

DOI: 10.13652/j.spjx.1003.5788.2022.90085

超声波协同离子交联优化薄荷精油 胶囊湿丸处理工艺

Optimization on processing technology of peppermint essential
oil wet-capsule by ultrasonic-assisted ionic crosslinking

孙炜炜^{1,2} 段丽萍^{1,2} 蔡超^{1,2} 陈浩^{1,2}

SUN Wei-wei^{1,2} DUAN Li-ping^{1,2} CAI Cao^{1,2} CHEN Hao^{1,2}

陈健^{1,2} 苗丽坤^{1,2} 陈胜^{1,2}

CHEN Jian^{1,2} MIAO Li-kun^{1,2} CHEN Sheng^{1,2}

(1. 武汉黄鹤楼香精香料有限公司, 湖北 武汉 430050;

2. 武汉黄鹤楼新材料科技开发有限公司, 湖北 武汉 430050)

(1. Wuhan Huanghelou Essence and Flavor Co., Ltd., Wuhan, Hubei 430050, China; 2. Wuhan Huanghelou
New Materials Science and Technology Development Co., Ltd., Wuhan, Hubei 430050, China)

摘要:目的:研究超声波协同离子交联法对薄荷精油胶囊圆度的影响。方法:以薄荷精油胶囊湿丸为原料,通过响应面优化获得最佳工艺参数,并对其产品质量进行分析检测。结果:离子交联法处理湿丸的最优工艺条件为钙离子质量分数 0.4%、处理时间 20 min、液料比 1.3 : 1.0 (mL/g),该条件下湿丸壁材的强度为 11.5 N,胶囊产品的圆度为 0.033 mm。超声波辅助法的最优工艺条件为超声时间 10 min、超声功率 105 W、超声温度 25 ℃,该条件下湿丸壁材的强度为 14.7 N,胶囊产品的圆度为 0.028 mm。结论:超声波协同离子交联法处理胶囊湿丸技术具有工艺简单、高效快速等优点,与传统离子交联法相比,薄荷精油胶囊湿丸壁材强度提高 27.8%,成品胶囊的圆度均值由 0.075 mm 降低至 0.028 mm,成品率由 83.7% 提高到 98.3%,进一步提升了胶囊的产品质量。

关键词:超声波;离子交联;薄荷精油;胶囊;强度;圆度

Abstract: Objective: The effect of ultrasonic-assisted ionic crosslinking method on the peppermint capsule roundness was studied. Methods: The optimal treatment process was obtained through response surface optimization method, and the quality indicators of peppermint capsule was analyzed. Results: The re-

sults showed that, the optimum conditions of ionic crosslinking method were calcium ion mass fraction of 0.4%, soaking time of 20 min, solid/liquid ratio of 1.3 : 1.0 (mL/g). Under the conditions, the strength of wet-capsule was 11.5 N, and the roundness of capsule was 0.033 mm. The optimum conditions of ultrasonic-assisted ionic crosslinking method were: ultrasonic time of 10 min, ultrasonic power of 105 W, ultrasonic temperature of 25 ℃. Under the conditions, the strength of wet-capsule was 14.7 N, and the roundness of capsule was 0.028 mm. Conclusion: Compared with the traditional ionic crosslinking method, the strength of the wet-capsule was increased by 27.8%, the roundness of the capsule product was decreased from 0.075 mm to 0.028 mm, and the product yield was increased from 83.7% to 98.3%, which showed that the quality of the peppermint capsule was obviously improved. The ultrasonic-assisted ionic crosslinking has the advantages of simple process and high efficiency, which could provide a reference for the development of capsule preparation technology.

Keywords: ultrasonic; ionic crosslinking; peppermint essential oil; capsule; strength; roundness

基金项目:武汉黄鹤楼香精香料有限公司重大专项(编号: 2019JSCL3JS2C035)

作者简介:孙炜炜,男,武汉黄鹤楼香精香料有限公司工程师,硕士。

通信作者:陈胜(1972—),男,武汉黄鹤楼香精香料有限公司高级工程师,博士。E-mail: 13545282186@126.com

收稿日期:2021-05-17

随着胶囊添加技术的推广应用,中国胶囊卷烟的销量自 2017 年以来一直保持井喷式高速增长的态势,塑造了对高档卷烟高价值、高品位的消费认知。胶囊的加工流程主要分为胶液配制、滴制成型、脱油干燥、平衡、筛选等单元。胶囊在线滴制通常需要在石蜡油或者辛酸甘油酯冷却液体系统中完成,导致油溶性的冷却液包裹在湿

丸表面,由于湿丸壁材含水率在 90%以上,且强度不高,容易出现干燥时间较长、产品圆度较差等问题^[1-2]。因此,在滴制成型后需对湿丸进行合理的塑型处理。当前,大多数胶囊生产企业使用钙离子水溶液对湿丸进行离子交联处理,通过促进凝胶空间网络结构的形成,提升湿丸壁材强度,便于后序干燥塑型处理^[3]。离子交联法适用于卡拉胶、海藻酸钠等壁材体系湿丸的处理,不易受胶囊芯液种类限制,具有操作简便、生产安全、效果明显、成本低等优点,但大多数的离子交联过程至少需要 20 min 甚至以上,存在效率低的技术缺陷^[4-5]。超声波辅助植物提取或者化学反应技术具有简单、高效、快速等特点^[6],但在超声波协助离子交联技术处理胶囊湿丸方面未见文献报道。

当前,含有薄荷精油胶囊的卷烟制品深受广大消费者的青睐^[7]。在薄荷精油胶囊的生产过程中,由于芯液中薄荷香精的浓度普遍大于 20%,有的甚至高达 50%,芯液与胶囊壁材的适配性较差,导致生产过程中容易出现椭圆、异形的情况(即爆珠圆度指标偏高),这种缺陷又会造成下游滤棒加工企业生产废品率高的问题,严重影响了胶囊制品在滤棒中的应用^[8]。研究拟采用超声波辅助离子交联技术处理胶囊湿丸,考察各因素对湿丸强度和胶囊成品圆度的影响,通过工艺优化确定最佳工艺条件,并考察该技术在提升胶囊产品质量方面的应用效果,旨在为烟用胶囊的研究开发提供参考。

1 材料与方法

1.1 材料与试剂

海藻酸钠:食用级,山东丰泰生物科技有限公司;
卡拉胶:食用级,郑州龙生化工产品有限公司;
山梨糖醇:食用级,上海倍特化工有限公司;
氯化钙:食用级,潍坊迪拜尔化工有限公司;
纯水: $\text{TDS} < 5 \times 10^{-6} \text{ mg/L}$,武汉黄鹤楼香精香料有限公司;

BH24046 薄荷香精:食品级,上海华宝孔雀香精香料有限公司。

1.2 仪器与设备

全自动弹性体硬度测试仪:DIGI TEST II 型,德商博锐仪器(上海)有限公司;

恒温水浴锅:HH-M8 型,上海赫田科学仪器有限公司;

数显电动搅拌器:S312-250 型,上海美强事业发展有限公司;

滴丸机:DWJX-III 型,烟台博鑫制药机械有限公司;

烟用胶囊颗粒强度测试仪:APW-II 型,泰州奥普伟成仪器有限公司;

超声细胞破碎仪:MEC 型,深圳市明和超音波工业股份有限公司;

转筒干燥机:DDG-6013 型,云南巴菰生物科技有限公司;

烟用胶囊质量检测系统:CQS-IV 型,武汉林立锋科技有限公司;

湿丸检测装置:ZT-37 型,武汉林立锋科技有限公司。

1.3 方法

1.3.1 薄荷精油胶囊湿丸制备工艺 以海藻酸钠和卡拉胶为壁材主体原料按照常规工艺调制胶液,以薄荷香精为芯液,使用自然冷凝法滴丸设备在一定工艺参数条件下,滴制薄荷精油胶囊湿丸,滴制过程中要求滴制状态稳定,湿丸直径、芯液直径、同心度满足滴制技术要求,收集湿丸,使用过滤网充分沥油 10~20 min,确保无白油滴出,待用。其流程为:

胶液调制→自然冷凝法滴丸→湿丸质量指标检测→湿丸收集→沥油备用^[9]

1.3.2 离子交联工艺浸泡湿丸 称取一定质量的湿丸,按照比例加入氯化钙水溶液,搅拌均匀后,经离子交联强化后取出,用清水冲洗两遍后,迅速检测湿丸强度指标。固定一定的干燥工艺条件,评估离子交联技术中钙离子浓度、液料比、处理时间等因素对薄荷精油胶囊产品圆度的影响。

1.3.3 离子交联工艺参数优化

(1) 钙离子质量分数:固定浸泡时间 20 min,液料比 1.0:1.0 (mL/g),考察钙离子质量分数(0.2%,0.3%,0.4%,0.5%,0.6%)对湿丸强度和成品圆度的影响。

(2) 浸泡时间:固定钙离子质量分数 0.4%,液料比 1.0:1.0 (mL/g),考察浸泡时间(10,15,20,25,30 min)对湿丸强度和成品圆度的影响。

(3) 液料比:固定钙离子质量分数 0.4%,浸泡时间 20 min,考察液料比[0.6:1.0,0.8:1.0,1.0:1.0,1.2:1.0,1.4:1.0 (mL/g)]对湿丸强度和成品圆度的影响。

1.3.4 超声波协同离子交联工艺浸泡湿丸 称取一定质量的湿丸,按照比例加入氯化钙水溶液,搅拌均匀后,置入超声细胞破碎仪中超声处理,为避免样品在超声过程中温度升高,外加冷水浴且超声休息时间设定为 10 s,工作时间设定为 5 s。超声完成后,用清水冲洗两遍湿丸,迅速检测湿丸强度偏心情况指标。固定干燥工艺条件,评估处理过程中超声时间、超声功率、超声温度等因素对薄荷精油胶囊湿丸强度和产品圆度的影响。

1.3.5 超声波协同离子交联工艺参数优化

(1) 超声时间:固定超声功率 120 W,超声温度 30℃,考察超声时间(5,10,15,20,25 min)对湿丸强度和成品圆度的影响。

(2) 超声功率:固定超声时间 15 min,超声温度 30℃,考察超声功率(80,100,120,140,160 W)对湿丸强度和成品圆度的影响。

(3) 超声温度: 固定超声时间 15 min, 超声功率 120 W, 考察超声温度(20, 25, 30, 35, 40 ℃)对湿丸强度和成品圆度的影响。

1.3.6 湿丸强度检测 湿丸经钙离子水溶液或超声辅助钙离子水溶液强化处理后, 经两遍水洗, 采用 DIGI TEST II 型硬度仪测试湿丸强度^[9]。

1.3.7 湿丸偏心情况检测 湿丸经钙离子水溶液或超声辅助钙离子水溶液强化处理后, 经两遍水洗, 采用湿丸检测装置测试。

1.3.8 胶囊产品质量检测 使用 CQS-IV 烟用胶囊质量检测系统测试胶囊成品的圆度指标, 使用卤素分析仪测试胶囊水分含量^[10-11]。圆度定义: 爆珠横截面接近理论圆的程度, 圆度越小, 产品越圆整。用单颗成品胶囊的最大直径与最小直径之差来表征。

1.3.9 数据分析 所有试验均平行 5 次, 再取平均值。单因素及爆珠质量检测数据采用 Origin 2019b 软件处理, ANOVA 单因素方差分析和数据差异显著性采用 SPSS 26 软件检验, 响应面优化试验采用 Design-Expert.

V8.0.6 软件分析, 并进行模型方差分析。其中, $P < 0.05$, 差异显著, $P < 0.01$, 差异极显著。

2 结果与分析

2.1 离子交联法单因素试验

从图 1(a)可看出, 在钙离子质量分数为 0.5% 时, 胶囊成品圆度达到最小值, 继续增加钙离子质量分数, 圆度反而上升。这是由于水分子急剧从湿丸胶皮中游离到钙溶液中, 导致胶囊出现褶皱、异形等现象, 圆度上升^[12-13]。因此, 钙离子质量分数为 0.5% 左右较好。由图 1(b)可看出, 随着浸泡时间的延长, 湿丸的强度逐渐增加, 对应成品圆度逐渐降低。当浸泡时间大于 20 min, 湿丸强度的变化趋于平缓, 这是因为胶体成分与钙离子的交联作用达到饱和。因此, 最佳浸泡时间为 20 min。由图 1(c)可知, 在液料比 1.2 : 1.0 (mL/g) 时强度最大为 11.5 N, 这是因为, 在湿丸与钙化液共混的体系中, 较大的液料比促进了离子交联反应。因此, 液料比为 1.2 : 1.0 (mL/g) 较好。

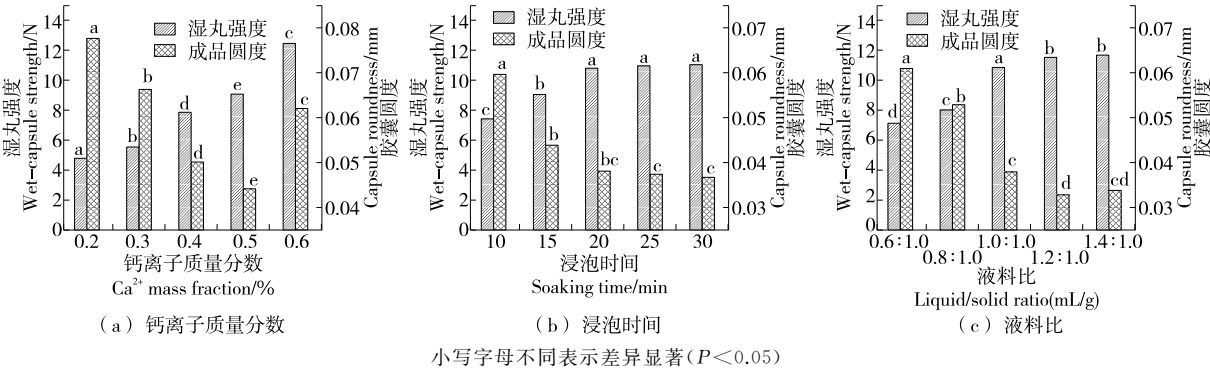


图 1 钙离子质量分数、浸泡时间和液料比对湿丸强度和胶囊成品圆度的影响

Figure 1 Effects of Ca²⁺ mass fraction, soaking time and liquid/solid ratio on the wet-capsule strength and capsule roundness

2.2 离子交联工艺响应面试验

2.2.1 响应面试验结果分析 根据 2.1 单因素试验结果, 采用 Box-Behnken 试验设计工具, 以钙离子质量分数、浸泡时间、液料比为响应因素, 胶囊成品圆度为响应值, 进行响应面优化, 并验证响应模型预测的最佳工艺条件, 试验设计见表 1。

表 1 离子交联工艺响应面因素分析水平表

Table 1 Experiment design of response surface factor by ionic crosslinking conditions

水平	A 钙离子质量 分数/%	B 浸泡时间/ min	C 液料比 (mL/g)
-1	0.4	15	1.0 : 1.0
0	0.5	20	1.2 : 1.0
1	0.6	25	1.4 : 1.0

对表 2 中试验结果进行多项拟合回归, 得到胶囊成品圆度对钙离子质量分数、浸泡时间和液料比的二次多项回归模型方程:

$$Y = 0.033 + 3.125 \times 10^{-3} A + 3.750 \times 10^{-3} B - 2.625 \times 10^{-3} C + 2.500 \times 10^{-4} AB + 0.018 AC - 5.750 \times 10^{-3} BC + 5.200 \times 10^{-3} A^2 + 5.450 \times 10^{-3} B^2 + 0.023 C^2$$
 (1)

由表 3 可知, 模型 $P < 0.000 1$, 差异极显著; 失拟项 $P = 0.084 9 > 0.05$, 差异不显著, 说明模型拟合性良好; 相关系数 $R^2 = 0.996 5$, 校正决定系数 $R_{adj}^2 = 0.992 1$, 响应值的变化有 99.21% 来源于所选因素, 说明模型能有效描述所选因素与响应值之间的关系。变异系数 $CV = 2.98\%$, 进而说明试验的可信度和可操作性高^[14-15]。模型一次项, 二次项和交互项中 AC、BC 的 $P < 0.01$, 影响极显著; 而交互项 AB 不显著, 说明试验因素对响应值不是单一的线性关系。比较 P 值与 F 值大小, 各因素对胶囊

表 2 离子交联工艺响应面设计方案和试验结果

Table 2 Experiment design and results of response surface methodology by ionic crosslinking conditions

试验号	A	B	C	成品圆度/mm
1	-1	1	0	0.035
2	1	1	0	0.042
3	1	0	-1	0.044
4	1	-1	0	0.052
5	0	0	0	0.078
6	0	1	1	0.048
7	0	0	0	0.038
8	-1	0	-1	0.078
9	0	-1	1	0.055
10	0	0	0	0.072
11	0	-1	-1	0.061
12	0	0	0	0.055
13	-1	-1	0	0.034
14	1	0	1	0.033
15	0	1	-1	0.032
16	0	0	0	0.032
17	-1	0	1	0.032

成品圆度的影响主次顺序为: 钙离子质量分数>浸泡时间>液料比。

2.2.2 响应面分析与最佳工艺验证 由图 2 可知, 钙离子质量分数和液料比曲面最陡峭, 两者交互作用对胶囊

圆度指标的影响程度最显著, 而钙离子质量分数和处理时间的交互作用不显著。

利用 Design-Expert.V8.0.6 软件预测离子交联法处理湿丸的最佳工艺条件为钙离子质量分数 0.4%、浸泡时间 20 min、液料比 1.3 : 1.0 (mL/g)。该条件下, 胶囊成品圆度达到 0.030 mm。通过开展验证实验 ($n=5$) 确定结果的准确性, 制备的胶囊成品圆度为 (0.033 ± 0.003) mm, 与预测值的相对误差仅为 0.18%。说明该模型预测的工艺参数稳定可靠。

2.3 超声波协同离子交联法单因素试验

由图 3(a)可知, 超声 10 min 时湿丸强度最大为 12.6 N, 这是由于一定功率的超声条件下, 由于空化效应作用并通过机械振动促进了湿丸壁材与钙离子的交联反应, 形成更加致密的空间网络结构, 导致湿丸强度增加。随着时间的延长, 交联反应达到饱和^[16]。综合考虑, 超声时间为 10 min。由图 3(b)可知, 超声波功率增大至 120 W 时湿丸强度达峰值 14.3 N, 继续增大功率, 由于较强的振动力学效应导致湿丸中的芯液出现偏心现象, 湿丸强度大幅度降低; 当超声功率 ≥ 140 W 后, 大量偏心湿丸在干燥过程中出现破损, 一定程度影响了干燥效率, 导致爆珠圆度增加^[17]。综合考虑, 超声功率为 120 W。由图 3(c)可知, 在 25℃温度条件下, 胶囊湿丸强度达到最大值 14.8 N, 对应的胶囊圆度为 0.031 mm。湿丸壁材与钙离子的交联过程为化学放热反应。当温度超过 30℃, 壁材中的胶体成分在机械力的作用下溶出扩散到钙化液体体系中, 较大程度降低了胶囊湿丸的强度, 导致胶囊成品圆度数值呈明显升高趋势。综合实际条件考虑, 超声温度为 25℃。

表 3 离子交联工艺响应面回归方程系数显著性检验和方差分析[†]

Table 3 Significance test for each regression coefficient and variance analysis by ionic crosslinking conditions

方差来源	平方和	自由度	均方	F 值	P 值	显著性
模型	4.615×10^{-4}	9	4.615×10^{-4}	223.54	$<0.000\ 1$	* *
A	7.813×10^{-5}	1	7.813×10^{-5}	37.85	0.000 5	* *
B	1.125×10^{-4}	1	1.125×10^{-4}	54.50	0.000 2	* *
C	5.512×10^{-5}	1	5.512×10^{-5}	26.70	0.001 3	* *
AB	2.500×10^{-7}	1	2.500×10^{-7}	0.12	0.738 1	
AC	1.225×10^{-3}	1	1.225×10^{-3}	593.43	$<0.000\ 1$	* *
BC	1.322×10^{-4}	1	1.322×10^{-4}	64.07	$<0.000\ 1$	* *
A ²	1.139×10^{-4}	1	1.139×10^{-4}	55.15	0.000 1	* *
B ²	1.251×10^{-4}	1	1.251×10^{-4}	60.58	0.000 1	* *
C ²	2.170×10^{-3}	1	2.170×10^{-3}	1 051.04	$<0.000\ 1$	* *
残差	1.445×10^{-5}	7	2.064×10^{-6}			
失拟项	1.125×10^{-5}	3	3.750×10^{-6}	4.69	0.084 9	
纯误差	3.200×10^{-6}	4	8.000×10^{-7}			
总和	4.168×10^{-3}	16				

[†] * * 为极显著 ($P<0.01$), * 为显著 ($P<0.05$); R^2 为 0.996 5, R_{adj}^2 为 0.992 1, CV 为 2.98%。

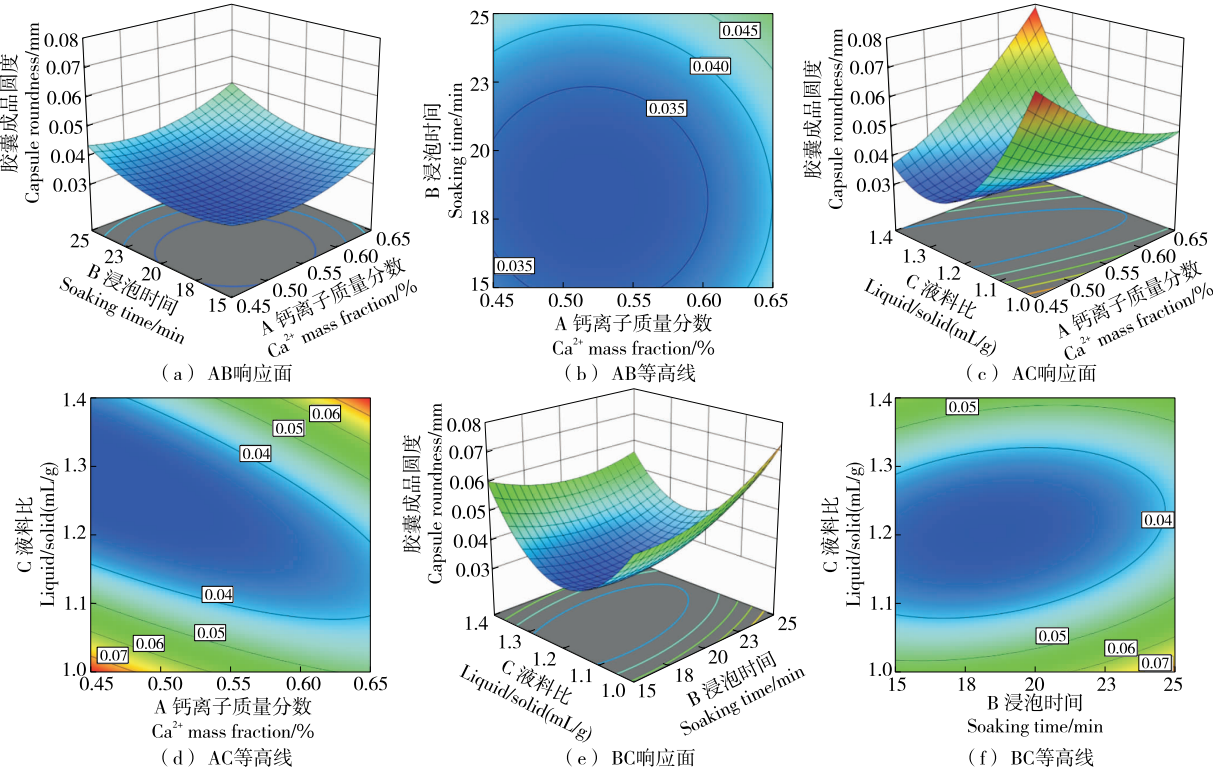
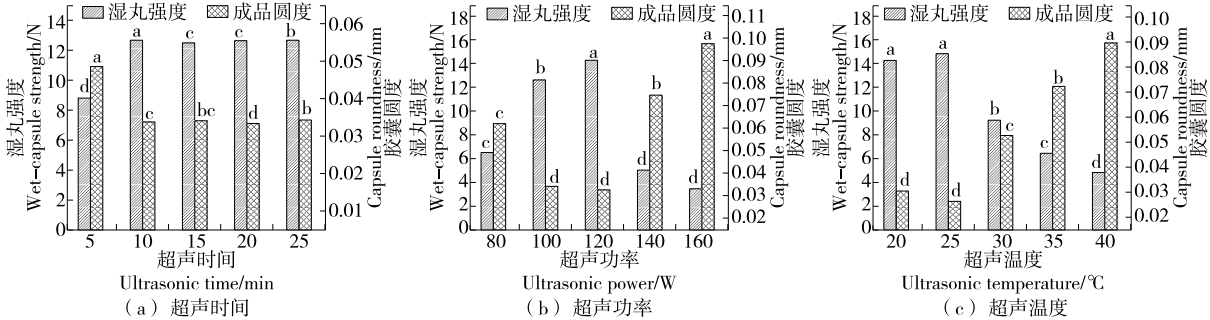


图 2 各因素交互作用对胶囊成品圆度的响应面及等高线图

Figure 2 Response surface and contour plots showing the interactive effects of variables on the capsule roundness



小写字母不同表示差异显著($P<0.05$)

图 3 超声时间、超声功率和超声温度对湿丸强度和胶囊成品圆度的影响

Figure 3 Effects of ultrasonic time, ultrasonic power and ultrasonic temperature on the wet-capsule strength and capsule roundness

2.4 超声波协同离子交联工艺响应面实验

2.4.1 响应面实验结果及方差分析 根据 2.3 单因素试验结果,采用 Box-Behnken 试验设计工具,以超声时间、超声功率、超声温度为响应因素,胶囊成品圆度为响应值,进行响应面优化,并验证响应模型预测的最佳工艺条件,试验设计见表 4。

对表 5 中试验结果进行多项拟合回归,得到胶囊成品圆度对超声时间、超声功率和超声温度的二次多项回归模型方程:

$$Y=0.027+3.000\times10^{-3}A+2.125\times10^{-3}B-2.375\times$$

$$10^{-3}C-5.000\times10^{-4}AB-5.500\times10^{-3}AC+0.012BC+0.011A^2+4.175\times10^{-3}B^2+0.017C^2。$$
 (2)

表 4 超声波协同离子交联工艺响应面因素分析水平表
Table 4 Experiment design of response surface factor by ultrasonic-assisted ionic crosslinking conditions

水平	A 超声时间/min	B 超声功率/W	C 超声温度/℃
-1	5	100	20
0	10	120	25
1	15	140	30

表 5 超声波协同离子交联工艺响应面设计方案和试验结果

Table 5 Experiment design and results of response surface methodology by ultrasonic-assisted ionic crosslinking conditions

试验号	A	B	C	成品圆度/mm
1	-1	1	0	0.036
2	1	1	0	0.042
3	1	0	-1	0.044
4	1	-1	0	0.048
5	0	0	0	0.048
6	0	1	1	0.066
7	0	0	0	0.055
8	-1	0	-1	0.051
9	0	-1	1	0.062
10	0	0	0	0.040
11	0	-1	-1	0.033
12	0	0	0	0.058
13	-1	-1	0	0.026
14	1	0	1	0.028
15	0	1	-1	0.028
16	0	0	0	0.030
17	-1	0	1	0.025

由表 6 可知,模型 $P<0.000\ 1$,表明此回归模型线性关系极显著,失拟项 $P=0.322\ 3>0.05$,不显著,说明该模型拟合性好,可信度高;相关系数 $R^2=0.987\ 9$,校正决定

系数 $R^2_{\text{adj}}=0.972\ 3$,说明该模型稳定,数据可靠,可用于预测胶囊成品圆度值。回归模型一次项对胶囊成品圆度影响显著,且二次项的 P 值亦小于 0.01 ,对胶囊成品圆度影响极显著,交互项中 AC、BC 极显著,但 AB 不显著。比较 P 值与 F 值大小可知,各因素影响胶囊成品圆度的顺序依次为:超声时间>超声温度>超声功率。

2.4.2 响应面分析与最佳工艺验证 由图 4 可知,超声功率和超声温度曲面陡峭程度最高,且 BC 的等高线图最接近椭圆,说明两者交互作用对胶囊成品影响最大。

通过回归模型预测得到超声波协同离子交联处理湿丸的最佳工艺为:超声功率 $106.45\ \text{W}$ 、超声时间 $9.61\ \text{min}$ 、超声温度 $26.49\ ^\circ\text{C}$,此条件下胶囊成品圆度 $0.026\ \text{mm}$ 。考虑生产操作的可行性,调整工艺参数为超声时间 $10\ \text{min}$ 、超声功率 $105\ \text{W}$ 、超声温度 $25\ ^\circ\text{C}$ 。根据调整后工艺条件设置 5 组平行验证实验,得到胶囊成品圆度达 $(0.028\pm0.002)\ \text{mm}$,与预测值接近,说明该模型优化后的工艺参数准确性较高。

2.5 超声波协同离子交联在胶囊生产中的应用

在实际生产过程中,按照 2.4.2 优化的工艺条件,对胶囊湿丸进行超声协同离子强化处理,清水冲洗两次,经转筒干燥后,通过 CQS-IV 烟用胶囊质量检测系统进行选检,得到胶囊产品。

由表 7 可知,与未处理的湿丸相比,优化后的离子交联处理湿丸工艺或者超声波协同离子交联处理湿丸工艺,对胶囊湿丸的芯液直径和同心度几乎无影响,但离子交联作用可以降低湿丸胶皮厚度,且随着超声波的协同作用,胶皮厚度由 $0.95\ \text{mm}$ 大幅度降低至 $0.82\ \text{mm}$,且溶

表 6 超声波协同离子交联工艺响应面回归方程系数显著性检验和方差分析[†]

Table 6 Significance test for each regression coefficient and variance analysis by ultrasonic-assisted ionic crosslinking conditions

方差来源	平方和	自由度	均方	F 值	P 值	显著性
模型	2.724×10^{-3}	9	3.027×10^{-4}	63.35	$<0.000\ 1$	* *
A	7.200×10^{-5}	1	7.200×10^{-5}	15.07	0.006 0	* *
B	3.613×10^{-5}	1	3.613×10^{-5}	7.56	0.028 5	*
C	4.513×10^{-5}	1	4.513×10^{-5}	9.44	0.018 0	*
AB	1.000×10^{-6}	1	1.000×10^{-6}	0.21	0.661 2	
AC	1.210×10^{-4}	1	1.210×10^{-4}	25.32	0.001 5	* *
BC	5.522×10^{-4}	1	5.522×10^{-4}	115.57	$<0.000\ 1$	* *
A ²	5.025×10^{-4}	1	5.025×10^{-4}	105.17	$<0.000\ 1$	* *
B ²	7.339×10^{-5}	1	7.339×10^{-5}	15.36	0.005 8	* *
C ²	1.171×10^{-3}	1	1.171×10^{-3}	245.00	$<0.000\ 1$	* *
残差	3.345×10^{-5}	7	4.779×10^{-6}			
失拟项	1.825×10^{-5}	3	6.083×10^{-6}	1.60	0.322 3	
纯误差	1.520×10^{-5}	4	3.800×10^{-6}			
总和	2.758×10^{-3}	16				

[†] * * 为极显著($P<0.01$), * 为显著($P<0.05$); R^2 为 $0.987\ 9$, R^2_{adj} 为 $0.972\ 3$, CV 为 $5.16\ %$ 。

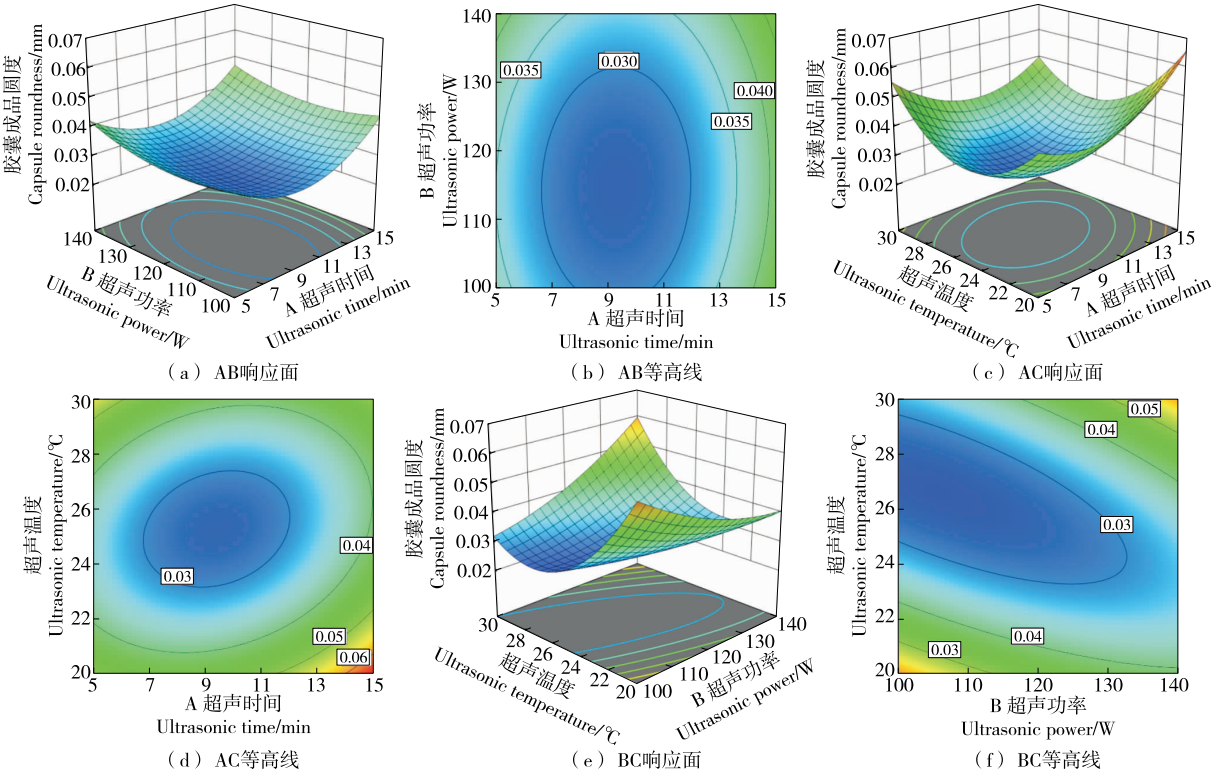


图 4 各因素交互作用对胶囊成品圆度的响应面及等高线图

Figure 4 Response surface and contour plots showing the interactive effects of variables on the capsule roundness

液中未发现胶体成分溶出现象,进一步印证在超声波协同钙离子交联湿丸壁材的过程中,形成致密凝胶网络结构的同时,一部分水分子由壁材胶皮内游离到溶液中。一般而言,在一定的凝胶强度下,胶皮内的水分含量越低,越有利于后序的干燥塑形处理,可缩短干燥时间,提高干燥效率^[18-19]。

由表 8 可知,两种工艺处理湿丸对成品胶囊的硬度均值、直径均值、水分含量等指标影响不大。在钙离子交

联技术的基础上,超声波的辅助作用进一步降低了胶囊的圆度,圆度均值由 0.075 mm 降低至 0.028 mm,成品率由 83.7% 提高到 98.3%,进一步提升了胶囊产品的质量,取得了良好的应用效果。

3 结论

试验结合单因素和响应面分析法优化了离子交联法和超声波辅助离子交联处理薄荷精油胶囊湿丸的工艺参数。结果表明,钙离子交联法的最佳条件为钙离子质量分数 0.4%、处理时间 20 min、液料比 1.3 : 1.0 (mL/g),此条件下湿丸的强度可达 11.5 N,产品的圆度为 0.033 mm。超声波辅助法最优处理条件为超声时间 10 min、超声功率 105 W、超声温度 25 °C,该条件下湿丸的强度为 14.7 N,较离子交联法湿丸壁材强度提高 27.8%,说明超声波辅助离子交联法对湿丸强度提升有显著促进作用,具有快速、高效等优点。同时,对最优工艺

表 7 同一批次胶囊湿丸的物理指标对比

Table 7 Comparison of physical index from the same batch of wet-capsule

处理方法	芯液直径/mm	胶皮厚度/mm	同心度/%
未处理湿丸	3.23±0.02	0.95±0.01	4.9±0.02
离子交联	3.23±0.02	0.88±0.01	4.8±0.02
超声波协同离子交联	3.23±0.02	0.82±0.01	4.8±0.02

表 8 同一批次胶囊成品的物理指标对比

Table 8 Comparison of physical index from the same batch capsule

处理方法	平均硬度/N	平均直径/mm	水分含量/%	平均圆度/mm	成品率/%
未处理湿丸	17.5±0.5	3.49±0.02	0.82±0.02	0.075±0.002	83.7±0.2
离子交联	17.6±0.5	3.51±0.02	0.83±0.02	0.038±0.002	94.5±0.3
超声波协同	17.4±0.5	3.50±0.02	0.83±0.02	0.028±0.002	98.3±0.3

条件下制备的胶囊产品进行质量检测。结果表明:成品胶囊的圆度均值由 0.075 mm 降低至 0.028 mm,成品率由 83.7% 提高到 98.3%。超声波协同钙离子交联技术,在空化效应下可以促进钙离子和海藻酸钠的交联,形成更加致密的空间网络结构,有效提升湿丸强度,显著改善胶囊成品的圆度,提高薄荷精油胶囊产品质量。

参考文献

- [1] 于浩,王艳梅,孙东亮,等.基于植物胶的爆珠壁材配方设计及其工艺优化[J].中国烟草学报,2020,26(2):24-29.
YU Hao, WANG Yan-mei, SUN Dong-liang, et al. Formula design of wall material of cigarette breakable capsules based on plant glue and optimization of manufacturing process [J]. Acta Tabacaria Sinica, 2020, 26(2): 24-29.
- [2] 洪广峰,邱纪青,李国政,等.国外爆珠卷烟研究进展[J].中国烟草学报,2019,25(4):124-134.
HONG Guang-feng, QIU Ji-qing, LI Guo-zheng, et al. Recent advances in capsule filter cigarettes overseas[J]. Acta Tabacaria Sinica, 2019, 25(4): 124-134.
- [3] YEUNG Rhoda Au, KENNEDY Ross Alan. A comparison of selected physico-chemical properties of calcium alginate fibers produced using two different types of sodium alginate[J]. Journal of the Mechanical Behavior of Biomedical Materials, 2019, 90: 155-164.
- [4] 魏玉,王元兰,胡云楚. κ -卡拉胶与魔芋胶共混凝胶的质构特性研究[J].食品科学,2010,31(5):96-100.
WEI Yu, WANG Yuan-lan, HU Yun-chu. Textural properties of κ -carrageenan-konjac gum compound Gel[J]. Food Science, 2010, 31(5): 96-100.
- [5] 余振华,詹建波,王浩,等.卷烟爆珠常用壁材原料与性能概述[J].新型工业化,2019,9(7):100-106.
YU Zhen-hua, ZHAN Jian-bo, WANG Hao, et al. Summary of raw materials and properties of wall materials commonly applied in cigarette capsules[J]. The Journal of New Industrialization, 2019, 9(7): 100-106.
- [6] WANG Q Y, DONG X, YANG J, et al. Vesicle based ultrasonic-assisted extraction of saponins in Panaxnotoginseng[J]. Food Chemistry, 2019, 303: 125394.
- [7] 王金棒,汪志波,郑新章,等.中国爆珠卷烟专利技术研发热点与趋势分析[J].烟草科技,2018,51(11):43-50.
WANG Jin-bang, WANG Zhi-bo, ZHENG Xin-zhang, et al. Analysis of research focus and trend of Chinese patents related to cigarettes with breakable capsules [J]. Tobacco Science & Technology, 2018, 51(11): 43-50.
- [8] 李景权,何显轩,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 Jing-quan, HE Yu-xuan, SUN Wen-xuan. Preparation of mint flavor cigarette microcapsule particles and its application[J]. Science and Technology of Food Industry, 2020, 41(20): 194-199.
- [9] 孙炜炜,蔡超,刘坚,等.薄荷胶囊壁材制备及其性质[J].食品工业,2020,41(5):104-106.
SUN Wei-wei, CAI Chao, LIU Jian, et al. Preparation and properties of the wall materials of menthe flavor capsule[J]. Food Industry, 2020, 41(5): 104-106.
- [10] 国家药典委员会.中华人民共和国药典:二部[S].北京:中国医药科技出版社,2015:512-513.
Chinese Pharmacopoeia Commission. Chinese pharmacopoeia: Part II[S]. Beijing: China Medical Science Press, 2015: 512-513.
- [11] 王欢,廖芳,陈纬别.两种水分含量测定方法的相关性研究[J].中医药管理杂志,2017,25(16):78-80.
WANG Huan, LIAO Fang, CHEN Wei-bie. Study on the correlation of two measurement methods of water content[J]. Journal of Traditional Chinese Medicine Management, 2017, 25(16): 78-80.
- [12] 王秀娟,张坤生,任云霞,等.海藻酸钠凝胶特性的研究[J].食品工业科技,2008,29(2):259-262.
WANG Xiu-juan, ZHANG Kun-sheng, REN Yun-xia, et al. Study on the gelling properties of sodium alginate[J]. Science and Technology of Food Industry, 2008, 29(2): 259-262.
- [13] 李红兵.用圆二色谱(CD)研究海藻酸钠对钙锌离子的选择[J].离子交换与吸附,2006(3):246-253.
LI Hong-bing. Research for selectivity of calcium and zinc[J]. Ion Exchange and Adsorption, 2006(3): 246-253.
- [14] LIU X, LUO G, WANG L, et al. Optimization of antioxidant extraction from edible brown algae *Ascophyllum nodosum* using response surface methodology[J]. Food & Bioproducts Processing, 2019, 114: 205-215.
- [15] ARTEAGA-CRESPO Y, RADICE M, BRAVO-SANCHEZ R, et al. Optimisation of ultrasound-assisted extraction of phenolic antioxidants from *Ilex guayusa* Loes. leaves using response surface methodology[J]. Heliyon, 2019, 6(1): 205-215.
- [16] 赵城彬,尹欢欢,刘景圣,等.超声—转谷氨酰胺酶改善红豆蛋白功能性质及结构[J].食品科学,2019,40(19):120-127.
ZHAO Cheng-bin, YIN Huan-huan, LIU Jing-sheng, et al. Functional properties and structure of red bean protein improved by combined ultrasound-transglutaminase treatment[J]. Food Science, 2019, 40(19): 120-127.
- [17] MISHRA M K, FERNANDEZ D. Breakable capsules and methods of forming thereof: US20170360078[P]. 2017-12-21.
- [18] 郭琦,王欣,刘宝林. κ -卡拉胶比例对明胶凝胶体系凝胶特性、水分分布及微观结构的影响[J].食品与发酵工业,2019,45(9):81-88.
GUO Qi, WANG Xin, LIU Bao-li. Effects of κ -carrageenan ratio on gel properties, water distribution, and microstructure of a gelatin-gel system[J]. Food and Fermentation Industries, 2019, 45(9): 81-88.
- [19] ABDUL KHALIL H P S, SAURABH C K, TYE Y Y, et al. Seaweed based sustainable films and composites for food and pharmaceutical applications: A review[J]. Renewable and Sustainable Energy Reviews, 2017, 77: 353-362.