

自制微波辅助无溶剂萃取装置及GC/MS分析白玉兰花挥发油

王 妍, 杨美丹, 李建亮, 李祖光

(浙江工业大学, 化学工程与材料学院, 浙江 杭州 310014)

摘要:利用普通的家用微波炉改装和自制微波辅助无溶剂萃取装置,采用微波辅助无溶剂萃取法和传统水蒸气蒸馏法提取白玉兰花挥发油,用气相色谱-质谱(GC/MS)法分析鉴定,并用GC/MS总离子流色谱峰的峰面积归一化法确定挥发油成分的相对百分含量。实验结果表明,微波辅助无溶剂萃取法与水蒸气蒸馏法所得的挥发油成分基本相同,但微波无溶剂萃取挥发油的收率(0.80%)高于水蒸气蒸馏法的收率(0.68%)。自制的微波辅助无溶剂萃取装置具有价格便宜、容易推广使用等优点,同时在该装置基础上进行的微波无溶剂萃取法是一种真正意义上的无污染、快速、高收率的提取鲜活香料植物挥发油的萃取技术。

关键词:微波辅助无溶剂萃取;气相色谱-质谱法;白玉兰;挥发油

中图分类号:O 657.63; S 685.15 文献标识码:A 文章编号:1004-2997(2009)04-0244-06

Homemade Solvent-Free Microwave Extraction Device and Analysis of Volatile Oil from *Magnolia Heptapeta* (*Buchoz*) *Dandy* by GC/MS

WANG Yan, YANG Mei-dan, LI Jian-liang, LI Zu-guang

(College of Chemical Engineering and Materials Science,

Zhejiang University of Technology, Hangzhou 310014, China)

Abstract: A set of solvent-free microwave extraction device was set up by using modified ordinary household microwave oven. The chemical constituents of volatile oil of *Magnolia heptapeta* (*Buchoz*) *Dandy* were extracted by solvent-free microwave extraction (SFME) and traditional steam distillation (SD). The chemical constituents were separated and identified by GC/MS. The relative content was performed by peak area normalization. The results show that there is no obvious difference in the quality of volatile oils obtained by two kinds of extraction methods, but the yield of SFME is 0.80%, which is higher than the yield of SD (0.68%). There are some advantages of the modified homemade SFME device: the price is low and it can be promoted easily. The SFME method offers important advantages over SD: shorter extraction times, substantial savings of energy and a reduced environmental burden. SFME is a non-pollution green technology and as a good rapid and high yield new method for the extraction of volatile oils from fresh aromatic plants.

Key words: solvent-free microwave extraction (SFME); GC/MS; *Magnolia heptapeta* (*Buc'hoz*) Dandy; volatile oil

白玉兰 (*Magnolia heptapeta* (*Buc'hoz*) Dandy) 又名玉兰、望春花、玉堂春, 属木兰科木兰属落叶乔木, 花朵洁白, 花香似兰, 是我国名贵的观赏花木, 可广泛用于化妆品、香精香料、医药等工业。它的花瓣可食或生产玉兰花浸膏。花蕾名为辛夷, 可入药, 性温味辛, 归肺胃经, 具有散风寒、通窍之功能, 用于治疗风寒、头痛、鼻塞、鼻渊、齿痛等症^[1]。

目前, 从白玉兰花中提取挥发油的方法一般采用传统的水蒸气蒸馏^[2-9] 和同时蒸馏萃取法^[10], 但是整个提取过程时间较长, 不利于热不稳定物质的萃取, 而且高温易引起不饱和化合物或者酯类化合物的分解。而超临界 CO₂ 流体萃取^[11-14] 设备和操作要求在高压下进行, 仪器成本较高。微波辅助无溶剂萃取(SFME)是在微波萃取的基础上, 刚刚发展起来的一种全新的萃取方式。Lucchesi^[15-16]首先将微波萃取和蒸馏装置结合起来, 在未添加任何溶剂的条件下, 从 3 种调味品藏茴香、孜然和八角茴香以及 3 种草本香料植物罗勒、薄荷和百里香中萃取得到挥发油, 与传统的水蒸气蒸馏相比较, 该方法极大地减少了能量的消耗, 是一种理想的环保型萃取方式, 但其所用的专门微波萃取装置价格较贵; Wang 等^[17]采用改进型的 SFME 装置, 即在萃取体系中加入羰基铁粉(CIP), 增加了微波的吸收效率, 从孜然芹和花椒中萃取得到挥发油。然而, 到目前为止, 国内外尚未见采用自制的微波辅助无溶剂萃取装置提取白玉兰花挥发油的文献报道。

本工作利用普通的家用微波炉改装和自制微波辅助无溶剂萃取装置, 采用微波辅助无溶剂萃取法萃取白玉兰花挥发油成分, 并与传统的水蒸气蒸馏法进行比较, 用气相色谱-质谱(GC/MS)分析鉴定, 并用峰面积归一化法确定白玉兰花挥发油的相对百分含量, 为白玉兰的开发利用提供科学数据。

1 实验部分

1.1 主要材料与仪器

白玉兰采自浙江工业大学校园内; 自制微波辅助无溶剂萃取装置示于图 1; GC3800/MS

Saturn 2000 气相色谱-质谱联用仪: 美国 Varian 公司产品, 配有液体化学源(色谱级乙腈为化学源反应试剂); CDE-250 型多功能粉碎机: Haode 公司产品; WP 700 P-21Galanz 微波炉: 佛山市顺德区格兰仕微波炉电器有限公司产品。

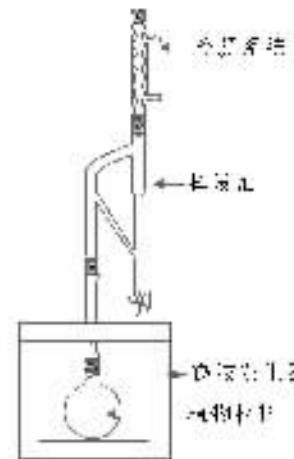


图 1 自制微波辅助无溶剂萃取装置

Fig. 1 Equipment for the SFME

1.2 挥发油提取

1.2.1 微波辅助无溶剂萃取(SFME) 准确称取 100 g 新鲜粉碎后的白玉兰花, 装入 500 mL 蒸馏烧瓶中, 调整微波萃取功率和萃取时间, 利用自制微波无溶剂萃取装置进行连续微波萃取, 直到挥发油收集器中挥发油含量不再增加为止(耗时 60 min), 收集挥发油。所得挥发油为无色透明具有特殊香味的液体, 称重计算, 得挥发油收率为 0.80%。

1.2.2 水蒸气蒸馏(SD) 准确称取 100 g 新鲜粉碎后的白玉兰花, 装入 500 mL 蒸馏烧瓶中, 按常规水蒸气蒸馏法进行连续萃取, 直到挥发油收集器中挥发油含量不再增加为止(耗时 12 h), 收集挥发油。所得的挥发油为无色透明具有特殊香味的液体, 称重计算, 得挥发油收率为 0.68%。

1.3 挥发油成分的 GC/MS 分析

1.3.1 色谱条件 色谱柱: J&W DB-5 石英毛细柱($30\text{ m} \times 0.25\text{ mm} \times 0.25\text{ }\mu\text{m}$); 升温程序: 40 ℃保持 5 min, 以 $3\text{ }^{\circ}\text{C} \cdot \text{min}^{-1}$ 升至 250 ℃, 保持 5 min; 载气为高纯氦气 (99.999%), 流速为

0.8 mL·min⁻¹;进样口温度为250℃。

1.3.2 质谱条件 电子轰击(EI)离子源和化学源CI(液体乙腈为化学源反应试剂),EI电离能量70 eV,离子阱温度150℃,歧管温度40℃,GC/MS传输线温度280℃,质量扫描范围 m/z 40~650。

分别将采用SFME和SD方法萃取所得的玉兰花挥发油按照上述实验条件进行GC/MS分析。

1.4 定性和定量分析

首先以EI为电离源,进行GC/MS分析,采集所得到的质谱图,利用NIST及WILEY两个谱库串联检索;然后用液体乙腈为化学源反应试剂进行GC/MS分析,根据产生的准分子离子峰[M+1]等进一步确定待测化合物的相对分子质量。同时采用保留指数定性的方法来辅助质谱检索定性,质谱检索与保留指数相结合的二维定性方法是一种可信度较高的定性方法。在使用保留指数定性分析时,实验计算值和文献报道值存在差异,一般以1%作为检索的尺度。本工作用于测量保留指数的正构烷烃系列标准样品为C₆~C₁₈。

2 结果与讨论

2.1 微波参数优化

为了研究微波萃取条件对挥发油收率的影响,在不同的微波功率条件下,分别选取10、30、60、90 min挥发油的收率,结果示于图2。

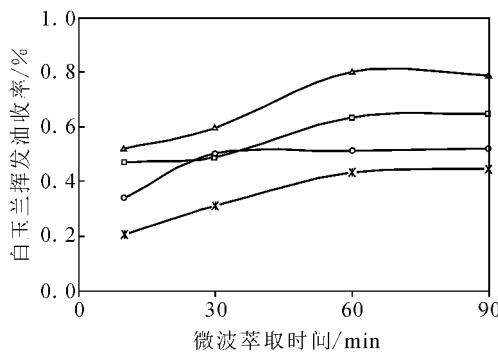


图2 微波萃取功率和时间对白玉兰花挥发油收率的影响

Fig. 2 The effect of microwave power and irradiation time on the yield of volatile oil

由图2可以看出,挥发油萃取的最佳条件是

微波功率595 W,萃取时间60 min,挥发油最大收率达到了0.80%。当功率较小时,由于提供的能量较低,部分化合物可能无法被萃取出来;当功率增加到595 W,收率达到最大值0.80%;当功率继续增大,收率呈现下降的趋势。随着时间的增加,挥发油随着水蒸气不断被带出,冷凝在收集器中,当萃取时间达到60 min时,由于挥发油已经基本从植物体系中被萃取出来,延长时间并没有实际的意义,因此选取60 min为最佳萃取时间。

2.2 SFME 和 SD 萃取技术的比较

按上述最佳微波条件对白玉兰花挥发油进行提取和分析测定,挥发油的收率及性状列于表1,其GC/MS总离子流色谱图示于图3。

表1 不同萃取方法对白玉兰挥发油的影响

Table 1 The effect of essential oil extracted by different methods

萃取方法	萃取所耗费的时间	挥发油的外观性状	挥发油的收率/%
SFME	60 min	无色透明	0.80
SD	12 h	无色透明	0.68

由表1可知,微波辅助无溶剂萃取整个萃取的过程只需要60 min,与传统的水蒸气蒸馏12 h相比,缩短了萃取时间,降低了萃取过程中的能量消耗,是一种提取植物挥发油的新方法。这是因为当微波技术应用于萃取植物时,从细胞破碎的微观角度看,微波加热导致细胞内的极性物质,尤其是水分子吸收微波能,产生大量的热量,使细胞内温度迅速上升,液态水汽化产生的压力将细胞膜和细胞壁冲破,形成微小的孔洞;进一步加热导致细胞内部和细胞壁水分减少,细胞收缩,表面出现裂纹,孔洞或裂纹的存在使细胞外溶剂容易进入细胞内,溶解并释放出细胞内产物,从而有效地提高了挥发油收率。

2.3 挥发油成分的分析

采用质谱检索与保留指数相结合的二维定性方法,结合本实验室已建立的带保留指数的天然植物挥发性化合物数据库和人工解析各峰相应的质谱图,从微波辅助无溶剂萃取所得的挥发油中鉴定出63种化合物,从水蒸气蒸馏萃取所得的挥发油中鉴定出59种化合物,定性结果及

采用峰面积归一化法求得的相对百分含量列于

表 2。

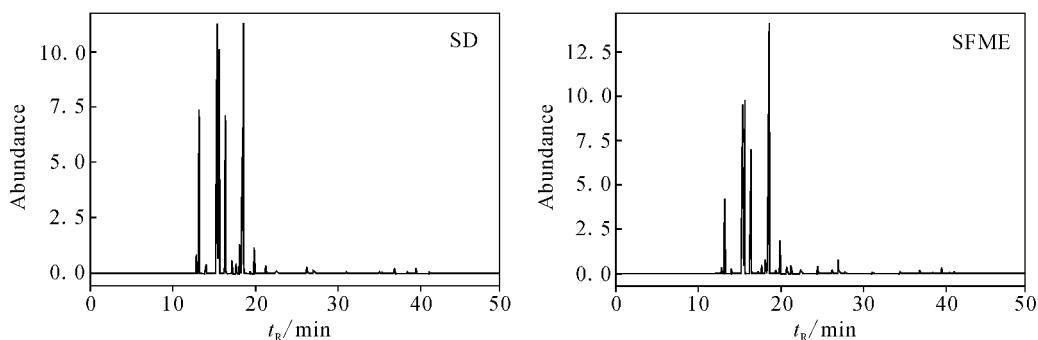


图 3 微波辅助无溶剂萃取和水蒸气蒸馏法所得白玉兰花挥发油的总离子流色谱图

Fig. 3 TIC of essential oil extracted by SFME and SD from *Magnolia heptapeta* (*Buc'hoz*) Dandy

表 2 微波辅助无溶剂萃取和水蒸气蒸馏法所得白玉兰花挥发油的鉴定结果

Table 2 Identification of the main compounds of essential oil extracted by SFME and SD from *Magnolia heptapeta* (*Buc'hoz*) Dandy

序号	保留时间 /min	保留指数 RI (参考文献 RI)	化合物	分子式	相对分子质量	相对含量/%	
						SFME	SD
1	11.99	906(901)	庚醛 Heptanal	C ₇ H ₁₄ O	114	0.13	0.08
2	12.47	917(924)	三环烯 Tricyclene	C ₁₀ H ₁₆	136	0.04	0.05
3	12.84	925(930)	α-侧柏烯 α-Thujene	C ₁₀ H ₁₆	136	0.55	0.99
4	13.18	932(933)	α-蒎烯 α-pinene	C ₁₀ H ₁₆	136	5.60	9.74
5	14.01	948(953)	莰烯 Camphene	C ₁₀ H ₁₆	136	0.45	0.65
6	14.26	953(953)	α-葑烯 α-Fenchene	C ₁₀ H ₁₆	136	tr	tr
7	15.39	974(976)	香桧烯 Sabinene	C ₁₀ H ₁₆	136	20.15	26.71
8	15.60	977(980)	β-蒎烯 β-Pinene	C ₁₀ H ₁₆	136	15.04	15.28
9	16.36	990(988)	β-月桂烯 β-Myrcene	C ₁₀ H ₁₆	136	11.04	11.19
10	17.16	1 003(1 004)	α-水芹烯 α-Phellandrene	C ₁₀ H ₁₆	136	0.25	0.82
11	17.67	1 014(1 017)	α-萜品烯 α-Terpinene	C ₁₀ H ₁₆	136	0.66	0.56
12	18.12	1 024(1 026)	对伞花烃 p-Cymene	C ₁₀ H ₁₄	134	1.37	2.03
13	18.37	1 028(1 028)	D-柠檬烯 D-Limonene	C ₁₀ H ₁₆	136	14.78	11.05
14	18.58	1 033(1 030)	桉树脑 Eucalyptol	C ₁₀ H ₁₈ O	154	21.58	16.10
15	18.87	1 039(1 040)	(Z)-罗勒烯 (Z)-Ocimene	C ₁₀ H ₁₆	154	0.02	0.01
16	19.34	1 048(1 046)	(E)-罗勒烯 (E)-Ocimene	C ₁₀ H ₁₆	136	0.21	0.08
17	19.86	1 057(1 056)	τ-松油烯 τ-Terpinene	C ₁₀ H ₁₆	136	2.16	1.30
18	20.67	1 072(1 073)	顺-4-侧柏醇 cis-4-Thujanol	C ₁₀ H ₁₈ O	154	0.67	0.12
19	21.24	1 082(1 082)	α-异松油烯 α- Terpinolene	C ₁₀ H ₁₆	136	0.60	0.39
20	21.50	1 086(1 086)	小茴香酮 Fenchone	C ₁₀ H ₁₆ O	152	0.01	—
21	22.21	1 098(1 099)	紫苏烯 Perillene	C ₁₀ H ₁₄ O	150	tr	0.01
22	22.37	1 102(1 100)	β-芳樟醇 β-Linalool	C ₁₀ H ₁₈ O	154	0.46	0.22
23	22.51	1 105(1 097)	反-4-侧柏醇 trans-4-thujanol	C ₁₀ H ₁₈ O	154	0.22	0.29
24	23.51	1 127(1 124)	薄荷酮 Menthone	C ₁₀ H ₁₈ O	154	0.01	tr

续表

序号	保留时间 /min	保留指数 RI (参考文献 RI)	化合物	分子式	相对分子质量	相对含量/%	
						SFME	SD
25	23.86	1 134(1 133)	1-异丙基-4-甲基双环[3.1.0]己-3-醇 1-Isopropyl-4-methylbicyclo[3.1.0]hexan-3-ol	C ₁₀ H ₁₈ O	154	0.02	0.04
26	24.40	1 145(1 144)	樟脑 Camphor	C ₁₀ H ₁₆ O	152	0.57	0.04
27	24.73	1 152(1 148)	丁香醛 B Lilac aldehyde B	C ₁₀ H ₁₆ O ₂	168	0.02	—
28	24.89	1 155(1 154)	香茅醛 Citronellal	C ₁₀ H ₁₈ O	154	0.03	0.02
29	25.25	1 163(1 168)	松香芹酮 Pinocarvone	C ₁₀ H ₁₄ O	150	0.02	0.01
30	26.18	1 181(1 182)	L-4-萜品醇 L-4-Terpinenol	C ₁₀ H ₁₈ O	154	0.39	0.57
31	26.93	1 195(1 189)	α-松油醇 α-Terpineol	C ₁₀ H ₁₈ O	154	1.34	0.34
32	27.77	1 213(1 217)	反式-葛缕醇 trans-Carveol	C ₁₀ H ₁₆ O	152	0.08	0.02
33	29.04	1 241(1 245)	百里酚甲醚 Thymol methyl ether	C ₁₁ H ₁₆ O	164	tr	tr
34	31.00	1 281(1 283)	乙酸龙脑酯 Bornyl acetate	C ₂₀ H ₂₀ O ₂	196	0.12	0.08
35	31.57	1 292(1 293)	1,3-对二烯-7-醛 1,3-p-menthadien-7-al	C ₁₀ H ₁₄ O	150	tr	tr
36	32.21	1 306	未鉴定			tr	—
37	32.57	1 315(1 324)	4-乙烯基愈创木酚 4-Vinylguaiacol	C ₉ H ₁₀ O ₂	150	0.01	—
38	33.22	1 330(1 334)	β-广藿香烯 β-Patchoulene	C ₁₀ H ₁₈ O	154	tr	tr
39	33.50	1 337(1 338)	δ-榄香烯 δ-Elemene	C ₁₅ H ₂₄	204	0.06	0.02
40	33.74	1 342(1 345)	α-荜澄茄烯 α-Cubebene	C ₁₅ H ₂₄	204	0.01	0.01
41	34.15	1 352(1 348)	乙酸 α-松油醇酯 α-Terpineol acetate	C ₁₂ H ₂₀ O ₂	196	—	0.09
42	34.37	1 357(1 352)	乙酸香叶酯 Geranyl acetate	C ₁₂ H ₂₀ O ₂	196	0.08	—
43	34.68	1 364(1 369)	依兰烯 Ylangene	C ₁₅ H ₂₄	204	0.02	0.02
44	34.98	1 371(1 374)	α-古巴烯 α-Copaene	C ₁₅ H ₂₄	204	0.02	0.04
45	35.32	1 378(1 382)	β-波旁烯 β-Bourbonene	C ₁₅ H ₂₄	204	0.03	0.07
46	35.53	1 383(1 387)	β-荜澄茄烯 β-Cubebene	C ₁₅ H ₂₄	204	0.02	0.01
47	35.61	1 384(1 392)	β-榄香烯 β-Elemene	C ₁₅ H ₂₄	204	0.02	0.04
48	36.84	1 412(1 418)	β-石竹烯 β-Caryophyllene	C ₁₅ H ₂₄	204	0.26	0.29
49	37.30	1 424(1 427)	β-古芸烯 β-Gurjunene	C ₁₅ H ₂₄	204	0.01	0.02
50	37.89	1 438(1 440)	(±)-杜松烯(±)-Cadinene	C ₁₅ H ₂₄	204	tr	tr
51	38.35	1 449(1 452)	α-律草烯 α-Humulene	C ₁₅ H ₂₄	204	0.07	0.04
52	38.53	1 454(1 447)	(+)-香木兰烯(+)-Aromadendrene	C ₁₅ H ₂₄	204	tr	0.01
53	38.64	1 457(1 458)	(-)-香木兰烯(-)-Alloaromadendrene	C ₁₅ H ₂₄	204	tr	tr
54	39.19	1 469(1 465)	τ-衣兰油烯 τ-Murolene	C ₁₅ H ₂₄	204	0.01	0.02
55	39.42	1 475(1 480)	大根香叶烯 D Germacrene D	C ₁₅ H ₂₄	204	0.50	0.39
56	39.76	1 483(1 491)	巴伦西亚烯 Valencene	C ₁₅ H ₂₄	204	0.02	0.03
57	40.01	1 489(1 495)	大根香叶烯 B Germacrene B	C ₁₅ H ₂₄	204	0.01	0.02
58	40.21	1 493(1 493)	α-衣兰油烯 α-Murolene	C ₁₅ H ₂₄	204	0.01	tr
59	40.31	1 498(1 500)	十五烷 Pentadecane	C ₁₅ H ₃₂	212	0.11	tr
60	40.76	1 507(1 509)	τ-杜松烯 τ-Cadinene	C ₁₅ H ₂₄	204	0.02	tr
61	40.95	1 512(1 520)	δ-杜松烯 δ-Cadinene	C ₁₅ H ₂₄	204	0.08	0.09
62	42.58	1 554(1 554)	榄香醇 Elemol	C ₁₅ H ₂₆ O	222	tr	tr
63	43.35	1 574(1 576)	匙叶桉油烯醇 Spathulenol	C ₁₅ H ₂₄ O	220	0.02	tr
64	46.42	1 654(1 658)	δ-杜松醇 δ-Cadinol	C ₁₅ H ₂₆ O	222	tr	tr

注:1)“tr”表示相对百分含量小于 0.01%;

2)“—”表示未检出

由表2可知,两种方法萃取得到的白玉兰花挥发油的主要成分基本相同。采用微波辅助无溶剂萃取得到的挥发油中共鉴定出63种化合物,主要成分为: α -蒎烯(5.60%)、香桧烯(20.15%)、 β -蒎烯(15.04%)、 β -月桂烯(11.04%)、D-柠檬烯(14.78%)、桉树脑(21.58%)、 τ -松油烯(2.16%)、 α -松油醇(1.34%)。

采用水蒸气蒸馏萃取得到的挥发油中共鉴定出59种化合物,主要成分为: α -蒎烯(9.74%)、香桧烯(26.71%)、 β -蒎烯(15.28%)、 β -月桂烯(11.19%)、D-柠檬烯(11.05%)、桉树脑(16.10%)、 τ -松油烯(1.30%)、 α -异松油烯(0.39%)、 α -松油醇(0.34%)、大根香叶烯D(0.39%)。

3 结 论

通过保留指数与质谱解析相结合,采用微波辅助无溶剂萃取得到的挥发油中共鉴定出63种化合物,采用水蒸气蒸馏萃取得到的挥发油中共鉴定出59种化合物,主要组分均是桉树脑,为辛味成分;单萜类组分如 α -蒎烯、香桧烯、 β -蒎烯、 β -月桂烯、D-柠檬烯等;萜醇类组分,如具有怡人香味的 α -松油醇、 β -芳樟醇、L-4-萜品醇;萜酮类组分樟脑;还含有少量的倍半萜类、醇、酯、醛等化合物。

与专门的微波萃取装置相比,本工作利用普通家用微波炉改装和自制的微波辅助无溶剂萃取装置,具有价格便宜、容易推广使用等优点。而在该装置基础上进行的微波辅助无溶剂萃取技术具有快速、简便、收率高、能耗低等优点。对目标产物挥发油来说,微波辅助无溶剂萃取的挥发油成分与水蒸气蒸馏萃取的挥发油成分基本相同。更为重要的是,在萃取过程中,除鲜活植物玉兰花外,无需添加任何溶剂,完全可以利用鲜活植物自身内部所含的水分实现循环萃取,是一种无溶剂、快速萃取挥发油的技术。因此,在该自制装置基础上建立的微波辅助无溶剂萃取(SFME)是一种真正意义上的快速、收率高的环保节约型无溶剂萃取方法,可用于提取各类新鲜香料植物的挥发油。

参考文献:

[1] 邱天道. 本草外用指南[M]. 北京:军事医学科学

出版社,2001:79.

- [2] 汤天曙,张 鑫,熊卫东,等. 辛夷挥发油的提取及其化学组分的研究[J]. 精细与专用化学品,1997, (18):1-4.
- [3] 杨 建,徐植灵. 辛夷挥发油的成分分析[J]. 中国中药杂志,1998,23(5):295-298.
- [4] 魏刚,赵敏华,方春亮,等. 气质联用追踪筛选辛夷挥发油提取工艺[J]. 时珍国医国药,2000,11(2): 105-106.
- [5] 吴万征. 辛夷挥发油成分的GC-MS分析[J]. 中药材,2000,23(9):538-540.
- [6] 邱 琴,刘廷礼,崔兆杰,等. GC-MS法测定辛夷挥发油成分[J]. 中药材,2001,24(4):269-270.
- [7] 吕金顺,郭 峰. 望春玉兰花蕾挥发油的化学成分分析[J]. 分析化学 2003,31(12):1535.
- [8] 宁坚刚,魏永生. 白玉兰挥发油化学成分的GC/MS分析[J]. 青海师范大学学报:自然科学版,2005,(3):65-68.
- [9] 汪洪武,鲁湘鄂,彭艳霞. 不同季节玉兰花及叶挥发油化学成分的GC-MS分析[J]. 精细化工,2007,24(3):257-260.
- [10] 张坚,孙培龙,徐双阳,等. 白玉兰精油的化学成分[J]. 精细化工,2006,23(4):372-374.
- [11] 张鑫,姚光明,张峻松,等. 超临界CO₂流萃取及与水蒸汽蒸馏萃取辛夷挥发油的化学组分分析[J]. 精细化工,1999,16(6):10-12.
- [12] 李为民,田恒康. 辛夷二氧化碳超临界萃取物的化学成分研究[J]. 中国民族医药杂志,1999,12(增刊):137-138.
- [13] 陈耕夫,冯毅凡,孟 青. 辛夷超临界CO₂提取物的GC/MS分析[J]. 广东药学院学报,2003,19(2):99-103.
- [14] 程朝晖,龚春辉,金波,等. 辛夷超临界萃取物的气相色谱-质谱分析[J]. 中国食品添加剂,2003, (2):109-111.
- [15] LUCCHESI M E, CHEMAT F, SMADJA J. An original solvent free microwave extraction of essential oils from spices[J]. Flavour and Fragrance Journal, 2004, 19(2):134-138.
- [16] LUCCHESI M E, CHEMAT F, SMADJA J. Solvent-free microwave extraction of essential oil from aromatic herbs: comparison with conventional hydro-distillation[J]. Journal of Chromatography A, 2004, 1043(2): 323-327.
- [17] WANG Z M, DING L, LI T C, et al. Improved solvent-free microwave extraction of essential oil from dried *Cuminum cyminum* L. and *Zanthoxylum bungeanum* Maxim[J]. Journal of Chromatography A, 2006, 1102(1/2): 11-17.