

# 温敏型 L-薄荷醇微胶囊制备及性能

程书瑾<sup>1,2</sup>, 谢万淙<sup>2</sup>, 姜斌<sup>1</sup>, 刚宪卫<sup>1</sup>, 单长征<sup>1</sup>, 韩宜廷<sup>1</sup>, 韩中惠<sup>2\*</sup>

(1. 将军烟草集团有限公司 济南包装材料分公司, 山东 济南 250100; 2. 齐鲁工业大学(山东省科学院) 食品科学与工程学院, 山东 济南 250353)

**摘要:** 该研究以单硬脂酸甘油酯(glyceryl monostearate, GMS)与辛烯基琥珀酸淀粉钠(sodium starch octenyl succinate, SSO)为壁材, 将芯材 L-薄荷醇包埋, 使用喷雾冷冻干燥法制备温敏型 L-薄荷醇微胶囊。通过单因素试验、响应面试验优化温敏型 L-薄荷醇微胶囊制备工艺, 结合实际工艺得到最佳工艺条件为固形物含量 21%、GMS 与 SSO 质量比 0.16、芯材与壁材质量比 0.19、均质压力 30 MPa、进料速率 15 mL/min、干燥温度 42 °C, 温敏型 L-薄荷醇微胶囊包埋率可达 91.89%。采用扫描电子显微镜、激光粒度仪、热重分析仪对微胶囊的形貌特征和性能进行测定, 结果表明微胶囊微观结构完整、呈圆球形、无黏连、颗粒分散性好, 粒径平均为 1.9 μm, 在 153 °C 时 L-薄荷醇质量分数快速减少, 温敏型 L-薄荷醇微胶囊在 75 °C 时具有良好的释放性能。

**关键词:** L-薄荷醇; 微胶囊; 单硬脂酸甘油酯(GMS); 辛烯基琥珀酸淀粉钠(SSO); 喷雾冷冻干燥

## Preparation and Properties of Thermo-Sensitive L-Menthol Microcapsules

CHENG Shujin<sup>1,2</sup>, XIE Wancong<sup>2</sup>, JIANG Bin<sup>1</sup>, GANG Xianwei<sup>1</sup>, SHAN Changzheng<sup>1</sup>,  
HAN Yiting<sup>1</sup>, HAN Zhonghui<sup>2\*</sup>

(1. General Tobacco Group Co., Ltd., Jinan Packaging Material Branch, Jinan 250100, Shandong, China;  
2. School of Food Science and Engineering, Qilu University of Technology (Shandong Academy of Sciences),  
Jinan 250353, Shandong, China)

**Abstract:** In this study, glyceryl monostearate (GMS) and sodium starch octenyl succinate (SSO) were used as wall materials to embed the core material of L-menthol. Thermo-sensitive L-menthol microcapsules were prepared by spray freeze drying. The preparation process of thermo-sensitive L-menthol microcapsules was optimized through single-factor experiments and response surface experiments. The optimal process conditions were solid content of 21%, GMS/SSO mass ratio of 0.16, core material/wall material mass ratio of 0.19, homogenization pressure of 30 MPa, feeding speed of 15 mL/min, and drying temperature of 42 °C. Under these conditions, the embedding rate of thermo-sensitive L-menthol microcapsules could reach 91.89%. The morphology and properties of the microcapsules were observed with scanning electron microscopy, laser particle size analyzer, and thermogravimetric analyzer. The results showed that the microcapsules had a complete microstructure, a spherical shape, no adhesion, good particle dispersion, and an average particle size of 1.9 μm. The mass fraction of L-menthol rapidly decreased at 153 °C, and the thermo-sensitive L-menthol microcapsules exhibited relatively good release property at 75 °C.

**Key words:** L-menthol; microcapsules; glyceryl monostearate (GMS); sodium starch octenyl succinate (SSO); spray freeze drying

引文格式:

程书瑾, 谢万淙, 姜斌, 等. 温敏型 L-薄荷醇微胶囊制备及性能[J]. 食品研究与开发, 2025, 46(3): 97-106.

CHENG Shujin, XIE Wancong, JIANG Bin, et al. Preparation and Properties of Thermo-Sensitive L-Menthol Microcapsules[J]. Food Research and Development, 2025, 46(3): 97-106.

基金项目: 国家自然科学基金项目(32102101)

作者简介: 程书瑾(1996—), 女(汉), 硕士研究生, 研究方向: 食品风味。

\*通信作者: 韩中惠(1988—), 男(汉), 讲师, 博士, 研究方向: 食品加工安全与营养。

薄荷醇又称薄荷脑,是一种无色针状结晶或粒状的有机化合物,在自然界中存有两种异构体,其中左旋薄荷醇(L-薄荷醇)具有清新的薄荷香气和强烈的清凉感,因此L-薄荷醇被广泛应用于食品、烟草和化妆品等各种领域<sup>[1-2]</sup>。L-薄荷醇不仅可以作为香料使用,同时也是一种重要的医药原料<sup>[3-4]</sup>。在食品行业中,它常被用作口香糖、糖果、饮料和糕点的添加剂,为产品带来清凉的口感和独特的香气<sup>[5]</sup>。在烟草行业中,添加薄荷醇可以增加烟草的清新感和口感<sup>[6]</sup>。L-薄荷醇虽香气浓烈但易挥发,高温条件下损失大,还易结晶降解,严重影响了其在食品和烟草中的应用,导致产品质量和货架寿命降低。

微胶囊包埋使用特殊材料包埋目标物质,保持其风味、营养和活性,增强稳定性,广泛应用于食品、化工、医药等领域<sup>[7-9]</sup>。有研究采用明胶与阿拉伯树胶粉、明胶与海藻酸钠等材料作为壁材,通过复合凝聚法制备薄荷精油微胶囊,并对其物理性能和贮存稳定性进行表征,丰富了微胶囊制备材料的多样性,并为微胶囊的稳定性研究提供了参考<sup>[10-14]</sup>。此外,研究人员选用辛烯基琥珀酸酐改性的短葡聚糖链、改性麦芽糊精、阿拉伯胶和 $\beta$ -环糊精分别通过分子包络法、喷雾干燥等技术制备了薄荷醇微胶囊,使薄荷醇的包埋率由70%提高至95%,拓展了制备微胶囊技术<sup>[15-18]</sup>。还有研究人员优化固化剂,使用高压静电法、熔体分散等方法延长微胶囊的保质期<sup>[19-21]</sup>。目前多数L-薄荷醇微胶囊属于常规型,无法使L-薄荷醇在较为特定的温度下释放,因此对温敏型L-薄荷醇微胶囊研究较少。

单硬脂酸甘油酯(glyceryl monostearate, GMS)是一种常见的食品乳化剂和食品添加剂,其在65℃左右时会发生熔融现象<sup>[22]</sup>,所以当外部环境到达65℃以上时,GMS融化,以GMS为壁材的微胶囊芯材可以暴露出来进行释放。但通过预试验发现用GMS作为壁材,L-薄荷醇在微胶囊中的包封率非常差,微胶囊形态易坍塌分解。辛烯基琥珀酸淀粉钠(sodium starch octenyl succinate, SSO)是一种安全性高的乳化增稠剂,还是优越的微胶囊壁材,可用来包埋水不溶性和挥发性物质<sup>[23]</sup>。因此GMS和SSO可作为温敏型微胶囊的壁材,SSO可强化囊壁的机械强度,确保GMS受热融化后,可继续保持微胶囊的原形态,以此达到芯材在特定温度下缓慢释放的效果。

基于此,本研究以L-薄荷醇为芯材,GMS与SSO复配作为壁材,利用冷冻喷雾干燥制备温敏型L-薄荷醇微胶囊,采用单因素试验与响应面优化试验考察固形物含量、GMS与SSO质量比、芯材与壁材质量比、冷冻喷雾干燥温度等因素对微胶囊包埋率和得率的影响,探究最佳温敏型L-薄荷醇微胶囊化的制备工艺;使用扫描电子显微镜、激光粒度仪、热重分析仪和傅里

叶红外光谱仪等设备对该微胶囊的形貌特征进行表征,并对温敏型L-薄荷醇微胶囊释放效率进行探究,以期对温敏型L-薄荷醇微胶囊的工业化及应用提供基础理论和技术支撑。

## 1 材料与方法

### 1.1 试剂与材料

L-薄荷醇(食品级):江西源上草香料有限公司;SSO(食品级):德清三富食品有限公司;GMS(食品级):广州市佳力士食品有限公司;去离子水:杭州娃哈哈集团有限公司;甲醇、无水乙醇(均为分析纯):国药集团化学试剂有限公司。

### 1.2 仪器与设备

C-MAG HP4 电热板:艾卡(广州)仪器设备有限公司;DP-HH-S8 数显恒温水浴锅:北京亚欧德鹏科技有限公司;SB-4200DTD 数控超声波清洗器:宁波新芝生物科技股份有限公司;OS25 高速分散机:广州华侨仪器科技有限公司;GJJ 实验型高压均质机:合肥小年轻工机械有限公司;QFN 小型喷雾冷冻干燥机:上海乔枫实业有限公司;7890B/5977A 气相-质谱联用(gas chromatography-mass spectrometry, GC-MS)仪:美国安捷伦公司;G500 场发射扫描电子显微镜:德国蔡司公司;Mastersizer2000 激光粒径仪:英国马尔文帕纳科公司;TGA-1 热重分析仪:瑞士梅特勒-托利多公司。

### 1.3 L-薄荷醇微胶囊的制备方法

温敏型L-薄荷醇微胶囊:SSO与去离子水按照一定的比例充分搅拌,水合8h后,得到透明、低黏的SSO水合溶液,然后在90℃水浴锅中加热搅拌糊化1.5h;GMS与无水乙醇按一定比例充分混合,使其完全溶于无水乙醇;称取一定量的L-薄荷醇于60℃水浴加热搅拌,充分融化;将熔融的L-薄荷醇、溶解的GMS分别按一定比例加入到糊化的SSO水相中,使用高速分散机(转速为8000 r/min)搅拌30 min,得到混合液。然后将混合液在均质机按一定压力处理3个循环,得到乳化液。将乳化液通过喷雾冷冻干燥机得到温敏型L-薄荷醇微胶囊。

常规型L-薄荷醇微胶囊:制备方法与制备温敏型L-薄荷醇微胶囊相同,但不使用GMS作为壁材。

### 1.4 L-薄荷醇微胶囊包埋率检测

#### 1.4.1 L-薄荷醇的检测

使用甲醇溶解L-薄荷醇标准品,定容在10 mL的棕色容量瓶中,然后稀释得到浓度为0.05、0.1、0.5、1、5、10、50 mg/mL的标准L-薄荷醇溶液,置于4℃冷藏保存备用,待GC-MS分析。GC-MS分析方法参考文献[4]并稍作修改。GC-MS由气相色谱7890B和质谱检测器5977A组成。样品分离色谱柱为VF-WAXms色谱柱(30 m×0.25 mm×0.25  $\mu$ m);进样体积1  $\mu$ L。气体为

氮气,载气流速为 1 mL/min,进样口温度为 280 °C,传输线温度为 280 °C。离子源温度为 230 °C,单离子检测扫描(single ion monitoring, SIM)模式,  $m/z$  81。色谱柱在 110 °C 保持 5 min,然后以 10 °C/min 升温至 170 °C,保持 5 min 再以 15 °C/min 升温至 250 °C 保持 6 min。

以 L-薄荷醇标准品浓度为横坐标,检测结果峰面积为纵坐标绘制标准曲线,其线性回归方程为  $y=12.88x-15.33$ ,线性相关系数  $r^2=0.9995$ ,结果选定范围内线性关系良好,方法检出限为 0.011 mg/L,定量限为 0.036 mg/L。

#### 1.4.2 包埋率和得率测定

取 1 g L-薄荷醇微胶囊,加入 5 mL 无水乙醇进行混合,3 000 r/min 离心 2 min,使用 15 mL 无水乙醇重复冲洗,合并滤液通过低温旋转蒸发,将其定容于 5 mL 的容量瓶中,测定 L-薄荷醇在微胶囊外面的含量。L-薄荷醇包埋率的计算公式(1)如下。

$$E = \frac{X - X_1}{X} \times 100 \quad (1)$$

式中: $E$  为 L-薄荷醇微胶囊包埋率,%; $X$  为 L-薄荷醇微胶囊质量,g; $X_1$  为 L-薄荷醇微胶囊表面含水量,g。

利用质量称量法测定得率,计算公式(2)如下。

$$M = \frac{M_0}{M_1 + M_2} \times 100 \quad (2)$$

式中: $M$  为 L-薄荷醇微胶囊的得率,%; $M_0$  为喷雾干燥后微胶囊质量,g; $M_1$  为 L-薄荷醇质量,g; $M_2$  为壁材质量,g。

### 1.5 L-薄荷醇微胶囊工艺优化

#### 1.5.1 单因素试验

##### 1.5.1.1 固形物含量对微胶囊的影响

在 GMS 与 SSO 质量比 0.15、芯材与壁材质量比 0.20、均质压力 30 MPa、进料速率 20 mL/min 和干燥温度 40 °C 的条件下,研究 GMS、SSO 混合固形物含量分别为 15%、20%、25%、30%、35% 时对 L-薄荷醇微胶囊包埋率和得率的影响。

##### 1.5.1.2 GMS 与 SSO 质量比对微胶囊的影响

在固形物含量 25%、芯材与壁材质量比 0.20、均质压力 30 MPa、进料速率 20 mL/min 和干燥温度 40 °C 的条件下,研究 GMS 与 SSO 质量比分别为 0.05、0.10、0.15、0.20、0.25 时对 L-薄荷醇微胶囊包埋率和得率的影响。

##### 1.5.1.3 芯材与壁材质量比对微胶囊的影响

在固形物含量 25%、GMS 与 SSO 质量比 0.15、均质压力 30 MPa、进料速率 20 mL/min 和干燥温度 40 °C 的条件下,研究芯材与壁材质量比为 0.10、0.15、0.20、0.25、0.30、0.35 时对 L-薄荷醇微胶囊包埋率和得率的影响。

##### 1.5.1.4 均质压力对微胶囊的影响

在固形物含量 25%、GMS 与 SSO 质量比 0.15、芯材与壁材质量比 0.20、进料速率 20 mL/min 和干燥温度 40 °C 的条件下,研究均质压力为 20、25、30、35、40 MPa 时对 L-薄荷醇微胶囊包埋率和得率的影响。

##### 1.5.1.5 进料速率对微胶囊的影响

在固形物含量 25%、GMS 与 SSO 质量比 0.15、芯材与壁材质量比 0.20、均质压力 30 MPa 和干燥温度 40 °C 的条件下,研究进料速率分别为 10%、15%、20%、25%、30% 时对 L-薄荷醇微胶囊包埋率和得率的影响。

##### 1.5.1.6 干燥温度对微胶囊的影响

在固形物含量 25%、GMS 与 SSO 质量比 0.15、芯材与壁材质量比 0.20、均质压力 30 MPa 和进料速率 20 mL/min 的条件下,研究干燥温度分别为 30、35、40、45、50、55 °C 时对 L-薄荷醇微胶囊包埋率和得率的影响。

#### 1.5.2 响应面试验

在单因素试验结果的基础上,选取固形物含量、GMS 与 SSO 质量比、芯材与壁材质量比、干燥温度 4 个因素,利用 Design-Expert 13 进行四因素三水平响应面设计,以包埋率为考察指标,优化温敏型 L-薄荷醇微胶囊制备工艺条件。响应面因素与水平见表 1。

表 1 响应面因素与水平

Table 1 Factors and levels of response surface

水平	因素			
	A 固形物含量/%	B GMS 与 SSO 质量比	C 芯材与壁材质量比	D 干燥温度/°C
-1	20	0.05	0.15	35
0	25	0.10	0.20	40
1	30	0.15	0.25	45

### 1.6 微胶囊结构表征

#### 1.6.1 扫描电子显微镜分析

将制备好的 L-薄荷醇微胶囊均匀分散在导电胶上,喷金后用场发射扫描电子显微镜观察形貌,加速电压为 3 kV。

#### 1.6.2 微胶囊粒径分析

将适量 L-薄荷醇微胶囊分散于去离子水中,溶液透明即可用激光粒径仪进行分析。

#### 1.6.3 微胶囊热重分析

取适量 L-薄荷醇、温敏型 L-薄荷醇微胶囊和常规型 L-薄荷醇微胶囊样品,将其分别置于热重分析仪进行测定。在氮气气氛下,样品温度从 40 °C 升到 900 °C (速度为 10 °C/min)。

#### 1.7 微胶囊释放性能测定

将一定量的温敏型 L-薄荷醇微胶囊和常规型 L-

薄荷醇微胶囊分别至于 75 °C 条件下,加热 5、10、15、20、25、30、35、40 s,快速将加热后微胶囊颗粒置于适量的低温甲醇中研磨,然后定容,待 GC-MS 分析,仪器分析方法同 1.4.1。

## 1.8 数据分析

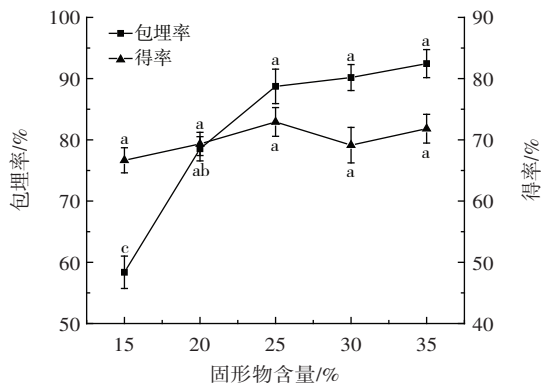
试验所得数据以平均值±标准差表示,其相关数据通过方差分析和邓肯测试,采用 WPS office 对数据进行处理,OriginPro 2016 为作图软件,Design-Expert 13 设计与分析响应面试验结果。

## 2 结果与分析

### 2.1 单因素试验结果分析

#### 2.1.1 固形物含量对微胶囊的影响结果分析

固形物含量对微胶囊的影响见图 1。



同一指标不同小写字母表示差异显著( $P < 0.05$ )。

图 1 固形物含量对微胶囊的影响

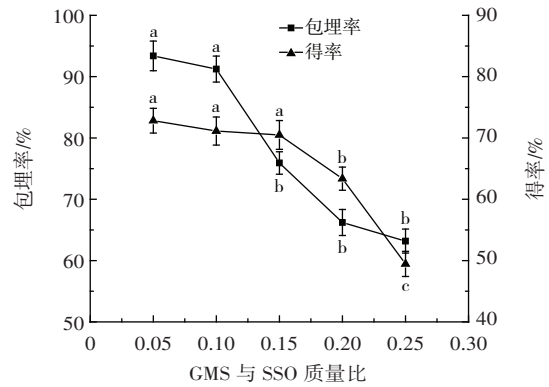
Fig.1 Effect of solid content on microcapsules

由图 1 可知,固形物含量对温敏型 L-薄荷醇微胶囊的包埋率和得率均有影响。随着固形物含量的增加,微胶囊包埋率逐渐增加,当固形物含量高于 25% 时,微胶囊包埋率增加效果不显著,主要原因是固形物含量较低时,喷雾冷冻干燥过度,易使微胶囊干裂,导致包埋率低。随着固形物含量变化,微胶囊得率的变化不显著。此外,如果固形物含量超过 30%,其将会对料液的雾化产生影响,造成微胶囊黏壁,使得率降低。因此选择固形物含量 20%、25%、30% 进行响应面优化试验。

#### 2.1.2 GMS 与 SSO 质量比对微胶囊的影响结果分析

GMS 与 SSO 质量比对微胶囊的影响见图 2。

由图 2 可知,GMS 与 SSO 质量比对温敏型 L-薄荷醇微胶囊的包埋率和得率均有影响。随着 GMS 占比的增加,L-薄荷醇微胶囊包埋率逐渐降低,GMS 与 SSO 质量比超过 0.10 时,包埋率显著降低;当 GMS 与 SSO 质量比大于 0.15 时,L-薄荷醇微胶囊得率显著降低。主要原因是 GMS 的增加使微胶囊自身结构的稳定性变差,囊壁易坍塌分解。因此选择 GMS 与 SSO 质量



同一指标不同小写字母表示差异显著( $P < 0.05$ )。

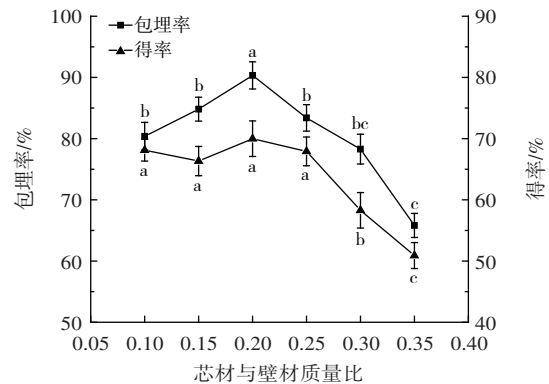
图 2 GMS 与 SSO 质量比对微胶囊的影响

Fig.2 Effect of GMS/SSO mass ratio on microcapsules

比 0.05、0.10、0.15 进行响应面优化试验。

#### 2.1.3 芯材与壁材质量比对微胶囊的影响结果分析

芯材与壁材质量比对微胶囊的影响见图 3。



同一指标不同小写字母表示差异显著( $P < 0.05$ )。

图 3 芯材与壁材质量比对微胶囊的影响

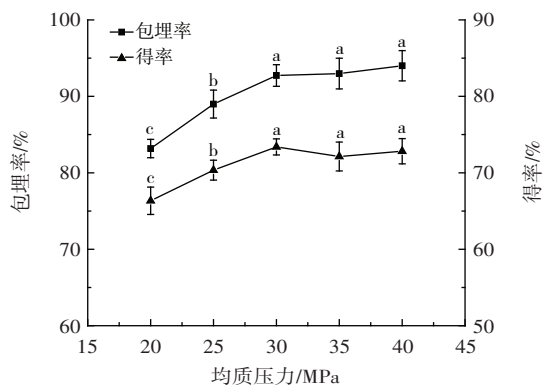
Fig.3 Effect of core material/wall material mass ratio on microcapsules

由图 3 可知,随着芯材占比增大,微胶囊的包埋率先增大后减小,芯材与壁材质量比为 0.20 时,包埋率达 90.33%;当芯材和壁材质量比大于 0.25 时,微胶囊的得率显著降低。微胶囊的包埋率和得率降低的原因均是过多的 L-薄荷醇不能被完全包埋导致。因此选择芯材与壁材质量比 0.15、0.20、0.25 进行响应面优化试验。

#### 2.1.4 均质压力对微胶囊的影响结果分析

均质压力对微胶囊的影响见图 4。

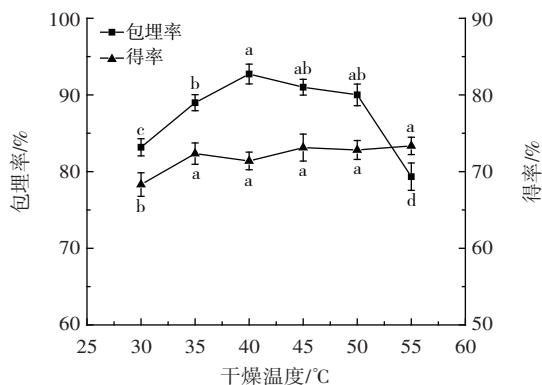
由图 4 可知,随着均质压力增大,微胶囊的包埋率和得率均增加,但是在 30~40 MPa 间,微胶囊的包埋率和得率均不再显著增加,这表明此均质压力范围形成的乳滴更易形成 L-薄荷醇微胶囊。如果均质压力继续增加,乳液的液滴会变得更小容易破碎,反而会使微胶囊的包埋率和得率降低。因此选择均质压力 30 MPa



同一指标不同小写字母表示差异显著( $P < 0.05$ )。

图4 均质压力对微胶囊的影响

Fig.4 Effect of homogenization pressure on microcapsules



同一指标不同小写字母表示差异显著( $P < 0.05$ )。

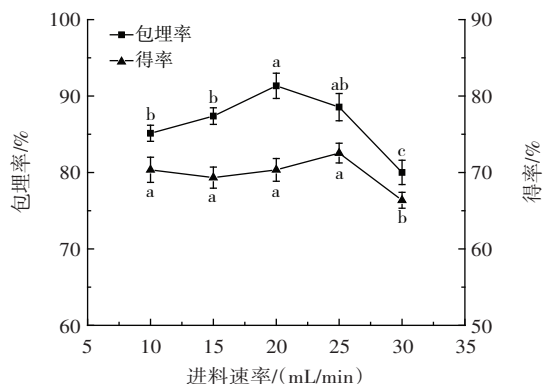
图6 干燥温度对微胶囊的影响

Fig.6 Effect of drying temperature on microcapsules

进行微胶囊制备。

### 2.1.5 进料速率对微胶囊的影响结果分析

进料速率对微胶囊的影响见图5。



同一指标不同小写字母表示差异显著( $P < 0.05$ )。

图5 进料速率对微胶囊的影响

Fig.5 Effect of feed rate on microcapsules

由图5可知,进料速率为10~20 mL/min时,微胶囊的包埋率随着进料速率的增加而增加,但当进料速率继续增加,包埋率开始降低,主要原因是进料速率增大造成雾化滴粒径随之增大,使小部分的微胶囊不能形成紧密囊壁,造成包埋率降低;在进料速率为10~25 mL/min时,微胶囊得率变化不显著,当进料速率大于25 mL/min,包埋率显著降低,其产生原因是料液雾化不充分,未能形成微胶囊。因此选择进料速率15 mL/min进行微胶囊制备。

### 2.1.6 干燥温度对微胶囊的影响结果分析

干燥温度对微胶囊的影响见图6。

由图6可知,与其他干燥温度相比,当干燥温度为55 °C时,微胶囊的包埋率显著降低,主要原因是该温度恰为芯材L-薄荷醇的熔点附近,易使其发生融化,导致微胶囊的包埋率降低;干燥温度为35~50 °C时,微胶囊的得率无显著增加。因此选择干燥温度35、40、

45 °C进行响应面优化试验。

## 2.2 响应面结果分析

### 2.2.1 响应面方案与结果

以微胶囊的包埋率为响应值,利用Box-Behnken中心组合进行试验设计,结果如表2所示。

表2 微胶囊包埋率 Box-Behnken 试验设计与结果  
Table 2 Box-Behnken experiment design and results for embedding rate of microcapsules

序号	A 固形物含量	B GMS 与 SSO 质量比	C 芯材与壁材质量比	D 干燥温度	包埋率/%
1	0	0	0	0	90.23
2	-1	-1	0	0	79.99
3	1	0	1	0	86.39
4	1	0	-1	0	84.93
5	-1	1	0	0	90.54
6	0	-1	0	1	78.01
7	0	1	0	1	89.91
8	1	0	0	1	88.22
9	0	0	0	0	87.19
10	0	0	1	1	85.21
11	0	0	-1	-1	76.49
12	0	0	0	0	93.19
13	1	1	0	0	83.18
14	-1	0	0	1	91.89
15	0	-1	-1	0	76.29
16	0	-1	0	-1	74.49
17	-1	0	0	-1	84.35
18	0	1	0	-1	74.44
19	0	1	1	0	83.39
20	0	0	0	0	92.11
21	-1	0	1	0	84.51
22	0	-1	1	0	77.19
23	0	1	-1	0	88.82
24	0	0	0	0	91.12
25	0	0	-1	1	88.07
26	1	0	0	-1	78.42
27	0	0	1	-1	75.43
28	1	-1	0	0	78.61
29	-1	0	-1	0	90.16

利用 Design-Expert 软件进行二次多项回归模型分析,回归方程如下。

$$Y=90.77-1.81A+3.81B-1.05C+4.81D-1.50AB+1.78AC+0.57AD-1.58BC+2.99BD-0.45CD-0.61A^2-6.40B^2-3.65C^2-5.14D^2$$

回归模型方差分析见表 3。

表 3 回归模型方差分析

Table 3 Analysis of variance of the regression models

方差来源	平方和	自由度	均差	F 值	P 值	显著性
模型	980.68	14	70.05	23.20	<0.000 1	**
A	39.20	1	39.20	12.99	0.002 9	**
B	174.04	1	174.04	57.65	<0.000 1	**
C	13.31	1	13.31	4.41	0.054 3	
D	277.34	1	277.34	91.87	<0.000 1	**
AB	8.94	1	8.94	2.96	0.107 3	
AC	12.64	1	12.64	4.19	0.060 0	
AD	1.28	1	1.28	0.42	0.526 0	
BC	10.02	1	10.02	3.32	0.090 0	
BD	35.70	1	35.70	11.83	0.004 0	**
CD	0.81	1	0.81	0.27	0.612 6	
A <sup>2</sup>	2.39	1	2.39	0.79	0.388 4	
B <sup>2</sup>	265.57	1	265.57	87.97	<0.000 1	**
C <sup>2</sup>	86.23	1	86.23	28.56	0.000 1	**
D <sup>2</sup>	171.36	1	171.36	56.76	<0.000 1	**
残差	42.27	14	3.02			
失拟项	21.38	10	2.14	0.409 6	0.885 0	
净误差	20.88	4	5.22			
总离差	1 022.95	28				

注:\*\*表示影响极显著( $P<0.01$ )。

由表 3 可知,模型  $P<0.01$ ,表示该模型影响极显著,模型具有统计学意义,失拟项  $P=0.885 0>0.05$ ,结果差异不显著,表明该模型无失拟因素存在,可以使用该回归方程代替试验真实点对试验结果进行分析。模型中的相关系数  $R^2=0.957 8$ 、校正决定系数  $R^2_{Adj}=0.917 4$ ,说明实际值与预测值间具有较好重合度,该模型可靠,可用于温敏型 L-薄荷醇微胶囊制备工艺预测与分析。从各个因素的  $F$  值判断,对微胶囊包埋率的影响程度为干燥温度( $D$ )>GMS 与 SSO 质量比( $B$ )>固形物含量( $A$ )>芯材与壁材质量比( $C$ )。

各因素间的交互作用对温敏型 L-薄荷醇微胶囊包埋率影响的响应面和等高线如图 7~12 所示。

响应曲面的倾斜程度越高则代表交互作用的两因素对微胶囊包埋率因素影响越显著,GMS 与 SSO 质量比( $B$ )与干燥温度( $D$ )等高线较扁平,交互作用极显著;固形物含量( $A$ )和 GMS 与 SSO 质量比( $B$ )、固形物含量( $A$ )与芯材与壁材质量比( $C$ )、固形物含量( $A$ )与干燥温度( $D$ )、GMS 与 SSO 质量比( $B$ )与芯材与壁材

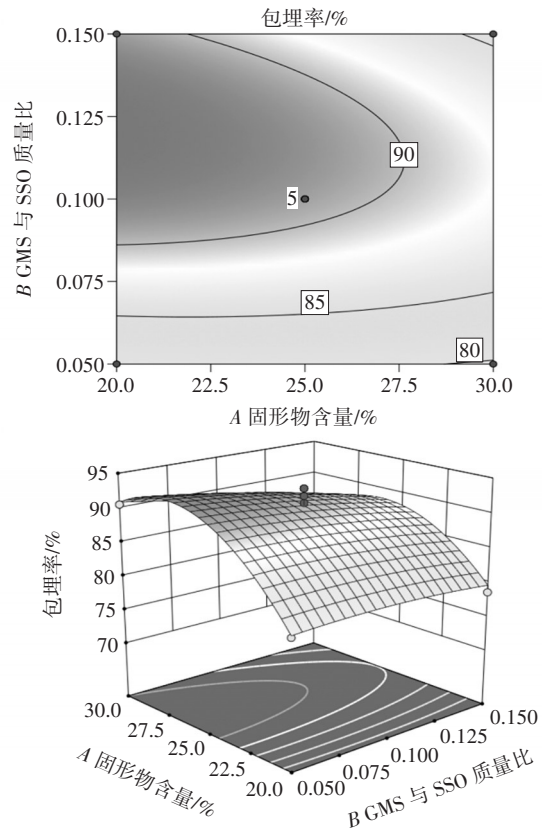


图 7 固形物含量和 GMS 与 SSO 质量比的交互作用

Fig.7 Interaction between solid content and GMS/SSO mass ratio

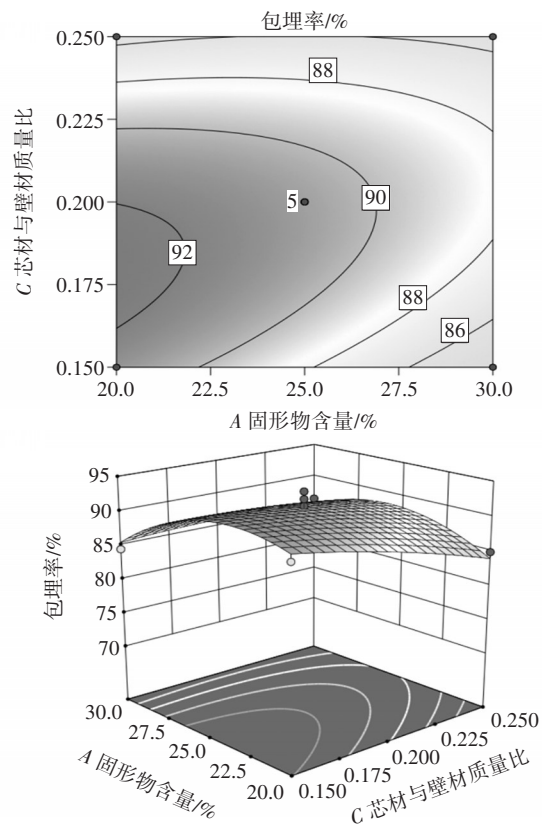


图 8 固形物含量和芯材与壁材质量比的交互作用

Fig.8 Interaction between solid content and core material/wall material mass ratio

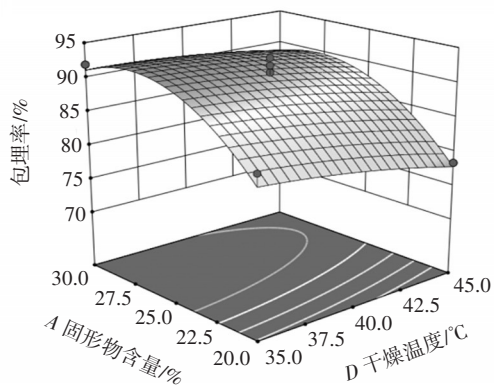
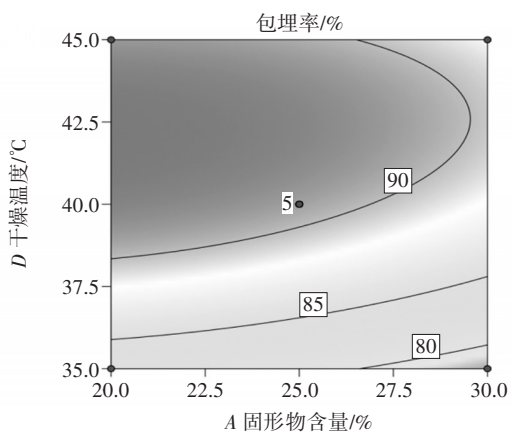


图9 固形物含量和干燥温度的交互作用

Fig.9 Interaction between solid content and drying temperature

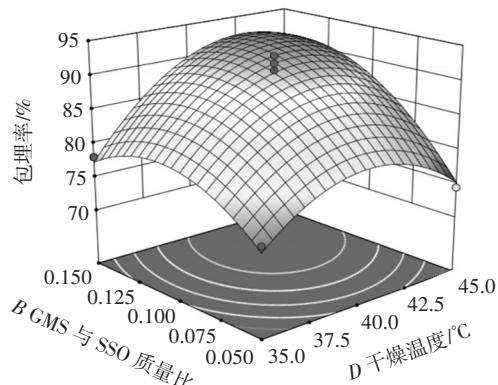
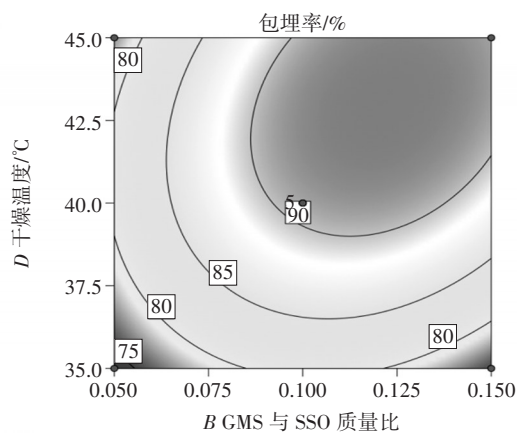


图11 GMS与SSO质量比和干燥温度的交互作用

Fig.11 Interaction between GMS/SSO mass ratio and drying temperature

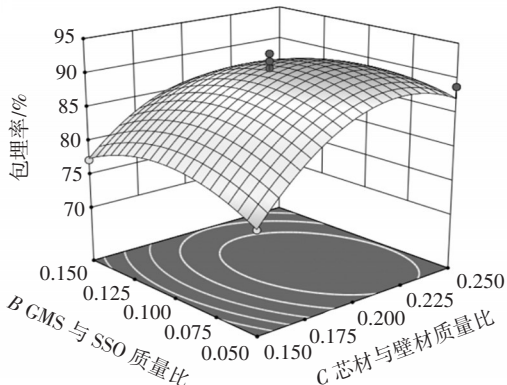
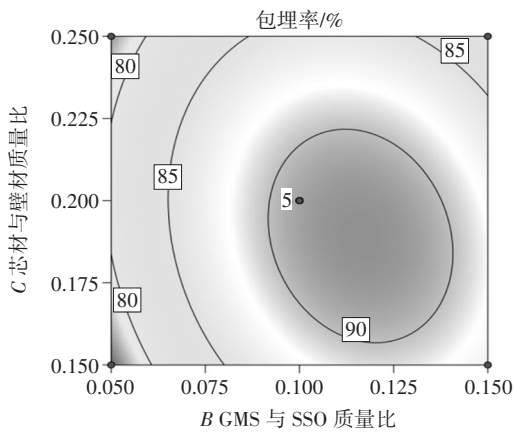


图10 GMS与SSO质量比和芯材与壁材质量比的交互作用

Fig.10 Interaction between GMS/SSO mass ratio and core material/wall material mass ratio

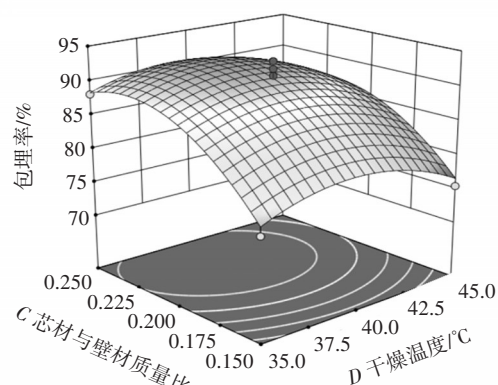
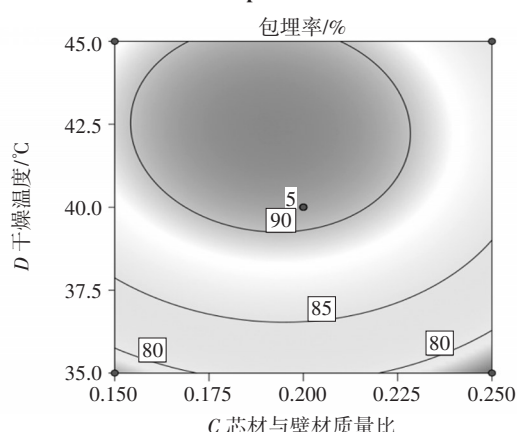


图12 芯材与壁材质量比和干燥温度的交互作用

Fig.12 Interaction between core material/wall material mass ratio and drying temperature

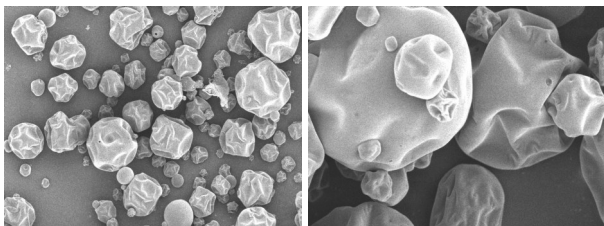
质量比(C)以及芯材与壁材质量比(C)与干燥温度(D)之间的交互作用响应面图较平缓,对包埋率的交互作用影响不显著,这与方差分析结果一致。

### 2.2.2 工艺条件确定及验证

根据响应面法试验得出的最优制备温敏型 L-薄荷醇微胶囊的条件为固形物含量 20.55%、GMS 与 SSO 质量比 0.163、芯材与壁材质量比 0.185、干燥温度 41.9 °C,此时包埋率为 94.66%。根据实际试验条件,并结合试验和仪器实际参数,使用固形物含量 21%、GMS 与 SSO 质量比 0.16、芯材与壁材质量比 0.19、干燥温度 42 °C,在此条件下进行试验,最终包埋率为 91.89%,结果的试验值与预测值拟合度较好,表明该模型稳定可靠。

### 2.3 微胶囊的扫描电子显微镜分析

在优化的条件下制备温敏型 L-薄荷醇微胶囊,其扫描电子显微镜扫描结果如图 13 所示。



A. 放大 1 000 倍;B. 放大 5 000 倍。

图 13 温敏型 L-薄荷醇微胶囊扫描电子显微镜图

Fig.13 SEM image of thermo-sensitive L-menthol microcapsules

由图 13 可知,在放大 1 000 倍和 5 000 倍的条件可以清晰地观察到 L-薄荷醇微胶囊微观整体结构完整、呈规则的圆球形,且无黏连、颗粒分散性好,微胶囊表面略有褶皱,这可能是在干燥过程中失水导致。

### 2.4 微胶囊的粒径分析

对温敏型 L-薄荷醇微胶囊进行粒径分析,结果如图 14 所示。

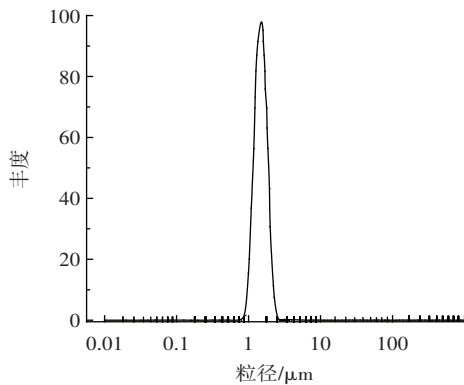


图 14 温敏型 L-薄荷醇微胶囊粒径分布

Fig.14 Particle size distribution of thermo-sensitive L-menthol microcapsules

由图 14 可知,经过优化工艺制备的微胶囊粒径分

布比较集中,主要分布在 1.0~4.8 μm,平均粒径为 1.9 μm,说明该微胶囊具有良好品质。

### 2.5 热重分析

对 L-薄荷醇、温敏型 L-薄荷醇微胶囊和常规型 L-薄荷醇微胶囊进行热重分析,结果如图 15 所示。

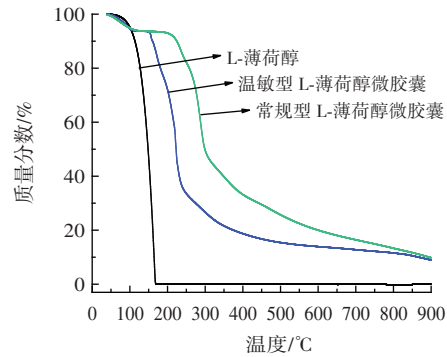


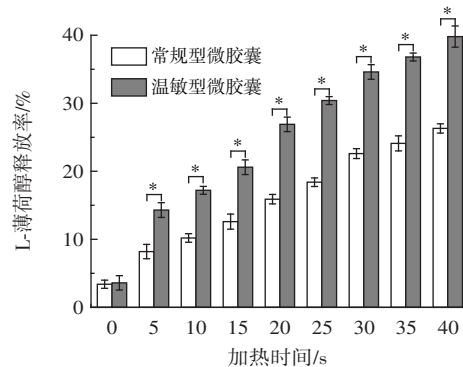
图 15 微胶囊的热重曲线

Fig.15 Thermogravimetric curves of microcapsules

由图 15 可知,L-薄荷醇在 40~170 °C 质量快速损失,170 °C 时,质量分数仅为 3.05%,主要原因是 L-薄荷醇随温度的升高快速挥发、分解。在 40~900 °C 时,温敏型 L-薄荷醇微胶囊和常规型 L-薄荷醇微胶囊质量分数变化均是先减少,再缓慢减少,其次快速降低,最后趋于平缓。但温敏型 L-薄荷醇微胶囊和常规型 L-薄荷醇微胶囊质量分数快速降低的温度不同,温敏型 L-薄荷醇微胶囊质量分数降低的温度为 153 °C,常规型 L-薄荷醇微胶囊降低的温度为 208 °C,这表明 GMS 在温度温敏型 L-薄荷醇微胶囊起到了作用,当温度大于 153 °C 后 GMS 组分快速挥发、分解,使囊壁破裂,L-薄荷醇质量分数快速减少。

### 2.6 微胶囊的释放性能分析

在 75 °C 的条件下,对温敏型 L-薄荷醇微胶囊和常规型 L-薄荷醇微胶囊的释放性能进行研究,结果如图 16 所示。



\*表示组内存在显著性差异, $P < 0.05$ 。

图 16 不同微胶囊对 L-薄荷醇释放率的影响

Fig.16 Effect of different microcapsules on the release rate of L-menthol



由图 16 可知,这两类微胶囊均随着加热时间的延长,L-薄荷醇的释放率明显增加;在相同时间下( $\geq 5$  s),温敏型 L-薄荷醇微胶囊比常规型 L-薄荷醇微胶囊释放率更高,主要原因是 GMS 的熔融特性起到了作用,当温度大于 GMS 熔点时,GMS 发生融化,破坏了原有的囊壁结构,加速了温敏型微胶囊中 L-薄荷醇的释放。

### 3 结论

本研究以 GMS 与 SSO 为壁材,以 L-薄荷醇作为芯材进行包埋,制备了温敏型 L-薄荷醇微胶囊。以芯材包埋率为考察指标,通过单因素试验、响应面优化 L-薄荷醇微胶囊制备工艺,使用扫描电子显微镜、激光粒度仪、热重分析仪对微胶囊的形貌特征进行表征,并进行 L-薄荷醇释放效率的探究。结果表明,在固形物含量 21%、GMS 与 SSO 质量比 0.16、芯材与壁材质量比 0.19、干燥温度 42 °C 的条件下,制备的 L-薄荷醇微胶囊包埋率可达 91.89%。该条件下制备的微胶囊微观结构完整、呈圆球形、无黏连、颗粒分散性好,L-薄荷醇微胶囊平均粒径为 1.9  $\mu\text{m}$ ;热重分析可知 L-薄荷醇温敏型微胶囊在 153~253 °C 时,L-薄荷醇质量分数从 93.5% 迅速降低到 35.5%;L-薄荷醇温敏型微胶囊在 75 °C 加热 40 s 后,L-薄荷醇可快速释放 39.8%,具有良好的释放性能。

### 参考文献:

- [1] 李光水,肖凌. 薄荷醇—变性淀粉微胶囊的实验研究[J]. 食品科学, 1998, 19(7): 40-42.  
LI Guangshui, XIAO Ling. Experimental study of menthol-modified starch microcapsules[J]. Food Science, 1998, 19(7): 40-42.
- [2] 张其忠,毛海舫,张贵,等. L-薄荷醇工业化生产的现状与进展[J]. 香料香精化妆品, 2023(3): 115-120.  
ZHANG Qizhong, MAO Haifang, ZHANG Gui, et al. Status quo and research progress for the industrial production of L-menthol[J]. Flavour Fragrance Cosmetics, 2023(3): 115-120.
- [3] 孙文豪,杨扬,陈恒,等. 薄荷有效成分药理作用研究进展[J]. 江苏中医药, 2023, 55(5): 78-82.  
SUN Wenhao, YANG Yang, CHEN Heng, et al. Research progress on pharmacological effects of effective components of mint[J]. Jiangsu Journal of Traditional Chinese Medicine, 2023, 55(5): 78-82.
- [4] 熊智,施佳佳,何泉泉. 气相色谱质谱法测定化妆品中薄荷醇和薄荷醇乳酸酯[J]. 日用化学工业, 2022, 52(11): 1254-1258.  
XIONG Zhi, SHI Jiajia, HE Quanquan. Determination of menthol and menthyl lactate in cosmetics by GC-MS[J]. China Surfactant Detergent & Cosmetics, 2022, 52(11): 1254-1258.
- [5] MAMADALIEVA N Z, HUSSAIN H, XIAO J B. Recent advances in genus *Mentha*: Phytochemistry, antimicrobial effects, and food applications[J]. Food Frontiers, 2020, 1(4): 435-458.
- [6] YERGER V B, MCCANDLESS P M. Menthol sensory qualities and smoking topography: A review of tobacco industry documents[J]. Tobacco Control, 2011, 20(Suppl\_2): ii37-ii43.
- [7] SEOK KWON O, JANG J, BAE J. A review of fabrication methods and applications of novel tailored microcapsules[J]. Current Organic Chemistry, 2013, 17(1): 3-13.
- [8] JU J, XIE Y F, GUO Y H, et al. Application of starch microcapsules containing essential oil in food preservation[J]. Critical Reviews in Food Science and Nutrition, 2020, 60(17): 2825-2836.
- [9] 包秀萍,王松峰,何雪峰,等. 薄荷油微胶囊的制备及其在卷烟中的应用[J]. 河南农业科学, 2013, 42(3): 146-149.  
BAO Xiuping, WANG Songfeng, HE Xuefeng, et al. Preparation of peppermint oil microcapsules and their application in cigarette[J]. Journal of Henan Agricultural Sciences, 2013, 42(3): 146-149.
- [10] 宋秀明,刘玉,徐翔宇,等. 薄荷精油微胶囊的制备及性能表征[J]. 林产化学与工业, 2022, 42(4): 47-53.  
SONG Xiuming, LIU Yu, XU Xiangyu, et al. Preparation and characterization of peppermint essential oil microcapsules[J]. Chemistry and Industry of Forest Products, 2022, 42(4): 47-53.
- [11] 朱楠,张子琪,崔慧明,等. 薄荷精油微胶囊的制备及应用[J]. 针织工业, 2022(8): 49-53.  
ZHU Nan, ZHANG Ziqi, CUI Huiming, et al. Preparation and application of peppermint essential oil microcapsules[J]. Knitting Industries, 2022(8): 49-53.
- [12] 李景权,何昱轩,孙文轩. 卷烟薄荷香型微胶囊颗粒的制备及其应用研究[J]. 食品工业科技, 2020, 41(20): 194-199.  
LI Jingquan, HE Yuxuan, SUN Wenxuan. Preparation of mint flavor cigarette microcapsule particles and its application[J]. Science and Technology of Food Industry, 2020, 41(20): 194-199.
- [13] 李宏英,王鸿博,傅佳佳,等. 明胶-海藻酸钠制备薄荷油微胶囊的工艺优化[J]. 高分子材料科学与工程, 2019, 35(9): 142-149.  
LI Hongying, WANG Hongbo, FU Jiajia, et al. Optimization of preparation technology of peppermint oil microcapsules in gelatin sodium alginate[J]. Polymer Material Science and Engineering 2019, 35(9): 142-149.
- [14] LECLERCQ S, HARLANDER K R, REINECCIUS G A. Formation and characterization of microcapsules by complex coacervation with liquid or solid aroma cores[J]. Flavour and Fragrance Journal, 2009, 24(1): 17-24.
- [15] 王凯,雷声,蒋举兴,等. 薄荷油微胶囊的制备及其性能研究[J]. 食品安全质量检测学报, 2019, 10(17): 5822-5826.  
WANG Kai, LEI Sheng, JIANG Juxing, et al. Preparation and properties of peppermint oil microcapsules[J]. Journal of Food Safety & Quality, 2019, 10(17): 5822-5826.
- [16] ZHU G Y, XIAO Z B, ZHU G X, et al. Encapsulation of l-menthol in hydroxypropyl- $\beta$ -cyclodextrin and release characteristics of the inclusion complex[J]. Polish Journal of Chemical Technology, 2016, 18(3): 110-116.
- [17] 黄江锋,陈彬才,刘鸿,等. 薄荷醇/ $\beta$ -环糊精微囊化香精的制备及其性能研究[J]. 当代化工, 2022, 51(11): 2622-2627.  
HUANG Jiangfeng, CHEN Bincai, LIU Hong, et al. Study on preparation and properties of menthol/ $\beta$ -cyclodextrin microencapsulated essence[J]. Contemporary Chemical Industry, 2022, 51(11): 2622-2627.
- [18] MORTENSON M A, REINECCIUS G A. Encapsulation and release of menthol. Part 1: The influence of OSAn modification of carriers on the encapsulation of L-menthol by spray drying[J]. Flavour and Fragrance Journal, 2008, 23(6): 392-397.
- [19] HEDAYATI S, TARAHI M, AZIZI R, et al. Encapsulation of mint essential oil: Techniques and applications[J]. Advances in Colloid and Interface Science, 2023, 321: 103023.
- [20] 董志俭,张晓鸣,许时婴,等. 复合凝聚球状多核薄荷油微胶囊的耐热性研究[J]. 食品科学, 2009, 30(5): 120-123.  
DONG Zhijian, ZHANG Xiaoming, XU Shiyong, et al. Study on heat resistance of spherical multinuclear microcapsules of peppermint oil processed by complex coacervation[J]. Food Science, 2009,

- 30(5): 120-123.
- [21] 吴西芝, 李保国, 应月. 阿拉伯胶对滤棒薄荷香精微胶囊缓释性能的影响[J]. 食品工业科技, 2010, 31(7): 304-307.  
WU Youzhi, LI Baoguo, YING Yue. Effect of Arabic gum on release performance of filter mint flavor microcapsules[J]. Science and Technology of Food Industry, 2010, 31(7): 304-307.
- [22] 梁振明. 分子蒸馏单甘酯的特性及工业生产[J]. 中国食品添加剂, 2005(5): 95-98, 102.  
LIANG Zhenming. Characteristics and manufacture of distilled monoglycerides[J]. China Food Additives, 2005(5): 95-98, 102.
- [23] 梁世濠, 谭可宜, 刘泳琪, 等. 辛烯基琥珀酸淀粉酯分子结构差异对其 Pickering 乳液释放性能的作用机制[J]. 食品研究与开发, 2022, 43(21): 1-7.  
LIANG Shihao, TAN Keyi, LIU Yongqi, et al. Mechanism of octenyl succinic anhydride-esterified starches with different molecular structures in regulating releasing property of Pickering emulsion[J]. Food Research and Development, 2022, 43(21): 1-7.

责任编辑:张璐  
收稿日期:2024-04-18