

陈皮挥发油的低温连续相变萃取及特性分析

周国海¹, 苗建银^{2,3}, 刘飞⁴, 管晓盛³, 张泳³, 李赞⁵, 杨宜婷⁵, 曹庸²

(1. 泰州学院, 江苏泰州 225300) (2. 华南农业大学食品学院, 广东广州 510642) (3. 钦州学院海洋学院, 广西钦州 535000) (4. 绿萃生物科技有限公司, 广东广州 510642) (5. 无限极(中国)有限公司, 广东广州 510642)

摘要: 陈皮作为传统中药材, 其所含挥发油具有祛痰、平喘等多种药理作用。本研究采用低温连续相变萃取技术从陈皮中提取挥发油, 探讨了原料颗粒度、萃取时间、萃取压力、萃取温度和解析温度对提取率的影响, 并通过 $L_9(3^4)$ 正交试验优化萃取工艺对挥发油提取率的影响。同时对陈皮挥发油理化性质和脂肪酸组成进行了分析。结果表明, 低温连续相变萃取陈皮挥发油的最佳工艺条件为: 原料颗粒度40目, 萃取时间60 min, 萃取压力0.6 MPa, 萃取温度30 °C, 解析温度70 °C, 在此条件下陈皮挥发油的提取率为3.31%。低温连续相变萃取陈皮挥发油呈黄色至红棕色半固体膏状物, 内含10.6%多甲氧基黄酮类物质, 碘值为122.4 g I/100 g, 酸价为73.8 mg KOH/g, 过氧化值为0.1 g/100 g。经GC-MS分析发现, 陈皮挥发油主要脂肪酸组成为亚油酸(30.01%), 十八碳-9-烯酸(25.43%), 亚麻酸(16.32%)和硬脂酸(4.56%)。

关键词: 低温连续相变萃取; 陈皮挥发油; 多甲氧基黄酮; 理化性质; GC-MS

文章编号: 1673-9078(2013)12-2931-2936

Extraction of Volatile Oil from Tangerine Peel by Low-temperature

Continuous Phase Transition and Analysis of Its Properties

ZHOU Guo-hai¹, MIAO Jian-yin^{2,3}, LIU Fei⁴, GUAN Xiao-sheng³, ZHANG Yong³, LI Yun⁵, YANG Yi-ting⁵,
CAO Yong²

(1. Taizhou University, Taizhou 225300, China) (2. College of Food Science, South China Agricultural University, Guangzhou 510642, China) (3. Ocean College, Qinzhou University, Qinzhou 535000, China) (4. Greencream Biotech Co., Ltd, Guangzhou 510642, China) (5. Infinitus (China) Co., Ltd., Guangzhou 510642, China)

Abstract: Tangerine peel is a traditional Chinese medicinal material. The volatile oil of tangerine peel has a variety of pharmacological effects, such as dispelling phlegm and relieving asthma. The volatile oil was extracted by continuous phase transition n-butane in low-temperature environment, and the effects of granularity, extraction time, extraction temperature, extraction pressure and separation temperature were discussed. The orthogonal experiment ($L_9(3^4)$) was adopted to optimize extraction conditions, the extracted yield was 3.31% with granularity of 40 mesh, extraction time of 60 min, extraction temperature of 30 °C, extraction pressure of 0.6 MPa, and separation temperature of 70 °C. The physical and chemical properties and fatty acid compositions of oil were analyzed. The extracted tangerine peel oil was semisolid paste with a yellow to reddish brown color, containing 10.6% of methoxy flavone, iodine value 122.4 g I/100 g, acid value 73.8 mg KOH/g and peroxide value 0.1 g/100 g. The major components of volatile oil from tangerine peel were linoleic acid (30.01%), 9-Octadecenoic acid (25.43%), linolenic acid (16.32%), and stearic acid (4.56%) by GC-MS.

Key words: low temperature continuous phase transition extraction; volatile oil of tangerine peel; polymethoxy flavonoids; physicochemical properties; GC-MS

陈皮为芸香科植物橘及其栽培变种的干燥成熟果

收稿日期: 2013-06-05

基金项目: 广东省教育部产学研结合项目(2011B090400183); 广东省科技计划项目(2011B00400026)

作者简介: 周国海(1964-), 男, 教授、硕士生导师, 主要从事植物化学方面的教学与科研

通讯作者: 曹庸(1966-), 男, 教授, 博导, 研究方向: 天然产物与功能性食品开发

皮, 果皮以陈者良, 故名, 由于产地和栽培品种不同, 分为广陈皮和陈皮两种, 主要分布在广东、四川、重庆、江西等地, 其中以广东新会、广州近郊产者质佳, 以四川、重庆等地产量大。陈皮所含挥发油具有多种生理功效和良好的药用价值^[1-2]。

传统的陈皮挥发油提取方法主要采用水蒸气蒸馏提取法^[3], 超临界提取工艺也是近年来引起广泛关注的陈皮挥发油提取新工艺^[4-5]。水蒸气蒸馏法虽然提取

设备简单,但温度较高,提取时间较长,易使对湿热不稳定的挥发性成分发生变化,超临界提取工艺所得陈皮挥发油品质较高,但该方法存在耐高压设备昂贵,生产成本低,且批处理量小等不足之处,一定程度上限制了其工业化生产。低温连续相变萃取技术是华南农业大学食品学院在超临界、亚临界萃取技术基础上研发而成,该技术以气-液连续相变的萃取溶剂在低温(45℃左右)和较低压力下(0.2~2 MPa)进行萃取。与亚临界技术相比,低温连续相变萃取技术显著优点是可以对物料进行连续的逆流萃取,液相状态的萃取溶剂在低温下萃取目标成分后经减压蒸发气液分离,最终得到产品。整个萃取过程可以在室温或更低的温度下进行,不会对物料中的热敏性成分造成损害。

本研究以陈皮为原料,采用正交试验,通过控制原料颗粒度、萃取温度、压力、时间等因素,探讨了低温连续相变萃取陈皮挥发油的最佳工艺,同时对所得陈皮挥发油组成、基本理化性质和多甲氧基黄酮(PMFs)含量进行分析,旨在为低温连续相变萃取高品质陈皮挥发油生产应用提供理论支持和依据。

1 材料与方法

1.1 材料与设备

干燥的陈皮购自广州市荔湾区清平中药材专业市场。槲皮素对照品:实验室自制;脂肪酸甲酯标准品,购自Sigma公司;正丁烷(99.99%):深圳深燃石油气公司;其余试剂均为分析纯。

低温连续相变萃取装置:珠海共同机械有限公司;GC-MS:Agilent;电子天平,梅特勒-托利多(上海)有限公司;中草药万能粉碎机,浙江温岭市药材机械厂;电热鼓风干燥箱:上海乔跃电子有限公司;智能水分测定仪:沈阳龙腾电子有限公司;V-550紫外-可见光谱仪:广州科桥实验技术设备有限公司。

1.2 试验方法

1.2.1 低温连续相变萃取陈皮挥发油

称取陈皮原料10 kg,粉碎至一定粒度后在烘箱中60℃烘至水分含量4~5%,随后装入20 L低温连续相变萃取釜中密封,设定相关萃取参数进行低温连续相变萃取操作。

陈皮挥发油提取率=陈皮挥发油重(g)/陈皮原料重(g)×100%

1.2.2 陈皮挥发油理化性质分析

陈皮挥发油的酸价、过氧化值及铅、砷、汞的含量均参照GB 2716-2005规定的方法测定,多甲基黄酮

含量测定采用分光光度法^[6]。

1.2.3 陈皮挥发油中脂肪酸组成分析

前处理条件:精密称取萃取得到的陈皮挥发油1.0000 g于100 mL容量瓶,农残级正己烷定容到刻度,混合均匀,吸取0.5 mL于10 mL容量瓶中,用农残级正己烷定容到刻度,混合均匀,过0.45 μm滤膜,上GC-MS检测。

GC-MS分析条件:色谱柱为HP-INNO-WAX毛细管柱(30 m×0.32 mm×0.5 μm);载气为氦气,柱流量为1.0 mL/min,进样量1.0 μL。程序升温条件:初始温度70℃,保持2 min,然后以10℃/min上升到230℃。质谱条件:电离源为EI;电离能量:70 eV;四极杆150℃,进样口250℃,离子源温度280℃;扫描范围:50~550 m/z。

1.2.4 数据处理

所有实验均做3个平行,试验数值以均值±标准差表示。

2 结果与分析

2.1 低温连续相变萃取陈皮挥发油

2.1.1 原料颗粒度对陈皮挥发油提取率的影响

将陈皮原料粉碎至20、40、60、80、100目,在萃取温度35℃,萃取压力0.5 MPa,解析温度60℃,萃取时间60 min条件下进行萃取。结果见图1。

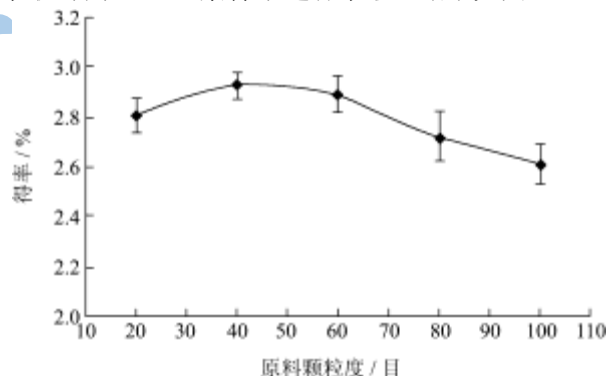


图1 原料颗粒度对陈皮挥发油提取率的影响

Fig.1 Effects of granularity on extraction rate of volatile oil from tangerine peel

从图1可以知,陈皮原料颗粒度在20~40目时,陈皮挥发油提取率呈缓慢增大趋势。随着原料目数不断增大,得油率反呈缓慢下降趋势。这主要是因为,在20~40目条件下,随着目数增大,原料颗粒度变小,使得萃取溶剂与原料的接触面积不断增大,有利于挥发油的充分萃取。但粉碎目数过大时使得原料颗粒度过小,堵塞萃取釜滤网而影响挥发油的有效萃取。所以原料颗粒度选取40目。

2.1.2 萃取压力对陈皮挥发油提取率的影响

将陈皮原料粉碎至 40 目，萃取压力分别设定为 0.3、0.4、0.5、0.6、0.7 MPa，在萃取温度为 35 °C，解析温度 60 °C，萃取时间 60 min 条件下进行萃取。结果见图 2。

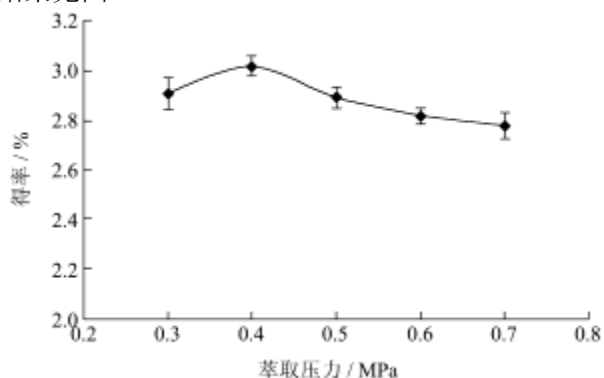


图 2 萃取压力对陈皮挥发油提取率的影响

Fig.2 Effects of pressure on extraction rate of volatile oil from tangerine peel

结果表明，陈皮挥发油在萃取压力从 0.3 MPa 升至 0.4 MPa 时得油率出现显著增大，随着压力不断增大，得油率缓慢下降（图 2）。这是因为在一定压力范围内，压力增大有利于提高萃取溶剂与物料的接触频次，有利于挥发油的充分溶出。但压力过大时增大了萃取釜中物料堆密度，抑制萃取溶剂流速而导致萃取率降低。可见 0.4 MPa 是最佳萃取压力，此压力仅为超临界萃取压力的 1/75^[7]。较低萃取压力不但减小了操作系统的危险性，同时对设备的耐压要求较小，有利于降低设备生产成本和在实际生产中的推广应用。

2.1.3 萃取温度对挥发陈皮挥发油提取率的影响

将陈皮原料粉碎至 40 目，设定萃取温度分别为 30、35、40、45、50 °C，在萃取压力 0.4 MPa，解析温度 60 °C，萃取时间 60 min 条件下进行萃取。结果见图 3。

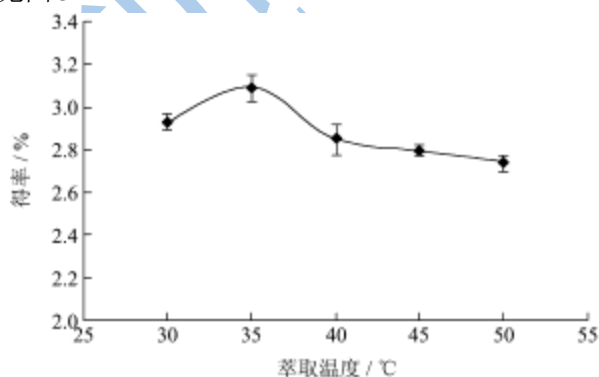


图 3 萃取温度对陈皮挥发油提取率的影响

Fig.3 Effects of temperature on extraction rate of volatile oil from tangerine peel

萃取温度是影响陈皮挥发油提取率的另一重要因素。由图 3 可知，萃取温度为 35 °C 时陈皮挥发油提取率最高，随后萃取率缓慢下降。温度升高，萃取溶剂扩散速率增加，有利于穿透物料深层增大提取率，但温度过高时加快萃取溶剂汽化，溶解能力反而降低。

2.1.4 萃取时间对陈皮挥发油提取率的影响

将陈皮原料粉碎至 40 目，设定萃取时间分别 30、50、70、90、110 min，在萃取温度 35 °C，萃取压力 0.4 MPa，解析温度 60 °C 条件下进行萃取。结果见图 4。

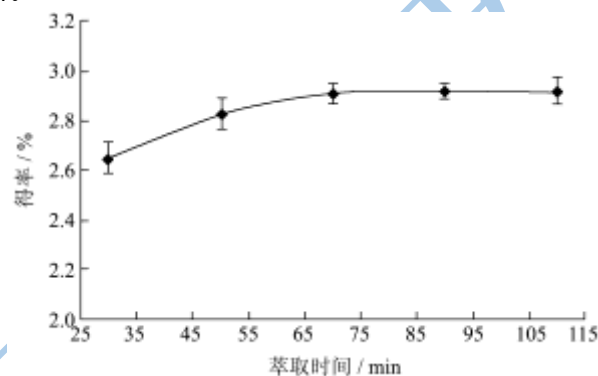


图 4 萃取时间对陈皮挥发油提取率的影响

Fig.4 Effects of time on extraction rate of volatile oil from tangerine peel

从图 4 可以知，随着萃取时间延长，陈皮挥发油提取率不断上升，但萃取 70 min 后提取率增幅趋缓，考虑到萃取时间过长会增加能耗和生产成本，最佳提取时间选取 70 min，此萃取时间约为水蒸馏法提取陈皮挥发油萃取时间的 1/5^[8]。

2.1.5 解析温度对陈皮挥发油提取率的影响

将陈皮原料粉碎至 40 目，设定解析温度分别为 60、65、70、75、80 °C，在萃取温度 35 °C，萃取压力 0.4 MPa，萃取时间 70 min 条件下进行萃取。结果见图 5。

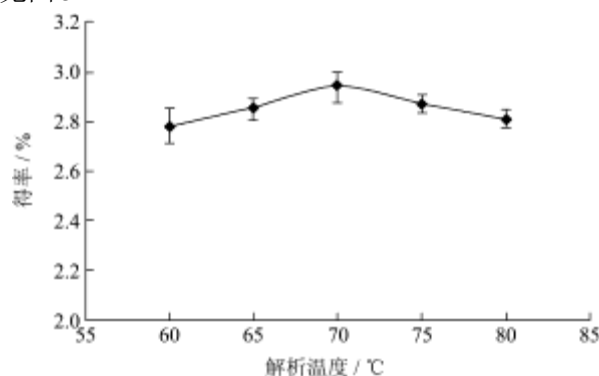


图 5 解析温度对陈皮挥发油提取率的影响

Fig.5 Effects of separation temperature on extraction rate of volatile oil from tangerine peel

解析温度从 60 °C 升高至 70 °C，陈皮挥发油提取

率不断升高, 但随后提取率出现缓慢下降。这是因为在解析釜中, 压力降低, 正丁烷萃取溶剂转变为气体状态, 使处于过饱和状态的萃取物分离出来, 在 60 °C~70 °C 温度范围内, 升温使萃取溶剂溶解度的提升难以补偿萃取溶剂密度降低所造成的溶解度下降, 因此提取率得到提高, 但温度不断升高也会造成挥发性油的大量损失而使得油量下降。因此, 最佳解析温度选取 70 °C。

2.1.6 萃取工艺优化试验

表1 正交试验因素水平表

Table 1 Primary variables and levels used in the orthogonal design

实验号	A (萃取时间/min)	B (解析温度/°C)	C (萃取温度/°C)	D (萃取压力/MPa)
1	50	65	30	0.3
2	70	70	35	0.4
3	90	75	40	0.5

表2 L₉(3⁴) 正交实验结果

Table 2 Results obtained under the experimental conditions using the L₉(3⁴) orthogonal design

实验号	A	B	C	D	提取率/%
1	1	1	1	1	3.01
2	1	2	2	2	2.98
3	1	3	3	3	3.26
4	2	1	2	3	3.11
5	2	2	3	1	2.93
6	2	3	1	2	3.23
7	3	1	3	2	2.21
8	3	2	1	3	3.22
9	3	3	2	1	3.13
k ₁	3.083	2.777	3.153	3.023	
k ₂	3.090	3.043	3.073	2.807	
k ₃	2.853	3.207	2.800	3.197	
R	0.237	0.430	0.353	0.390	

从表2分析可以看出, 各因素对陈皮挥发油提取率影响大小为: B>D>C>A, 表明解析温度对陈皮挥发油低温连续相变萃取提取率影响最大, 其次为萃取压力和萃取温度, 萃取时间影响较小。各因素的最优水平组合为 A₂B₃C₁D₃, 验证实验表明, 在 A₂B₃C₁D₃ 条件下提取率为 3.31%, 显著高于已报道的传统水蒸气蒸馏法提取工艺和超临界提取工艺^[9-10]。所以各因素的最优水平组合 A₂B₃C₁D₃, 即原料颗粒度 40 目, 萃取时间 70 min, 解析温度 75 °C, 萃取温度 30 °C, 萃取压力 0.5 MPa。

2.2 低温连续相变萃取陈皮挥发油理化性质分析

在上述最佳的萃取工艺条件下, 利用低温连续相变萃取设备获取陈皮挥发油, 然后对陈皮挥发油的部分理化性质进行分析, 结果见表3。

表3 陈皮挥发油部分理化性质

Table 3 Physical and chemical properties of volatile oil from tangerine peel

理化指标	低温连续相变萃取陈皮挥发油
酸价/(mg KOH/g)	73.08
过氧化值/(g/100g)	0.1
碘值/(g I/100g)	122.4
多甲氧基黄酮/%	10.6
铅/(mg/kg)	<0.1
砷/(mg/kg)	<0.1
汞/(mg/kg)	<0.1
色泽	黄色至红棕色
形态	半固体膏状
气味	有陈皮挥发油特有的香味, 香气浓郁, 无异味
杂质	无肉眼可见杂质

低温连续相变萃取陈皮挥发油在室温下为黄色至红棕色半固体膏状物, 有陈皮挥发油特有的浓郁香味, 无异味, 无肉眼可见杂质, 内含 10.6% 多甲基黄酮类物质, 碘值为 122.4 g I/100 g, 酸价为 73.8 mg KOH/g, 过氧化值为 0.1g/100 g, 同时挥发油中铅、砷、汞含量均低于 0.1 mg/kg。从结果可以看出陈皮挥发油的碘值远高于茶油的碘值^[11], 碘值反映了陈皮挥发油的不饱和程度, 这说明陈皮挥发油中陈皮挥发油不饱和程度较高。陈皮挥发油的酸价远超出《GB 2716-2005 食用植物油卫生标准》中规定的食用植物油的酸价 (≤4 mg/g), 酸价是衡量陈皮挥发油游离脂肪酸含量的指标, 经过多次测量可以确定, 这可能是由于陈皮原料本身的原因。同时可以发现, 虽然陈皮挥发油不饱和度较高, 但过氧化值较低, 仅为 0.1g/100 g, 这主要是因为低温连续相变萃取以正丁烷作为萃取剂, 在循环的气-液相变下完成萃取过程, 不与空气接触, 萃取温度也比较低, 可以有效避免多不饱和脂肪酸的氧化。多甲氧基黄酮具有抗癌、预防心血管疾病和抗菌等功能活性^[12-13], 通过低温连续相变萃取提取多甲氧基黄酮的含量远高于传统水提工艺和醇提工艺, 略低于超临界提取工艺^[6]。

2.3 GC-MS 法分析陈皮挥发油化学成分

采用 GC-MS 法对制备的陈皮挥发油化学组成及含量进行分析, 结果如下图 6 和表 4。

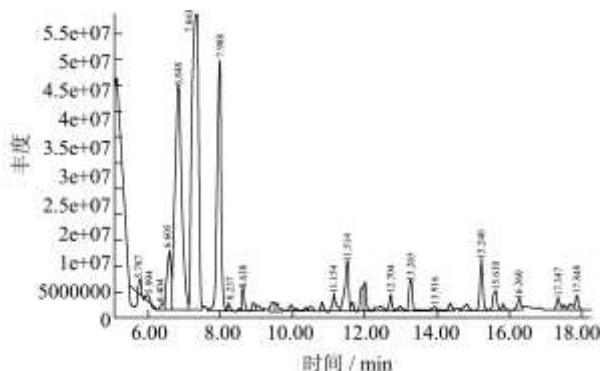


图 6 陈皮挥发油总离子流图

Fig.6 Total ion chromatogram of volatile oil from tangerine peel

表 4 陈皮挥发油化学成分 GC-MS 分析结果

Table 4 The chemical constituents of volatile oil from tangerine peel analyzed by GC-MS

峰序号	保留时间/min	化合物	分子式	相对含量/%
1	5.995	顺-10-十七碳烯酸	C ₁₈ H ₃₄ O ₂	0.28
2	6.606	硬脂酸	C ₁₉ H ₃₈ O ₂	4.56
3	6.849	十八碳-9-烯酸	C ₁₉ H ₃₆ O ₂	25.43
4	7.345	亚油酸	C ₁₉ H ₃₄ O ₂	30.01
5	7.986	亚麻酸	C ₁₉ H ₃₂ O ₂	16.32
6	9.454	十七烯	C ₁₇ H ₃₄	0.59
7	9.957	16-十七烷酸	C ₁₉ H ₃₈ O ₂	0.39
8	11.156	(6Z,9Z,11E)-十八碳三烯酸	C ₁₉ H ₃₂ O ₂	1.15
9	11.928	(9Z,11Z,13E)-十八碳三烯酸	C ₁₉ H ₃₂ O ₂	1.14
10	11.999	(6Z,9Z,11E)-十八碳三烯酸	C ₁₉ H ₃₂ O ₂	1.27
11	11.293	十八(碳)烯酸	C ₁₈ H ₃₄ O ₂	0.26
12	12.445	十八烷	C ₁₈ H ₃₈	0.33
13	12.705	十六酸	C ₁₆ H ₃₂ O ₂	0.8
14	13.265	二十酸	C ₂₁ H ₄₂ O ₂	1.54
15	13.917	4,8,12,16-四甲基十七碳烯酸	C ₂₁ H ₄₀ O ₂	0.16
16	14.804	(9Z,11E,13E,15Z)-十八碳四烯酸	C ₁₈ H ₂₈ O ₂	0.35
17	15.233	十七酸	C ₁₉ H ₃₈ O ₂	2.74
18	15.611	反式角鲨烯	C ₃₀ H ₅₀	1.33
19	15.827	(9Z,11E,13E,15Z)-十八碳四烯酸	C ₁₈ H ₂₈ O ₂	0.33

20	16.387	2-甲基-2-丙烯酸十七烷酯	C ₂₁ H ₄₀ O ₂	0.14
21	17.349	正十九酸	C ₂₀ H ₄₀ O ₂	0.71
22	17.508	反油酸	C ₁₈ H ₃₄ O ₂	0.27
23	17.849	1,2-苯二甲酸	C ₁₆ H ₂₂ O ₄	0.7

从结果可知, 陈皮挥发油中含量较高的组分为亚油酸 (30.01%)、十八碳-9-烯酸 (25.43%)、亚麻酸 (16.32%)、硬脂酸 (4.56%) 等组分, 同时可以发现, 通过低温连续相变萃取所得陈皮挥发油中化学组分高于水蒸气蒸馏提取法组分^[4], 提取的物质比较全面, 能更好的保存原料的风味。

3 结论

3.1 低温连续相变萃取陈皮挥发油的最佳工艺条件为: 原料颗粒度 40 目, 萃取时间 70 min, 萃取压力 0.5 MPa, 萃取温度 30 °C, 解析温度 75 °C。

3.2 低温连续相变萃取陈皮挥发油在室温下为黄色至红棕色半固体膏状物, 有陈皮挥发油特有的浓郁香味, 无异味, 无肉眼可见杂质, 内含 10.6% 多甲基黄酮类物质, 碘值为 122.4 g I/100 g, 酸价为 73.8 mg KOH/g, 过氧化值为 0.1 g/100 g, 同时挥发油中铅、砷、汞含量均低于 0.1 mg/kg。

3.3 通过低温连续相变萃取所得陈皮挥发油中呈味组分较多, 提取的物质较全面, 能更好的保存原料的风味。陈皮挥发油以不饱和脂肪酸为主, 且多数具有呈味挥发特性, 因此在提取、储存和运输等过程中应注意防止因发生氧化而造成营养物质损失, 失去其保健功效。

参考文献

- [1] Van Hung P, Chi P T L, Phi N T L. Comparison of antifungal activities of Vietnamese citrus essential oils [J]. Natural Product Research, 2013, 27(4-5): 506-508
- [2] Crandall P G, Ricke S C, O'Bryan C A, et al. In vitro effects of citrus oils against Mycobacterium tuberculosis and non-tuberculous Mycobacteria of clinical importance [J]. Journal of Environmental Science and Health, Part B, 2012, 47(7): 736-741
- [3] Sahraoui N, Vian M A, El Maataoui M, et al. Valorization of citrus by-products using Microwave Steam Distillation (MSD) [J]. Innovative Food Science & Emerging Technologies, 2011, 12(2): 163-170
- [4] Mira B, Blasco M, Berna A, et al. Supercritical CO₂ extraction of essential oil from orange peel. Effect of operation conditions on the extract composition [J]. The

- Journal of supercritical fluids, 1999, 14(2): 95-104
- [5] Mira B, Blasco M, Subirats S, et al. Supercritical CO₂ extraction of essential oils from orange peel [J]. The Journal of Supercritical Fluids, 1996, 9(4): 238-243
- [6] 杨宜婷,罗璇捷,叶勇树,等.不同储存年限广陈皮的多甲氧基黄酮的提取研究[J].食品工业科技,2011,32(9):258-260
Yang Y T, Luo H J, Ye Y S, et al. Study on the extraction of polymethoxylated flavones from *Citrus reticulata* 'Chachi' of different storage years [J]. Science and Technology of Food Industry, 2011, 32(9): 258-260
- [7] 罗欢,夏伦祝,韩燕全,等.正交设计优选陈皮超临界 CO₂ 萃取工艺[J].山西中医学院学报,2012,13(1):33-36
Luo H, Xia L Z, Han Y Q, et al. Optimum Supercritical CO₂ Extraction Technology of Tangerine Peel by Orthogonal Design [J]. Journal of Shanxi College of Traditional Chinese Medicine, 2012, 13(1): 33-36
- [8] 李瑞明,岑帼英,邝翠仪,等.正交法优选陈皮挥发油提取工艺[J].中国药业,2006,15(1):47
Li R M, Cen Guo Y, Kuang C Y, et al. Optimization of Extraction Process of Pericarpium Citri Reticulatae Volatile Oil by Orthogonal Design [J]. China Pharma Ceuticals, 2006, 15(1): 47
- [9] 姚凤云,段富津,肖洪彬,等.正交试验法优选陈皮挥发油提取工艺[J].药品评价,2006,3(3):189-190
Yao F Y, Duan F J, Xiao H B, et al. Optimization of extraction process of pericarpium citri reticulatae volatile oil by orthogonal design [J]. Drug Evaluation, 2006, 3(3): 189-190
- [10] 刘发宝,曾建国,李文亮,等.超临界 CO₂ 萃取法和水蒸气蒸馏法提取陈皮挥发油的比较[J].中南药学,2010,8(12): 883-886
Liu F B, Zeng J G, Li W L, et al. Constituent of essential oil from tangerine peel by supercritical-CO₂ fluid extraction and steam distillation [J]. Central South Pharmacy, 2010, 8(12): 883-886
- [11] 恽卓婷,廖鲜艳,翁新楚.茶叶籽油与油茶籽油理化性质及脂肪酸组成比较[J].食品工业科技,2011,32(9):258-260
Yun Z T, Liao X Y, Weng X C, et al. Comparison of physicochemical properties and fatty acids composition of tea seed oil and camellia oleifera seed oil [J]. Science and Technology of Food Industry, 2011, 32(9): 258-260
- [12] Onoue S, Uchida A, Takahashi H, et al. Development of high - energy amorphous solid dispersion of nanosized nobiletin, a citrus polymethoxylated flavone, with improved oral bioavailability [J]. Journal of pharmaceutical sciences, 2011, 100(9): 3793-3801
- [13] Sohn H Y, Son K H, Kwon C S, et al. Antimicrobial and cytotoxic activity of 18 prenylated flavonoids isolated from medicinal plants: *Morus alba* L, *Morus mongolica* Schneider, *Broussonetia papyrifera* (L.) Vent, *Sophora flavescens* Ait and *Echinosophora koreensis* Nakai [J]. Phytomedicine, 2004, 11(7): 666-672
- [14] 潘靖文.GC-MS分析不同采收期广陈皮中挥发油成分的变化[J].中国医药指南,2011,9(21):258-259
Pan J W. Analyzing the change of the volatile oil components of tangerine peel in different harvest time by GC-MS [J]. Guide of China Medicine, 2011, 9(21): 258-259