

静态微波真空干燥技术制备烟草内源性固体香料

秦永存¹, 吴明美^{2*}, 刘煜宇², 杨艳梅²

(1. 河北白沙烟草有限责任公司, 河北石家庄 050035; 2. 云南瑞升烟草技术(集团)有限公司, 云南昆明 650106)

摘要 [目的]采用静态微波真空干燥技术制备烟草内源性固体香料。[方法]对烟草提取物进行静态微波真空干燥,通过对其挥发性成分的分析,以及与不同方法干燥后所得的样品进行比较。[结果]经微波真空干燥后的样品,其成分大部分与干燥前的样品一致,产品品质稳定;对样品进行3种干燥处理,静态微波真空干燥对于烟草重要香味物质的保留更为完整,烟碱含量最低,为56.7%, β -大马酮含量为0.68%,比喷雾干燥(0.25%)和冷冻干燥(0.17%)均有较大提高,分别提升了1.72倍和3.00倍,是较优的干燥方法;三角评吸结果显示,静态微波真空干燥后的样品与原提取物无差异。[结论]该技术运用于烟用香料,不仅不会改变烟草提取物的化学成分,还能延长产品存储时间,为开发高纯度烟用香精香料提供广阔的空间和应用价值。

关键词 微波干燥; 烟草香料; 应用

中图分类号 S572 文献标识码 A 文章编号 0517-6611(2016)22-107-04

Tobacco Endogenous Solid Flavor Prepared by Vacuum Microwave Drying Technology

QIN Yong-cun¹, WU Ming-mei², LIU Yu-yu² et al (1. Hebei Baisha Tobacco Co. Ltd., Shijiazhuang, Hebei 050035; 2. Yunnan Reascend Tobacco Technology (Group) Co. Ltd., Kunming, Yunnan 650106)

Abstract [Objective] The aim was to prepare tobacco endogenous solid flavor by vacuum microwave drying technology. [Method] Static microwave vacuum drying was conducted on tobacco extracts, volatile components were analyzed, samples obtained by different drying methods were compared. [Result] The results showed that after vacuum static microwave drying, most of its components were consistent with the sample before drying, product quality remained stable; three drying methods were adopted to process the samples, static vacuum microwave drying could retain most complete tobacco important aroma, nicotine content was lowest as 56.7%, β -damascenone content was 0.68%, compared to spray drying (0.25%) and freeze-dried (0.17%) were greatly improved, which was raised 1.72 and 3.00 times. It was the optimum drying method; The result of triangle smoking showed that the sample under the static vacuum microwave drying was no difference with the original extract. [Conclusion] The technology used in tobacco flavor does not change chemical composition of tobacco extracts, but can extend the storage time of the product. It offers a wide range of space and value to develop the high purity tobacco flavors.

Abstract Microwave drying; Tobacco flavor; Application

目前,烟草内源性香料普遍为膏体或流体状态的提取物,在提取过程中使用大量有机溶剂,使得萃取后产品中有部分溶剂残留,后期为了防腐又加入新溶剂保存,最终导致产品纯度不高。为了得到不含溶剂的高纯度烟草内源性香料,需要去除溶剂,获得烟草固体粉末状态香料。烟草内源性香料采用多种干燥方式进行试验,其中,普通真空干燥时间较长,成本较高,状态不理想^[1-2]。冷冻干燥状态好,但时间较长,成本较高,无法实现大规模生产^[3-5]。喷雾干燥需要加入辅助剂^[6-9],这对卷烟抽吸品质有直接影响。用静态微波真空干燥方法^[10-12]干燥,烟草浸膏整体被加热,干燥温度低,干燥时间短,内部水分易被排出,干燥均匀,样品疏松易粉碎,低温下有效成分更好地保留下来,得到的样品品质高。

静态微波真空干燥技术^[13]是利用微波技术和真空技术相结合,在低温低压状态下进行快速干燥。在低温低压下干燥时氧含量低,被干燥物料氧化反应减弱变缓,从而保证物料的风味、外观和色泽。目前大部分厂家微波真空干燥时采用立体或水平旋转干燥物料,但旋转干燥因为在加热器内加入金属传动机构,在运行中可能会产生打火,存在安全隐患。同时,物料运动中出现翻盘、掉盘、溢盘,设备清洗困难。采用静态干燥,实现了智能控制,无传动器,安全生产有保证,而且可以最大限度地利用设备的有效空间,浸膏装量可以增

加1~2倍,能耗降低30%。该技术在低温低压环境中进行,不会使烟草内源性提取物成分发生改变,是一种较好的制备烟草内源性干粉香料的方法,可以极大地减少耗能,时间短,成本低,且可以实现大规模生产。目前该技术在烟草领域尚未运用。笔者对烟草提取物进行静态真空干燥,通过对其挥发性成分的分析,以及与不同方法干燥后所得的样品进行比较,以期为开发高纯度烟用香精香料提供广阔的空间和应用价值。

1 材料与方法

1.1 材料

自制烟草提取物(膏状)(烟草提取物1)。

1.2 仪器 微波真空干燥机:WBZ-10型智能化静态微波真空干燥设备(贵阳新奇微波工业有限责任公司),喷雾干燥机:B-290Spray Dryer 喷雾干燥机(瑞士 BUCHI 公司),冷冻干燥机:低温冷冻干燥机 FD-1A-50(上海比朗仪器制造有限公司),恒温恒湿箱:德国 BINDER。

1.3 方法

1.3.1 喷雾干燥。 烟草提取物2:称取烟草提取物200 g,以麦芽糊精为辅助剂,其添加量为烟膏质量的20%,设备的进风温度为160 °C,热空气流量为34 m³/h,压缩空气流量为450 L/h,出风温度为70 °C。

1.3.2 冷冻干燥。 烟草提取物3:称取烟草提取物200 g,放入料盘中,设定冻结温度为-25 °C,冷阱温度为-30 °C,真空度为10~20 Pa,冻干最终温度为60 °C。

1.3.3 静态微波真空干燥。 烟草提取物4:称取烟草提取物500 g,放入硅胶盒中,置于微波装置内,干燥温度为50~90 °C,干燥时间104 min。

作者简介 秦永存(1981-),男,河南新乡人,工程师,从事烟草工艺研究。*通讯作者,工程师,硕士,从事天然香料开发研究。

收稿日期 2016-06-22

1.3.4 GC-MS 分析条件。色谱条件:采用 DB-5 色谱柱,柱长 30 m,内径 0.25 mm,液膜厚度 0.25 μm;起始柱温为 50 ℃,保留 2 min,以 6 ℃/min 升至 280 ℃,保留 3 min;进样口温度为 280 ℃,不分流进样;载气为氮气,纯度 >99.999%,流速 1 mL/min。质谱条件:电子轰击 (EI) 离子源,电子能量 70 eV,阱温 180 ℃,阱外套温度 40 ℃,传输线温度 280 ℃。采用全谱扫描,扫描范围为 40~400 m/z。

1.3.5 评吸法。烟草提取物 1:按 20% 的比例,用蒸馏水进行稀释,按加料的方式,以单箱 20 g 的比例添加到紫云叶组中,置于恒温恒湿箱中平衡 48 h 后,制备成卷烟。

烟草提取物 2,3,4:按 10% 的比例,用蒸馏水进行稀释,按加料的方式,以单箱 20 g 的比例添加到紫云叶组中,置于恒温恒湿箱中平衡 48 h 后,制备成卷烟。

评吸方法:采用三角评吸法,即向评吸人员同时提供一系列编组的 3 个样烟,其中 2 个相同,1 个不同,要求评吸人员从中选出一个不同的样品。

2 结果与分析

2.1 干燥前后挥发性成分的比较 采用 GC-MS 检测分析方法,对干燥前后的烟草提取物进行挥发性成分检测,结果见表 1。由表 1 可知,经微波真空干燥后的样品,其成分大

表 1 样品干燥前后挥发性成分检测结果

Table 1 Test results of volatile components before and after drying

保留时间 Retention time/min	化合物名称 Compounds		干燥前 Before drying	干燥后 After drying
2.33	2 - Propanone, 1 - hydroxy -	1 - 羟基 - 2 - 丙酮	0.03	0.24
4.34	R - (-) - 1,2 - propanediol	1,2 - 丙二醇	93.82	46.04
4.67	Furfural	糠醛	0.20	0.55
5.21	2 - Furanmethanol	糠醇	0.04	0.85
6.51	Ethanone, 1 - (2 - furanyl) -	1 - (2 - 吲喃基) - 乙酮	—	0.10
6.58	2(5H) - Furaneone	2(5H) - 吲喃酮	—	0.15
7.75	2 - Furancarboxylmethanol, 5 - methyl -	5 - 甲基 - 2 - 吲喃甲醇	0.01	0.10
7.87	Benzaldehyde	苯甲醛	0.06	—
7.98	2 - Furancarboxaldehyde, 5 - methyl -	5 - 甲基 - 2 - 糠醛	0.01	0.15
8.65	5 - Hepten - 2 - one, 6 - methyl -	6 - 甲基 - 5 - 庚烯 - 2 - 酮	0.01	—
9.97	Benzyl Alcohol	苯乙醇	—	0.01
10.29	Benzeneacetaldehyde	苯乙醛	0.05	0.03
10.88	Ethanone, 1 - (1H - pyrrol - 2 - yl) -	1 - (1H - 吡咯 - 2 - 基) - 乙酮	0.01	0.22
11.42	Methyl 2 - furoate	糠酸甲酯	—	0.04
12.06	Nonanal	壬醛	—	0.35
12.55	1H - Pyrrole - 2 - carboxaldehyde, 1 - methyl -	1 - 甲基 - 1H - 吡咯 - 2 - 甲醛	—	0.04
13.33	4H - Pyran - 4 - one, 2,3 - dihydro - 3,5 - dihydroxy 2,3 - 二氢 - 3,5 - 二羟基 - 6 - 甲基 - 4H - 吲哚 - 4 - 酮	—	0.02	5.24
13.65	3 - Ethoxyacrylonitrile	3 - 乙氧基丙烯腈	—	0.73
13.97	Benzene carboxylic acid	苯甲酸	—	0.17
14.02	Benzoic acid, ethyl ester	苯甲酸乙酯	0.01	—
14.36	Naphthalene	萘	0.01	—
14.77	Octanoic acid, ethyl ester	辛酸乙酯	0.01	—
14.87	1,3 - Cyclohexadiene - 1 - carboxaldehyde, 2,6,6 - trimethyl -	藏花醛	0.01	—
15.00	Decanal	癸醛	—	0.10
15.60	2 - Furancarboxaldehyde, 5 - (hydroxymethyl) -	5 - 羟甲基 - 糠醛	—	0.25
16.12	Benzeneacetic acid, ethyl ester	苯乙酸乙酯	0.03	—
16.36	Naphthalene, 1,2,3,4 - tetrahydro - 1,6,8 - trimethyl -	1,2,3,4 - 四氢 - 1,6,8 - 三甲基萘	0.03	—
17.46	Naphthalene, 1 - methyl -	1 - 甲基 - 萘	0	—
18.04	4 - Hydroxy - 3 - methylacetophenone	2 - 甲氧基 - 4 - 乙烯基苯酚	0.01	—
18.27	1H - Indene, 2,3 - dihydro - 1,1,5,6 - tetramethyl -	2,3 - 二氢 - 1,1,5,6 - 四甲基 - 1H - 莴	0.01	—
18.90	Pyridine, 2 - (1 - methyl - 2 - pyrrolidinyl) -	烟碱	2.18	27.84
19.40	Solanone	茄酮	0.11	—
19.91	2 - Buten - 1 - one, 1 - (2,6,6 - trimethyl - 1,3 - cy - β - 大马酮 cyclohexadien - 1 - yl) - , (E) -	—	0.05	—
20.07	Naphthalene, 1,2 - dihydro - 1,5,8 - trimethyl -	1,2 - 二氢 - 1,5,8 - 三甲基 - 萘	0.01	—
20.14	Naphthalene, 1,2 - dihydro - 2,5,8 - trimethyl -	1,2 - 二氢 - 2,5,8 - 三甲基 - 萘	0.01	—
20.71	2 - Buten - 1 - one, 1 - (2,6,6 - trimethyl - 1 - cyclo - 1 - (2,6,6 - 三甲基 - 1 - 环己烯 - 1 - 基) - 2 - 丁 hexen - 1 - yl) -	烯 - 1 - 酮	0.02	—
21.72	5,9 - Undecadien - 2 - one, 6,10 - dimethyl - , (E)	香叶基丙酮	0.03	—
22.47	Pyridine, 3 - (1 - methyl - 1H - pyrrol - 2 - yl) -	二烯烟碱	0.04	0.28
23.46	2,3' - Dipyrlydyl	2,3' - 二吡啶	0.01	0.10
24.08	Megastigmatrienone	巨豆三烯酮 A	0.03	0.01
24.40	Megastigmatrienone	巨豆三烯酮 B	0.07	0.03
24.65	Diethyl Phthalate	邻苯二甲酸二乙酯	—	0.06
24.92	Benzene, (4,5,5 - trimethyl - 1,3 - cyclopentadien - 1 (4,5,5 - 三甲基 - 1,3 - 环戊二烯 - 1 - 基) - 苯 - yl) -	—	0.03	—
24.98	Megastigmatrienone	巨豆三烯酮 C	0.02	0.06
25.18	Megastigmatrienone	巨豆三烯酮 D	0.06	0.04
27.97	Neophytadiene	新植二烯	0.15	—

接下表

续表 1

保留时间 Retention time // min	化合物名称 Compounds		干燥前 Before drying	干燥后 After drying
28.57	Benzoic acid, octyl ester	苯甲酸辛基酯	—	0.12
28.93	Hexadecanoic acid, methyl ester	十六酸甲酯	—	0.12
29.65	Hexadecanoic acid, ethyl ester	十六酸乙酯	0.05	

注: SPME 80 °C。

Note: SPME 80 °C.

部分与干燥前的样品一致。有些成分与干燥前的样品不一致,其原因可能是经过加热干燥后有些易挥发物质挥发后导致其含量降低,或是在高温条件下发生了化学变化,生成了其他物质。水分去除后,巨豆三烯酮等重要致香成分比干燥前含量更高,有利于抽吸品质的提升。

2.2 不同干燥方法的比较 对烟草提取物(1)、喷雾干燥(2)、冷冻干燥(3)、微波真空干燥(4)的样品进行挥发性成分的检测,其检测结果见表 2。

从图1可以看出,经干燥后的样品中,微波真空干燥的样品中烟碱含量最低,为 56.7%,冷冻干燥后的样品中烟碱

表 2 样品成分检测结果

Table 2 Test results of sample composition

保留时间 Retention time // min	化合物名称 Compounds		百分含量 Percentage composition // %			
			1	2	3	4
2.16	Butanal, 3 - methyl -	3 - 甲基 - 丁醛	—	—	—	0.78
2.23	Butanal, 2 - methyl -	2 - 甲基 - 丁醛	—	—	—	1.09
2.64	2 - Butanone, 3 - hydroxy -	3 - 羟基 - 2 - 丁酮	—	2.52	—	—
2.94	1 - Butanol, 3 - methyl -	3 - 甲基 - 1 - 丁醇	—	—	—	0.19
3.80	2,3 - Butanediol	2,3 - 丁二醇	—	0.88	—	—
4.56	Furfural	糠醛	—	0.68	0.17	2.35
5.04	2 - Furanmethanol	糠醇	—	1.02	—	2.19
6.42	Ethanone, 1 - (2 - furanyl) -	1 - (2 - 吡喃基) - 乙酮	—	—	—	0.42
7.72	Benzaldehyde	苯甲醛	—	0.41	—	0.43
7.83	2 - Furancarboxaldehyde, 5 - methyl -	5 - 甲基 - 2 - 糠醛	—	—	—	1.04
8.33	Phenol	苯酚	—	1.64	—	—
9.04	1H - Pyrrole - 2 - carboxaldehyde, 1 - methyl -	1 - 甲基 - 1H - 吡咯 - 2 - 甲醛	—	0.42	—	—
9.88	Benzyl Alcohol	苯甲醇	—	1.50	0.63	—
10.12	Benzeneacetaldehyde	苯乙醛	—	1.31	0.24	1.83
11.32	Benzenemethanol, . alpha. ,. alpha. - dimethyl -	α,α - 二甲基 - 苯甲醇	—	—	0.25	—
12.21	Phenylethyl Alcohol	苯乙醇	—	1.07	0.22	—
12.89	Benzyl nitrile	苯乙腈	—	—	0.38	—
13.03	4H - Pyran - 4 - one, 2,3 - dihydro - 3,5 - dihydroxy - 6 - methyl -	2,3 - 二氢 - 3,5 - 二羟基 - 6 - 甲基 - 4H - 吡喃 - 4 - 酮	—	—	—	3.96
14.64	1,3 - Cyclohexadiene - 1 - carboxaldehyde, 2,6,6 - trimethyl -	2,6,6 - 三甲基 - 1,3 - 环己二烯 - 1 - 甲醛	—	—	—	0.16
15.54	2 - Furancarboxaldehyde, 5 - (hydroxymethyl) -	5 - 羟甲基 - 糠醛	—	—	—	0.38
16.09	Naphthalene, 1,2,3,4 - tetrahydro - 1,1,6 - trimethyl -	紫罗烯	—	—	—	0.31
16.84	Nonanoic acid	壬酸	—	—	—	1.46
18.65	nicotine	烟碱	15.36	62.91	81.72	56.70
19.14	Solanone	茄酮	3.14	0.69	0.89	—
19.65	2 - Buten - 1 - one, 1 - (2,6,6 - trimethyl - 1,3 - cyclohexadien - 1 - yl) - , (E) -	β - 大马酮	0.42	0.25	0.29	0.68
20.43	2 - Buten - 1 - one, 1 - (2,6,6 - trimethyl - 1,3 - cyclohexadien - 1 - yl) -	α - 大马酮	—	—	0.17	—
21.45	6,10 - dimethylundeca - 5,9 - dien - 2 - one	香叶基丙酮	0.27	—	—	—
22.27	Pyridine, 3 - (1 - methyl - 1H - pyrrol - 2 - yl) -	二烯烟碱	2.00	11.00	6.01	8.43
22.88	2,6 - Di - tert - butyl - 4 - methylphenol	丁基化羟基甲苯	0.73	—	—	—
23.31	2(4H) - Benzofuranone, 5,6,7,7a - tetrahydro - 4,4,7a - trimethyl -	二氢猕猴桃内酯	0.40	0.96	0.51	0.32
23.89	Megastigmatrienone	巨豆三烯酮 A	0.56	0.19	0.30	0.27
24.20	Megastigmatrienone	巨豆三烯酮 B	1.83	0.68	1.16	0.75
24.81	Megastigmatrienone	巨豆三烯酮 C	0.33	0.53	0.37	1.25
25.0	Megastigmatrienone	巨豆三烯酮 D	1.19	0.49	0.74	0.57
27.79	Neophytadiene	新植二烯	48.07	—	—	—

注: SPME 80 °C。

Note: SPME 80 °C.

含量最高,为 81.72%,喷雾干燥后的样品中烟碱含量居中,为 62.91%。可见,静态微波真空干燥法去除的烟碱量最高,干燥效果最好。β - 大马酮是烟草中重要的致香味成分,对

于 β - 大马酮的保留,微波真空干燥(0.68%)比喷雾干燥(0.25%)和冷冻干燥(0.17%)均有较大提高,分别提升了 1.72 倍和 3.00 倍。此外,经过静态微波干燥后的香料样品

中,糠醛含量(2.35%)远高于喷雾干燥(0.68%)和冷冻干燥(0.17%)的样品,前者含量分别为后两者的3.46倍和13.82倍。巨豆三烯酮、茄酮等重要的香味物质及其他香源性物质如苯甲醛、苯乙醛、糠醇等经过微波真空干燥后均得以保留,且含量高于喷雾干燥和冷冻干燥后的样品。因此,在几种对烟草内源性香料的干燥方法中,静态微波真空干燥对于烟草重要香味物质的保留更为完整,是较优的干燥方法。

2.3 评吸结果 分别将干燥后的烟草提取物与烟草提取物进行三角评吸,其评吸结果见表3。由表3可知,只有静态微波真空干燥的样品,与原样评吸结果无差异,两者经过三角评吸法,不能分别出。烟草提取物2即由喷雾干燥得到的样

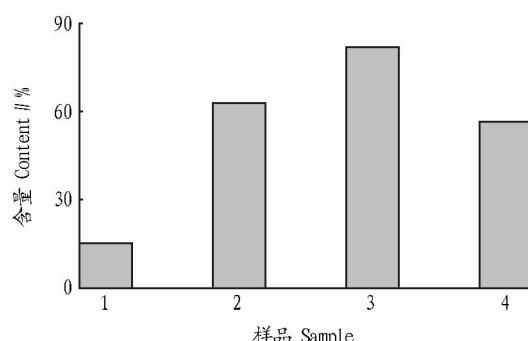


图1 不同样品的烟碱含量

Fig. 1 Nicotine content

表3 感官评吸结果

Table 3 The results of sensory evaluation

评吸样品 Samples	感官评价 Sensory evaluation	结论 Conclusion
烟草提取物1与2Tobacco extract 1 and 2	1. 烟草本香提升,甜感增加,质感较好 2. 烟草本香提升,协调性较差,刺激性增加	差异明显
烟草提取物1与3Tobacco extract 1 and 2	1. 烟草本香提升,甜感增加,质感较好 3. 烟草本香提升,质感稍增加	差异较小
烟草提取物1与4Tobacco extract 1 and 2	1. 烟草本香提升,甜感增加,质感较好 4. 烟草本香提升,甜感增加,质感较好	无差异

品,经感官评吸时,协调性明显变差,刺激性增加,可能是由于喷雾干燥中加入了一定量的麦芽糊精,导致烟叶淀粉含量增加,抽吸品质下降。烟草提取物3即由冷冻干燥得到的样品,感官评价结果与原样差异较小,但经过三角评吸,能分别出两者在甜感和香气方面的差异。

3 结论

该研究对烟草内源性香料进行微波干燥,通过对其挥发性成分的分析,以及与经不同干燥方法所得的样品进行比较,结果表明,经过微波真空干燥后的样品,其成分大部分与干燥前的样品一致,水分去除后,巨豆三烯酮等重要致香成分比干燥前含量更高,有利于抽吸品质的提升;对样品进行3种干燥处理,静态微波真空干燥对于烟草重要香味物质的保留更为完整,烟碱含量最低,为56.7%,冷冻干燥后的样品中烟碱含量最高,为81.72%,喷雾干燥法样品烟碱含量居中,为62.91%。 β -大马酮含量为0.68%,比喷雾干燥(0.25%)和冷冻干燥(0.17%)均有较大提高,分别提升了1.72倍和3.00倍,是较优的干燥方法。

对烟草提取物进行静态微波真空干燥,除具有微波干燥^[14-16]的特点外,与喷雾干燥、冷冻干燥技术相比,其对致香成分等有利抽吸品质的物质保留更多,对产品的品质提升效果更佳。因此,静态微波真空干燥是一种有效、实用、有前景的新型干燥技术,在开发高纯度烟用香精香料方面具有广阔的前景。

参考文献

- [1] 闫一野.普通真空干燥设备综述[J].干燥技术与设备,2011,9(2):57-63.
- [2] 徐成海,张志军,张世伟,等.真空干燥现状与发展趋势分析[J].干燥技术与设备,2009,7(5):207-213.
- [3] 李宗平,张俊杰,彭灏,等.烟草花粉冷冻干燥方法研究初报[J].中国烟草科学,2015,36(2):38-41.
- [4] 付博,马齐,王卫卫,等.真空冷冻干燥与喷雾干燥长双歧杆菌的工艺比较研究[J].食品科学,2012,33(7):188-192.
- [5] 刘玉环.胡萝卜片的真空冷冻干燥加工工艺及研究[J].食品科技,2006(3):52-54.
- [6] 刘春泉,宋江峰,章英,等.甘薯叶提取物喷雾干燥工艺研究[J].食品科学,2011,32(6):45-48.
- [7] 刘华敏,解新安,年平.喷雾干燥技术及在果蔬粉加工中的应用进展[J].食品工业科技,2009,30(2):304-308.
- [8] 黄立新,郑文辉,王成章,等.喷雾冷冻干燥在植物提取和医药中的应用[J].林产化学与工业,2007,27(S1):143-146.
- [9] 乔晓玲,闫祝伟,张原飞,等.食品真空冷冻干燥技术研究进展[J].食品科学,2008,29(5):469-473.
- [10] 张国琛,徐振方,潘澜澜.微波真空干燥技术在食品工业中的应用与展望[J].大连水产学院学报,2004,19(4):292-296.
- [11] 王永周,陈美,邓维用.我国微波干燥技术应用研究进展[J].干燥技术与设备,2008,6(5):219-223.
- [12] 江宁,刘春泉,李大婧,等.甘薯片真空微波干燥工艺的优化[J].中国食品学报,2011,11(7):81-88.
- [13] 吴琦,吴京.智能化静态微波真空干燥机:CN,200710136568[P].2009-01-07.
- [14] 毕金峰,邵春霖,陈芹芹,等.蓝莓热风-微波真空联合干燥工艺研究[J].真空食品学报,2014,14(10):92-100.
- [15] 王顺民,胡志超,韩永斌,等.微波干燥均匀性研究进展[J].食品科学,2014,35(17):297-300.
- [16] 潘焰琼,卓小芬.微波干燥在食品工业中的应用及前景[J].广东化工,2013,40(17):117-118.