滚圆造粒法制成,该方法先通过螺杆挤出机对粉末-黏结剂预混物料进行混合和挤压,并通过孔板挤出成条状物,然后在

收稿日期:2023-09-27;修回日期:2023-12-27;出版日期:2024-06-15

基金项目:中国烟草总公司“揭榜挂帅”项目(110202103002);中国烟草总公司重大科技项目(110202201005(JY-05))

作者简介:贾学伟(1986—),男,河南省新乡市人,郑州轻工业大学讲师,博士,主要研究方向为烟草化学与香精香料。E-mail: 2014100@zzuli.edu.cn

通信作者:冯文宁(1978—),男,辽宁省锦州市人,河北中烟工业有限责任公司高级工程师,主要研究方向为卷烟原料及产品开发、新型烟草制品。E-mail: fengwn@126.com

离心力、摩擦力的作用下滚圆成球形颗粒,所得颗粒粒径大小比较均一,物料流动性较好<sup>[13]</sup>。固体颗粒香料的干燥方式包括热风干燥、微波干燥、真空干燥、远红外干燥、冷冻干燥等,干燥工艺对其香味成分保留效果有较大的影响。崔春等<sup>[14]</sup>研究了不同干燥方式对甘薯固体香料香气成分的影响,发现真空干燥所制备的香料香气成分含量最高。秦永存等<sup>[15]</sup>采用静态微波真空干燥技术制备烟草内源性固体香料,并对其挥发性香味成分进行分析,发现经微波真空干燥后的样品成分大部分与干燥前的样品一致,产品品质稳定,留香效果较好。但有关薄荷固体颗粒香料干燥工艺及其在卷烟滤棒中的应用研究鲜有报道。

基于此,本研究拟以薄荷粉末、 $\beta$ -环糊精和微晶纤维素为原料,采用挤出滚圆造粒法制备薄荷颗粒香料,研究不同干燥条件对颗粒香料的含水率、水分分布状态和挥发性成分的影响,优选薄荷颗粒香料的干燥工艺并用于卷烟滤棒加香,以期为新烟用固体香料的制备提供理论支持。

## 1 材料与方法

### 1.1 材料、试剂与仪器

主要材料:干薄荷叶,购于安徽省亳州市;黄金叶(天香),河南中烟工业有限责任公司。

主要试剂: $\beta$ -环糊精(纯度>98%),孟州市华兴生物化工有限责任公司;微晶纤维素(纯度>98%),湖州市菱湖新望化学有限公司;二氯甲烷(纯度>99%),德国 Sigma-aldrich 公司;丙二醇(色谱纯),天津德恩化学试剂有限公司;无水硫酸钠(分析纯),天津大茂化学试剂厂;乙酸苯乙酯(0.871 mg/mL、色谱纯)、薄荷醇(纯度为 99%)、L-薄荷酮(纯度为 98%)、胡薄荷酮(纯度为 96%),上海阿拉丁生化科技股份有限公司。

主要仪器:DGX-9143 型电热恒温鼓风干燥箱,上海福玛实验设备有限公司;RWBZ-08 S 型微波真空干燥箱,南京苏恩瑞设备有限公司;MM823LA6-NS 型微波炉,美的微波电器制造有限公司;CS-150 型粉碎机、KPGD5/20 型低温冷却液循环泵,郑州凯鹏实验仪器有限公司;EL204 型电子天平,梅特勒-

托利多仪器(上海)有限公司;E-25 型挤出机, MiNi-S 型滚圆机,深圳市信宜特科技有限公司;Agilent7890B 型气相色谱仪、Agilent7890GC/5975 MS 型气相色谱-质谱(GC-MS)联用仪,美国 Agilent 公司;NMI20 型核磁共振成像分析仪,苏州(上海)纽迈电子科技有限公司;同时蒸馏萃取装置,郑州科技玻璃仪器厂;RM20 H 型转盘式吸烟机,德国博瓦特凯西公司;Regulus8100 型场发射扫描电子显微镜,日本日立公司。

### 1.2 实验方法

**1.2.1 薄荷颗粒香料制备** 将干薄荷叶粉碎至 20~60 目(直径 250~830  $\mu\text{m}$ ),分别取薄荷粉末 10 g、 $\beta$ -环糊精 3 g、微晶纤维素 3 g,混合均匀,随后加入溶剂(18 mL 纯水与 0.5 mL 丙二醇)进行掺配。将掺配好的样品加入挤出机中挤成条状,然后将条状样品经滚圆机滚成球状固体小颗粒,即为薄荷颗粒香料。具体参数为挤出转速 120 r/min、滚圆转速 1400 r/min、挤出孔径 1 mm、滚圆时间 1 min。

**1.2.2 薄荷颗粒香料的干燥** 分别称取 50 g 薄荷颗粒香料,采用烘箱干燥、微波真空干燥、微波干燥 3 种方式进行干燥处理。烘箱干燥:设有 50  $^{\circ}\text{C}$ 、60  $^{\circ}\text{C}$ 、70  $^{\circ}\text{C}$ 、80  $^{\circ}\text{C}$  4 种温度梯度,每隔 10 min 记录一次香料质量。微波真空干燥:真空度为 0.1 MPa,干燥温度为 50  $^{\circ}\text{C}$ ,微波功率为 800 W,微波频率为 2450 MHz,每隔 2.5 min 记录一次香料质量。微波干燥:功率为 1300 W,微波频率为 2450 MHz,每隔 0.5 min 记录一次香料质量。每组实验平行重复 3 次。

**1.2.3 薄荷颗粒香料干燥特性分析** 1) 薄荷颗粒香料含水率、水分比<sup>[16-17]</sup>计算公式如下。

$$W = \frac{m - m_0 - m_{绝}}{m_{绝}}$$

式中, $W$  为样品含水率/%, $m$  为样品与器皿总质量/g, $m_0$  为器皿质量/g, $m_{绝}$  为样品绝干质量/g。

$$MR = \frac{W_t - W_e}{W_0 - W_e}$$

式中, $MR$  为  $t$  时刻的水分比, $W_t$  为  $t$  时刻样品的干基含水率/%, $W_0$  为初始干基含水量/%, $W_e$  为样品平衡时的干基含水量%,该值很小,通常可忽略

(为0)。

2)干燥动力学模型及统计分析。选用5种常用干燥动力学模型(见表1)研究干燥过程<sup>[17]</sup>。利用Origin 2021对薄荷颗粒香料干燥实验数据进行处理,采用Page、Newton、Wang and Singh、Henderson and Pabis、Parabolic 5种干燥动力学模型对热风干燥过程进行拟合,通过计算拟合曲线的决定系数( $R^2$ )、离差平方和( $\chi^2$ )、均方根误差(RMSE)评价模型拟合的效果。 $R^2$ 越大, $\chi^2$ 、RMSE越小,说明模型的拟合效果越好<sup>[18]</sup>。

表1 干燥动力学模型  
Table 1 Drying kinetic model

模型名称	模型方程	参数
Page	$MR = \exp(-kt^n)$	$k, n$
Newton	$MR = \exp(-kt)$	$k$
Wang and Singh	$MR = at^2 + bt + 1$	$a, b$
Henderson and Pabis	$MR = a \exp(-kt)$	$a, k$
Parabolic	$MR = a + bt + ct^2$	$a, b, c$

$$R^2 = 1 - \frac{\sum_{i=1}^N (MR_{pre,i} - MR_{exp,i})^2}{\sum_{i=1}^N (MR_{pre,i} - \sqrt{MR_{exp,i}})^2}$$

$$\chi^2 = \frac{\sum_{i=1}^N (MR_{pre,i} - MR_{exp,i})^2}{N - n}$$

$$RMSE = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N (MR_{pre,i} - MR_{exp,i})^2}{N}}$$

式中, $MR_{exp,i}$ 为水分比的实际测定值; $MR_{pre,i}$ 为水分比的预测值; $N$ 为数据的数目; $n$ 为参数数目。

**1.2.4 低场核磁共振测定** 为了深入研究薄荷颗粒香料中的水分在不同干燥方式下的变化规律,对样品进行低场核磁共振(LF-NMR)试验,得到不同干燥方式下香料的水分分布情况。低场核磁共振利用氢原子的弛豫行为,通过产生的脉冲信号使待测样品中的氢原子核在磁场中产生自旋弛豫特性,横向弛豫时间 $T_2$ 表示处于激发态的自旋质子与其他相邻质子发生能量交换后达到动态平衡所需的时间,根据 $T_2$ 的变化,可实时监测样品水分分布状态<sup>[19-22]</sup>。

将50 g薄荷颗粒香料在不同干燥方式下干燥

至含水率分别为 $(70 \pm 1)\%$ 、 $(50 \pm 1)\%$ 、 $(30 \pm 1)\%$ 、 $(20 \pm 1)\%$ 、 $(10 \pm 1)\%$ 后,于温度为22℃、相对湿度为60%的条件下平衡48 h;准确称取3 g样品于平底磨口玻璃试管中,将试管插入磁体线圈内进行低场核磁共振测定,以50 g未干燥样品作为对照。测定条件为:采用CPMG序列测定 $T_2$ ,磁铁温度为32℃,主频为18 MHz,采样频率为200 kHz,偏移频率为601 648.13,90°脉冲时间为13 μs,180°脉冲时间为26 μs,重复采样等待时间为1500 ms,重复采样次数为32,采样点数为108 010,回波时间为0.180 ms,回波个数为3000,射频延时0.020 ms,数字增益为3,模拟增益为30 dB,放大倍数为3。测定结束后,对结果进行反演得到 $T_2$ 反演谱。

**1.2.5 挥发性成分分析** 将50 g薄荷颗粒香料在不同干燥温度与不同干燥方式下干燥至含水率分别为 $(70 \pm 1)\%$ 、 $(50 \pm 1)\%$ 、 $(30 \pm 1)\%$ 、 $(20 \pm 1)\%$ 、 $(10 \pm 1)\%$ ,通过同时蒸馏萃取法提取香料中的挥发性成分。在萃取液中加入适量的无水硫酸钠,密封冷藏过夜,取出转移至浓缩瓶中浓缩至10 mL,进行气相色谱分析,以50 g未干燥样品作为对照。

将薄荷醇、L-薄荷酮、胡薄荷酮3种标准样品稀释至质量浓度为500 μg/mL、250 μg/mL、125 μg/mL、62.5 μg/mL和31.25 μg/mL,通过气相色谱法计算峰面积并绘制标准曲线,测定萃取后样品中薄荷醇、L-薄荷酮、胡薄荷酮3种特征成分的峰面积并计算出物质含量。

色谱条件:色谱柱为HP-INNOWAX(30 m×0.25 mm×0.25 μm)毛细管柱;进样口温度260℃;检测器(FID)温度260℃;升温程序为初始温度40℃,保持2 min,以8℃/min的速率升温至180℃,保持5 min,以15℃/min的速率升温至220℃,保持5 min;载气为He,流速1 mL/min;进样量1 μL,分流比10:1。

**1.2.6 形貌表征** 将微波真空干燥后的薄荷颗粒香料样品分散于导电胶上,经真空喷金后,采用SEM观察香料表面及横截面的微观形貌,电压为3 kV,放大倍数500倍。

**1.2.7 滤棒加香应用评价** 以黄金叶(天香)卷烟为空白烟(烟支长度84.0 mm,圆周24.3 mm,滤嘴

长度 25.0 mm),将微波干燥后的薄荷颗粒香料于滤棒成型时均匀添加到空白烟滤棒中,制成颗粒段,再经卷烟机将颗粒段与醋纤段结合卷接成二元复合增香滤棒样品烟,滤嘴结构为 10 mm(醋纤段)+15 mm(颗粒段)。为提高待测卷烟样品含烟丝量的一致性,按照压降为(设计值 $\pm$ 100) Pa、质量为(设计值 $\pm$ 0.02) g、滤嘴通风率为(设计值 $\pm$ 2)%的标准,对已制备的卷烟样品进行筛选。

1) GC-MS 分析。将所制备的二元复合增香滤棒卷烟与空白烟置于恒温恒湿箱(温度(22 $\pm$ 2)  $^{\circ}$ C、相对湿度(60 $\pm$ 3)% )中平衡 48 h,在 ISO 模式下,按照文献[23]的要求,使用吸烟机进行抽吸,并采用 44 mm 剑桥滤片捕集主流烟气的总粒相物。将收集到的剑桥滤片放入 150 mL 三角瓶中,加入 50 mL 无水乙醇萃取剂,超声 30 min,过 0.45  $\mu$ m 有机膜,进行 GC-MS 分析。

GC 条件:DB-5 型色谱柱(30 m $\times$ 0.25 mm $\times$ 0.25  $\mu$ m);进样口温度 280  $^{\circ}$ C;升温程序为 50  $^{\circ}$ C 保持 2 min,以 5  $^{\circ}$ C/min 的速率升温至 180  $^{\circ}$ C,保持 2 min,15  $^{\circ}$ C/min 的速率升温至 280  $^{\circ}$ C,保持 2 min;载气 He,流速 1.0 mL/min;进样量 1  $\mu$ L,分流比 5:1。

MS 条件:传输线温度 280  $^{\circ}$ C,电子倍增器电压 1635 V,EI 源电子能量 70 eV,质量扫描范围 30~550 amu,离子源温度 230  $^{\circ}$ C,四极杆温度 150  $^{\circ}$ C。

2) 感官评吸。参考《卷烟 中式卷烟风格感官评价方法》(YC/T497—2014)<sup>[24]</sup>对卷烟样品进行评吸,重点考查其部分舒适感特征指标和烟气特征指标,随机选取 8 位专业评吸人员对卷烟样品进行感

官评吸。

## 2 结果与分析

### 2.1 薄荷颗粒香料干燥特性分析

2.1.1 含水率变化分析 不同干燥方式下薄荷颗粒香料含水率变化情况如图 1 所示。由图 1 可知,薄荷颗粒香料的初始含水率为 116%,经不同干燥方式干燥后,含水率到达干燥终点。在烘箱干燥下,随着温度的升高,干燥速率显著提高( $P<0.01$ ),干燥所需时间逐渐减少,从 50  $^{\circ}$ C 的 120 min 减少至 80  $^{\circ}$ C 的 60 min。与烘箱干燥相比,微波真空干燥和微波干燥所需时间较少。微波真空干燥所需时间为 20 min,一方面是由于真空状态下物料沸点会降低,且薄荷颗粒香料直径较小,内外形成的压力差使水蒸气达到饱和并迅速蒸发<sup>[25-26]</sup>;另一方面微波产生的能量能够直接作用到物料的内部,从而缩短干燥时间。微波干燥方式烘干香料至干燥终点仅需 4 min,这可能是因为微波能以电磁辐射的形式进入样品内部,样品受热后,由内到外产生水蒸气形成气压差,进而驱动样品中水蒸气向表面迁移<sup>[27]</sup>。因此,可优先考虑采用微波真空干燥和微波干燥方式完成固体香料的干燥。

2.1.2 干燥动力学模型构建与分析 不同干燥方式下 5 种干燥动力学模型统计结果见表 2。由表 2 可知,5 种模型对不同干燥方式的薄荷颗粒香料均有较好的拟合度( $R^2>0.95$ ),其中 Page 模型的  $R^2$  的数值范围高于其他模型, $\chi^2$  和 RMSE 的数值范围则远远低于其他模型,说明 Page 模型为最适合的动力学模型。不同干燥方式下薄荷颗粒香料的 Page

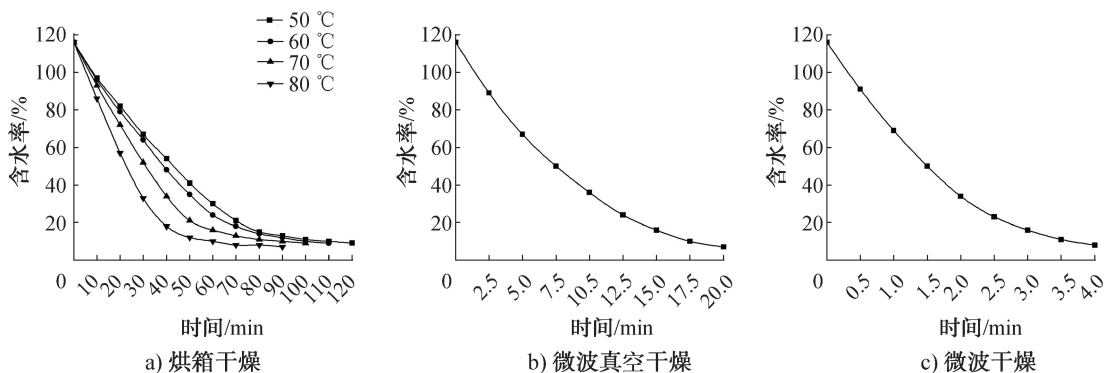


图 1 不同干燥方式下薄荷颗粒香料含水率变化情况

Fig. 1 Changes in the moisture content of peppermint granular spices under different drying methods

表2 不同干燥方式下5种干燥动力学模型统计结果

Table 2 Statistical results of five drying kinetic models with different drying methods

序号	模型名称	$R^2$	$\chi^2(\times 10^{-3})$	$RMSE \times 10^{-2}$
1	Page	0.995 8~0.999 7	0.033 5~0.507 0	0.023 4~0.405 0
2	Newton	0.987 0~0.993 3	0.718 0~1.410 0	0.574 0~1.524 0
3	Wang and Singh	0.990 7~0.997 7	0.143 0~1.020 0	0.158 0~0.818 0
4	Henderson and Pabis	0.989 6~0.994 3	0.694 0~1.340 0	0.486 0~1.206 0
5	Parabolic	0.992 7~0.997 8	0.145 0~0.911 0	0.145 0~0.638 0

模型具体统计结果见表3。由表3可知,不同干燥方式下 Page 模型拟合度均较高,可较准确地反映薄荷颗粒香料干燥过程中含水率的变化规律,也可用于描述和预测薄荷颗粒香料的干燥过程。

### 2.2 水分迁移规律

将3种干燥方式下不同含水率的样品分别进行 LF-NMR, 所得  $T_2$  谱图如图2所示。由图2可知,将样品含水率干燥至20%、10%时,在1 ms、10 ms 与100 ms 左右,分别出现了  $T_{21}$ 、 $T_{22}$  和  $T_{23}$  3个峰。 $T_{21}$  代表结合水,是通过氢键与蛋白质、多糖等大分子物质紧密结合的水分,流动性较差<sup>[28]</sup>;  $T_{22}$  代表半结合水,其流动性较小<sup>[20]</sup>;  $T_{23}$  代表自由水,流动性较好<sup>[29]</sup>。

从图2可以看出,含水率较高时只存在  $T_{22}$ 、 $T_{23}$

两个峰,且  $T_{22}$  对应的相对峰面积较高,这是因为在制备颗粒的过程中,选用的主材料为干薄荷粉末,添加的辅料为微晶纤维素和  $\beta$ -环糊精,3种材料均含有大量的亲水性羟基,又因初始含水量较高,因此水

表3 不同干燥方式下薄荷颗粒香料的 Page 模型统计结果

Table 3 Peppermint granular spices statistical results of the Page model under different drying methods

干燥方式	干燥条件	$R^2$	$\chi^2(\times 10^{-4})$	$RMSE(\times 10^{-3})$
烘箱干燥	50 °C	0.996 7	3.630	3.990
	60 °C	0.997 7	2.560	2.300
	70 °C	0.995 8	5.070	4.050
	80 °C	0.996 7	4.680	2.810
微波真空干燥	0.1 MPa	0.999 0	1.210	0.849
微波干燥	1300 W	0.999 7	0.335	0.234

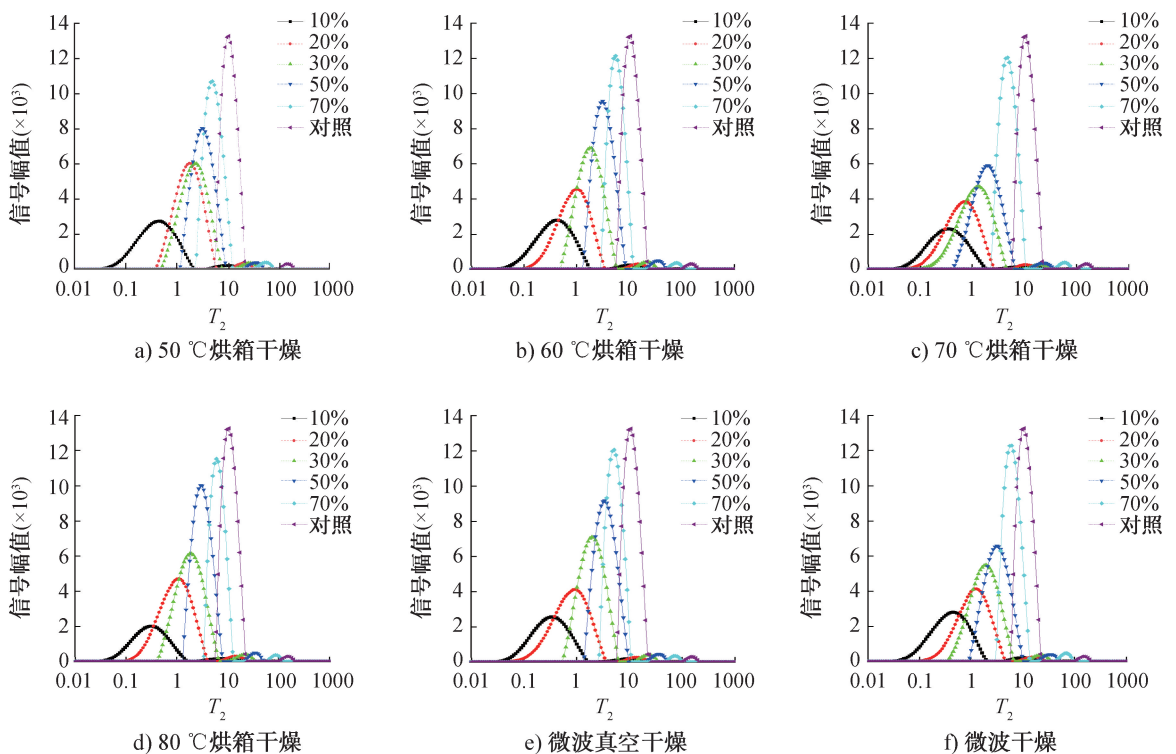


图2 不同干燥方式下各样品的  $T_2$  谱图

Fig. 2  $T_2$  spectra at different temperatures and drying methods

分在初始阶段大都以半结合水的形式存在,随着干燥的进行,一部分半结合水向左迁移转化为结合水,另一部分转化为自由水;自由水的相对峰面积表现为先增加后减少的趋势,原因是在干燥前期,半结合水向自由水的转化速度略高于自由水蒸发速度,当含水率较低时,半结合水向自由水转化速度变缓甚至为零,但自由水的蒸发仍然在进行。微波真空干燥和微波干燥对样品产生的微波可能使不易流动、扩散的半结合水转化成结合水或自由水,这提高了水分在颗粒内部扩散的速率,进而加速干燥进程,与颗粒干燥特性研究较为一致<sup>[30]</sup>;在两种微波辅助的干燥过程中,尤其是干燥前期(颗粒含水率达到70%时),自由水的相对含量高于烘箱干燥,说明在干燥前期,微波辅助作用有利于颗粒中水分由结合水向自由水迁移<sup>[31]</sup>。

因所设置的10%含水率梯度与成品卷烟含水率最为接近,将香料在不同干燥方式下干燥至含水率为10%,并对其 $T_2$ 谱图进行分析,得到不同干燥方式下薄荷颗粒香料的水分分布状态见表4。由表4可知,在烘箱干燥方式下,随着温度的升高,峰顶点时间逐渐向左偏移,且结合水相对峰面积逐渐减小,半结合水与自由水相对峰面积逐渐增大。

### 2.3 薄荷颗粒香料中3种特征成分变化

通过GC-MS分析可得,薄荷颗粒香料中薄荷醇、L-薄荷酮和胡薄荷酮3种主要特征成分含量分别占挥发性成分总含量的67.701%、7.418%和13.032%。通过外标法对这3种主要特征成分进行定量分析,得出标准曲线为: $y=0.8128x+1.9285$ ,

表4 不同干燥方式下薄荷颗粒香料的水分分布状态

Table 4 Water distribution status and equilibrium moisture content of peppermint granular spices under different drying methods

干燥方式	峰顶点时间/ms			相对峰面积/%		
	$T_{21}$	$T_{22}$	$T_{23}$	$A_{21}$	$A_{22}$	$A_{23}$
50℃烘箱干燥	0.450	10.596	80.264	96.21	3.44	0.35
60℃烘箱干燥	0.415	10.596	80.264	95.66	3.98	0.36
70℃烘箱干燥	0.353	9.771	68.261	95.17	4.35	0.48
80℃烘箱干燥	0.326	8.310	58.052	93.76	5.49	0.75
微波真空干燥	0.450	10.596	74.020	94.86	4.49	0.65
微波干燥	0.353	9.771	74.020	95.75	3.82	0.43

$R^2$ 为0.9998,其中 $y$ 表示质量浓度, $x$ 表示特征成分的相对峰面积。经计算,得出不同干燥方式下3种特征成分质量浓度随含水率变化情况(见表5)。

由表5可知,烘箱干燥方式下3种特征成分的质量浓度均随含水率的下降而降低,如80℃烘箱干燥下,将薄荷颗粒香料含水率烘干至10%时,薄荷醇、L-薄荷酮、胡薄荷酮的质量浓度仅为干燥前的56.80%、51.17%、50.35%;随着温度的升高,3种特征成分的最终保留量逐渐降低,如80℃烘箱干燥较50℃烘箱干燥下3种特征成分的质量浓度分别减少了81.08  $\mu\text{g/g}$ 、614.27  $\mu\text{g/g}$ 、156.26  $\mu\text{g/g}$ 。50℃烘箱干燥下,干燥前期特征成分挥发速率较为缓慢,当含水率降低至70%以下时,特征成分挥发速率逐渐加快,因为较低的干燥温度下颗粒内部升温慢,特征成分和水分向外迁移的速度都比较慢;而在较高温度的烘箱干燥及微波真空干燥、微波干燥下,特征成分含量在干燥前期降低较明显,说明颗粒内部前期升温较快,内部特征成分较易挥发,水分的快速向外迁移也会加剧特征成分的挥发。微波真空干燥和微波干燥最终所保留的特征成分含量与60℃、70℃烘箱干燥较为接近,低于50℃烘箱干燥,但高于80℃烘箱干燥。50℃烘箱干燥与微波干燥下薄荷颗粒香料所保留的特征成分含量相对较多,且挥发性成分的释放会更加明显,考虑到实际生产过程中微波干燥更易于节省时间,因此选择微波干燥为适宜的干燥方式。

将不同干燥方式下3种特征成分总量与结合水相对峰面积 $A_{21}$ 进行相关性分析,结果见表6。由表6可知,特征成分含量与结合水相对峰面积呈极显著正相关,表明结合水含量越高,特征成分含量也会越大,因此可通过提高结合水含量的方式进一步减少薄荷颗粒香料在干燥过程中特征成分的损失,如通过调整真空度、微波功率或采用烘箱干燥与微波干燥相结合的方法继续优化干燥工艺。

### 2.4 薄荷颗粒香料形貌表征

对微波干燥后的薄荷颗粒香料进行形貌表征,结果如图3所示。由图3a)可知,干燥后的薄荷颗粒香料均为圆球状,颗粒形貌较为完整,有着较好的流动性,可用于滤棒加香生产应用。由图3b)和c)

表5 不同干燥方式下3种特征成分质量浓度随含水率变化情况

Table 5 Changes of mass concentration of three diagnostic component with moisture content under different drying method

特征成分	干燥方式	含水率					
		干燥前	70%	50%	30%	20%	10%
L-薄荷酮	50℃烘箱干燥	206.80	206.19	203.35	200.10	195.83	186.89
	60℃烘箱干燥	206.80	185.67	174.09	169.01	161.69	143.40
	70℃烘箱干燥	206.80	176.12	165.93	160.55	151.73	133.24
	80℃烘箱干燥	206.80	179.17	151.13	131.62	113.74	105.81
	微波真空干燥	206.80	181.00	152.75	138.12	140.76	128.57
	微波干燥	206.80	188.34	172.06	158.05	152.22	145.23
	薄荷醇	50℃烘箱干燥	1 777.33	1 769.61	1 702.56	1 665.17	1 649.12
60℃烘箱干燥		1 777.33	1 704.20	1 652.77	1 591.64	1 542.77	1 487.70
70℃烘箱干燥		1 777.33	1 625.95	1 524.96	1 513.78	1 464.81	1 399.59
80℃烘箱干燥		1 777.33	1 618.84	1 469.89	1 341.88	1 114.50	1 009.44
微波真空干燥		1 777.33	1 588.56	1 451.40	1 360.17	1 344.32	1 270.76
微波干燥		1 777.33	1 739.89	1 653.10	1 503.35	1 401.14	1 353.59
胡薄荷酮		50℃烘箱干燥	400.65	392.32	378.30	369.570	366.31
	60℃烘箱干燥	400.65	368.96	334.82	316.940	302.51	272.23
	70℃烘箱干燥	400.65	349.45	315.72	296.620	276.70	258.62
	80℃烘箱干燥	400.65	335.02	289.50	267.360	219.60	201.72
	微波真空干燥	400.65	360.83	289.50	270.61	268.57	254.35
	微波干燥	400.65	380.42	366.96	342.37	320.23	311.69

表6 不同干燥方式下3种特征成分总量与结合水相对峰面积  $A_{21}$  的相关性分析结果Table 6 Correlation analysis of total three characteristic components and bound water peak area  $A_{21}$  under different drying methods

干燥方式	总量/ ( $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ )	$A_{21}/\%$	$R^2$	$P$ 值
50℃烘箱干燥	2 168.59	96.21	0.936 **	0.004 1
60℃烘箱干燥	1 743.28	95.66		
70℃烘箱干燥	1 791.45	95.17		
80℃烘箱干燥	1 316.97	93.76		
微波真空干燥	1 653.68	94.86		
微波干燥	1 810.51	95.75		

注:\*\*表示极显著相关( $P<0.01$ )。

可知,香料表面相对光滑致密,内部横截面粗糙,呈现植物纤维的多孔结构,有利于滤棒加香缓释。

## 2.5 滤棒加香应用效果分析

用微波干燥后的薄荷颗粒香料进行滤棒加香,加香前后卷烟香味成分含量变化见表7。由表7可知,酸类物质含量略有下降;4-羟基- $\beta$ -二氢大马酮、巨豆三烯酮和右旋萜二烯等香气成分含量有所上升,尤其是巨豆三烯酮含量上升最为明显,它是烟草内重要的中性香气成分,具有改善烟香,使香气柔和丰满,掩盖杂味的作用;苯酚、邻甲酚、对甲酚和邻苯二酚等酚类物质含量有所下降,降低了烟气的刺

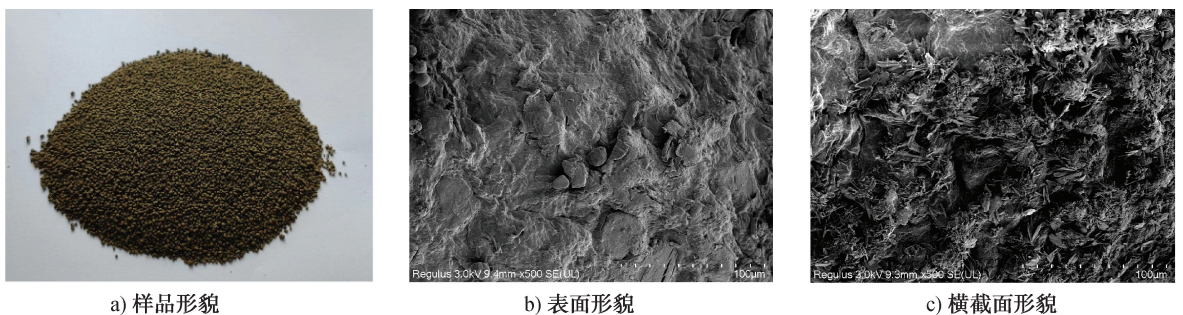


图3 薄荷颗粒香料的形貌

Fig. 3 Peppermint granular spices morphology characterization

表 7 滤棒加香前后卷烟香味成分变化  
Table 7 Changes in fragrance components of cigarette before and after  
fragrance addition of filter rods

种类	名称	空白滤棒	加香滤棒	种类	名称	空白滤棒	加香滤棒
酸类	棕榈酸	21.62	19.01	酚类	苯酚	9.77	8.39
	亚麻酸	7.50	7.23		邻甲酚	6.98	5.74
	壬酸	6.26	5.25		对甲酚	8.51	8.33
酯类	三乙酸甘油酯	246.22	271.69		邻苯二酚	9.63	9.43
	棕榈酸甲酯	4.94	3.15		对苯二酚	12.32	12.26
醇类	2,5-呋喃二甲醇	4.74	3.41		2-异丙氧基苯酚	8.97	4.98
	薄荷醇	—	35.66		4-乙烯基-2,6-二甲氧基-苯酚	6.60	4.82
酮类	L-薄荷酮	—	5.11		4-乙基间苯二酚	7.31	8.11
	胡薄荷酮	—	9.18		醛类	5-甲基呋喃醛	4.12
	甲基环戊烯醇酮	2.81	2.90	5-羟甲基糠醛		39.94	39.21
	3-甲基环戊烷-1,2-二酮	4.64	4.74	其他	烟碱	665.06	638.79
	2,3-二甲基-2-环戊烯酮	3.90	2.25		右旋萜二烯	6.51	7.29
	2,3-二氢-3,5-二羟基-6-甲基-4H-吡喃-4-酮	29.74	27.71		吡咯	7.18	7.31
	5,6-二氢吡啶-2(1H)-酮	3.19	3.92		麦司明	11.06	11.43
	2-(羟甲基)-环己酮	4.77	4.65		2,3'-联吡啶	12.58	16.69
	4-羟基-β-二氢大马酮	7.48	8.06		新植二烯	48.46	45.69
	巨豆三烯酮	7.31	11.08		莨菪亭	11.03	9.98
				二十烷	4.87	3.61	

注:—表示未检测出。

激性;烟碱、新植二烯和莨菪亭含量略有下降;其他香味成分含量变化不大;新增的香味成分均为香料中的特征成分,如薄荷醇、L-薄荷酮、胡薄荷酮在每支卷烟中分别增加了 35.66 μg、5.11 μg、9.18 μg,赋予了卷烟特殊的薄荷香味。

滤棒加香前后卷烟感官评吸结果如图 4 所示。由图 4 可知,加香不仅为卷烟烟气带来了清凉感,而且这种清凉感不会掩盖烟气中的其他香味;此外,卷烟的杂气有所降低,余味有改善,其他评吸指标均无大变化。在抽吸过程中发现,烟气中的烘烤香、果香、花香仍然能被感受到,保留了卷烟原有的风格特征,且烟气中的润感有所提升,薄荷颗粒香料有降低刺激性的效果,并使后几口烟气的灼烧感减弱。

### 3 结论

本文采用烘箱干燥、微波真空干燥、微波干燥 3 种方式对薄荷颗粒香料进行干燥,并建立了相应的干燥动力学模型,利用 LF-NMR 和 GC-MS 测定了薄荷颗粒香料的水分分布情况和特征成分含量,并研究了干燥过程中香料的水分分布的变化规律及特

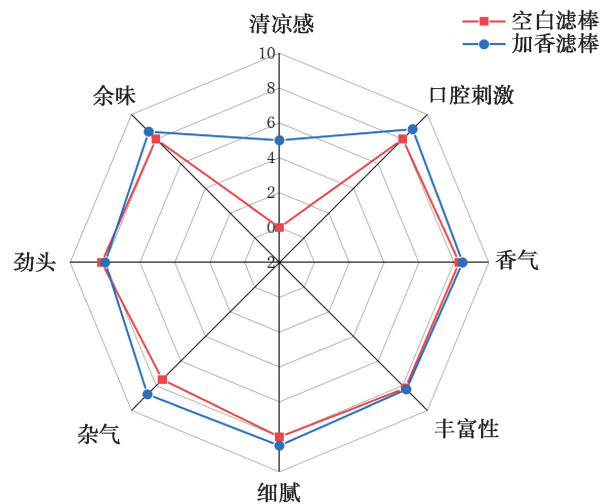


图 4 滤棒加香前后卷烟感官评吸结果  
Fig. 4 Sensory evaluation results of cigarette  
before and after fragrance addition of filter rod

征成分的散失情况。结果表明:1)烘箱干燥方式下,随着干燥温度的升高,香料的干燥时间逐渐缩短;微波真空干燥、微波干燥可明显缩短干燥时间至 20 min、4 min;3 种干燥方式的干燥动力学模型均与 Page 模型的拟合度最高。2)干燥过程中半结合水不断转化为结合水与自由水,同时自由水也在不断

地被蒸发除去。3)干燥温度越高,薄荷颗粒香料特征成分散失越明显;结合干燥时间与特征成分的保留量可知,微波干燥法效果最佳;特征成分含量与结合水相对峰面积呈极显著正相关。使用薄荷颗粒香料进行卷烟滤棒加香后,烟气中酸类物质和酚类物质含量略有降低,酮类物质含量略有增加;薄荷醇、L-薄荷酮、胡薄荷酮在每支卷烟中的含量分别增加了35.66  $\mu\text{g}$ 、5.11  $\mu\text{g}$ 、9.18  $\mu\text{g}$ ,这些物质可降低杂气、改善余味并带来凉感,同时也保留了卷烟特有的风格特征。未来将进一步对干燥工艺进行调整、优化,提高薄荷颗粒香料干燥过程中结合水的占比,以保留更多的特征成分。

## 参考文献:

- [1] 余汉谋,姜兴涛,李庆廷,等.植物精油在皮肤美白领域中的研究进展[J].日用化学工业,2014,44(1):45-49.
- [2] 田数,柴颖,田大勇,等.冬虫夏草提取液有效成分分析及其在卷烟中的应用研究[J].轻工学报,2022,37(3):74-81.
- [3] 宋魁,谭勇,龚昌禄,等.天然香料植物:薄荷[J].现代农业科技,2009(1):105-106.
- [4] 艾米拉·奥肯,吴涛,白小慧,等.GC-MS分析新疆4种薄荷挥发油化学成分及其生物活性的比较研究[J].食品研究与开发,2021,42(8):127-131.
- [5] 何智慧,罗嘉,练文柳.薄荷卷烟研究进展[J].烟草科技,2006,39(9):38-42.
- [6] 孔浩辉,刘振龙,陈森林,等.改性蒙脱土的性能分析及滤嘴薄荷醇不同加香方式的效果比较[J].烟草科技,2019,52(1):73-78.
- [7] 朱亚峰,胡军,唐荣成,等.卷烟滤嘴加香研究进展[J].中国烟草学报,2011,17(6):104-109.
- [8] 何红梅,杨静,张文灿,等.一种薄荷味卷烟纸增香用微胶囊的制备及应用[J].中华纸业,2023,44(10):35-38.
- [9] 郭华诚,朱远洋,赵琪,等.薄荷型香线滤棒特征成分及其在卷烟中的转移行为[J].烟草科技,2019,52(10):62-67.
- [10] 伍怡娜,阚健全.L-薄荷醇的制备及检测方法研究进展[J].现代食品科技,2005,21(1):144-146.
- [11] 刘立全,李维娜,王月侠,等.特殊滤嘴研究进展[J].烟草科技,2004,37(3):17-24.
- [12] 王金棒,汪志波,郑新章,等.中国爆珠卷烟专利技术研发热点与趋势分析[J].烟草科技,2018,51(11):43-50,57.
- [13] 张炜煜,衣春光.挤出滚圆法制备复方桔苻微丸的工艺研究[J].中成药,2007,29(10):1437-1439.
- [14] 崔春,梁佳欣,袁梦,等.不同干燥方式对甘薯固体香料挥发性/半挥发性成分和表面结构的影响[J].食品工业科技,2023,44(10):27-35.
- [15] 秦永存,吴明美,刘煜宇,等.静态微波真空干燥技术制备烟草内源性固体香料[J].安徽农业科学,2016,44(22):107-110.
- [16] 贲宗友,张季伟,韩动梁,等.谷朊粉颗粒热风干燥动力学模型及水分迁移规律[J].农业工程,2022,12(8):62-67.
- [17] 王安娜,彭小伟,胡艳,等.云南移依热风干燥动力学模型及品质变化[J].热带作物学报,2023,44(6):1255-1265.
- [18] 陈计远,王粮局,王红英,等.鱼膨化饲料热风干燥动力学模型及湿热特性[J].农业工程学报,2021,37(14):317-322.
- [19] 曾英杰,卢丙,杨亮,等.低场核磁共振与近红外联用仪器的研发与应用[J].国外电子测量技术,2023,42(3):88-94.
- [20] 唐小闲,蔡明君,韦珍珍,等.低场核磁共振技术分析杏鲍菇在热风-微波联合干燥过程中的水分变化[J].粮食与油脂,2023,36(8):90-94.
- [21] 胡潇予,蓝蔚青,张楠楠,等.低场核磁共振技术在食品领域中的研究进展[J].食品工业科技,2017,38(6):386-390,396.
- [22] XIAO Q, LIM L T, ZHOU Y J, et al. Drying process of pullulan edible films forming solutions studied by low-field NMR[J]. Food Chemistry, 2017, 230:611-617.
- [23] 中华人民共和国国家质量监督检验检疫总局,中国国家标准化管理委员会.常规分析用吸烟机 定义和标准条件:GB/T 16450—2004[S].北京:中国标准出版社,2005.
- [24] 国家烟草专卖局.卷烟 中式卷烟风格感官评价方法:YC/T 497—2014[S].北京:中国标准出版社,2014.
- [25] 李盼盼,胡钦锴,张敏.微波真空干燥技术研究进展[J].食品安全导刊,2022(20):175-177.
- [26] 张倩,李世榆,李秀辰,等.裙带菜微波真空干燥质热传递特性与品质优化[J].食品与机械,2022,38(7):166-173.
- [27] 赵红霞,王应强,马玉荷,等.微波干燥条件对杏脯干燥特性与品质的影响[J].食品与机械,2023,39(4):123-129.
- [28] 曾雅,刘云宏,张嘉怡,等.远红外辐射温度对猕猴桃干燥水分迁移的影响[J].食品与机械,2019,35(8):143-147,188.
- [29] 覃焱婷,段振华,韦珍珍,等.微波功率对月柿果片微波间歇干燥中水分迁移及品质的影响[J].食品与机械,2021,37(10):1-5,78.
- [30] XU F F, JIN X, ZHANG L, et al. Investigation on water

status and distribution in broccoli and the effects of drying on water status using NMR and MRI methods[J]. Food Research International, 2017, 96: 191-197.

[31] 王学成. 中药浸膏超声耦合真空干燥强化传热传质机理及过程模拟研究[D]. 南昌: 江西中医药大学, 2022.

## Drying process of peppermint granular spices and its application in flavoring filter rod

JIA Xuewei<sup>1</sup>, DAI Yuxiang<sup>1</sup>, HE Feng<sup>2</sup>, JING Yi<sup>1</sup>, LI Pike<sup>1</sup>, FENG Wenning<sup>2</sup>, XU Chunping<sup>1</sup>

1. College of Tobacco Science and Engineering, Zhengzhou University of Light Industry, Zhengzhou 450001, China;

2. Technical Center, Hebei China Tobacco Industry Co., Ltd., Shijiazhuang 050051, China

**Abstract:** In order to reduce the loss of diagnostic components of peppermint granule spices during the drying process, the moisture drying kinetics of peppermint granules under different drying conditions (oven drying, microwave vacuum drying and microwave drying) were studied. By investigating changes in moisture distribution and the volatilization of characteristic components, the authors determined the optional drying conditions for the spices. The flavoring effect of cigarette filter rod of peppermint granular spices was investigated. The results showed that the drying time of peppermint granular spices under oven drying, microwave vacuum drying and microwave drying was about 60~120 min, 20 min and 4 min, respectively. The optimal drying kinetic model of the three drying methods is the Page model. The results of LF-NMR analysis showed that with the progress of drying, the semi-bound water was transformed into bound water and free water. At the same time, free water is constantly evaporating and being removed. The concentrations of diagnostic components in peppermint granular spices decreased with the decrease of moisture content, and the higher the drying temperature, the more obvious the diagnostic components loss. The effect of microwave drying is better than microwave vacuum drying, and the drying time is greatly shortened. The residue of diagnostic components positively correlated with the peak area of the bound water. The acids and phenolic substances in the cigarette smoke after the spice of peppermint granular spices were slightly reduced, the ketones were slightly increased, and three kinds of diagnostic components unique to peppermint, menthol, L-menthol and menthone were added, which could bring a cooling feeling to the cigarette, reduce the sense of irritation and improve the smoking quality of cigarettes, while retaining the original style of cigarettes.

**Key words:** granular spice; peppermint; drying process; filter rod flavoring; microwave drying

[责任编辑:吴晓亭]