

THÀNH PHẦN HÓA HỌC VÀ HOẠT TÍNH DIỆT ẤU TRÙNG MUỖI LOÀI *CULEX QUINQUEFASCIATUS* CỦA TINH DẦU QUẢ TIÊU LỐT (*PIPER LONGUM*) THU HÁI Ở TỈNH BÌNH ĐỊNH

CHEMICAL COMPOSITIONS AND MOSQUITO LARVICIDAL ACTIVITY AGAINST *CULEX QUINQUEFASCIATUS* OF *PIPER LONGUM* OIL FROM BINH DINH

Trần Thị Ngọc Bích*, Đỗ Thị Thúy Vân*

Trường Đại học Sư phạm – Đại học Đà Nẵng¹

*Tác giả liên hệ: dttvan@ued.udn.vn; ttnbich@ued.udn.vn

(Nhận bài: 02/8/2022; Chấp nhận đăng: 20/9/2022)

Tóm tắt - Tinh dầu quả tiêu lốt ở tỉnh Bình Định thu được bằng phương pháp chưng cất lôi cuốn hơi nước với tỉ lệ quả tiêu lốt (g)/thể tích nước cất (mL); thời gian chưng cất đã khảo sát và lựa chọn lần lượt là 100 g quả tiêu lốt/ 400 mL nước cất; Thời gian chưng cất 3 giờ đạt hiệu suất thu tinh dầu 1,01%. Thành phần hóa học của tinh dầu quả tiêu lốt Bình Định được xác định bằng phương pháp GC-MS gồm 35 hợp chất (99,68%), trong đó các hợp chất chính chiếm hàm lượng cao bao gồm caryophyllene (10,78%), 3-heptadecene (9,95%), zingiberene (9,54%), germacrene D (8,96%), pentadecane (8,76%), heptadecane (8,73%), β -bisabolene (5,98%), humulene (5,80%), (*E*)-5-tetradecene (2,73%), α -bisabolene (2,47%), tridecane (2,35%). Đã xác định tinh dầu quả tiêu lốt Bình Định thể hiện hoạt tính diệt ấu trùng muỗi loài *Culex quinquefasciatus* ở mức trung bình với LC_{50} ($\mu\text{g/mL}$) = 97,516 sau 24 giờ và 60,542 sau 48 giờ.

Từ khóa - Tinh dầu quả tiêu lốt; tiêu dài; chưng cất lôi cuốn hơi nước; Caryophyllene; *Culex quinquefasciatus*

1. Đặt vấn đề

Cây tiêu lốt có tên khoa học là *Piper longum*, thuộc họ Hồ tiêu (Piperaceae), một loại cây thân thảo, dây leo có hoa, có nguồn gốc từ Đông Bắc Ấn Độ, được phân bố rộng rãi ở các vùng nhiệt đới và cận nhiệt đới, trong đó có Việt Nam [1], [2]. Ở nước ta, *Piper longum* được biết đến với các tên gọi khác nhau như tiêu lốt, tiêu dài, tắt bật, tiêu lá tím và trâu không dai. Thành phần hóa học của cây tiêu lốt nói chung và quả tiêu lốt nói riêng bao gồm protein, carbohydrate, lipid, tro, alkaloid, amide, lignan, steroid, saponin, acid, ester và tinh dầu. Quả tiêu lốt chứa một lượng lớn alkaloid và amide gồm piperine, methyl piperine, iperonaline, piperettine, asarinine, piperlongumine, piperlonguminine và refractomide A. Trong đó, piperine là alkaloid phổ biến không chỉ ở quả mà còn ở rễ và lá cây tiêu lốt. Sesamin, fergasin là các ligan đã phân lập từ quả tiêu lốt. Ngoài ra, quả tiêu lốt còn chứa các ester như tridecyl-dihydro-p-coumarate, eicosanyl-(*E*)-p-coumarate [2], [3], [4], [5], [6]. Tinh dầu quả tiêu lốt là một hỗn hợp phức tạp, chứa một số thành phần hóa học chủ yếu gồm monoterpene, sesquiterpene và hydrocarbon [3], [5]. Cây tiêu lốt, một loại thảo mộc có nhiều công dụng chữa bệnh như rễ với vị đắng, cay và nóng, được dùng để tẩy giun sán, hỗ trợ điều trị nhuận tràng, đau bụng, đau lưng, bại liệt, tiêu thũng, viêm phế quản, rối loạn lá lách, mất ngủ, khối u. Quả tiêu lốt, với hương vị vừa cay nồng vừa ngọt ngào,

Abstract - Essential oil of *Piper longum* in Binh Dinh obtained via the steam distillation method with a proportion of long pepper (g)/water (mL) and distillation time already examined, which are 100 g of long pepper/400 mL water and 3 hours of distillation time respectively with oil collection efficiency 1,01%. The chemical compositions of the essential oil from *Piper longum* in Binh Dinh is determined via the GC-MS method that includes 35 components (99.68%), among which the main components are caryophyllene (10.78%), 3-heptadecene (9.95%), zingiberene (9.54%), germacrene D (8.96%), pentadecane (8.76%), heptadecane (8.73%), β -bisabolene (5.98%), humulene (5.80%), (*E*)-5-tetradecene (2.73%), α -bisabolene (2.47%), tridecane (2.35%). The essential oil of *Piper longum* in Binh Dinh also showed medium activity against *Culex quinquefasciatus* with LC_{50} ($\mu\text{g/mL}$) = 97.516 after 24 hours, and 60.542 after 48 hours.

Key words - *Piper longum* oil; Long pepper; Steam distillation; Caryophyllene; *Culex quinquefasciatus*

ngoài làm gia vị để chế biến thực phẩm thì còn là dược liệu được sử dụng hỗ trợ ngăn ngừa bệnh ung thư, bảo vệ tim mạch, bảo vệ gan, chống oxy hóa, điều trị giảm đường huyết, rối loạn hô hấp, chống viêm, viêm khớp, kháng khuẩn, kháng nấm, điều hòa hệ miễn dịch, chống trầm cảm, giải độc vết rạn cần và vết đốt của bọ cạp [2], [3], [5], [6]. Tinh dầu quả tiêu lốt có tính ấm, có khả năng tăng tiết dịch vị, dịch tụy, kích thích tiêu hóa, giúp ăn ngon miệng. Ngoài ra, tinh dầu quả tiêu lốt có tác dụng tiêu diệt và xua đuổi côn trùng, phòng trừ nấm bệnh hại cây trồng [2].

Bài báo này trình bày kết quả nghiên cứu các yếu tố ảnh hưởng đến quá trình chiết tách tinh dầu quả tiêu lốt bằng phương pháp chưng cất lôi cuốn hơi nước; Các chỉ tiêu cảm quan, chỉ số hóa lí cơ bản; Thành phần hóa học bằng phương pháp sắc kí khí ghép nối khối phổ GC-MS và hoạt tính diệt ấu trùng muỗi loài *Culex quinquefasciatus* của tinh dầu quả tiêu lốt Bình Định, nhằm hướng đến nguồn hoạt chất từ thiên nhiên an toàn để sử dụng làm sản phẩm diệt muỗi gây các bệnh truyền nhiễm nguy hiểm cho con người.

2. Nguyên liệu và phương pháp nghiên cứu

2.1. Nguyên liệu, hóa chất và thiết bị

2.1.1. Nguyên liệu

Quả tiêu lốt được thu hái vào tháng 6 năm 2020 tại huyện Hoài Ân, tỉnh Bình Định. Quả tiêu lốt sử dụng cho

¹ The University of Danang - University of Science and Education (Tran Thi Ngoc Bich, Do Thi Thuy Van)

quá trình chưng cất lôi cuốn hơi nước có chất lượng đồng đều và không bị sâu bệnh. Sau khi thu hái, quả tiêu lột sẽ được loại bỏ những quả hư hỏng, làm sạch, xay nhỏ và bảo quản nơi thoáng mát.

2.1.2. Hóa chất

Nước cất, ethanol, permethrin, sodium sulfate khan đều đạt tiêu chuẩn phân tích.

2.1.3. Dụng cụ, thiết bị

Cốc thủy tinh, bình cầu, các loại pipet, buret, ống đong, đĩa petri, giấy lọc, cân phân tích, bình ti trọng, bộ chưng cất tinh dầu thực nghiệm nhẹ hơn nước cỡ nhỏ, khúc xạ kế Abbe (Kruss und Meinberg Refraktometer AR2-Hãng Gebrauchet), thiết bị sắc kí khí ghép nối khối phổ GC-MS (GC 7890A, MS 5975C-Hãng Agilent).

2.2. Phương pháp nghiên cứu

2.2.1. Khảo sát các yếu tố ảnh hưởng đến quá trình chưng cất lôi cuốn hơi nước tinh dầu quả tiêu lột

Tinh dầu quả tiêu lột thu được bằng phương pháp chưng cất lôi cuốn hơi nước với bộ chưng cất tinh dầu nhẹ Clevender, thực nghiệm tại phòng thí nghiệm Khoa Hóa, Trường Đại học Sư phạm - Đại học Đà Nẵng.

Hiệu suất thu tinh dầu quả tiêu lột tính theo lượng tinh dầu có trong nguyên liệu, được xác định theo công thức:

$$Y (\%) = \frac{V \times d}{m} \times 100$$

Trong đó: Y (%): Hiệu suất thu tinh dầu; V (mL): Thể tích tinh dầu thu được; d (g/cm³): Khối lượng riêng của tinh dầu quả tiêu lột, d=0,8452 g/cm³; m (g): Khối lượng quả tiêu lột.

a. Tỷ lệ rắn/lỏng

100 g quả tiêu lột được chưng cất lôi cuốn hơi nước ở nhiệt độ 80 °C trong thời gian 2 giờ với thể tích nước cất thay đổi từ 200 mL đến 600 mL.

b. Thời gian chưng cất

Chưng cất 100 g quả tiêu lột với tỉ lệ rắn/lỏng được chọn từ khảo sát ở mục a, trong các thời gian khác nhau từ 1 giờ đến 5 giờ.

2.2.2. Xác định các chỉ tiêu đánh giá chất lượng sản phẩm tinh dầu quả tiêu lột

- Xác định chỉ số khúc xạ của tinh dầu theo TCVN 8445:2010;

- Xác định tỉ trọng của tinh dầu ở 20°C theo TCVN 8444:2010;

- Xác định chỉ số acid theo TCVN 8450:2010;

- Xác định chỉ số ester theo TCVN 8451:2010;

- Đánh giá cảm quan tinh dầu theo TCVN 8460:2010;

- Xác định thành phần hóa học của tinh dầu bằng phương pháp sắc kí khí ghép nối khối phổ GC-MS.

Các thí nghiệm được lặp lại 03 lần và các giá trị trung bình được tính toán.

2.2.3. Xác định hoạt tính diệt ấu trùng muỗi loài *Culex quinquefasciatus* của tinh dầu quả tiêu lột

Ấu trùng muỗi loài *Culex quinquefasciatus* (tuổi III) được thu thập từ tự nhiên, tại Điện Hòa, Điện Bàn, Quảng Nam (15°55'58"B 108°11'46"E). Quá trình thử nghiệm

hoạt tính diệt ấu trùng muỗi được thực hiện theo quy trình đã công bố ở tài liệu tham khảo [7]. Tinh dầu quả tiêu lột được hòa tan trong ethanol (dung dịch gốc 1%) và lắc đều, sau đó thêm 20 ấu trùng muỗi loài *Culex quinquefasciatus*. Các thí nghiệm được thực hiện ở nhiệt độ 25±2 °C. Mỗi thí nghiệm được lặp lại 4 lần với các nồng độ khảo sát (150; 100; 50; 25 và 12,5 µg/mL). Đối chứng dương permethrin được thử nghiệm trong tự trong cùng điều kiện với tinh dầu quả tiêu lột. Tỷ lệ tử vong của ấu trùng muỗi được ghi lại sau 24 giờ và 48 giờ. Giá trị nồng độ gây chết trung bình (LC₅₀) của mẫu thử, kiểm định Ki bình phương (χ²), giá trị xác suất (P) được tính toán thông qua phân tích log-probit [8] sử dụng SPSS25 với giới hạn tin cậy 95%. Thí nghiệm này được thực hiện tại phòng thí nghiệm Khoa Hóa, Trường Đại học Sư phạm - Đại học Đà Nẵng.

3. Kết quả và thảo luận

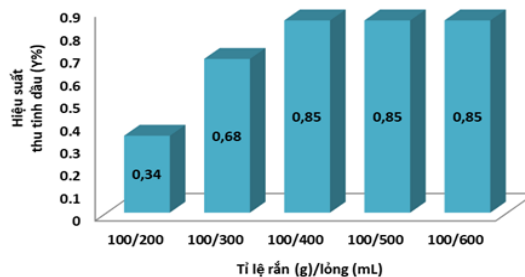
3.1. Kết quả khảo sát các yếu tố ảnh hưởng đến quá trình chưng cất lôi cuốn hơi nước tinh dầu quả tiêu lột

3.1.1. Tỷ lệ rắn/lỏng

Kết quả hiệu suất thu tinh dầu quả tiêu lột bằng phương pháp chưng cất lôi cuốn hơi nước với các tỉ lệ rắn/lỏng khác nhau được trình bày trên Bảng 1, Hình 1.

Bảng 1. Kết quả hiệu suất thu tinh dầu quả tiêu lột với các tỉ lệ rắn/lỏng khác nhau

STT	Tỷ lệ rắn (g)/lỏng (mL)	Thể tích tinh dầu (mL)	Hiệu suất thu tinh dầu (Y%)
1	100/200	0,4	0,34
2	100/300	0,8	0,68
3	100/400	1,0	0,85
4	100/500	1,0	0,85
5	100/600	1,0	0,85



Hình 1. Ảnh hưởng của tỉ lệ rắn/lỏng đến hiệu suất thu tinh dầu quả tiêu lột

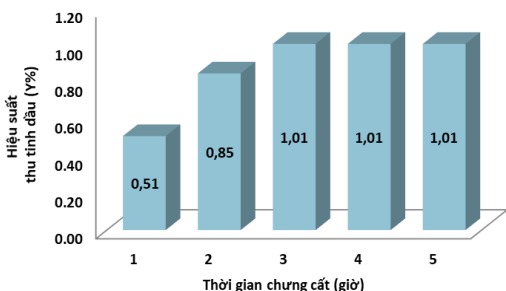
Kết quả ở Bảng 1 và Hình 1 cho thấy ở tỉ lệ rắn/lỏng = 100 g quả tiêu lột/400 mL nước cất thì hiệu suất thu tinh dầu quả tiêu lột là lớn nhất, đạt 0,85%. Khi thể tích nước cất càng tăng thì khả năng khuếch tán của tinh dầu vào nước cất càng lớn. Nước cất dễ dàng thấm thấu vào trong các lớp tế bào, phá vỡ túi tinh dầu và lôi cuốn tinh dầu theo hơi nước nên lượng tinh dầu trong nước cất càng cao. Tuy nhiên khi thể tích nước cất tăng từ 400 mL đến 600 mL thì hàm lượng tinh dầu thu hồi không tăng nữa vì lượng tinh dầu trong nguyên liệu đã được chưng cất gần như tối đa. Bên cạnh đó, lượng nước cất quá nhiều sẽ làm giảm hiệu quả kinh tế của quá trình chưng cất do tốn năng lượng cấp nhiệt, tăng thể tích thiết bị. Do đó, nhóm tác giả lựa chọn tỉ lệ rắn/lỏng = 100 g quả tiêu lột/400 mL nước cất cho nghiên cứu tiếp theo.

3.1.2. Thời gian chưng cất

Kết quả hiệu suất thu tinh dầu quả tiêu lốt bằng phương pháp chưng cất lôi cuốn hơi nước 100 g quả tiêu lốt/400 mL nước cất trong các thời gian chưng cất khác nhau được thể hiện ở Bảng 2, Hình 2.

Bảng 2. Kết quả hiệu suất thu tinh dầu quả tiêu lốt với các thời gian khác nhau

STT	Thời gian chưng cất (giờ)	Thể tích tinh dầu (mL)	Hiệu suất thu tinh dầu (Y%)
1	1	0,6	0,51
2	2	1,0	0,85
3	3	1,2	1,01
4	4	1,2	1,01
5	5	1,2	1,01



Hình 2. Ảnh hưởng của thời gian chưng cất đến hiệu suất thu tinh dầu quả tiêu lốt

Kết quả thu được ở Bảng 2 và Hình 2 cho thấy, hiệu suất thu tinh dầu quả tiêu lốt lớn nhất đạt 1,01% trong thời gian chưng cất 3 giờ. Khi thời gian chưng cất lôi cuốn hơi nước tiếp tục tăng thì hàm lượng tinh dầu không tăng nữa vì lượng tinh dầu trong nguyên liệu đã được chưng cất gần như tối đa.

Như vậy, tiến hành chưng cất lôi cuốn hơi nước tinh dầu quả tiêu lốt Bình Định ở điều kiện tỉ lệ rắn/lỏng = 100 g quả tiêu lốt/400 mL nước cất và thời gian chưng cất 3 giờ thì hiệu suất thu tinh dầu đạt 1,01%.

3.2. Kết quả đánh giá chất lượng sản phẩm tinh dầu quả tiêu lốt

3.2.1. Các chỉ tiêu cảm quan, chỉ số hóa lý cơ bản

Kết quả xác định một số chỉ số hóa lý đặc trưng và đánh giá cảm quan tinh dầu quả tiêu lốt Bình Định được trình bày ở Bảng 3.

Bảng 3. Kết quả các chỉ số hóa lý và đánh giá cảm quan

STT	Các chỉ tiêu	Bình Định	Bình Dương [5]	Ấn Độ [9]
1	Chỉ số khúc xạ, n_D^{20}	1,4765	1,4775	1,4670
2	Tỉ trọng, d_{20}^{20}	0,8452	0,8523	0,8451
3	Chỉ số acid (mg KOH/g)	2,58	2,69	0,98
4	Chỉ số ester (mg KOH/g)	4,53	4,94	6,98
5	Đánh giá cảm quan	Chất lỏng dễ bay hơi, trong suốt, màu vàng đậm. Có mùi thơm đặc trưng và vị cay.	Chất lỏng dễ bay hơi, trong suốt, màu vàng. Có mùi thơm tự nhiên đặc trưng và vị cay.	Chất lỏng dễ bay hơi, trong suốt, không màu. Có mùi thơm tự nhiên đặc trưng và vị cay.

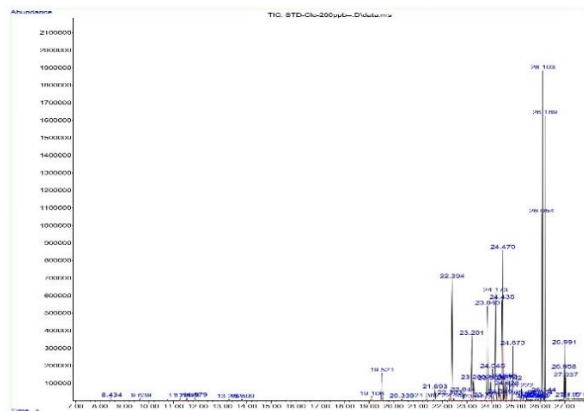
Kết quả ở Bảng 3 cho thấy, tất cả các chỉ số hóa lý đặc trưng và đánh giá cảm quan của tinh dầu quả tiêu lốt Bình

Định đều phù hợp với kết quả tinh dầu quả tiêu lốt Bình Dương đã công bố ở tài liệu tham khảo [5].

Tinh dầu quả tiêu lốt Bình Định có tỉ trọng và chỉ số khúc xạ phù hợp với tinh dầu quả tiêu lốt Ấn Độ [9] nhưng chỉ số acid và chỉ số ester có sự khác biệt, có thể do thành phần hóa học của tinh dầu quả tiêu lốt ở Việt Nam và Ấn Độ không giống nhau.

3.2.2. Thành phần hóa học

Kết quả định danh thành phần hóa học của tinh dầu quả tiêu lốt Bình Định được trình bày trên Hình 3 và Bảng 4. Kết quả cho thấy, đã xác định được 35 hợp chất (99,68%) trong tinh dầu quả tiêu lốt Bình Định, trong đó hợp chất monoterpene chiếm 0,99%, sesquiterpene chiếm 55,3% và hydrocarbon chiếm 43,39%. Các hợp chất chính với hàm lượng cao bao gồm caryophyllene (10,78%), 3-heptadecene (9,95%), zingiberene (9,54%), germacrene D (8,96%), pentadecane (8,76%), heptadecane (8,73%), β -bisabolene (5,98%), humulene (5,80%), (*E*)-5-tetradecene (2,73%), α -bisabolene (2,47%), tridecane (2,35%). Kết quả này phù hợp với các công bố về thành phần hóa học của tinh dầu quả tiêu lốt ở Việt Nam [5] và trên thế giới [10], [11], [12], [13].



Hình 3. Sắc ký đồ GC-MS

Bảng 4. Kết quả định danh thành phần hóa học

STT	Thời gian lưu (phút)	Hợp chất	Hàm lượng (%)
1	8,434	α -Pinene	0,20
2	9,639	β -Pinene	0,17
3	11,280	D-Limonene	0,18
4	11,549	<i>trans</i> - β -Ocimene	0,19
5	11,879	β -Ocimene	0,25
6	19,106	(<i>E</i>)-5-Tridecene	0,34
7	19,521	Tridecane	2,35
8	20,339	δ -Elemene	0,15
9	21,362	Copaene	0,20
10	21,693	β -Elemene	1,06
11	22,303	<i>trans</i> - α -Bergamotene	0,45
12	22,394	Caryophyllene	10,78
13	22,462	α -Santalene	0,19
14	22,844	<i>cis</i> - α -Bergamotene	0,69
15	23,201	Humulene	5,80
16	23,260	<i>cis</i> - β -Farnesene	1,76
17	23,377	β -Santalene	0,13
18	23,840	Germacrene D	8,96

19	23,963	α -Selinene	1,79
20	24,045	(E)-5-Tetradecene	2,73
21	24,173	Zingiberene	9,54
22	24,306	cis- α -Bisabolene	1,90
23	24,435	β -Bisabolene	5,98
24	24,470	Pentadecane	8,76
25	24,555	α -Panasinsene	1,32
26	24,628	Sesquisabinene	0,81
27	24,742	γ -Bisabolene	0,99
28	24,873	α -Bisabolene	2,47
29	25,222	Caryophyllene oxide	0,67
30	26,054	1-Heptadecene	7,15
31	26,103	3-Heptadecene	9,95
32	26,189	Heptadecane	8,73
33	26,958	9-Nonadecene	0,82
34	26,991	1-Nonadecene	1,54
35	27,037	Nonadecane	0,68
Tổng			99,68

So sánh hàm lượng các hợp chất chính của tinh dầu quả tiêu lốt Bình Định với tinh dầu quả tiêu lốt Bình Dương [5] và Ấn Độ [10], được thể hiện ở Bảng 5.

Bảng 5. Hàm lượng các hợp chất chính của tinh dầu quả tiêu lốt Bình Định, Bình Dương và Ấn Độ

STT	Hợp chất	Hàm lượng (%)		
		Bình Định	Bình Dương [5]	Ấn Độ [10]
1	Caryophyllene	10,78	14,91	17,00
2	3-Heptadecene	9,95	4,46	2,33
2	Zingiberene	9,54	2,94	5,00
4	Germacrene D	8,96	19,98	4,90
5	Pentadecane	8,76	7,54	17,80
6	Heptadecane	8,73	4,27	5,70
7	β -Bisabolene	5,98	5,67	11,20
8	Humulene	5,80	11,56	1,90
9	(E)-5-Tetradecene	2,73	-	-
10	α -Bisabolene	2,47	-	-
11	Tridecane	2,35	1,59	6,8

Căn cứ tài liệu tham khảo về thành phần hóa học của tinh dầu quả tiêu lốt Bình Dương [5] và Ấn Độ [10] cùng kết quả so sánh ở Bảng 5 cho thấy, tinh dầu quả tiêu lốt Bình Định, Bình Dương và Ấn Độ đều có hàm lượng caryophyllene cao. Tuy nhiên, hàm lượng hợp chất này ở Bình Định thấp hơn so với Bình Dương và Ấn Độ. 3-Heptadecene, zingiberene và heptadecane là ba hợp chất thu nhận từ tinh dầu quả tiêu lốt Bình Định có hàm lượng cao hơn so với Bình Dương và Ấn Độ. Đồng thời cũng nhận thấy hai hợp chất (E)-5-tetradecene và α -bisabolene được tìm thấy trong tinh dầu quả tiêu lốt Bình Định, còn Bình Dương và Ấn Độ thì không thấy xuất hiện. Hàm lượng các hợp chất germacrene D và humulene thu được từ tinh dầu quả tiêu lốt ở Bình Định và Bình Dương thì cao hơn so với Ấn Độ, nhưng hàm lượng hai hợp chất này ở Bình Định thấp hơn Bình Dương. Trong khi đó, pentadecane, β -bisabolene và tridecane là ba hợp chất trong tinh dầu quả tiêu lốt Ấn Độ chiếm hàm lượng cao hơn so với Bình Định và Bình Dương, ngoài ra cũng nhận thấy

hàm lượng ba hợp chất này xuất hiện ở tinh dầu quả tiêu lốt Bình Định cao hơn ở Bình Dương. Sự khác nhau về chất lượng hạt giống, cách gieo trồng, điều kiện khí hậu, thổ nhưỡng, thời kỳ sinh trưởng có thể đã tạo ra sự khác nhau về thành phần hóa học của tinh dầu quả tiêu lốt giữa các địa phương trong một quốc gia và giữa các quốc gia với nhau.

Caryophyllene, β -bisabolene, α -pinene, D-limonene, β -pinene là các hợp chất có tác dụng diệt muỗi [14] và được sử dụng như thuốc trừ sâu thực vật, chất diệt côn trùng. Chính vì vậy, nhóm tác giả tiếp tục tìm hiểu về hoạt tính diệt ấu trùng muỗi loài *Culex quinquefasciatus* của tinh dầu quả tiêu lốt Bình Định.

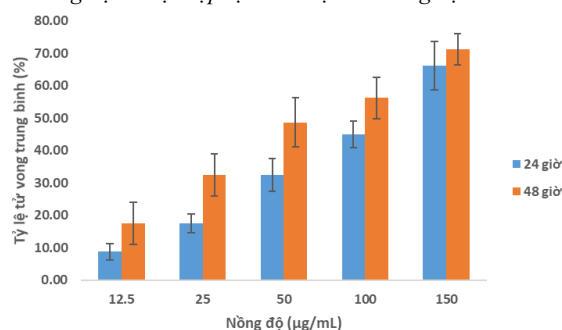
3.3. Kết quả hoạt tính diệt ấu trùng muỗi loài *Culex quinquefasciatus* của tinh dầu quả tiêu lốt

Kết quả hoạt tính diệt ấu trùng muỗi loài *Culex quinquefasciatus* của tinh dầu quả tiêu lốt Bình Định thể hiện ở tỷ lệ tử vong trung bình của ấu trùng muỗi tại các nồng độ khảo sát sau 24 giờ và 48 giờ, được trình bày ở Bảng 6, Hình 4 và giá trị nồng độ gây chết trung bình (LC₅₀) sau 24 giờ và 48 giờ được trình bày ở Bảng 7.

Bảng 6. Tỷ lệ tử vong trung bình của ấu trùng muỗi tại các nồng độ khảo sát sau 24 giờ và 48 giờ

Nồng độ ($\mu\text{g/mL}$)	24 giờ		48 giờ	
	Tỷ lệ tử vong trung bình ^a (%)	Độ lệch chuẩn SD	Tỷ lệ tử vong trung bình ^a (%)	Độ lệch chuẩn SD
12,5	8,75	2,50	17,50	6,45
25	17,50	2,89	32,50	6,45
50	32,50	5,00	48,75	7,50
100	45,00	4,08	56,25	6,29
150	66,25	7,50	71,25	4,79

^a Mỗi thí nghiệm được lặp lại 4 lần tại các nồng độ khảo sát.



Hình 4. Ảnh hưởng của nồng độ khảo sát đến tỷ lệ tử vong trung bình của ấu trùng muỗi sau 24 giờ và 48 giờ

Từ kết quả thu được ở Bảng 6, Hình 4 và Bảng 7 cùng việc so sánh với kết quả của một số tinh dầu cùng chi Piper [15], [16], [20] và một số loại tinh dầu khác đã được đánh giá hoạt tính này ở các tài liệu tham khảo [17], [18], [19], nhận thấy tinh dầu quả tiêu lốt Bình Định thể hiện hoạt tính diệt ấu trùng muỗi loài *Culex quinquefasciatus* ở mức trung bình với LC₅₀ ($\mu\text{g/mL}$) = 97,516 sau 24 giờ và 60,542 sau 48 giờ. Bên cạnh đó, đã có các công bố về dịch chiết và hợp chất phân lập từ quả tiêu lốt [21], [22], [23] và lá cây tiêu lốt [24], [25] thể hiện hoạt tính diệt ấu trùng muỗi loài *Culex quinquefasciatus*. Trong phạm vi và khả năng tra cứu tài liệu tham khảo, nhóm tác giả chưa thấy có công bố về hoạt tính này đối với tinh dầu quả tiêu lốt, vì vậy kết quả về hoạt tính

diệt ấu trùng muỗi loài *Culex quinquefasciatus* của tinh dầu quả tiêu lốt Bình Định ở bài báo này là công bố đầu tiên.

Bảng 7. Giá trị nồng độ gây chết trung bình của ấu trùng muỗi sau 24 giờ và 48 giờ

Mẫu thử	LC ₅₀ (µg/mL) Sau 24 giờ		LC ₅₀ (µg/mL) Sau 48 giờ	
	χ^2	P	χ^2	P
Tinh dầu quả tiêu lốt	97,516 (78,871-128,494)		60,542 (48,044-78,523)	
	1,834	0,608	1,374	0,712
Permethrin	0,00173 (0,00157-0,0189)		-	

Permethrin là chất đối chứng dương và được thử nghiệm tương tự trong cùng điều kiện với tinh dầu quả tiêu lốt.

4. Kết luận

Đã xác định được điều kiện chưng cất tinh dầu quả tiêu lốt Bình Định bằng phương pháp chưng cất lôi cuốn hơi nước, cho hàm lượng tinh dầu quả tiêu lốt cao nhất (1,01%) với tỉ lệ rắn/lỏng = 100 g quả tiêu lốt/400 mL nước cất và thời gian chưng cất 3 giờ. Tinh dầu quả tiêu lốt Bình Định thu được có hương thơm đặc trưng và đạt các chỉ tiêu chất lượng để sử dụng trong thực phẩm. Thành phần định danh chính của tinh dầu quả tiêu lốt Bình Định là caryophyllene (10,78%), 3-heptadecene (9,95%), zingiberene (9,54%), germacrene D (8,96%), pentadecane (8,76%), heptadecane (8,73%), β -bisabolene (5,98%), humulene (5,80%), (*E*)-5-tetradecene (2,73%), α -bisabolene (2,47%), tridecane (2,35%). Những hợp chất này thể hiện các hoạt tính sinh học có giá trị, cho thấy tinh dầu quả tiêu lốt Bình Định đạt chất lượng tốt. Đồng thời, đã xác định được hoạt tính diệt ấu trùng muỗi loài *Culex quinquefasciatus* của tinh dầu quả tiêu lốt Bình Định ở mức trung bình với LC₅₀ (µg/mL) = 97,516 sau 24 giờ; 60,542 sau 48 giờ và đây là công bố đầu tiên về hoạt tính này của tinh dầu quả tiêu lốt Bình Định.

Lời cảm ơn. Nghiên cứu này được tài trợ bởi Quỹ Khoa học và Công nghệ, Trường Đại học Sư phạm - Đại học Đà Nẵng trong đề tài có mã số T2022-TN-06.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- Manoj, E.V. Soniya, N.S. Banerjee and P. Ravichandren, "Recent studies on well-know spice, *Piper longum* Linn.", *Natural Product Radiance*, 3(4), 2004, pp. 222-227.
- Maitreyi Zaveri, Amit Khandha, Samir Patel, Archita Patel, "Chemistry and Pharmacology of *Piper longum* L.", *International Journal of Pharmaceutical Sciences Review and Research*, 5(1), 2010, pp. 67-76.
- Manish Grover, "*Piper longum* (Pippalimool): A systematic review on the traditional and pharmacological properties of the plant", *World Journal of Pharmaceutical and Medical Research*, 7(8), 2021, pp. 281-289.
- Dan Li, Rui Wang, Xiaohan Cheng, Jianfeng Yang, Yihui Yang, Huichong Qu, Sen Li, Shan Lin, Donghua Wei, Yuhua Bai, Xiaodong Zheng, "Chemical constituents from the fruits of *Piper longum* L. and their vascular relaxation effect on rat mesenteric arteries", *Natural Product Research*, 36(2), 2022, pp. 674-679.
- Trương Thị Ngọc Lan, *Khảo sát tinh dầu tiêu lốt (*Piper longum* Linn.)*, Luận văn thạc sĩ hóa học hữu cơ, Trường Đại học Khoa học Tự nhiên-Đại học Quốc gia thành phố Hồ Chí Minh, 2012.
- Hakim Md. Osman gani, Md. Obydul Hoq and Tahamina Tamanna, "Ethnomedicinal, phytochemical and pharmacological properties of *Piper longum*", *Asian Journal of Medical and Biological Research*, 5(1), 2019, pp. 1-7.
- Dai, D.N., Chung, N.T., Huong, L.T., Hung, N. H., Chau, D., Yen, N.T., and Setzer, W.N., "Chemical compositions, mosquito larvicidal and antimicrobial activities of essential oils from five species of *Cinnamomum* growing wild in north central Vietnam", *Molecules*, 25(6), 2020, pp. 1303.
- Finney, D. *Probit Analysis*, Reissue, Ed. ed, Cambridge University Press: Cambridge, UK, 2009.
- Nigam SS, Radhakrishnan C, "Chemical examination of the essential oils derived from the berries of *Piper longum*", *Bulletin of the National Institute of Science of India*, 37(18), 1968, pp. 189-192.
- Shankaracharya NB, Rao LI, Naik JP, Nagalakshmi S, "Characterization of chemical constituents of Indian Long Pepper", *Journal of Food Science and Technology*, 34(1), 1997, pp. 73-75.
- Supinya Tewtrakul, Koji Hase, Shigetoshi Kadota, Tsuneo Namba, Katsuko Komatsu and Ken Tanaka, "Fruit Oil Composition of *Piper chaba* Hunt., *P. longum* L. and *P. nigrum* L.", *Journal of Essential Oil Research*, 12, 2000, pp. 603-608.
- Ling Liu, Guoxin Song, Yaoming Hu, "GC-MS Analysis of the Essential Oils of *Piper nigrum* L. and *Piper longum* L.", *Chromatographia*, 66, 2007, pp. 785-790.
- Titto Varughese, Prakash Kumar Unnikrishnan, M. Deepak, Indira Balachandran, A.B. Rema Shree, "Chemistry Composition of the Essential Oils from Stem, Root, Fruit and Leaf of *Piper longum* Linn.", *TEOP*, 19(1), 2016, pp. 52-58.
- Nguyễn Hữu Nghị, *Nghiên cứu sử dụng tinh dầu thực vật trong xua đuổi muỗi*, Viện Nghiên cứu và Phát triển Sản phẩm Thiên nhiên (IRDOP), 2021.
- Le Thi Huong, Nguyen Huy Hung, Do Ngoc Dai, Thieu Anh Tai, Vu Thi Hien, Prabodh Satyal and William N. Setzer, "Chemical Compositions and Mosquito Larvicidal Activities of Essential Oils from *Piper* Species Growing Wild in Central Vietnam", *Molecules*, 24(3871), 2019, pp. 1-30.
- Đỗ Thị Thúy Vân, Trần Thị Ngọc Bích, "Thành phần hóa học và hoạt tính diệt ấu trùng muỗi loài *Culex quinquefasciatus* của tinh dầu hạt tiêu đen (*Piper nigrum*) thu hái ở tỉnh Bình Định", *Tạp chí Hóa học và Ứng dụng*, 1B(60B), 2022, tr. 109-113.
- Tran Minh Hoi, Le Thi Huong, Hoang Van Chinh, Dang Viet Hau, Prabodh Satyal, Thieu Anh Tai, Do Ngoc Dai, Nguyen Huy Hung, Vu Thi Hien and William N. Setzer, "Essential Oil Compositions of Three Invasive *Coryza* Species Collected in Vietnam and Their Larvicidal Activities against *Aedes aegypti*, *Aedes albopictus*, and *Culex quinquefasciatus*", *Molecules*, 25(4576), 2020, pp. 1-25.
- Le T. Huong, Trinh T. Huong, Nguyen T.T. Huong, Nguyen H. Hung, Pham T.T.Dat, Ngo X. Luong, and Isiaka A. Ogunwande, "Mosquito Larvicidal Activity of the Essential Oil of *Zingiber collinsii* against *Aedes albopictus* and *Culex quinquefasciatus*", *Journal of Oleo Science*, 69(2), 2020, pp. 153-160.
- Nguyen Huy Hung, Prabodh Satyal, Do Ngoc Dai, Thieu Anh Tai, Le Thi Huong, Nguyen Thi Hong Chuong, Ho Viet Hieu, Pham Anh Tuan, Pham Van Vuong, and William N. Setzer, "Chemical Compositions of *Crassocephalum crepidioides* Essential Oils and Larvicidal Activities Against *Aedes aegypti*, *Aedes albopictus*, and *Culex quinquefasciatus*", *Natural Product Communications*, 14(6), 2019, pp. 1-5.
- T Subsuebwong, S Attrapadung, R Potiwat, N Komalamisra, "Adulticide efficacy of essential oil from *Piper retrofractum* Vahl against *Aedes aegypti* and *Culex quinquefasciatus*", *Tropical Biomedicine*, 33(1), 2016, pp. 84-87.
- Sung-Eun Lee, "Mosquito larvicidal activity of piperonaline, a piperidine alkaloid derived from long piper, *Piper longum*", *Journal of the American Mosquito Control Association*, 16(3), 2000, pp. 245-247.
- Madhu SK, Vijayan VA, Shaikath AK, "Bioactivity guided isolation of mosquito larvicide from *Piper longum*", *Asian Pacific Journal of Tropical Medicine*, 4(2), 2011, pp. 112-116.
- Madhu SK, Vijayan VA, "Evaluation of the larvicidal efficacy of extract from three plants and their synergistic action with propoxur against larvae of the filarial vector *Culex quinquefasciatus* (Say)", *Toxicological & Environmental Chemistry*, 92(1), 2010, pp. 115-126.
- Piyali Dey, Danswring Goyary, Pronobesh Chattopadhyay, Sumit Kishor, Sanjeev Karmahar, Anurag Verma, "Evaluation of larvicidal activity of *Piper longum* leaf against the dengue vector, *Aedes aegypti*, malarial vector, *Anopheles stephensi* and filariasis vector, *Culex quinquefasciatus*", *South African Journal of Botany*, 132, 2020, pp. 482-490.
- NR Padma Priya and RD Stevens Jones, "Larvicidal activity and GC-MS analysis of *Piper longum* L. leaf extract fraction against human vector mosquitoes", *International Journal of Mosquito Research*, 8(4), 2021, pp. 31-37.