

三氯蔗糖微胶囊的制备与工艺优化

doi:10.3969/j.issn.1674-7100.2024.01.008

陈楚雄¹ 阮伟¹
陈伟¹ 杨明²
李曼曼²

1. 襄阳市鸿琰实业
有限责任公司
湖北 襄阳 441000
2. 湖北中烟工业
有限责任公司
襄阳卷烟厂
湖北 襄阳 441099

摘要: 为延缓三氯蔗糖甜味特性,采用微胶囊技术对三氯蔗糖进行包埋处理。选择大豆分离蛋白和海藻酸钠为壁材,三氯蔗糖为芯材,采用复合凝聚法制备三氯蔗糖微胶囊。以微胶囊产率为评价指标,利用单因素试验和响应面优化法确定最佳制备条件,并对其形态等进行表征。研究表明,微胶囊的最佳制备工艺:复凝聚 pH 值为 3.01,芯壁质量比为 1.27,大豆分离蛋白和海藻酸钠的质量比为 3.01,壁材质量浓度为 0.0304 g/mL。按此工艺条件制备的三氯蔗糖微胶囊呈完整球形,表面光滑平整,粒径约为 50 μm ,产率可达 75.19%。

关键词: 三氯蔗糖;微胶囊;复合凝聚法;响应面法

中图分类号: TS205

文献标志码: A

文章编号: 1674-7100(2024)01-0008-11

引文格式: 陈楚雄,阮伟,陈伟,等.三氯蔗糖微胶囊的制备与工艺优化[J].包装学报,2024,16(1):64-74.

1 研究背景

近年来,微胶囊技术已在食品、医药和化妆品等领域广泛应用。甜味剂的微胶囊化可增强其流动性和耐高温性,并可通过受控释放延长甜味的持续时间^[1]。例如箭牌口香糖采用硬化油包覆甜味剂形成微胶囊,有贮存稳定、释放温度高、释放时间长等优点^[2]。彭雪^[3]介绍了利用羟丙基甲基纤维素将阿斯巴甜胶囊化的方法。

三氯蔗糖是一种非营养型强力甜味剂,由蔗糖通过氯化衍生等加工方法得到,其甜度可达蔗糖的 600 倍,是目前为止甜味最接近蔗糖的人工合成甜味剂^[4]。受温度和湿度等外界条件的影响,甜味剂在

加工、储存过程中极不稳定。相比直接加入三氯蔗糖制作的食物,采用微胶囊技术对三氯蔗糖进行包埋处理,可以有效增大其分子体积,提高耐高温性,降低吸湿性,克服了食物在咀嚼初期甜味大量释放、咀嚼过程甜味快速消失的缺陷,缓释效果优异。

复合凝聚法是指使用两种带相反电荷的高分子材料作为复合胶囊材料,在一定条件下与胶囊芯材交联凝聚成胶囊的方法^[5]。与其他方法相比,复合凝聚法工艺条件温和,对芯材的损伤小,产品载量高,具有优异的控释特性^[6]。复合凝聚法可用于改善食品的感官、力学性能、乳剂稳定性和生物活性成分的口服生物利用度^[7]。Sun J. S. 等^[8]采用复合凝聚法制备了植物基香芹酚微胶囊,可用于食品防腐剂,在工业生

收稿日期: 2023-10-12

基金项目: “十四五”国家重点研发计划基金资助项目(2023YFE0105500)

作者简介: 陈楚雄(1982-),男,湖北襄阳人,襄阳市鸿琰实业有限责任公司工程师,主要研究方向为接装纸材料,

E-mail: xfcx3460726@163.com

通信作者: 杨明(1973-),男,湖北襄阳人,湖北中烟工业有限责任公司襄阳卷烟厂工程师,主要研究方向为绿色包装与材料, E-mail: yangming@market.hbtobacco.cn

产中具有应用价值。Li Y. R. 等^[9]采用复合凝聚法制备了以明胶和阿拉伯树胶为壁材、阿维菌素为核心的缓释微胶囊,提高了农药的利用率,可促进农业发展。

本研究拟以三氯蔗糖为胶囊芯材,大豆分离蛋白和海藻酸钠作为胶囊壁材,安全无毒、生物活性好的谷氨酰胺转氨酶为固化交联剂,采用复合凝聚法制备三氯蔗糖微胶囊。利用单因素和响应面试验优化微胶囊化制备条件参数,以获得产率高、稳定性好的三氯蔗糖胶囊化产品;并对微胶囊外观形态进行测定与表征。

2 材料与方法

2.1 原料与试剂

大豆分离蛋白(soybean protein isolate, SPI)、蔗糖脂肪酸酯,生物试剂,武汉欣申试化工科技有限公司。海藻酸钠(sodium alginate, SA),分析纯;三氯蔗糖,纯度为98%;大豆油,试剂级。均为上海迈瑞尔化学技术有限公司生产。谷氨酰胺转氨酶,生物试剂,湖北伽玛生物科技有限公司。氢氧化钠、醋酸,分析纯,国药集团化学试剂有限公司。去离子水,实验室超纯水机制备。

2.2 仪器与设备

冷冻干燥机,Scientz-10N,宁波新芝生物科技股份有限公司。电动搅拌器,D2010W,上海杨颖蒲仪器仪表制造有限公司。高速离心机,H1650,湖南湘仪仪器开发有限公司。场发射扫描电子显微镜,Regulus8100,日本日立公司。光学显微镜,CX33,日本OLYMPUS有限公司。粒度分析仪,Zetasizer nano,马尔文仪器有限公司。高效液相色谱仪,Agilent 1290,安捷伦科技有限公司。高剪切分散乳化均质仪,GJB30-100,常州市均质机械有限公司。

2.3 三氯蔗糖微胶囊的制备

1) 制备芯材乳液。常温下将0.1 g三氯蔗糖溶于10 mL水中,加入2 mL大豆油和0.3 g蔗糖脂肪酸酯,将混合溶液置于均质仪中以12 000 r/min乳化4 min,制得芯材乳液。

2) 制备壁材溶液。将0.5 g大豆分离蛋白和0.5 g海藻酸钠粉末溶于50 mL水中,滴加0.1 mol/L的氢氧化钠溶液,将溶液pH调至中性,40℃下搅拌30 min,制得壁材溶液。

3) 复凝聚合成微胶囊。将芯材乳液倒入壁材溶

液中,用醋酸溶液(体积分数为10%)调节pH至3.0;20 min后用30 mL冰水稀释降温至5℃左右;用0.1 mol/L的氢氧化钠溶液调节pH至6.0;加入0.03 g谷氨酰胺转氨酶,在40℃下低速搅拌5 min,于常温下固化1 h,过滤;用乙醇溶液(体积分数为75%)洗涤、沉淀,冷冻干燥即得到微胶囊产品。冷冻干燥的操作条件如下:过程时长为12 h,压力为0.1 kPa以下,冷凝器温度为-20℃。

2.4 试验设计及方法

2.4.1 壁材的选择

天然高分子普遍来自植物、动物和微生物,具有可再生性、生物降解性和良好的成膜性,是制备微胶囊的理想壁材^[10]。目前使用的天然高分子材料主要包括蛋白质、多糖和琼脂类,可以选择其中一种或几种的组合^[11]。大豆分离蛋白来源易得,等电点(isoelectric point, pI)在4.1左右^[12]。当pH值低于其pI时,SPI具有良好的乳化性、凝胶性、溶解性和吸油性等性质,可广泛应用于乳制品、肉制品、饮料和烘焙等食品工业^[13]。海藻酸钠是一种从海藻中提取的阴离子线性多糖^[14],具备良好的生物相容性和胶凝性,成本低且无毒,有较高的应用价值。调节溶液pH至大豆分离蛋白pI以下,大豆分离蛋白带正电,海藻酸钠带负电,异种电荷的相互吸引引发大豆分离蛋白和海藻酸钠的凝聚效应,形成难溶性复合物,进而包覆分散在溶液中的三氯蔗糖油水复合物。综上,本研究选取大豆分离蛋白和海藻酸钠作为壁材。

2.4.2 单因素试验

选取复凝聚pH(2.5, 3.0, 3.5, 4.0)、芯壁(质量)比(3:1, 2:1, 1:1, 1:2, 1:3)、壁材比(大豆分离蛋白与海藻酸钠质量比1:1, 2:1, 3:1, 4:1)、壁材质量浓度(0.01, 0.03, 0.05, 0.07 g/mL)、复凝聚时间(1, 3, 5, 7 h)、固化pH(5.5, 6.0, 6.5, 7.0)作为试验因素,综合分析各个因素对复合凝聚制备三氯蔗糖微胶囊的产率、微胶囊粒径等的影响。

2.4.3 响应面法优化三氯蔗糖微胶囊工艺试验

为确定三氯蔗糖微胶囊的最佳工艺条件,综合单因素试验的结果及分析,运用Design-Expert 8.0.6软件进行响应曲面设计,选择Box-Behnken程序进行响应面优化试验设计。以复凝聚pH(A)、芯壁比(B)、壁材比(C)、壁材质量浓度(D)4个对微胶囊产率有显著性影响的因子作为试验因素,以微胶囊产率(Y)作为输出指标。设计4因素3水平的响

应面试验，响应面试验因素水平编码如表 1 所示。

表 1 响应面试验因素水平编码表
Table 1 Factors and levels table of response surface experiment

水平	因 素			
	A 复凝聚 pH	B 芯壁比	C 壁材比	D 壁材质量浓度/(g·mL ⁻¹)
-1	2.5	1:2	2:1	0.01
0	3.0	1:1	3:1	0.03
1	3.5	2:1	4:1	0.05

2.5 三氯蔗糖微胶囊的表征及产率测定

2.5.1 微胶囊形貌表征及粒径测定

使用场发射扫描电子显微镜和光学显微镜观察微胶囊的形貌；使用粒度分析仪测定微胶囊粒径。

2.5.2 微胶囊产率测定

微胶囊产率是评定微胶囊产品质量的重要指标，反映了微胶囊制备过程中三氯蔗糖的保留率^[15]。将得到的微胶囊充分研磨后置于 Falcon 管中，添加 0.1 mol/L 的氢氧化钠溶液 10 mL；将试管置于 80 ℃ 超声波浴中 10 min；然后在 4 000 r/min 下离心 5 min。去除上清液后过滤，用高效液相色谱法进行测定，并按公式 (1) 计算微胶囊产率 Y 。

$$Y = \frac{M}{M_0}, \quad (1)$$

式中： M 为制得微胶囊中三氯蔗糖的质量； M_0 为初始加入三氯蔗糖的质量。

2.5.3 微胶囊质量评价

在 5 mL 模拟人工唾液中加入 0.1 g 三氯蔗糖微胶囊，在 37 ℃ 条件下水浴搅拌，共设 10 组。每隔 1 min 从各组取出一个过滤，并用少许蒸馏水洗涤，收集洗涤后的微胶囊，测量其三氯蔗糖含量，再按式 (2) 计算释放率 η 。

$$\eta = 1 - \frac{m_2}{m_1}, \quad (2)$$

式中： m_1 为最初三氯蔗糖微胶囊中三氯蔗糖的质量，通过平均产率计算得知； m_2 为经人工唾液处理一定时长后微胶囊中三氯蔗糖的质量。

3 结果与讨论

3.1 三氯蔗糖微胶囊化工艺的单因素试验

3.1.1 复凝聚 pH 对微胶囊产率的影响

复凝聚 pH 对微胶囊产率的影响结果如图 1 所示。

由图可知，三氯蔗糖微胶囊产率随着复凝聚 pH 增加，呈先增加后减小的趋势。当 pH 为 3 时，微胶囊化产率达到最大值 72%。这是因为，pH 低于 SPI 的等电点时，氨基基团使 SPI 带正电；pH 高于 SPI 的等电点时，羧基基团使 SPI 带负电；正负电荷相等时则处于等电点。当调节复凝聚 pH 至适宜的大小时，SPI 中的正电荷达到较高数量，SA 持有负电荷，此时溶液中带相反电荷的分子数量相等，电荷中和率最大，因此 SPI 和 SA 复合凝聚程度最高。继续降低或者增大 pH，电荷中和率均有所降低，凝聚率下降^[16]。在 pH 接近等电点时，微胶囊化产率大幅下降。综上所述，复凝聚 pH 为 3 时微胶囊产率最高。

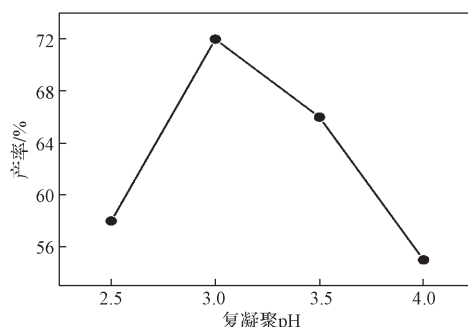


图 1 微胶囊产率与复凝聚 pH 的关系

Fig. 1 Relationship between microcapsule yield and reagglutination pH

3.1.2 芯壁比对微胶囊产率的影响

芯壁比对微胶囊产率的影响结果如图 2 所示。

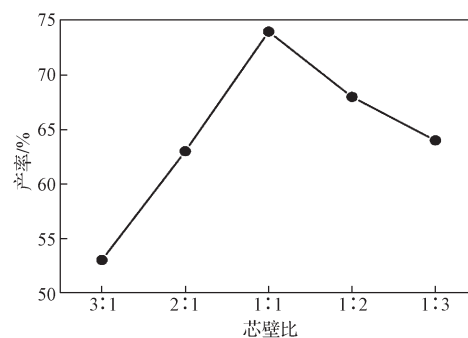


图 2 微胶囊产率与芯壁比的关系

Fig. 2 Relationship between microcapsule yield and core wall ratio

由图 2 可知，不同芯壁比对微胶囊包埋率影响显著，随着芯壁比减小，三氯蔗糖微胶囊产率呈先增大后减小的趋势。当芯壁比为 1:1 时，产率最大，达到 75%。当芯壁比低时，SPI 和 SA 浓度相对较高，溶液黏稠，合成的微胶囊壁材厚度较厚，不利于后续芯

材的释放, 因此产率较低。当芯壁比高时, 产率不理想, 这是因为合成的微胶囊壁材厚度较小, 渗透性高, 牢固性差, 芯材处于饱和状态, 部分三氯蔗糖未被包覆导致浪费^[17]。综上所述, 芯壁比在 1:1 时微胶囊化产率最高。

3.1.3 壁材比对微胶囊产率的影响

壁材比对微胶囊产率的影响结果如图 3 所示。壁材的选择对于微胶囊性能起决定性作用^[18], 合适的壁材比对微胶囊化产率的影响不可忽视。从图 3 可以看出, 三氯蔗糖微胶囊产率随着大豆分离蛋白比重的增大呈先增大后减小的趋势。当大豆分离蛋白与海藻酸钠质量比例为 3:1 时, 三氯蔗糖微胶囊的产率达到最大值 73%。这是因为, 此时溶液中的正负电荷数目大致相等, 则净电荷达到最小值, 凝聚反应最为充分, 产生的微胶囊数目达到最大值, 对三氯蔗糖的包埋也最充分^[19]。当大豆分离蛋白比重较低时, SPI 和 SA 正负电荷中和量较少, 复合凝聚反应不完全, 因此包埋率较低; 当大豆分离蛋白比重较高时, 溶液提供的正电荷过多, 产生相应的静电斥力, 使得已经凝聚的物质解离到水溶液中无法析出, 包埋率也会降低。综上所述, 大豆分离蛋白与海藻酸钠比例为 3:1 时微胶囊产率最高。

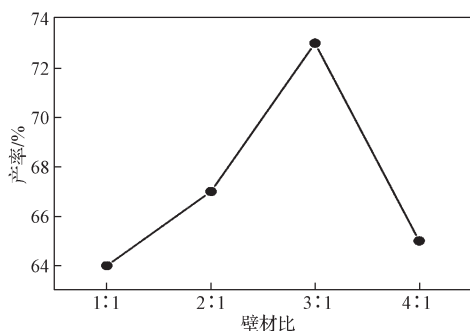


图 3 微胶囊产率与壁材比的关系

Fig. 3 Relationship between microcapsule yield and wall material ratio

3.1.4 壁材质量浓度对微胶囊产率的影响

壁材质量浓度对微胶囊产率的影响结果如图 4 所示。由图可知, 壁材质量浓度对微胶囊化产率有显著影响, 三氯蔗糖微胶囊产率随着壁材质量浓度增加呈先增大后减小的趋势。当壁材质量浓度为 0.03 g/mL 时, 微胶囊产率达到最大值 74%。由此可见, 适量的大豆分离蛋白和海藻酸钠的添加量才能达到好的包埋效果。壁材量少, 芯材量相对过量, 易出现微胶囊不稳定现象^[20]; 壁材过量, 不仅浪费材料,

还会导致微胶囊囊壁加厚, 进一步影响缓释效果^[21]。综上所述, 壁材质量浓度为 0.03 g/mL 时微胶囊产率最高。

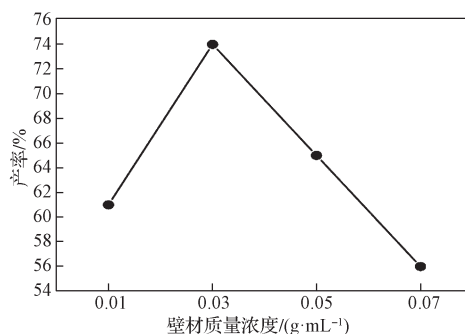


图 4 微胶囊产率与壁材质量浓度的关系

Fig. 4 Relationship between microcapsule yield and wall mass concentration

3.1.5 复凝聚时间对微胶囊产率的影响

复凝聚时间对微胶囊产率的影响结果如图 5 所示。由图可知, 三氯蔗糖微胶囊产率随着复凝聚时间增加呈现先增加后减小的趋势。当复凝聚时间为 5 h 时, 三氯蔗糖微胶囊产率达到最大。微胶囊复凝聚时间过短, 会导致蛋白质交联不充分, 制备的微胶囊囊壁较薄、牢固度不足, 在外力作用下易破裂, 微胶囊产率低; 适当延长反应时间有利于微胶囊形成, 但反应时间过长, 容易造成微胶囊黏附聚集和囊壁破损。三氯蔗糖微胶囊产率在 1~5 h 内呈现上升趋势, 但相差不大, 说明交联固化过程在短时间内已近乎完成, 这与所使用的交联剂谷氨酰胺转氨酶的高性能关系密切。因此, 复凝聚时间选择为 5 h 较好, 不必再将复凝聚时间因素列入响应面试验。

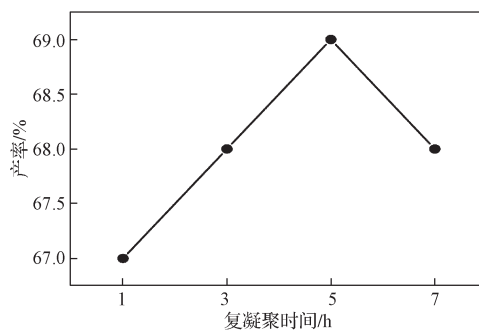


图 5 微胶囊产率与复凝聚时间的关系

Fig. 5 Relationship between microcapsule yield and recondensation time

3.1.6 固化 pH 对微胶囊产率的影响

谷氨酰胺转氨酶（又称 TG 酶）可催化蛋白质多

肽发生分子内和分子间共价交联,从而实现微囊化。温度为 25 ℃时酶活性最高,在此条件下考察固化 pH 分别为 5.5、6.0、6.5、7.0 时微胶囊产率,结果如图 6 所示。由图可知,当固化 pH 为 5.5 时,产率较低,不到 60%;当 pH 为 6 时,产率接近 70%。从固化 pH 对微胶囊产率影响的结果来看,谷氨酰胺转氨酶的最适 pH 为 6。pH 在 5.5~7 的范围内,微胶囊产率并没有大幅波动,结合成本因素,不再将固化 pH 因素列入响应面试验。

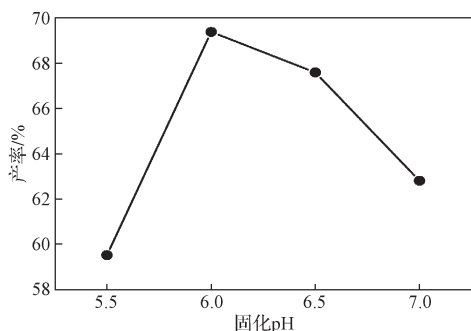


图 6 微胶囊产率与固化 pH 的关系

Fig. 6 Relationship between microcapsule yield and curing pH

3.2 三氯蔗糖微胶囊化工艺的响应面设计试验

3.2.1 试验结果与方差分析

采用 Box-Behnken 设计响应面法优化复合凝聚制备三氯蔗糖微胶囊的工艺条件,以三氯蔗糖微胶囊产率为响应值,优化复凝聚 pH、芯壁比、壁材比和壁材质量浓度这 4 个影响因子,试验设计及结果如表 2 所示。

对所有组试验数据进行数学分析,得到各个因素与三氯蔗糖微胶囊产率之间的多元二次回归模型方程:

$$Y=75.2500+0.0950A+0.3625B+0.1915C+0.2783D-1.1675AB+0.9425AC-0.1600AD-2.0925BC-0.1675BD+0.5625CD-6.1963A^2-5.3525B^2-4.9575C^2-5.0563D^2. \quad (3)$$

从方程一次项回归系数绝对值的大小可以得到各个影响因素对三氯蔗糖微胶囊产率的影响程度由大到小依次为:芯壁比(B)、壁材质量浓度(D)、壁材比(C)、复凝聚 pH(A)。

为了进一步说明二次回归方程模型的有效性,对回归方程模型进行方差分析,结果见表 3。

表 2 Box-Behnken 响应面设计方案与试验结果

Table 2 Design scheme and results of response surface experiment

试验 序号	因 素				微胶囊 产率 Y/%
	A 复凝聚 pH	B 芯壁比	C 壁材比	D 壁材质量浓度	
1	-1	-1	0	0	61.88
2	1	-1	0	0	64.68
3	-1	1	0	0	65.15
4	1	1	0	0	63.28
5	0	0	-1	-1	65.81
6	0	0	1	-1	64.49
7	0	0	-1	1	64.95
8	0	0	1	1	66.17
9	-1	0	0	-1	63.52
10	1	0	0	-1	64.77
11	-1	0	0	1	64.59
12	1	0	0	1	63.95
13	0	-1	-1	0	62.06
14	0	1	-1	0	66.97
15	0	-1	1	0	66.89
16	0	1	1	0	63.43
17	-1	0	-1	0	64.67
18	1	0	-1	0	63.21
19	-1	0	1	0	63.31
20	1	0	1	0	65.52
21	0	-1	0	-1	64.29
22	0	1	0	-1	65.14
23	0	-1	0	1	64.99
24	0	1	0	1	65.17
25	0	0	0	0	75.31
26	0	0	0	0	74.80
27	0	0	0	0	75.57
28	0	0	0	0	75.40
29	0	0	0	0	75.17

在本试验中,模型显著性检验 $P<0.0001$,表明该模型具有统计学意义^[22]。方程一次项中芯壁比(B)影响极显著;交互项 AB、AC、AD、BC、CD 与二次项 A^2 、 B^2 、 C^2 、 D^2 对三氯蔗糖微胶囊产率的影响均为极显著;而交互项 BD 的影响不显著。经失拟项检验, P 值为 $0.8353 > 0.05$,表明失拟项不显著,回归方程与试验拟合程度好;模型 R^2 为 0.9985, R^2_{adj} 为 0.9971,表明预测值和实际值具有较好的相关性。因此,回归模型(3)可用来对三氯蔗糖微胶囊工艺

过程进行初步分析和预测。

表 3 回归模型的方差分析表
Table 3 Variance analysis of response surface
experiment results

方差来源	平方和	均方	F 值	P 值	显著性
模型	513.51	36.68	683.55	< 0.0001	**
A	0.44	0.44	8.14	0.0128	*
B	1.58	1.58	29.39	< 0.0001	**
C	0.38	0.38	7.11	0.0184	*
D	0.27	0.27	5.03	0.0416	*
AB	5.45	5.45	101.61	< 0.0001	**
AC	3.37	3.37	62.75	< 0.0001	**
AD	0.89	0.89	16.64	0.0011	**
BC	17.51	17.51	326.39	< 0.0001	**
BD	0.11	0.11	2.09	0.1701	
CD	1.61	1.61	30.06	< 0.0001	**
A ²	241.03	241.03	4491.84	< 0.0001	**
B ²	190.61	190.61	3552.14	< 0.0001	**
C ²	160.68	160.68	2994.39	< 0.0001	**
D ²	157.79	157.79	2940.48	< 0.0001	**
残差	0.75	0.054			
失拟项	0.41	0.041	0.49	0.8353	不显著
纯误差	0.34	0.084			

注: * 表示差异显著 ($P<0.05$); ** 表示差异极显著 ($P<0.01$)。

3.2.2 各因素交互作用的响应曲面图和等高线图分析
等高线和三维曲面图能更加直观地分析各因素及其交互作用对响应值的影响, 分析结果如图 7~12 所示。

由图 7~12 可知, 等高线图均呈椭圆形, 说明各因素交互作用对三氯蔗糖微胶囊产率的影响显著。从三维曲面图可知, 当复凝聚 pH 一定时, 随着芯壁比、

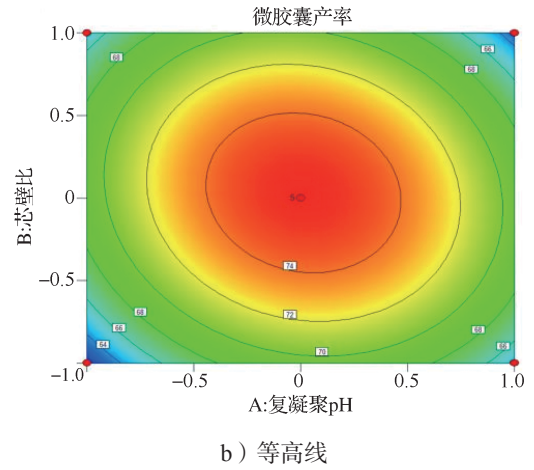
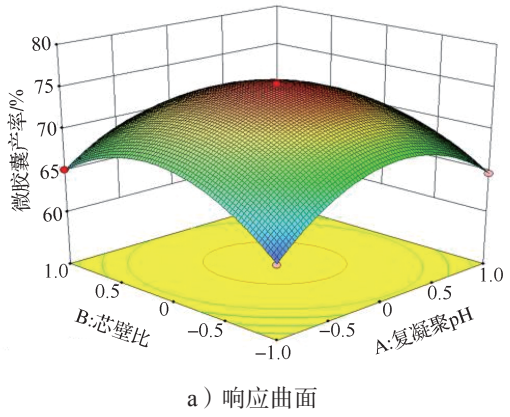


图 7 复凝聚 pH 和芯壁比交互作用的响应曲面与等高线
Fig. 7 Response surface graph and contour map effects of the interaction between reagent pH and core-wall ratio on yield

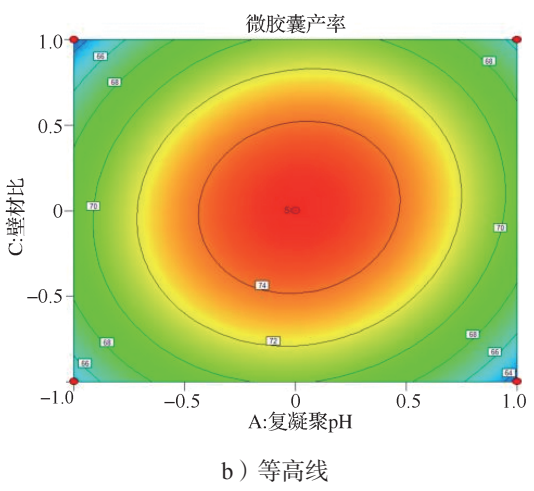
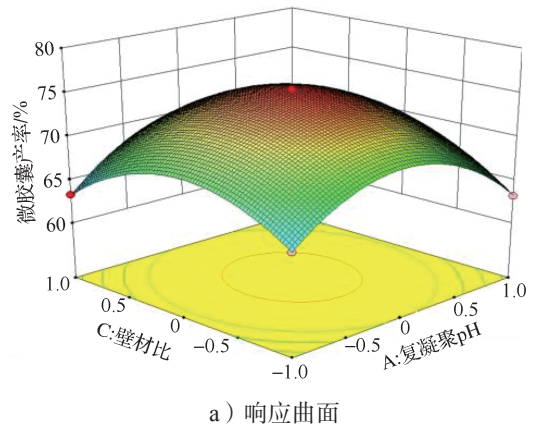
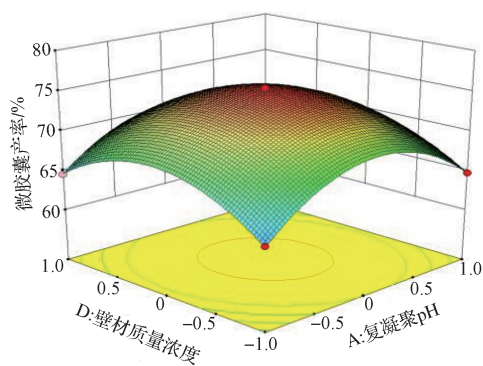
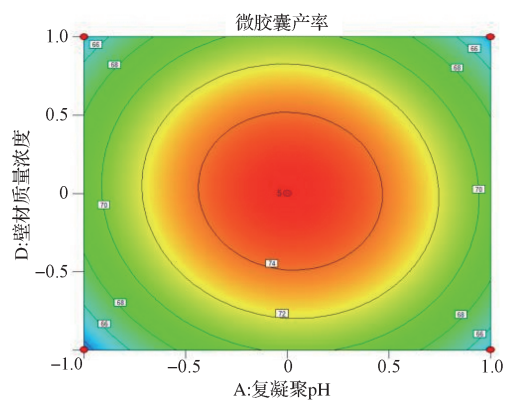


图 8 复凝聚 pH 和壁材比交互作用的响应曲面与等高线
Fig. 8 Response surface graph and contour map effects of the interaction between reagent pH and wall-material ratio on yield



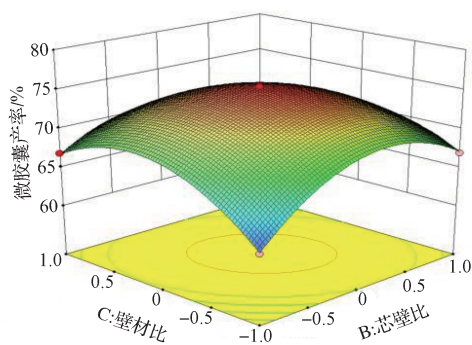
a) 响应曲面



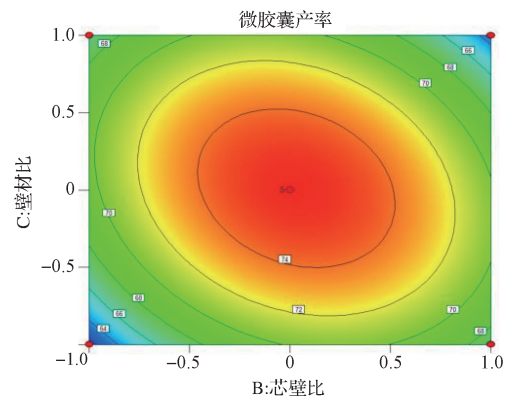
b) 等高线

图9 复凝聚 pH 和壁材质量浓度交互作用的响应曲面与等高线

Fig. 9 Response surface graph and contour map effects of the interaction between reagent pH and wall mass concentration on yield



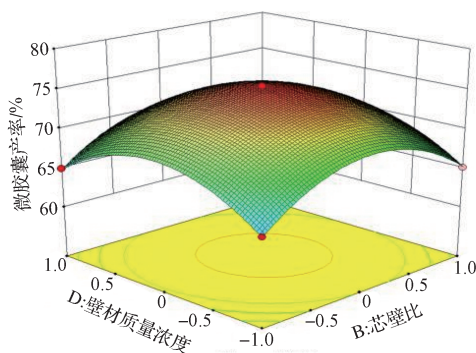
a) 响应曲面



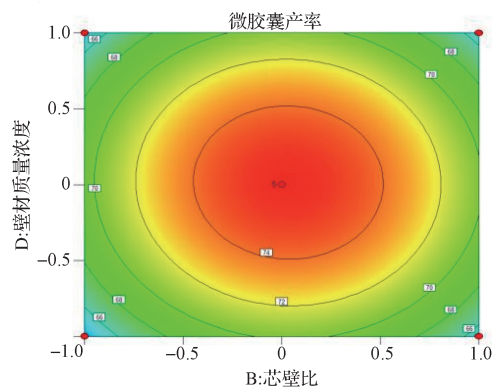
b) 等高线

图10 芯壁比和壁材比交互作用的响应曲面与等高线

Fig. 10 Response surface graph and contour map effects of the interaction between core-wall ratio and wall-material ratio on yield



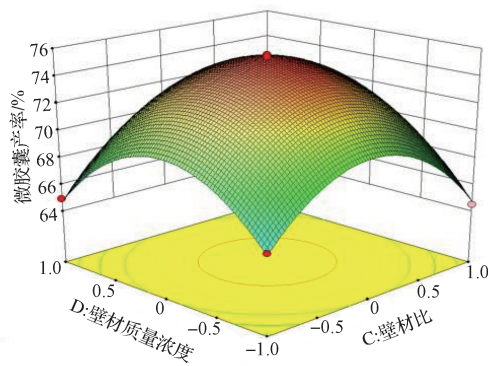
a) 响应曲面



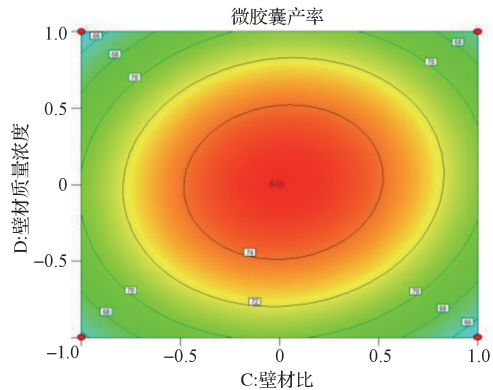
b) 等高线

图11 芯壁比和壁材质量浓度交互作用的响应曲面与等高线

Fig. 11 Response surface graph and contour map effects of the interaction between core-wall ratio and wall mass concentration on yield



a) 响应曲面



b) 等高线

图 12 壁材比和壁材质量浓度交互作用的响应曲面与等高线图

Fig. 12 Response surface graph and contour map effects of the interaction between wall-material ratio and wall mass concentration on yield

壁材质量浓度、壁材比的增加, 产率先升高后降低; 当芯壁比一定时, 随着壁材质量浓度和壁材比的增加, 产率先升高后降低; 当壁材比一定时, 随着壁材质量浓度的增加, 产率先升高后降低。两因素的交互作用对三氯蔗糖微胶囊产率影响的显著性与表 3 中的显著性分析一致。

3.2.3 最优条件的确定及验证

通过数学模型对三氯蔗糖微胶囊的响应面分析, 得到最优工艺参数, 即复凝聚 pH 为 3.01、芯壁比为 1.27、壁材比 (大豆分离蛋白与海藻酸钠质量比) 为 3.01、壁材质量浓度为 0.0304 g/mL, 理论微胶囊产率为 75.26%。为了验证软件给出的最佳工艺条件, 严格设置试验条件进行 5 组平行试验, 最终结果显示三氯蔗糖微胶囊的平均产率为 75.19%, 与理论产率相差不大, 误差在可接受范围内; 且 75.19% 的产率高于单因素实验所制备得到的三氯蔗糖微胶囊的产率, 证实了响应面得到的最佳工艺参数可靠。

3.3 三氯蔗糖微胶囊形态结构分析

按最优工艺参数制备的三氯蔗糖微胶囊的光学显微镜图像如图 13 所示。从图可以看出, 微胶囊呈球状, 三氯蔗糖油水乳液被包覆在壁材内部, 微胶囊具有连续的壁, 没有裂缝或明显的孔隙, 这些特性对于保护和保留封装材料非常重要。此外, 少许未被包覆的三氯蔗糖油水乳液贴附在微胶囊壁上。

在扫描电子显微镜下观察微胶囊颗粒及表面的微观结构, 结果如图 14 所示。从图可以看出, 绝大部分微胶囊表面光滑平整, 致密性良好, 部分微胶囊在冻干过程中被破坏, 壁材破裂。合成的微胶囊粒径

大体分布在 50 μm 左右。

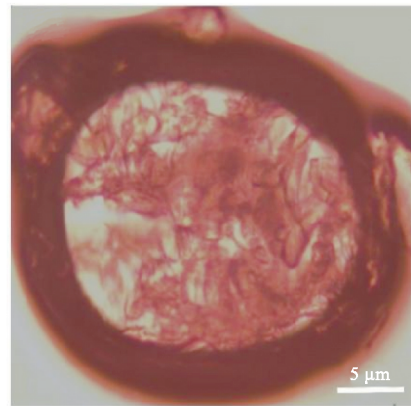


图 13 三氯蔗糖微胶囊的光学显微镜图像

Fig. 13 OM images of sucralose microcapsules

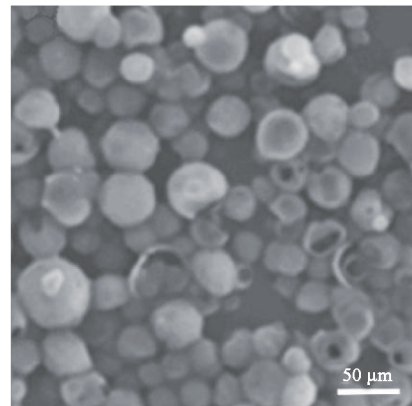


图 14 三氯蔗糖微胶囊的扫描电镜形态结构图像

Fig. 14 SEM images of sucralose microcapsules

3.4 三氯蔗糖微胶囊产品的质量评价

经人工唾液处理后三氯蔗糖微胶囊释放率的变

化见表 4, 释放率拟合曲线见图 15。三氯蔗糖释放规律符合一级释放动力学规律, 释放动力学方程为: $\eta=46.452\ 01(1-e^{-0.156\ 28t})$, 拟合度高于 0.9959。在初始 2 min, 释放率较低, 只有 12.02%; 随着时间延长, 释放率逐渐增加。

表 4 三氯蔗糖微胶囊经人工唾液处理后的释放率

Table 4 Release rates of sucralose microcapsules treated with artificial saliva

时间 /min	1	2	3	4	5
释放率 /%	6.12	12.02	16.85	21.24	26.68
时间 /min	6	7	8	9	10
释放率 /%	28.64	30.46	33.46	35.04	36.24

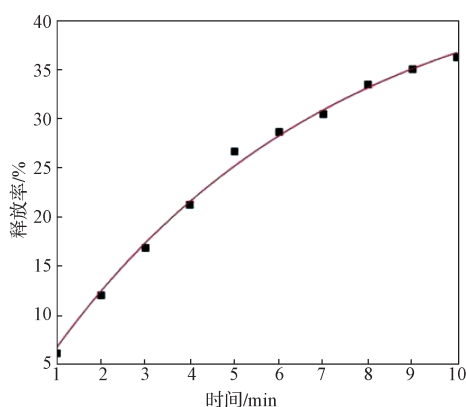


图 15 三氯蔗糖微胶囊释放率拟合曲线

Fig. 15 Fitting curve of the release rate of sucralose microcapsules

三氯蔗糖微胶囊理化指标如表 5 所示。由表可知, 三氯蔗糖微胶囊含水率为 3.6%, 符合食品工业对干燥固体粉末的含水率不超过 4% 的要求^[23]。

表 5 三氯蔗糖微胶囊理化指标

Table 5 Physical and chemical indexes of sucralose microcapsules

检测项目	三氯蔗糖微胶囊
微胶囊化产率 /%	75.19
平均粒径 / μm	34.5
溶解度 /g	3.32
含水率 /%	3.6

4 结论

综上所述, 可得以下结论:

1) 通过单因素试验初步分析复凝聚 pH、芯壁(质量)比、壁材比(大豆分离蛋白与海藻酸钠的质量比)、壁材质量浓度、固化时间、固化 pH 等 6 个条件, 对

复合凝聚法制备三氯蔗糖微胶囊的影响, 证实了三氯蔗糖微胶囊产率受复凝聚 pH、芯壁比、壁材比和壁材质量浓度的影响较大。

2) 采用 Box-Behnken 试验, 以三氯蔗糖微胶囊产率为响应值, 以复凝聚 pH、芯壁比、壁材比和壁材质量浓度 4 个因素为响应因子, 建立二次回归方程模型。经检验该方程拟合较好, 可预测三氯蔗糖微胶囊化产率。

3) 依据二次回归模型, 确定了三氯蔗糖微胶囊化的最佳工艺条件: 复凝聚 pH 为 3.01, 芯壁比为 1.27, 壁材比为 3.01、壁材质量浓度为 0.0304 g/mL。在该条件下三氯蔗糖微胶囊产率为 75.19%。

参考文献:

- [1] PENG Q, MENG Z Y, LUO Z Y, et al. Effect of Emulsion Particle Size on the Encapsulation Behavior and Oxidative Stability of Spray Microencapsulated Sweet Orange Oil (Citrus Aurantium var. Dulcis)[J]. Foods, 2022, 12(1): 116.
- [2] 卢艳慧, 李迎秋. 微胶囊技术的研究进展及在食品行业中的应用[J]. 中国调味品, 2021, 46(3): 171-174.
LU Yanhui, LI Yingqiu. Research Progress of Microcapsule Technology and Its Application in Food Industry[J]. China Condiment, 2021, 46(3): 171-174.
- [3] 彭雪. 微胶囊技术及其在食品工业的应用[J]. 民营科技, 2014(9): 84.
PENG Xue. Microcapsule Technology and Its Application in Food Industry[J]. Non-State Running Science & Technology Enterprises, 2014(9): 84.
- [4] 李雪, 张恒伟, 王文婷. 烟用甜味接装纸三氯蔗糖甜味稳定性影响因素研究[J]. 包装工程, 2022, 43(17): 265-272.
LI Xue, ZHANG Hengwei, WANG Wenting. Factors Affecting Sucralose Sweetness Stability of Sweet Tipping Paper for Cigarette[J]. Packaging Engineering, 2022, 43(17): 265-272.
- [5] 胡佳慧, 刘贵珍, 郝丽, 等. 复凝聚法制备槐米芦丁微胶囊工艺优化[J]. 食品科技, 2021, 46(12): 237-244.
HU Jiahui, LIU Guizhen, HAO Li, et al. Optimization of Preparation Technology of Microcapsulation of Rutin from Sophora Japonicum by Complex Coacervation[J]. Food Science and Technology, 2021, 46(12): 237-244.
- [6] 王颖, 赵萌, 黄雪, 等. 复合凝聚法包埋功能

- 性食品组分的研究进展 [J]. 食品科学, 2018, 39(9): 265-271.
- WANG Ying, ZHAO Meng, HUANG Xue, et al. Progress in Microencapsulation of Functional Food Ingredients by Complex Coacervation Method[J]. Food Science, 2018, 39(9): 265-271.
- [7] 王文霞, 李瑞祺, 张慧君, 等. 阿拉伯木聚糖与壳聚糖复凝聚物的制备及表征 [J]. 现代食品科技, 2023, 39(6): 212-220.
- WANG Wenxia, LI Ruiqi, ZHANG Huijun, et al. Preparation and Characterization of Arabinoxylan/Chitosan Complex Coacervates[J]. Modern Food Science and Technology, 2023, 39(6): 212-220.
- [8] SUN J S, CHENG Y S, ZHANG T, et al. Microencapsulation of Carvacrol by Complex Coacervation of Walnut Meal Protein Isolate and Gum Arabic: Preparation, Characterization and Bio-Functional Activity[J]. Foods, 2022, 11(21): 3382.
- [9] LI Y R, ZHANG M, WENG Y X, et al. Effects of Microencapsulated Abamectin on the Mechanical, Cross-Linking, and Release Properties of PBS[J]. Colloids and Surfaces B: Biointerfaces, 2020, 196: 111290.
- [10] 卓祖优, 宋生南, 白小杰, 等. 天然高分子在微胶囊壁材中的应用 [J]. 包装工程, 2021, 42(15): 112-121.
- ZHUO Zuyou, SONG Shengnan, BAI Xiaojie, et al. Applications of Natural Polymer as Microcapsule Wall Material[J]. Packaging Engineering, 2021, 42(15): 112-121.
- [11] LIU Y K, LI X, SUN H Y, et al. Whey Protein Concentrate/Pullulan Gel as a Novel Microencapsulated Wall Material for Astaxanthin with Improving Stability and Bioaccessibility[J]. Food Hydrocolloids, 2023, 138: 108467.
- [12] 盖旭, 李荣, 姜子涛. 大豆分离蛋白-海藻酸钠复凝聚法制备芥末油微胶囊 [J]. 中国调味品, 2012, 37(2): 51-54, 64.
- GAI Xu, LI Rong, JIANG Zitao. Preparation of Mustard Oil Microcapsules Based on Soybean Protein Isolated and Sodium Alginate by Complex Coacervation[J]. China Condiment, 2012, 37(2): 51-54, 64.
- [13] NISHINARI K, FANG Y, GUO S, et al. Soy Proteins: A Review on Composition, Aggregation and Emulsification[J]. Food Hydrocolloids, 2014, 39: 301-318.
- [14] 周洋莹. 大豆分离蛋白/海藻酸钠复合纳米乳液的制备、表征及包埋虾青素的研究 [D]. 雅安: 四川农业大学, 2022.
- ZHOU Yangying. Preparation, Characterization and Astaxanthin Encapsulation of Soybean Protein Isolate/Sodium Alginate Complexes-Based Nanoemulsions[D]. Yaan: Sichuan Agricultural University, 2022.
- [15] 王丽霞, 肖辉民, 吴湊湊, 等. 喷雾干燥玫瑰茄花色苷微胶囊化效果及其性质 [J]. 食品工业, 2021, 42(6): 6-10.
- WANG Lixia, XIAO Huimin, WU Zhenzhen, et al. The Encapsulation Effect and the Properties of Spray-Dried Microencapsulated Roselle Anthocyanins[J]. The Food Industry, 2021, 42(6): 6-10.
- [16] 孙雪, 张蕊, 范方宇, 等. 复凝聚法制备西番莲果皮花色苷微胶囊及其性质分析 [J]. 食品工业科技, 2021, 42(17): 187-193.
- SUN Xue, ZHANG Rui, FAN Fangyu, et al. Preparation and Properties of Anthocyanin Microcapsules from Passiflora Edulis Rind by Complex Coacervation[J]. Science and Technology of Food Industry, 2021, 42(17): 187-193.
- [17] LI J A, JI X P, TANG Z N, et al. Preparation and Evaluation of Self-Healing Microcapsules for Asphalt Based on Response Surface Optimization[J]. Journal of Applied Polymer Science, 2022, 139(1): e51430.
- [18] 周建军, 刘咏, 王保明, 等. 微包埋缓控释技术开发及释放机理研究进展 [J]. 应用化工, 2019, 48(1): 184-187.
- ZHOU Jianjun, LIU Yong, WANG Baoming, et al. Research Progress on Development and Release Mechanism of Microencapsulation Controlled Release Technology[J]. Applied Chemical Industry, 2019, 48(1): 184-187.
- [19] 秦亚南, 杨华峰, 康健, 等. 复合凝聚法制备葡萄籽油微胶囊 [J]. 食品科技, 2018, 43(6): 199-203.
- QIN Yanan, YANG Huafeng, KANG Jian, et al. Preparation of Grape Seed Oil Microcapsules by Compound Coagulation Method[J]. Food Science and Technology, 2018, 43(6): 199-203.
- [20] YU Y, WEI R, JIA X R, et al. Preparation of Piper Nigrum Microcapsules by Spray Drying and Optimization with Response Surface Methodology[J]. Journal of Oleo Science, 2022, 71(12): 1789-1797.
- [21] UKO L, NOBY H, ZKRIA A, et al. Electrospraying of Bio-Based Chitosan Microcapsules Using Novel Mixed Cross-Linker: Experimental and Response Surface Methodology Optimization[J]. Materials, 2022, 15(23): 8447.
- [22] HUO J H, YU B S, PENG Z G, et al. Preparation, Characterization and Optimization of Micro-Encapsulated Phase Change Materials Used for Thermal Storage and

Temperature Regulation Depends on Response Surface Methodology[J]. Journal of Energy Storage, 2021, 40: 102789.

- [23] 赵国瑜, 范方宇, 槐晋东. 纳米 SiO₂/明胶茶油微胶囊的制备及性能[J]. 精细化工, 2022, 39(2): 367–374, 402.

ZHAO Guoyu, FAN Fangyu, HUAI Jindong. Preparation and Properties of Nano-SiO₂/Gelatin Camellia Oil Microcapsules[J]. Fine Chemicals, 2022, 39(2): 367–374, 402.

(责任编辑: 邓光辉)

Preparation and Process Optimization of Sucralose Microcapsules

CHEN Chuxiong¹, RUAN Wei¹, CHEN Wei¹, YANG Ming², LI Manman²

(1. Xiangyang Hong Yan Industrial Co., Ltd., Xiangyang Hubei 441000, China;

2. Hubei China Tobacco Industry Co., Ltd., Xiangyang Cigarette Factory, Xiangyang Hubei 441099, China)

Abstract: In order to retard the sweetness characteristics of sucralose, microencapsulation technology was used to encapsulate sucralose. Soybean isolate protein and sodium alginate were selected as wall materials and sucralose as the core material, and the composite coalescence method was used to prepare sucralose microcapsules. Microencapsulation yield was used as the evaluation index. The optimum preparation conditions were determined using one-factor test and response surface methodology, while the morphology and other characteristics were characterized. The results of the study showed that the optimal preparation process of microcapsules was as follows: the compound coagulation pH value was 3.01, the mass ratio of core to wall was 1.27, the mass ratio of soybean isolate protein and sodium alginate was 3.01, and the wall mass concentration was 0.0304 g/mL. The sucralose microcapsules prepared according to this process condition were in complete spherical shape with smooth and flat surface, and the particle size was about 50 μm, with the yield up to 75.19%.

Keywords: sucralose; microcapsule; compound condensation method; response surface methodology