

柠檬醛抑菌特性及其缓释制剂研究进展

夏诗琪^{1,2}, 邓绍勇², 范国荣¹, 罗海¹, 张骥¹, 陈尚钊¹, 王宗德^{1*}

(1. 江西农业大学 林学院, 国家林草局木本香料(华东)工程技术研究中心, 国家林草局/江西省樟树工程技术研究中心, 江西 南昌 330045; 2. 江西省林业科学院, 江西 南昌 330032)

摘要: 随着环保理念的加强和可持续发展战略的实施推进, 高效、低毒成为抑菌剂生产和使用的必然趋势。柠檬醛属于开链单萜类化合物, 是山苍子、柠檬草等的次级代谢产物, 对细菌、真菌、病毒等有很好的抑制作用, 可以开发为天然植物源抑菌剂代替化学杀菌剂使用。然而柠檬醛具有不稳定, 易挥发, 光、热条件下易分解等缺点, 这些缺点限制了柠檬醛的应用。缓释制剂能将被包埋的活性物质缓慢释放, 同时对活性物质起到稳定和保护的作。该文以柠檬醛为对象, 围绕柠檬醛的抑菌活性、抑菌机理进行阐述, 同时分析柠檬醛在应用上的不足, 并对柠檬醛缓释制剂的种类和应用等进行归纳总结, 为柠檬醛抑菌剂的开发和柠檬醛缓释制剂的应用提供参考。

关键词: 柠檬醛; 抑菌; 缓释; 微胶囊; 微乳液; 脂质体

Research Progress on Antibacterial Properties and Sustained-release Preparation of Citral

XIA Shi-qi^{1,2}, DENG Shao-yong², FAN Guo-rong¹, LUO Hai¹, ZHANG Ji¹,

CHEN Shang-xing¹, WANG Zong-de^{1*}

(1. College of Forestry, Jiangxi Agricultural University, East China Woody Fragrance and Flavor Engineering Research Center of National Forestry and Grassland Administration (NFGA), Camphor Engineering Research Center of NFGA/Jiangxi Province, Nanchang 330045, Jiangxi, China; 2. Jiangxi Academy of Forestry, Nanchang 330032, Jiangxi, China)

Abstract: High efficiency and low toxicity have become the inevitable trend in the production and use of bacteriostatic agents with the strengthening of the concept of environmental protection and the implementation of sustainable development strategy. Citral, an open-chain monoterpene compound, is the secondary metabolite of *Litsea cubeba* and lemongrass. It has a good inhibitory effect on bacteria, fungi and viruses, and can be developed as a natural plant antibacterial agent instead of chemical fungicide. However, citral is unstable, volatile and easily decomposed under light and heat conditions, which limits its application. Sustained-release preparations can slowly release the embedded active substance and stabilize and protect the active substance. Herein, the antibacterial activity and mechanism of citral were expounded, and the disadvantages of its application were analyzed. Moreover, the types and applications of citral sustained-release preparations were summarized, which may provide a theoretical basis for the development of bacteriostatic agent of citral and application of citral sustained-release preparations.

Key words: citral; bacteriostasis; sustained release; microcapsules; microemulsion; liposomes

引文格式:

夏诗琪, 邓绍勇, 范国荣, 等. 柠檬醛抑菌特性及其缓释制剂研究进展[J]. 食品研究与开发, 2022, 43(21): 200-207.

XIA Shiqi, DENG Shaoyong, FAN Guorong, et al. Research Progress on Antibacterial Properties and Sustained-release Preparation of Citral[J]. Food Research and Development, 2022, 43(21): 200-207.

基金项目: 国家自然科学基金(31960295); 江西省林业科学院青年科技人才培养项目(2019522801); 江西省“千人计划”首批培养类科技创新高端人才项目(jxsq2019201016)

作者简介: 夏诗琪(1992—), 女(汉), 助理研究员, 博士, 研究方向: 天然产物研究与开发。

* 通信作者: 王宗德(1971—), 男, 教授, 博士, 研究方向: 天然产物研究与开发。

随着化学杀菌剂的广泛开发和使用,化学杀菌剂抗性越来越严重,化学杀菌剂的使用不当容易造成生态环境的污染,残留的杀菌剂会进入食物链,对消费者的健康造成严重危害^[1-2],因此许多国家限制其在谷物和食品中的应用。近年来,许多植物源天然次生代谢产物被认为是这些化学杀菌剂的替代品,认为它们比合成产物更安全^[3-5]。消费者对高效、安全的天然产品的需求量逐渐增加。植物精油是植物产生的次生代谢产物,大多数的精油在抑菌方面起着重要的作用。因为植物精油被公认是安全的,对致病性微生物产生耐药性的风险较低^[6],因此可以通过使用植物精油来预防细菌和真菌的感染,例如,香茅挥发油、姜挥发油等^[7]有明显的抑菌作用。

柠檬醛是山苍子精油、柠檬草精油等的主要成分,是开链单萜类化合物最重要的代表之一。我国柠檬醛资源丰富,常作为香精香料添加剂使用;柠檬醛还具有抑菌、消炎等功能,对细菌、真菌的生长繁殖有很好的抑制作用。但是柠檬醛不稳定、易分解且不溶于水,因此限制了其应用范围^[8-9]。近年来,利用包埋技术将柠檬醛制备成缓释制剂的研究越来越多,制备缓释制剂可以提高柠檬醛的稳定性,保护柠檬醛不受外界环境的影响,同时能起到缓释的作用,延长作用时间,对拓宽柠檬醛的应用范围意义重大。

1 柠檬醛概述

柠檬醛(citral)又名 3,7-二甲基-2,6-辛二烯醛,分子式为 $C_{10}H_{16}O$,无色或淡黄色液体,有柠檬香气,无旋光性,有两种顺反异构体,分别为柠檬醛 a(香叶醛,反式柠檬醛)和柠檬醛 b(橙花醛,顺式柠檬醛),含量比例约为 2:3。

柠檬醛是开链单萜最重要的代表之一,难溶于水,可溶于乙醇、丙二醇、石油醚、乙醚、正己烷等有机溶剂,相对密度 0.891(25/25℃),沸点 228℃~229℃。柠檬醛广泛存在于山苍子、柠檬草、丁番罗勒等植物中,在我国通常是从山苍子中提取天然柠檬醛,山苍子精油中柠檬醛含量最高,可达到 85%^[10]。

由于柠檬醛具有浓郁的香气,是一种风味物质,通常被制备成柠檬香精添加到饮料、糕点等食品中,从而

起到调味增香的作用。柠檬醛在工业上是重要的中间体,可以用来合成维生素 A、紫罗兰酮等香料,广泛应用于制药、香精香料等行业领域,市场需求持续增长,前景可观^[11-12]。此外,柠檬醛还是一种新型的抗菌防腐剂,对多种细菌和霉菌均有抑制作用,在日化行业也有相关应用。

2 柠檬醛的抑菌研究

2.1 柠檬醛的抑菌活性

柠檬醛在山苍子精油抑菌作用中占主导地位。虽然有研究表明山苍子精油中的化学成分柠檬醛、芳樟醇、香茅醛等都具有抑菌作用,但是柠檬醛含量最高,王雪等^[13]采用生长速率法和抑菌圈法比较了 3 种山苍子精油对几种细菌的抑菌活性,这 3 种精油来自不同品种的山苍子,其化学成分有差异,结果发现 3 种山苍子精油对目标菌的抑制率大小均与柠檬醛的含量呈正相关性。因此柠檬醛是山苍子精油成分中最适合开发成为植物源抑菌剂的主要成分。

具有抑菌活性的醛类化合物有柠檬醛、香茅醛、肉桂醛、枯茗醛等。在同类型的醛类化合物中,柠檬醛也表现出良好的抑菌性。魏娟^[14]系统比较了柠檬醛和肉桂醛对接骨木镰刀菌的作用情况,发现柠檬醛在孢子萌发、孢子细胞膜损伤、蛋白表达等方面的作用效果优于肉桂醛。此外,醛类化合物复配能发挥比单一化合物更有针对性的抑菌功效,但是复配的比例需要研究。欧阳秋丽^[15]的研究发现肉桂醛+柠檬醛(体积比为 1:4)和肉桂醛+香茅醛(体积比为 5:16)的组合可以抑制指状青霉菌丝体的生长,肉桂醛+柠檬醛(体积比为 1:2)和肉桂醛+香茅醛(体积比为 5:16)的组合可以抑制酸腐病菌菌丝体的生长;杨柳等^[16]研究天然植物醛酚类添加在饲料中的抑菌效果,结果表明,丁香酚、柠檬醛和肉桂醛质量比为 2:1:1 时效果最佳。

大量研究表明柠檬醛对植物病原菌、食源性致病菌^[17]、木腐真菌^[18]以及霉菌^[19]有抑制作用,具体抑菌情况见表 1。其中柠檬醛在果蔬、粮食、饲料等领域防霉研究越来越多,柠檬醛可以通过改变菌丝形态、微观结构、破坏细胞完整性和细胞代谢途径起到抑制青霉菌、曲霉菌、木霉菌的作用效果^[20]。

表 1 柠檬醛的抑菌活性

Table 1 Antibacterial activity of citral

目标菌	评价方法	抑制效果	参考文献
副溶血性弧菌	琼脂稀释法	最小抑菌浓度为 0.60 mg/mL	[21]
蜡样芽孢杆菌	超声波平板菌落计数法	最低抑菌浓度为 0.10 mg/mL	[22]

续表 1 柠檬醛的抑菌活性
Continue table 1 Antibacterial activity of citral

目标菌	评价方法	抑制效果	参考文献
大肠杆菌、金黄色葡萄球菌、枯草芽孢杆菌、意大利青霉	牛津杯法和微量肉汤稀释法	对枯草芽孢杆菌和金黄色葡萄球菌的抑制作用较强,同时能降低砂糖橘的腐败率	[23]
互隔交链孢	熏蒸法	能引起菌丝断裂及活性氧生成紊乱	[24]
阪崎克罗诺肠杆菌	琼脂稀释法	最小抑菌浓度为 0.27 mg/mL~0.54 mg/mL, 阪崎克罗诺肠杆菌的生长延滞期延长, 最大生长速率及最大菌体密度均降低	[25]
果蔬采后致病菌(柑橘炭疽病菌、胡萝卜菌核病菌、柑橘褐色蒂腐病菌和辣椒疫病菌)	菌丝生长速率法	柠檬醛的半数有效浓度分别为 4.938 1、22.838 2、104.251 4 mg/mL 和 8.358 5 mg/mL, 对柑橘炭疽病菌的抑菌活性最强	[26]
水稻纹枯病菌、油茶炭疽病菌、西瓜枯萎病菌和水稻稻瘟病菌	菌丝生长速率法	柠檬醛对水稻纹枯病菌的抑菌作用最强, 半数有效浓度为 18.42 mg/L	[27]
稻瘟病菌	菌丝生长速率法	柠檬醛对稻瘟病菌菌丝生长和孢子萌发的半数有效浓度分别为 40.28 μ g/mL 和 37.12 μ g/mL	[28]
指状青霉	琼脂稀释培养法	最小抑菌浓度为 2.0 μ L/mL, 最小杀菌浓度为 4.0 μ L/mL	[29]

2.2 柠檬醛的抑菌机理

目前, 科研人员对柠檬醛的抑菌活性研究做了大量工作, 主要集中在比较柠檬醛抑菌作用的强弱, 关于柠檬醛抑菌机理的研究较少, 处于初步探索阶段。抑菌机理研究可以发现柠檬醛是怎样作用于目标菌, 这对于柠檬醛抑菌产品的开发十分重要, 对柠檬醛的抑菌机理进行归纳总结后发现, 柠檬醛抑菌机理并不是单一作用, 而是多种方式共同作用的结果, 主要包括破坏细胞壁和细胞膜的完整性、影响核酸表达和蛋白质合成、影响真菌细胞的能量电子转移和呼吸代谢等方面^[30]。

一是破坏细胞壁和细胞膜的完整性。细胞壁和细胞膜是保护细胞活性的屏障, 完整性被破坏后细胞无法正常运转^[31]。可以通过测定细胞膜的相对渗透率来分析, 郭丹等^[27]的研究发现柠檬醛处理水稻纹枯病菌时, 溶液的相对电导率变化明显, 说明柠檬醛对细胞壁和细胞膜有破坏作用。用吸光度法测定胞外蛋白含量的变化是间接证明细胞壁(膜)被破坏的方法之一。此外, 还有直接观察的方法, 魏娟^[14]用荧光染料将目标菌的孢子进行染色处理。用流式细胞仪测定荧光强度, 根据柠檬醛处理前后荧光强度判定孢子受损数目。以上通过改变细胞壁(膜)的通透性来达到抑菌的目的, 还可以通过影响细胞壁几丁质酶的方式破坏细胞壁的完整性。几丁质是真菌细胞壁的主要成分, 张翠荣^[28]发现柠檬醛能通过上调几丁质酶基因的表达使稻瘟病菌的细胞壁被破坏。

二是影响核酸表达和蛋白质合成。一方面柠檬醛是通过损害细胞的 DNA, 影响表达过程; 另一方面柠檬醛是通过损伤细胞壁(膜)上的功能蛋白, 使得蛋白

分子非功能性聚集, 细胞器失去正常结构和功能^[32]。罗曼^[33]发现柠檬醛不仅能使黄曲霉孢子细胞质膜受到损伤, 还能增加磷酸二酯键断裂频率, 从遗传物质水平上抑制孢子萌发的能力。此外, 柠檬醛还能抑制真菌细胞膜的主要成分麦角固醇的合成, 麦角固醇和细胞膜的流动性、细胞膜上物质转运联系紧密^[34]。麦角固醇的合成涉及 20 多个反应, 柠檬醛能够抑制麦角固醇合成途径中的 P450 酶活性来达到抑制合成的目的。

三是影响真菌细胞的能量电子转移和呼吸代谢。能量电子转移和呼吸代谢是细胞维持正常生命活动、赖以生存的代谢过程, 柠檬醛可以通过破坏线粒体的结构, 间接降低细胞的能量代谢^[35], 例如刘森等^[36]的研究发现柠檬醛处理酸腐菌后, 其线粒体变形, 严重的甚至破裂溶解。此外柠檬醛上的不饱和键可以与细胞酶特异性结合, 从而抑制三羧酸循环中关键酶的活性, 影响循环中的电子传递, 从而直接减少腺嘌呤核苷三磷酸和还原型烟酰胺腺嘌呤二核苷酸磷酸的合成量, 降低氧化还原能力, 最终导致细胞死亡。吴子健等^[37]的研究发现柠檬醛通过抑制黄曲霉菌三羧酸循环中酶的活性来影响菌体能量代谢途径, 经柠檬醛处理后, 黄曲霉菌体内的苹果酸脱氢酶活力降低了 29.2% (以烟酰胺腺嘌呤二核苷酸磷酸为辅酶) 和 23.8% (以烟酰胺腺嘌呤二核苷酸为辅酶), 琥珀酸脱氢酶的活力降低了 27.1%。

3 柠檬醛缓释制剂的研究进展

柠檬醛具有不稳定性, 原因是其结构中存在不饱和键, 比如 C=C 键、C=O 键等, 容易发生氧化反应、加成反应等。有研究发现, 柠檬醛在酸性环境中更容易

降解,生成对-甲酚、对-甲基苯乙酮和对-伞花烃等化合物,这类化合物具有令人不愉快的气味^[38]。而大部分饮料都是偏酸性,柠檬醛的不稳定性和酸性条件下易降解的特性限制了其在饮料和香料行业的应用^[39]。

柠檬醛难溶于水、易挥发、生物利用度不高,对温度、阳光、空气敏感,分解后易产生令人不愉快的气味,在低温下还会有结晶析出等。因此,研究如何改善柠檬醛在实际应用上存在的问题,为柠檬醛的综合开发应用拓宽途径,具有重要的研究意义。

研究表明,将柠檬醛制备成缓释制剂能够对柠檬醛起到稳定、保护和缓释的作用,主要表现在提高水溶性、拓宽应用范围、提高生物利用率,保护其活性成分避开与外界环境的接触从而提高稳定性,控制精油的释放从而提高抑菌性能等^[40]。制备缓释制剂的技术方法主要有微胶囊技术、微乳液技术、纳米乳液技术和脂质体技术等,这些技术在增强精油的水溶性、维持其稳定性及提高其生物利用率等方面应用广泛^[41]。

3.1 柠檬醛微胶囊缓释制剂

微胶囊技术是以活性物质如精油成分为芯材,以高分子聚合物等为壁材的一种技术。在柠檬醛微胶囊制备过程中,壁材类型和制备方式等是影响微胶囊稳定性和保留率的主要因素。目前,用来制备微胶囊的壁材多为壳聚糖、海藻酸钠等容易吸水的物质,在储藏过程中会影响稳定性。陈娟^[42]采用复凝聚法和喷雾干燥法制备柠檬醛微胶囊,发现微胶囊在储藏过程中会吸收水分导致粒径、孔道、比表面积增大,且芯材的成分也会发生变化,对甲苯酚、甲基苯乙酮、橙花醇等含量均有所升高,说明柠檬醛发生了一定程度的降解,这极有可能与微胶囊的变化有关。通过对壁材的改性,能够提高柠檬醛的稳定性。Yoplac等^[43]的研究发现用酸改性的大米淀粉为壁材比麦芽糊精为壁材对柠檬醛的保留率更高。

微胶囊的制备方法有复凝聚法、单凝聚法、界面聚合法、原位聚合法、喷雾干燥法等。其中,喷雾干燥是制备微胶囊的常用方法,原理是利用喷雾装置,将芯材和壁材混合成的乳状液体制备成超细液滴,瞬间喷入高温中,由于温度过高,超细液滴表面的溶剂快速蒸发,形成固体粉末。邱碧宁等^[44]利用羧甲基壳聚糖、甲基纤维素和海藻酸钠为复合壁材,层层自主装成功制备柠檬醛微胶囊,提高贮藏稳定性。

目前将柠檬醛微胶囊化的研究较少。柠檬醛微胶囊的应用主要集中在对大米^[45]、鲜切刺嫩芽保鲜^[46]、控制家禽坏死性肠炎^[47]等方面。鲜切果蔬由于受到机械

作用,切口容易滋生细菌,因此容易腐坏变质、储藏时间短,柠檬醛微胶囊能将柠檬醛缓慢释放,达到长效抑菌保鲜的目的。王冰玉等^[48]研究柠檬醛微胶囊对鲜切刺嫩芽的保鲜效果,结果表明柠檬醛微胶囊能从延缓水分、抑制酶褐变、抑制营养损失等方面保持鲜切刺嫩芽的颜色、硬度、新鲜度等。柠檬醛在体内尤其是胃液酸性条件下消化代谢速度较快,柠檬醛缓释制剂能减少柠檬醛在上消化道的消耗,在肠道中发挥抑制肠道致病菌的功能。肠道产气荚膜梭菌是导致坏死性肠炎的主要致病菌。杨玥熹^[47]制备了柠檬醛微胶囊,其在模拟胃液中能较好地保留柠檬醛含量,同时还研究了柠檬醛微胶囊在肉鸡养殖过程中对坏死性肠炎的控制效果,采用菌株感染模型,对肉鸡生长过程中肠道食糜的产气荚膜梭菌计数并观察肠道黏膜形态,发现柠檬醛微胶囊对坏死性肠炎的抵抗力和饲用抗生素的效果相当。

然而,柠檬醛微胶囊在包埋效果和应用范围方面存在一定的不足之处。如柠檬醛微胶囊尺寸通常是微米级,颗粒较大,难以适应澄清度较高的应用环境;由于微胶囊的壁材容易吸水导致表面溶胀,微胶囊的粒径和比表面积都有所增大^[48]。复合凝聚微胶囊对环境中的离子强度和pH值非常敏感,稳定性容易受到环境的影响^[49]。

3.2 柠檬醛微乳液和纳米乳液缓释制剂

微乳液由水、油、表面活性剂和助表面活性剂按一定比例混合而成,在混合均匀的过程中,不借助外界其他条件,自发形成,微乳液大多呈透明或半透明、粒径在100 nm以内^[50]。柠檬醛微乳液制备的是水包油型,主要以乳化剂、多糖等为原料,常用的制备方法有低能乳化法、高压均质法和变相温度法。微乳液技术可以改善柠檬醛的溶解性和提高抑菌效率,微乳液制备方法比较简单,可通过搅拌混合、高压均质、微射流等强机械力装置让微粒更均匀,但是容易受到温度、pH值、离子强度等环境因素的影响^[51]。

纳米乳液形成原理是由于两种液体互不相容,导致其中一种液体以球状小液滴的形式分散于另一种液体中而形成的分散体系,尺寸范围为50 nm~1 000 nm^[52]。徐婷^[53]采用明胶和吐温为乳化剂制备得到粒径为476.73 nm的柠檬醛乳状液,减缓了体系中的酸性物质对柠檬醛的降解作用,结果表明该方法能明显提高柠檬醛在酸性条件下的稳定性。

微乳液与纳米乳液最大的区别在于热稳定性不同,微乳液是热力学稳定体系,而纳米乳液不稳定^[54]。

研究发现,在纳米乳液的制备过程中可以通过添加抗氧化剂等辅助物质提高乳液的稳定性,Yang等^[55]研究几种抗氧化剂对乳液中柠檬醛稳定性,发现 β -胡萝卜素和丹参酮具有强非极性,能提高乳液的储存稳定性。Zhao等^[56]的研究发现辅酶 $Q_{10}H_2$ 具有清除自由基的功能,能减少柠檬醛脂质氧化产物的生成,以提高稳定性。徐婷^[53]制备了柠檬醛纳米乳状液,在酸性环境中放置一段时间后,纳米乳状液中的柠檬醛含量损失较少,柠檬醛的降解产物的含量也较少,在纳米乳状液中加入异抗坏血酸和异抗坏血酸钠能提高酸性条件下的稳定性,40℃储藏14d后纳米乳中的柠檬醛剩余量超过50%。马磊等^[57]用鹰嘴豆乳清蛋白作为乳化稳定剂制备柠檬醛乳液,研究发现添加0.5%黄原胶能明显增加乳液的稳定性。李丹凤^[58]制备了柠檬醛固体脂质纳米粒,采用的是高剪切分散联合高压均质法,制备过程中加入了抗氧化剂,研究表明添加 β -胡萝卜素和异抗坏血酸的样品储藏稳定性较高,能很好地抑制对伞花烃和甲基苯乙酮的生成。

3.3 柠檬醛脂质体缓释制剂

脂质体是一种由脂质双分子层组成的纳米级球状小囊泡^[59]。脂质体的脂质双分子层的结构是磷脂分子的含磷或氮的亲水性头部朝外,磷脂分子的疏水性长烃基链尾部位于中间。相对于柠檬醛微胶囊、微乳液的研究,柠檬醛脂质体的研究相对较少。陈沛洲^[23]采用薄膜分散法结合高压微射流均质技术制备柠檬醛脂质体,该柠檬醛脂质体较稳定,储藏3周后能保留20%的初始柠檬醛含量。对大肠杆菌、意大利青霉菌、金黄色葡萄球菌和枯草芽孢杆菌有明显抑制作用,且能有效抑制砂糖桔表面酵母和霉菌的生长,降低腐败发生率。

脂质体缓释制剂存在一定的不足之处,对环境因素敏感,由于储藏环境和运输颠簸等因素,易发生聚集和沉淀,从而导致其包裹的活性物质泄漏^[59]。为避免脂质体因pH值和离子强度引起的磷脂水解和静电屏蔽作用而发生蓄积、融合等现象,对脂质体进行修饰是有效的解决方法。壳聚糖是有效的修饰物,它能够通过静电吸附包覆在脂质体表面,使得脂质体带正电,增强脂质体之间的排斥力,从而提高脂质体的动力学稳定性^[60],阻止被包埋的活性成分泄露。壳聚糖是一种广泛存在于自然界中的多糖,带正电荷,具有很好的生物亲和性,同时,壳聚糖是一种广谱抑菌剂,能有效抑制多种细菌、真菌的生长繁殖和产毒能力^[61]。壳聚糖作为脂质体的修饰材料,在酸性条件下能质子化,正电荷的壳聚糖能作用于目标菌表面的黏膜,使包埋

的活性物质穿透黏膜提高抗菌性^[62],因此,能控制脂质体中活性物质的缓慢释放从而起到长效抑菌的作用效果。

4 展望

国内外学者对柠檬醛抑菌活性的研究,使人们充分认识到柠檬醛在抑菌剂开发领域的应用,柠檬醛在抑菌机理方面还有探索空间,对不同种类的病原菌的抑菌机理还需找到关键机制。柠檬醛是我国重要的食品添加剂和化工原料,对于柠檬醛的抑菌研究越来越受到关注,而如何利用柠檬醛的高效抑菌特性来开发相关抑菌产品是未来的研究方向之一。柠檬醛难溶于水、易分解、易挥发的性质限制了对柠檬醛的研究和开发,为充分应用柠檬醛的高效抑菌特性,应该逐渐推进对柠檬醛缓释制剂的深入研究,包括包埋技术、稳定性、缓释性能等。柠檬醛抑菌活性和缓释制剂的研究,对天然植物源抑菌剂的开发利用具有重要意义。

参考文献:

- [1] CHEN P J, MOORE T, NESNOW S. Cytotoxic effects of propiconazole and its metabolites in mouse and human hepatoma cells and primary mouse hepatocytes[J]. *Toxicology in Vitro*, 2008, 22(6): 1476–1483.
- [2] SCORDINO M, SABATINO L, TRAULO P, et al. LC/MS/MS detection of fungicide guazatine residues for quality assessment of commercial *Citrus* fruit[J]. *European Food Research and Technology*, 2008, 227: 1339–1347.
- [3] CHEN J Y, SHEN Y T, CHEN C Y, et al. Inhibition of key *Citrus* postharvest fungal strains by plant extracts *in vitro* and *in vivo*: A review[J]. *Plants (Basel, Switzerland)*, 2019, 8(2): 26.
- [4] CHEN C Y, CAI N, CHEN J Y, et al. UHPLC–Q–TOF/MS–based metabolomics approach reveals the antifungal potential of pinocembrin against *Citrus* green mold phytopathogen[J]. *Plants (Basel, Switzerland)*, 2019, 9(1): 17.
- [5] BAHRI B A, MECHICHI G, ROUISSI W, et al. Effects of cold-storage facility characteristics on the virulence and sporulation of *Penicillium expansum* and the efficacy of essential oils against blue mold rot of apples[J]. *Folia Horticulturae*, 2019, 31(2): 301–317.
- [6] CARDILE V, RUSSO A, FORMISANO C, et al. Essential oils of *Salvia bracteata* and *Salvia rubifolia* from Lebanon: Chemical composition, antimicrobial activity and inhibitory effect on human melanoma cells[J]. *Journal of Ethnopharmacology*, 2009, 126(2): 265–272.
- [7] DIKBAS N, KOTAN R, DADASOGLU F, et al. Control of *Aspergillus flavus* with essential oil and methanol extract of *Satureja hortensis*[J]. *International Journal of Food Microbiology*, 2008, 124(2): 179–182.
- [8] WANG H W, LIU Y Q. Chemical composition and antibacterial activity of essential oils from different parts of *Litsea cubeba*[J]. *Chemistry & Biodiversity*, 2010, 7(1): 229–235.

- [9] NGUYEN H V, MEILE J C, LEBRUN M, et al. *Litsea cubeba* leaf essential oil from Vietnam: Chemical diversity and its impacts on antibacterial activity[J]. Letters in Applied Microbiology, 2018, 66(3): 207–214.
- [10] 程晶. 山苍子精油分子蒸馏制备高纯度柠檬醛的工艺及品质鉴定研究[D]. 南京: 南京农业大学, 2015.
CHENG Jing. Study on the technology of extracting high quality citral from *Litsea cubeba* oil and study on the quality of *Litsea cubeba* oil[D]. Nanjing: Nanjing Agricultural University, 2015.
- [11] 顾胜华, 李湘洲, 张盛伟. β -紫罗兰酮合成的研究进展[J]. 中国食品添加剂, 2015(4): 173–178.
GU Shenghua, LI Xiangzhou, ZHANG Shengwei. Research progress in the synthesis of β -ionone[J]. China Food Additives, 2015(4): 173–178.
- [12] 刘新新, 王敏. 以柠檬醛合成酮类香料的研究进展及市场应用[J]. 化学工程师, 2021, 35(1): 57–59, 63.
LIU Xinxin, WANG Min. Research progress and market application of ketone perfume synthesized from citral [J]. Chemical Engineer, 2021, 35(1): 57–59, 63.
- [13] 王雪, 梁晓洁, 高祺, 等. 三种山苍子精油化学成分及抑菌效果差异分析[J]. 天然产物研究与开发, 2019, 31(11): 1847–1856.
WANG Xue, LIANG Xiaojie, GAO Ming, et al. Analysis of chemical constituents and antimicrobial activity of essential oils in three species from May Chang tree[J]. Natural Product Research and Development, 2019, 31(11): 1847–1856.
- [14] 魏娟. 柠檬醛和肉桂醛抑制接骨木镰刀菌生长和产毒的机理[D]. 兰州: 甘肃农业大学, 2020.
WEI Juan. The antifungal and anti-mycotoxin mechanisms of citral and cinnamaldehyde against *Fusarium sambucinum*[D]. Lanzhou: Gansu Agricultural University, 2020.
- [15] 欧阳秋丽. 植物精油典型成分对柑橘果实两种采后致病菌的抑制作用研究[D]. 湘潭: 湘潭大学, 2018.
OUYANG Qiuli. Inhibitory effects of typical components in plant essential oils against the two postharvest pathogens of *Citrus* fruit[D]. Xiangtan: Xiangtan University, 2018.
- [16] 杨柳, 陈宇飞. 天然植物醛酚类饲料添加剂抑菌效果研究[J]. 饲料研究, 2016(13): 17–20.
YANG Liu, CHEN Yufei. Study on antibacterial effect of natural plant aldehydes and phenols as feed additives[J]. Feed Research, 2016(13): 17–20.
- [17] 程旺开, 周炜, 肖子龙. 羧甲基壳聚糖-柠檬醛保鲜纸对李子的抗菌保鲜效果研究[J]. 绵阳师范学院学报, 2020, 39(5): 64–67.
CHENG Wangkai, ZHOU Wei, XIAO Zilong. Study on antibacterial effect of carboxymethyl chitosan-citral preservation paper on plum[J]. Journal of Mianyang Teachers' College, 2020, 39(5): 64–67.
- [18] GAO S J, LIU G Z, LI J G, et al. Antimicrobial activity of lemongrass essential oil (*Cymbopogon flexuosus*) and its active component citral against dual-species biofilms of *Staphylococcus aureus* and *Candida* species[J]. Frontiers in Cellular and Infection Microbiology, 2020, 10: 603858.
- [19] 郭丹, 李兆双, 王鹏, 等. 山苍子油活性成分对木材真菌的抑制作用[J]. 林产化学与工业, 2016, 36(3): 88–94.
GUO Dan, LI Zhaoshuang, WANG Peng, et al. Inhibition effect of active components from *Litsea cubeba* (lour.) Pers. Oil on wood fungi[J]. Chemistry and Industry of Forest Products, 2016, 36(3): 88–94.
- [20] 赵永田, 王兴娥, 赵宇, 等. 植物源抑真菌活性成分及抑菌机理研究现状与展望[J]. 农业与技术, 2022, 42(16): 26–29.
ZHAO Yongtian, WANG Xinge, ZHAO Yu, et al. Current situation and prospect of research on active components and mechanisms of fungal inhibition from plants[J]. Agriculture and Technology, 2022, 42(16): 26–29.
- [21] 郭都, 孙慧慧, 孙正, 等. 柠檬醛对副溶血性弧菌的抑制作用[J]. 食品科学, 2019, 40(17): 113–120.
GUO Du, SUN Huihui, SUN Zheng, et al. Antimicrobial activity of citral against *Vibrio parahaemolyticus*[J]. Food Science, 2019, 40(17): 113–120.
- [22] 夏俊芳, 王苹, 马瑶, 等. 茶多酚、柠檬醛、肉桂醛对四种接触表面蜡样芽孢杆菌菌膜的影响研究[J]. 中国调味品, 2020, 45(12): 27–32, 37.
XIA Junfang, WANG Ping, MA Yao, et al. Effects of tea polyphenols, citral and cinnamaldehyde on formation of *Bacillus cereus* biofilm on four kinds of contact surfaces[J]. China Condiment, 2020, 45(12): 27–32, 37.
- [23] 陈沛洲. 柠檬醛脂质体的抑菌作用及其对砂糖桔保质期的影响[D]. 长春: 吉林大学, 2020.
CHEN Peizhou. Antimicrobial efficacy of liposome encapsulated citral and its effect on the shelf life of 'Shatangju' mandarin[D]. Changchun: Jilin University, 2020.
- [24] 王刘庆, 王多, 姜冬梅, 等. 柠檬醛熏蒸对互隔交链孢生长及其产毒的抑制作用[J]. 菌物学报, 2020, 39(10): 1866–1873.
WANG Liuqing, WANG Duo, JIANG Dongmei, et al. Effects of citral fumigation on suppressing the growth and mycotoxin production of *Alternaria alternata*[J]. Mycosystema, 2020, 39(10): 1866–1873.
- [25] 石超. 柠檬醛对阪崎克罗诺杆菌抑菌和抗感染作用及其分子机制[D]. 杨凌: 西北农林科技大学, 2017.
SHI Chao. The antimicrobial activity and anti-infection effect against *Cronobacter sakazakii* of citral and mechanisms of action[D]. Yangling: Northwest A & F University, 2017.
- [26] 杨滢滢, 陈明, 万春鹏, 等. 天然芳樟醇和柠檬醛对4种果蔬采后致病菌抑菌活性研究[J]. 生物灾害科学, 2016, 39(2): 80–83.
YANG Yingying, CHEN Ming, WAN Chunpeng, et al. Studies on antifungal activities of natural linalool and citral against four pathogens in postharvest fruits and vegetables[J]. Biological Disaster Science, 2016, 39(2): 80–83.
- [27] 郭丹, 雷潇, 王鹏, 等. 山苍子油主成分及其衍生物对植物病原菌的抑制作用[J]. 江西农业大学学报, 2016, 38(2): 283–289.
GUO Dan, LEI Xiao, WANG Peng, et al. Antifungal activity of essential oil from *Litsea cubeba* and derivatives on plant pathogens[J]. Acta Agriculturae Universitatis Jiangxiensis, 2016, 38(2): 283–289.
- [28] 张翠荣. 柠檬醛对稻瘟病菌几丁质酶基因表达的影响[D]. 贵阳:

贵州大学, 2016.

ZHANG Cuirong. Effects of citral on expression of chitinase gene in *Magnaporthe grisea*[D]. Guiyang: Guizhou University, 2016.

- [29] 欧阳秋丽, 贾雷, 陶能国. 柠檬醛对指状青霉菌丝体膜脂过氧化物的影响[J]. 食品科学, 2016, 37(23): 32–37.

OUYANG Qiuli, JIA Lei, TAO Nengguo. Citral inhibits mycelial growth of *Penicillium digitatum* involving membrane peroxidation[J]. Food Science, 2016, 37(23): 32–37.

- [30] 王媛媛. 竹叶精油的复配及其抑菌机理研究[D]. 北京: 北京林业大学, 2016.

WANG Yuanyuan. Antimicrobial mechanism of essential oil from *Phyllostachys pubescens* leaf and its combination[D]. Beijing: Beijing Forestry University, 2016.

- [31] 唐志凌, 赵明明, 陈靖潼, 等. 草果提取物对大肠杆菌和沙门氏菌抑菌机理研究[J]. 中国调味品, 2021, 46(2): 50–54.

TANG Zhiling, ZHAO Mingming, CHEN Jingtong, et al. The antimicrobial mechanisms of *Amomum tsao-ko* extracts against *Escherichia coli* and *Salmonella typhimurium*[J]. China Condiment, 2021, 46(2): 50–54.

- [32] 周云冬. 植物提取物抑菌活性及抑菌机理[D]. 无锡: 江南大学, 2019.

ZHOU Yundong. Antibacterial activity and antibacterial mechanism of plant extracts[D]. Wuxi: Jiangnan University, 2019.

- [33] 罗曼. 天然抗菌精油筛选及主要抗菌成分研究——柠檬醛抗黄曲霉机理的研究[D]. 武汉: 武汉大学, 2004.

LUO Man. Screening on natural antibacterial essential oil and study on major antibacterial component—mechanism of inhibitory effects of citral on *Aspergillus flavus*[D]. Wuhan: Wuhan University, 2004.

- [34] 谢小梅, 龙凯, 方建茹, 等. 肉桂醛、柠檬醛抑制黄曲霉生长机制研究[J]. 中国公共卫生, 2007, 23(3): 301–302.

XIE Xiaomei, LONG Kai, FANG Jianru, et al. Study on molecular mechanism of antimicrobial activity of cinnamaldehyde and citral on *Aspergillus flavus*[J]. Chinese Journal of Public Health, 2007, 23(3): 301–302.

- [35] 郑世菊. 柠檬醛对指状青霉线粒体的作用初探[D]. 湘潭: 湘潭大学, 2015.

ZHENG Shiju. Preliminary study on the effect of citral against *Penicillium digitatum* mitochondria[D]. Xiangtan: Xiangtan University, 2015.

- [36] 刘森, 陶能国, 许灵春, 等. 柠檬醛对酸腐菌线粒体形态和功能的影响[J]. 食品科学, 2019, 40(17): 121–126.

LIU Miao, TAO Nengguo, XU Lingchun, et al. Effect of citral on mitochondrial morphology and function in *Geotrichum citri-aurantii*[J]. Food Science, 2019, 40(17): 121–126.

- [37] 吴子健, 蒋立科, 罗曼, 等. 柠檬醛对黄曲霉细胞内两个氧化还原酶的影响[J]. 天津农学院学报, 2002, 9(1): 26–29, 38.

WU Zijian, JIANG Like, LUO Man, et al. Effects of citral on two kinds of oxidize-hydrogenase in cells of *Aspergillus flavus*[J]. Journal of Tianjin Agricultural College, 2002, 9(1): 26–29, 38.

- [38] 王根女, 赵华杰, 陈雄, 等. 植物基天然抗氧化剂抑制柠檬醛降

解的研究[J]. 香料香精化妆品, 2019(1): 29–32.

WANG Gennv, ZHAO Huajie, CHEN Xiong, et al. Study on the inhibition of citral degradation by plant-based natural antioxidants[J]. Flavour Fragrance Cosmetics, 2019(1): 29–32.

- [39] 李丹凤, 徐婷, 胡静, 等. 香料化合物柠檬醛稳定性研究进展[J]. 食品工业, 2016, 37(9): 215–219.

LI Danfeng, XU Ting, HU Jing, et al. Research progress on stability of citral[J]. The Food Industry, 2016, 37(9): 215–219.

- [40] 向俊, 樊蕊, 王磊, 等. 柠檬醛微胶囊化研究进展[J]. 中国食品添加剂, 2014(9): 176–183.

XIANG Jun, FAN Rui, WANG Lei, et al. Research progress of encapsulation and delivery of citral[J]. China Food Additives, 2014(9): 176–183.

- [41] 卢卓彦. 柠檬醛 Pickering 乳液的制备及香气稳定性研究[D]. 上海: 上海应用技术大学, 2019.

LU Zhuoyan. The preparation and aroma stability research of citral Pickering emulsion[D]. Shanghai: Shanghai Institute of Technology, 2019.

- [42] 陈娟. 柠檬醛微胶囊的制备、结构及稳定性研究[D]. 海口: 海南大学, 2015.

CHEN Juan. The preparation of citral microcapsules and the study of microcapsules' construction and stability[D]. Haikou: Hainan University, 2015.

- [43] YOPLAC I, VARGAS L, ROBERT P, et al. Characterization and antimicrobial activity of microencapsulated citral with dextrin by spray drying[J]. Heliyon, 2021, 7(4): e06737.

- [44] 邱碧宁, 周游, 尹学琼, 等. 喷雾干燥法制备柠檬醛微胶囊及微胶囊稳定性研究[J]. 食品工业科技, 2017, 38(15): 190–195.

QIU Bining, ZHOU You, YIN Xueqiong, et al. Preparation of citral microcapsules through spray-drying and the stability of the microcapsules[J]. Science and Technology of Food Industry, 2017, 38(15): 190–195.

- [45] 辛慧, 刘莹沛, 王力群, 等. 山苍子油基聚乙烯膜的抑菌活性及其对大米的保鲜作用[J]. 食品工业科技, 2019, 40(22): 294–299.

XIN Hui, LIU Yingpei, WANG Liqun, et al. Anti-bacterial activity and rice fresh-keeping property of *Litsea cubeba* essential oil-based polyethylene film[J]. Science and Technology of Food Industry, 2019, 40(22): 294–299.

- [46] 王冰玉, 陈虹伶, 潘美伊, 等. 柠檬醛微胶囊对鲜切刺嫩芽保鲜效果的影响[J]. 中国果菜, 2016, 36(4): 1–5.

WANG Bingyu, CHEN Hongling, PAN Meiyi, et al. Effect of citral oil microcapsule on preservation of fresh-cut *Aralia elata* seem[J]. China Fruit Vegetable, 2016, 36(4): 1–5.

- [47] 杨玥熹. 柠檬醛微胶囊制备、性质表征及其在控制家禽坏死性肠炎中的应用[D]. 无锡: 江南大学, 2015.

YANG Yuexi. Preparation, characterization of citral microcapsules and its application in necrotic enteritis control of poultry[D]. Wuxi: Jiangnan University, 2015.

- [48] 张松, 陈娟, 尹学琼, 等. 柠檬醛微胶囊的制备及吸水性对微胶囊结构性能的影响[J]. 食品科技, 2017, 42(2): 60–66, 71.

- ZHANG Song, CHEN Juan, YIN Xueqiong, et al. Preparation of citral microcapsules and the effects of water adsorption on the structure of microcapsules[J]. Food Science and Technology, 2017, 42(2): 60–66, 71.
- [49] 王慧, 杨子明, 周闯, 等. 纳米微胶囊技术及其在植物精油中的应用[J]. 高分子通报, 2018(9): 41–46.
- WANG Hui, YANG Ziming, ZHOU Chuang, et al. Nanocapsule technology and its applications in plant essential oil[J]. Polymer Bulletin, 2018(9): 41–46.
- [50] 杨冠杰, 梁鹏. 微乳液在食品营养与安全领域的研究进展[J]. 食品研究与开发, 2020, 41(8): 210–217.
- YANG Guanjie, LIANG Peng. Research progress of microemulsions in the field of food nutrition and safety[J]. Food Research and Development, 2020, 41(8): 210–217.
- [51] 石俊杰, 鲁晓翔. 植物精油微乳技术及在食品保鲜中的应用[J]. 食品与发酵工业, 2021, 47(6): 267–273.
- SHI Junjie, LU Xiaoxiang. Microemulsion technology of plant essential oil and its application in food preservation[J]. Food and Fermentation Industries, 2021, 47(6): 267–273.
- [52] 张梦飞, 曾庆晗, 张亮, 等. 姜黄素的乳化和包埋及其应用研究进展[J]. 食品研究与开发, 2020, 41(14): 202–208.
- ZHANG Mengfei, ZENG Qinghan, ZHANG Liang, et al. Advances in emulsification and encapsulation of curcumin and its application[J]. Food Research and Development, 2020, 41(14): 202–208.
- [53] 徐婷. 柠檬醛纳米乳状液的制备及稳定机理研究[D]. 上海: 上海应用技术大学, 2016.
- XU Ting. Research on the preparation and stabilized mechanism of citral nanoemulsion[D]. Shanghai: Shanghai Institute of Technology, 2016.
- [54] 邓伶俐, 余立意, 买尔哈巴·塔西帕拉提, 等. 纳米乳液与微乳液的研究进展[J]. 中国食品学报, 2013, 13(8): 173–180.
- DENG Lingli, YU Liyi, MAIERHABA Taxipalati, et al. The research progress on nanoemulsion and microemulsion[J]. Journal of Chinese Institute of Food Science and Technology, 2013, 13(8): 173–180.
- [55] YANG X Q, TIAN H X, HO C T, et al. Inhibition of citral degradation by oil-in-water nanoemulsions combined with antioxidants[J]. Journal of Agricultural and Food Chemistry, 2011, 59(11): 6113–6119.
- [56] ZHAO Q, HO C T, HUANG Q R. Effect of ubiquinol-10 on citral stability and off-flavor formation in oil-in-water (O/W) nanoemulsions[J]. Journal of Agricultural and Food Chemistry, 2013, 61(31): 7462–7469.
- [57] 马磊, 毛多斌. 鹰嘴豆乳清蛋白稳定高柠檬醛相乳液的制备[J]. 食品科技, 2019, 44(8): 274–278.
- MA Lei, MAO Duobin. Preparation of citral emulsion stabilized by chickpea whey protein[J]. Food Science and Technology, 2019, 44(8): 274–278.
- [58] 李丹凤. 固体脂质纳米粒与抗氧化剂对柠檬醛稳定性影响的研究[D]. 上海: 上海应用技术大学, 2017.
- LI Danfeng. Study on the effect of solid lipid nanoparticles and antioxidants on the stability of citral[D]. Shanghai: Shanghai Institute of Technology, 2017.
- [59] SHIVHARE S C, MALVIYA K G, JAIN V, et al. A review on liposomes as a novel drug delivery system[J]. Research Journal of Pharmaceutical Dosage Forms & Technology, 2011, 23(10): 558–571.
- [60] PUSKÁS I, CSEMPESZ F. Influence of cyclodextrins on the physical stability of DPPC-liposomes[J]. Colloids and Surfaces B: Biointerfaces, 2007, 58(2): 218–224.
- [61] 墙梦捷, 鲁晓翔. 壳聚糖与植物精油复配在食品保鲜中的应用[J]. 中国食物与营养, 2020, 26(9): 45–48.
- QIANG Mengjie, LU Xiaoxiang. Research progress on the preparation of chitosan and plant essential oil for food preservation[J]. Food and Nutrition in China, 2020, 26(9): 45–48.
- [62] HOSSEINNEJAD M, JAFARI S M. Evaluation of different factors affecting antimicrobial properties of chitosan[J]. International Journal of Biological Macromolecules, 2016, 85: 467–475.

加工编辑: 刘艳美

收稿日期: 2021–08–13