

刘漪萱, 陈雅琪, 陈维宁, 等. 缓释型精油微胶囊壁材的研究进展 [J]. 食品工业科技, 2022, 43(2): 405–410. doi: 10.13386/j.issn1002-0306.2020110275

LIU Yixuan, CHEN Yaqi, CHEN Weining, et al. Research Progress on Wall Materials for Sustained Release Microcapsules of Essential Oils[J]. Science and Technology of Food Industry, 2022, 43(2): 405–410. (in Chinese with English abstract). doi: 10.13386/j.issn1002-0306.2020110275

缓释型精油微胶囊壁材的研究进展

刘漪萱, 陈雅琪, 陈维宁, 孙海龙, 于泽凯, 周少公, 马铁铮*
(北京工商大学食品与健康学院, 北京市食品添加剂工程技术研究中心,
食品添加剂与配料北京高校工程研究中心, 北京 100048)

摘要: 微胶囊化技术是实现精油产品缓释功能的重要手段之一, 壁材的合理选用是调控精油的作用时间、提高精油产品稳态化性能的关键所在。本文从蛋白质和多糖分类概述了缓释型精油微胶囊选用壁材的研究现状, 并对该领域的发展趋势和前景进行了展望, 以期为精油微胶囊在食品等领域的科学研究和工业化生产提供有益的指导。

关键词: 精油, 缓释, 微胶囊化, 壁材

中图分类号: TS201.1

文献标识码: A

文章编号: 1002-0306(2022)02-0405-06

DOI: 10.13386/j.issn1002-0306.2020110275

本文网刊:



Research Progress on Wall Materials for Sustained Release Microcapsules of Essential Oils

LIU Yixuan, CHEN Yaqi, CHEN Weining, SUN Hailong, YU Zekai, ZHOU Shaogong, MA Tiezhen*

(Beijing Engineering and Technology Research Center of Food Additives,
Beijing Higher Institution Engineering Research Center of Food Additives and Ingredients,
School of Food and Health, Beijing Technology and Business University, Beijing 100048, China)

Abstract: Microencapsulation of essential oils can provide sustained release properties of their products. The reasonable selection of microcapsule wall materials is considered to be the key to effectively controlling the action time of essential oils and improving the stability of the products. From the classification of proteins and polysaccharides, the research status of the wall materials of sustained-release microcapsule of essential oils are summarized, and their development trend and prospects are introduced. It is expected to provide a useful basis for the research and industrial production of essential oil microcapsules in food industry and other related fields.

Key words: essential oil; sustained release; microencapsulation; wall materials

从上个世纪三十年代起, 历经近一个世纪的发展, 微胶囊技术的相关研究已经日渐成熟和完善。微胶囊以壁材作为物理保护屏障, 对生物活性物质进行包埋, 使其免受光、热、氧气、水分等外部因素的影响, 并能够防止挥发性化合物逸散, 从而实现对芯材性能和产品风味的保护^[1-4]。

精油是一种来源于多种果树、香料或草药的天然产物, 具有特定的风味、杀菌和药用活性等功能特性, 广泛应用于食品工业、化妆品行业以及制药工业和其它诸多化学和生物工程领域, 但其物理和化学性

质不够稳定, 易于挥发, 也容易受到加热、光照等外界因素的作用而降解^[5-6]。这些都将大幅度降低精油作为功能性配料成分的功, 限制其在诸多领域中的应用。现有研究表明, 将精油微胶囊化, 能够延缓精油的释放速率, 提高其贮藏稳定性, 延缓其挥发或氧化速率, 从而增强精油成分的作用功效, 提高其功能性^[7-10]。

相比普通精油产品, 微胶囊化精油的一个重要特点是具有良好的缓释性能, 这种性能决定于壁材的选择和微胶囊化的制备方法^[11-12]。在科学研究和实

收稿日期: 2020-11-30

基金项目: 北京市属高校高水平教师队伍建设支持计划青年拔尖人才培养计划项目 (CIT&TCD201904029); 国家自然科学基金青年科学基金项目 (31501408)。

作者简介: 刘漪萱 (1994-), 女, 硕士研究生, 研究方向: 粮食、油脂与植物蛋白工程, E-mail: 1463708298@qq.com。

* 通信作者: 马铁铮 (1984-), 男, 博士, 副教授, 研究方向: 粮食、油脂与植物蛋白工程, E-mail: matiezheng@btbu.edu.cn。

际工业化生产中,缓释型精油微胶囊的壁材大多是采用多糖或将其与蛋白质复合使用^[13]。多糖类壁材在较大的 pH 范围内具有良好的溶解性,并能够在较高浓度时仍保持较低的粘度;而蛋白质类壁材则具备良好的溶解性、乳化性和起泡性能^[13-14]。蛋白质较少单独作为壁材使用,而通常是与阿拉伯胶、瓜尔豆胶、海藻酸盐、麦芽糊精等多糖复配作为精油微胶囊的壁材^[13-15]。壁材的选择通常需要根据不同精油的特点或所制备微胶囊产品性能的需要,使用单一壁材原料或者将多种不同的壁材原料复配,从而控制芯材精油的释放性能,并保证其理化特性的稳定性,进而实现其风味特性或功能活性。本文分别针对多糖类壁材,以及与多糖复配使用的蛋白质类壁材对缓释型精油微胶囊的研究和应用现状进行了概述,并对本领域的发展趋势和前景进行了分析和展望。

1 多糖类壁材

多糖的来源十分广泛,并且理化稳定性较高,生物相容性良好,大多数多糖在体内消化过程中,能够在胃部保持稳定,并随后在肠道中被酶分解,因此多糖作为载体通常能够实现芯材组分的肠道释放;此外,多糖还具有粘着性,因而易于结合多种生物膜结构,从而保护芯材成分并提高其稳定性^[16-17]。天然多糖的种类繁多,可以作为微胶囊壁材使用的还包括多种改性多糖^[18-19]。对于精油的微胶囊化,目前在科研和工业化生产中使用比较多的包括壳聚糖、海藻酸盐以及变性淀粉等。

1.1 壳聚糖

壳聚糖是一种大分子多糖,具有较高的安全性和较好的生物相容性,其粘着性高,并易于生物降解,其对油脂具有良好的负载及保护能力,因而常被用作微胶囊壁材等包埋材料^[20]。此外,由于壳聚糖分子结构中的氨基可以与食源性致病菌的细胞壁之间发生电荷相互作用从而起到抑菌的效果,因此也被公认为是一种有效的抗菌材料^[21]。对于具有挥发性稳定性低的精油,使用壳聚糖作为壁材加以微胶囊化,可以延缓精油的释放速率,同时强化其抗菌活性^[22-23]。

精油微胶囊芯材的释放性能取决于其壁材结构的完整性和致密程度。Mohammadi 等^[24]使用壳聚糖作为壁材,采用离子凝胶化方法制备锡兰肉桂精油微胶囊,并将其用于防治掘氏疫霉(*Phytophthora drechsleri*)引发的黄瓜果实腐败,结果表明,由于壳聚糖壁材层赋予精油的缓释性能以及壳聚糖自身较高的生物粘着性,在 15 d 的贮藏实验中添加有微胶囊化肉桂精油的黄瓜样品组的腐败率仅为 3.20%,显著低于直接添加精油的样品组的 10.95%,此外,使用微胶囊化精油较之直接使用精油还能够降低黄瓜的呼吸率,从而增加其质量稳定性。但是,并非所有壳聚糖都可以作为精油微胶囊的壁材,Yang 等^[25]分别使用三种不同粘度的壳聚糖包埋香草精油制备微胶囊,结果表明,过高或过低粘度的壳聚糖均无法形成

独立、完整的微胶囊壁材层,只有适中粘度的壳聚糖可以制得形态结构均一、分散性良好的微胶囊产品,且壳聚糖壁材层的热阻效应可以显著提高精油的稳定性,使产品具有较长的风味存留时间。

使用壳聚糖作为壁材制备精油微胶囊时,为了赋予产品较好的稳定性以及所需的缓释性能,除了需要选择适当粘度和浓度的壳聚糖作为原料外,环境介质的 pH 也对微胶囊的缓释性能有着很大的影响,这是由于壳聚糖的结构中的氨基可以被视为一种弱碱,因而在低酸性条件下易于质子化所致^[26-27]。Mohammadi 等^[26]使用壳聚糖作为壁材制备了野蔷薇精油微胶囊,在 pH 分别为 3.0、5.0 和 7.0 的缓冲液中进行为期 40 d 的体外模拟实验,结果表明,精油的累计释放率分别为 49.2%、37.4% 和 20.3%,这是由于壳聚糖链状结构上质子化的游离氨基之间的离子排斥作用导致了微胶囊壁材的膨胀乃至部分溶解,因而精油微胶囊在酸性介质中的释放速率相对较快。Ahmadi 等^[27]也得到了相似的研究结果,其分别在三种酸性 pH 的条件下制备以壳聚糖为壁材的薰衣草精油微胶囊,发现在酸性相对较弱的 pH5.5 时壳聚糖的溶胀能力相对最低,芯材精油难以从壳聚糖壁材的孔隙中扩散,因此精油的缓释效果也就更持久。

综上,由于具备粘度范围可选择、结构随环境 pH 可调节等诸多优点,壳聚糖作为微胶囊壁材可以控制芯材的释放效果,且自身具备抗菌等生物活性,是缓释型精油微胶囊用多糖壁材的适宜选择。

1.2 海藻酸盐

海藻酸是一种提取自褐藻中的天然多糖,而其盐类海藻酸盐具有独特的胶体性能,可用作多种食品添加剂。海藻酸盐可以在多种二价离子的存在时形成水凝胶,并在一些多聚阳离子的存在时形成复合凝聚物,根据上述性能,海藻酸盐可以在食品、药品和化妆品等诸多工业领域用于多种活性成分的稳态化以及一些微生物的固定化^[23,28]。作为精油微胶囊的壁材,海藻酸盐能够有效减缓精油释放速率并提高其热稳定性,并可以在微胶囊干燥的过程中保护壁材层的稳定性^[29-30]。

Li 等^[31]使用海藻酸钠作为壁材制备紫苏精油微胶囊,结果表明,海藻酸钠作为壁材显著地延缓了精油的挥发速度,因而增强了精油对于微生物引发的草莓腐败的抑制效果。虽然海藻酸盐作为壁材通常能形成比较紧凑的网络结构,然而其与一些亲水性较强的胶粘性多糖复配时,壁材层的可溶性提升,从而无法达到良好的缓释效果,de Oliveira 等^[32]使用不同比例的海藻酸盐与腰果胶制备立比草精油纳米微胶囊,室温下水环境中的释放结果表明,海藻酸钠与腰果胶的比例为 1:3 时精油在 20 h 后的释放率高达 90%,而在上述壁材比例为 3:1 时精油在 50 h 后的释放率也仅为 45%。

综上,由于具备热稳定性好、释放性能可通过与

其它壁材复配进行调节等诸多优点,海藻酸盐作为微胶囊壁材适合于包埋精油等热敏性芯材,并结合产品需求调控精油的释放速率。

1.3 变性淀粉

变性淀粉价格低廉,无不良气味,其作为微胶囊壁材使用,能够解决普通淀粉成膜性和乳化性差的问题,提高芯材精油的稳定性。使用变性淀粉作为壁材的精油微胶囊可以延长精油抗菌活性的作用时间,从而作为更易被消费者接受的天然食品防腐剂使用^[33]。变性淀粉的种类较多,本文分类阐述具有特殊空腔结构的 β -环糊精、具有微孔结构的多孔淀粉及其它变性淀粉作为壁材包埋精油制备缓释型微胶囊的研究进展。

1.3.1 β -环糊精 β -环糊精是由淀粉经过酶解改性得到的具有外层亲水、内腔疏水的中空结构的一种多糖。 β -环糊精的疏水空腔可以容纳精油或其它脂溶性成分,这种特殊的结构使其作为精油等脂溶性功能成分微胶囊化的壁材,可以使芯材具有良好的氧化稳定性和生物利用度,并提升其溶解性,从而更加充分地发挥精油等功能成分的功效^[34]。

在疏水相互作用以及空间体积匹配效应的共同作用下, β -环糊精可以和适当大小、形状的疏水性分子通过非共价键的连接形成了稳定的“包结物”。Ren 等^[35]以 β -环糊精作为壁材,将桉树精油微胶囊化后观察其释放动力学变化趋势,结果表明,未包埋的桉树精油在 26 °C 下储存 70 d 后的释放率为 35.29%,在 100 °C 的高温条件下放置 40 min 后的释放率则超过 90 %,而相同温度条件下微胶囊化精油的释放率则在 7 h 后仍然不足 40%。Munhuweyi 等^[36]使用 β -环糊精作为壁材分别制备牛至精油和肉桂精油微胶囊,并使用它们抑制灰霉病菌,结果表明,肉桂精油微胶囊的抗菌效果优于牛至精油微胶囊,这可能归因与前者的包埋率更高。Piletti 等^[37]使用 β -环糊精包埋制备大蒜精油微胶囊,并用其抑制大肠杆菌和金黄色葡萄球菌的生长,结果表明,微胶囊化提升了精油的热稳定性和水溶性,精油微胶囊在 60 °C 下保持 1 h 后仍然保持着显著的抗菌活性。

1.3.2 多孔淀粉 多孔淀粉是天然淀粉经物理、化学或生物方法改性处理制备而成的变性淀粉,其孔径可调控,且对油脂及脂溶性成分拥有较强的吸附能力,因此能够将精油紧密吸附在分子结构中的蜂窝状孔洞内。多孔淀粉可以吸附相当于自身重量的 0.8~1.0 倍的精油并形成粉末状颗粒,使用多孔淀粉作为壁材,具有成本低和负载量高等多种优点,且其制备过程也不需要乳化、均质及喷雾干燥等复杂的工艺操作,因此基本不会对精油的成分、风味和功能活性产生不良影响^[33,38]。多孔淀粉形成微胶囊壁材后其孔隙处于开放状态,往往还需要和其它胶黏性多糖结合使用,在淀粉壁材层的表面上形成“外包层”来隔绝空气,从而确保对芯材精油的保护作用。王楠

等^[39]以多孔淀粉和海藻酸钠作为壁材制备牛至精油微胶囊,结果表明,制得的微胶囊表面结构致密,不易在前期大量释放芯材精油成分,适合应用于精油的缓释和可控释放。Wang 等^[40]使用多孔淀粉和 β -环糊精共同作为壁材制备丁香精油微胶囊,并将其应用于抑制肉制品中病原微生物的生长,与未包埋的精油相比,微胶囊化赋予精油持久的缓释性能显著提升了精油的热抗性以及防腐效果的发挥。

1.3.3 其它变性淀粉 经过物理、化学等改性方法交联后所得的变性淀粉,其结构强度较之天然淀粉颗粒显著增加,并兼具较高的吸附性能和较低的粘度,易降解和再生。卢延霞等^[41]使用低压等离子体技术改性蜡质玉米淀粉,并以其作为壁材包埋大蒜精油制备具有抑菌效果的微胶囊产品,结果表明,使用改性蜡质玉米淀粉所制备的微胶囊比使用未改性淀粉时抑菌效果更为持久,所包埋大蒜油在 60 d 内的保留率也更高。

由淀粉酯化改性得到的辛烯基琥珀酸淀粉因其同时引进了亲水和疏水基团,使产物改性淀粉具有良好的乳化性和两亲性,从而能够在水油界面形成稳定的界面膜结构,因此十分适合作为微胶囊的壁材使用。刘双双等^[42]使用淀粉接枝改性的产物辛烯基琥珀酸淀粉酯的钠盐作为壁材制备香草兰精油微胶囊,并与单独使用 β -环糊精以及使用 β -环糊精和麦芽糊精复合作为壁材进行比较,辛烯基琥珀酸淀粉钠作为壁材时的精油保留率和缓释性能均优于另外两种壁材,引文作者认为这归功于其具有相对更好的乳化性和成膜性。变性淀粉具有热稳定性好、结构强度高和吸附能力强等显著的优势,且其价格相对低廉,原料易于获取,适合作为微胶囊壁材包埋精油等脂溶性热敏芯材成分使用。

2 蛋白质类壁材

相较于多糖类壁材,蛋白质类壁材在精油微胶囊中应用的种类相对较少,许多蛋白质无法单独作为壁材使用,这是由于蛋白质作为壁材使用时难以形成具备持久缓释效果的结构,它们在壁材体系中主要起到乳化以及与多糖共同成膜的作用,因此,蛋白质通常与其它多糖成分复合作为壁材制备微胶囊,保护芯材精油,实现所需的缓释效果。在现有研究中,除了明胶蛋白和乳清蛋白既可以单独使用,也可以与多糖类壁材复合作为精油微胶囊壁材使用外,其它种类的蛋白质通常是与可溶性多糖通过复合凝聚等方式复合使用,制备各种缓释型精油微胶囊^[13,43]。

2.1 明胶蛋白

明胶蛋白是具有生物相容性的蛋白质与多肽的混合物,其价格低廉,溶解性、乳化性和成膜性出色,且具有良好的生物降解性和生物相容性,适合作为包埋精油的微胶囊壁材使用^[43-44]。Sutaphanit 等^[43]使用明胶蛋白为壁材制备圣罗勒(也称九层塔)精油微胶囊,并为了更有效地抑制精油的挥发和氧化,对微

胶囊化工艺进行了优化,实验结果表明,使用经过优化的制备工艺条件得到的微胶囊在 60 °C 下贮藏 49 d 后精油的释放率仍不足 5%,根据引文作者的换算,这也就意味着在 25 °C 的室温条件下,精油微胶囊的货架期可以长达 18 个月。Soloman 等^[44] 同样使用明胶蛋白作为壁材制备了香茅精油微胶囊用于驱蚊,取得了良好的效果,微胶囊化的精油在 6 h 内的释放速率降低了 50% 以上。

Muhoza 等^[45] 使用明胶蛋白和高甲氧基果胶通过复合凝聚法制备薄荷精油微胶囊,结果表明,使用单宁酸作为交联剂能够改变明胶蛋白的二级结构,从而提升精油微胶囊产品的热稳定性。Bastos 等^[46] 采用明胶蛋白与海藻酸钠作为壁材,使用复合凝聚法制备黑胡椒精油微胶囊,引文作者通过对壁材组成比例和乳化剂添加量等参数的优化得到了能够更好保护芯材精油的配方。

综上,明胶蛋白作为功能性出色的动物蛋白的代表,既可以单独作为精油微胶囊的壁材使用,也可以通过复合凝聚等方法与多糖复合使用,有效提升精油微胶囊的热稳定性。

2.2 乳清蛋白

乳清蛋白易于被人体吸收,经常与具有胶黏性的多糖复配作为微胶囊的壁材用于包埋精油等功能成分。通过模拟胃肠道环境中的释放行为来评价微胶囊所包埋活性成分的缓释性能,发现乳清蛋白高度球状的构象不利于被胃蛋白酶分解,这有利于其作为壁材的微胶囊被完整的送入肠道,从而使芯材成分最终在肠道被释放并吸收^[47]。

Zhang 等^[48] 使用乳清蛋白和海藻酸盐作为复合壁材,制备具备肠道定向释放功能的香芹精油微胶囊,由于乳清蛋白能够抵抗胃中的消化酶,从而能够确保精油在肠道中释放和吸收,而海藻酸盐的浓度则会很大程度上影响微胶囊的机械强度,这是因为海藻酸盐较高的扩散系数而容易移动到液滴表面并被钙离子交联。然而,并不是所有多糖都能够与乳清蛋白复合使用来增强微胶囊化精油的缓释性能,Mehyar 等^[49] 比较了单独使用乳清分离蛋白,以及将其与瓜尔豆胶二者复合或与瓜尔豆胶和卡拉胶三者复合使用作为壁材,制备豆蔻精油微胶囊的形态结构和缓释性能,结果表明,单独使用乳清分离蛋白时包埋率最高,瓜尔豆胶或卡拉胶的添加都将降低微胶囊产品的均匀性和完整性,在 20 或 35 °C 历经 16 周后,单独使用乳清分离蛋白作为壁材的微胶囊的缓释性能都是上述三者中最好的。

综上,与明胶蛋白相似,乳清蛋白既可以单独作为精油微胶囊的壁材使用,也可以与多糖复合使用,由于消化道内蛋白酶种类的差异化分布,乳清蛋白特别适合作为微胶囊壁材包埋需要定向递送进入肠道的精油等成分使用。

2.3 其它蛋白质

相比较于明胶蛋白和乳清蛋白这两种应用广泛

的蛋白质,其它蛋白质作为壁材用于制备具有缓释性能的微胶囊化精油产品的研究报道相对较少,由于具备相对较好的溶解性、乳化性和成膜性,以大豆蛋白为代表的一些植物蛋白资源在近年来也逐渐受到研究人员的关注^[50]。

Chen 等^[51] 使用玉米醇溶蛋白和酪蛋白酸钠作为壁材,包埋柑橘精油中的主要成分柠檬烯制备缓释型微胶囊,结果表明,产品在 40 °C 放置 2.0 h 后柠檬烯的释放率仅为 2.0%,而使用乳清分离蛋白作为壁材的对照组的释放率则超过 80%。陈佳弘等^[52] 使用再生丝素蛋白与明胶作为壁材制备大蒜精油微胶囊,添加 HLB 值为 12.9 的复合乳化剂,所得产品在 30 °C 储存 21 d 后精油释放率仅为 11.8%,而未包埋的大蒜精油的释放率则达到 89.0%。

综上,大豆蛋白由于相对较好的功能特性,比较适合替代动物蛋白作为精油微胶囊的壁材使用,此外,蛋白质的改性以及与其它原料的复配都有助于拓展现有精油微胶囊壁材所使用蛋白质的种类。

3 总结与展望

微胶囊化技术是精油等敏感性成分最常用的稳态化方法之一,长期以来都是相关领域科研人员关注和聚焦的热点。精油由于易于挥发、氧化变质和分解,其的稳态化以及缓释性能的实现是工业化生产中的难点。在食品工业领域,微胶囊化技术较多地应用于不饱和油脂和不稳定的脂溶性功能成分的稳态化方面;而对于精油而言,微胶囊化技术除了对其加以稳态化保护,更需要使其在适当的时间和位置以适当的方式进行缓释或是定向释放。本文分类综述了近年来多糖和蛋白质这两大类壁材作为精油微胶囊壁材使用时对产品的缓释性能及其它一些性能特点的影响。

近期,包埋有精油等兼具挥发性和不稳定性功能成分的微胶囊的研究和工业化应用已经成为食品领域从业人员的重要研究课题方向。今后,缓释型精油微胶囊用壁材的研究目的预期集中于以下几个方面: a. 实现特定环境中的缓释: 使微胶囊化的精油在正常存放时能够保持长期稳定不挥发而能在特定条件下缓释,例如在空气中稳定而在水溶液中缓释,在水溶液中稳定而在特定溶剂条件下缓释,在常温下稳定而在特定温度条件下缓释等; b. 实现体内定向释放与缓释的结合: 能够使携带有精油或其它具备特定功能活性成分的微胶囊经由食用后在肠道或其它体内特定部位实现缓释从而发挥其活性; c. 实现较为长期且相对稳定、恒速的缓释: 能够将现有的微胶囊化精油的缓释时间,尤其是高温或者是高湿度条件下的相对匀速释放时间从数天、数周提高到一年以上; d. 实现性能指标的进一步优化升级: 使微胶囊产品的载量和产率进一步提升,使产品的尺寸和结构进一步缩小化和均一化; e. 廉价和可持续性壁材资源的有效使用: 在确保安全和性能的前提下,开发和利用现有

常用壁材种类以外的天然或人工合成壁材资源,实现工业化生产的绿色、低碳和高附加值化。为了实现上述研究目的,科研人员的研究重点将着力于以下几点:a.合理的壁材选用及改性优化:现有常用壁材品种的进一步优化使用,包括复配、改性等,以及新型壁材品种的开发和以应用为目的的优化改良;b.适当的壁材结构设计及工业化实现:更为复杂和精细化的微胶囊结构的设计和工业化放大,包括纳米技术、多层包埋等;c.“接力”缓释技术的实现:将芯材相同但壁材的种类、配比或结构不同的微胶囊产品进行复配,利用不同壁材缓释性能的差异实现相对长期且稳定的芯材缓释;d.加工助剂的添加及使用优化:在原料中或在加工过程中对乳化剂和固化剂等加工助剂的添加进行优化,改善产品的性能;e.产品干燥的新技术开发及工业化实现:优化喷雾干燥法等湿微胶囊干燥方法或研发新型的干燥方法,从而降低干燥过程对壁材和芯材的不良影响,实现缓释等产品性能的提升。

参考文献

- [1] COMUNIAN T A, FAVARO-TRINDADE C S. Microencapsulation using biopolymers as an alternative to produce food enhanced with phytosterols and omega-3 fatty acids: A review[J]. *Food Hydrocolloids*, 2016, 61: 442–457.
- [2] CARVALHO I T, ESTEVINHO B N, SANTOS L. Application of microencapsulated essential oils in cosmetic and personal healthcare products—A review[J]. *International Journal of Cosmetic Science*, 2016, 38(2): 109–119.
- [3] MA T, ZHAO H, WANG J, et al. Effect of processing conditions on the morphology and oxidative stability of lipid microcapsules during complex coacervation[J]. *Food Hydrocolloids*, 2019, 87: 637–643.
- [4] LABUSCHAGUE P. Impact of wall material physicochemical characteristics on the stability of encapsulated phytochemicals: A review[J]. *Food Research International*, 2018, 107: 227–247.
- [5] EL ASBAHANI A, MILADI K, BADRI W, et al. Essential oils: From extraction to encapsulation[J]. *International Journal of Pharmaceutics*, 2015, 483(1–2): 220–243.
- [6] RAUT J S, KARUPPAYIL S M. A status review on the medicinal properties of essential oils[J]. *Industrial Crops and Products*, 2014, 62: 250–264.
- [7] PABAST M, SHARIATIFAR N, BEIKZADEH S, et al. Effects of chitosan coatings incorporating with free or nano-encapsulated Satureja plant essential oil on quality characteristics of lamb meat[J]. *Food Control*, 2018, 91: 185–192.
- [8] ESMAEILI A, ASGARI A. *In vitro* release and biological activities of *Carum copticum* essential oil (CEO) loaded chitosan nanoparticles[J]. *International Journal of Biological Macromolecules*, 2015, 81: 283–290.
- [9] BARBIERI N, SANCHEZ-CONTRERAS A, CANTO A, et al. Effect of cyclodextrins and Mexican oregano (*Lippia graveolens* Kunth) chemotypes on the microencapsulation of essential oil[J]. *Industrial Crops and Products*, 2018, 121: 114–123.
- [10] CAI C C, MA R J, DUAN M W, et al. Effect of starch film containing thyme essential oil microcapsules on physicochemical activity of mango[J]. *LWT-Food Science and Technology*, 2020, 131: 109700.
- [11] CHANG H W, TAN T B, TAN P Y, et al. Microencapsulation of fish oil using thiol-modified β -lactoglobulin fibrils/chitosan complex: A study on the storage stability and *in vitro* release[J]. *Food Hydrocolloids*, 2018, 80: 186–194.
- [12] HONG Y, YANG J, LIU W, et al. Sustained release of tea polyphenols from a debranched corn starch-xanthan gum complex carrier[J]. *LWT-Food Science and Technology*, 2019, 103: 325–332.
- [13] XIAO Z, LIU W, ZHU G, et al. A review of the preparation and application of flavour and essential oils microcapsules based on complex coacervation technology[J]. *Journal of the Science of Food and Agriculture*, 2014, 94(8): 1482–1494.
- [14] MEHRAN M, MASOUM S, MERARZADEH M. Microencapsulation of *Mentha spicata* essential oil by spray drying: Optimization, characterization, release kinetics of essential oil from microcapsules in food models[J]. *Industrial Crops and Products*, 2020, 154: 112694.
- [15] COMUNIAN T A, GOMEZ-ESTACA J, FERRO-FURTADO R, et al. Effect of different polysaccharides and crosslinkers on echium oil microcapsules[J]. *Carbohydrate Polymers*, 2016, 150: 319–329.
- [16] IWANEGA D, GRAY D, DECKER E A, et al. Stabilization of soybean oil bodies using protective pectin coatings formed by electrostatic deposition[J]. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 2008, 56(6): 2240–2245.
- [17] MOU C, DENG Q, HU J, et al. Controllable preparation of monodisperse alginate microcapsules with oil cores[J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 2020, 569: 307–319.
- [18] YILDIZ G, DING J, GAUR S, et al. Microencapsulation of docosahexaenoic acid (DHA) with four wall materials including pea protein-modified starch complex[J]. *International Journal of Biological Macromolecules*, 2018, 114: 935–941.
- [19] REZAEINIA H, GHORANI B, EMADZADEH B, et al. Electrohydrodynamic atomization of Balangu (*Lallemantia royleana*) seed gum for the fast-release of *Mentha longifolia* L. essential oil: Characterization of nano-capsules and modeling the kinetics of release[J]. *Food Hydrocolloids*, 2019, 93: 374–385.
- [20] MENCONI A, PUMFORD N R, MORGAN M J, et al. Effect of chitosan on *Salmonella typhimurium* in broiler chickens[J]. *Foodborne Pathogens and Disease*, 2014, 11(2): 165–169.
- [21] LIU X F, GUAN Y L, YANG D Z, et al. Antibacterial action of chitosan and carboxymethylated chitosan[J]. *Journal of Applied Polymer Science*, 2001, 79(7): 1324–1335.
- [22] JAVID A, RAZA Z A, HUSSAIN T. Chitosan microencapsulation of various essential oils to enhance the functional properties of cotton fabric[J]. *Journal of Microencapsulation*, 2014, 31(5): 461–468.
- [23] DIMA C, PĂTRAȘCU L, CANTARAGIU A, et al. The kinetics of the swelling process and the release mechanisms of *Coriandrum sativum* L. essential oil from chitosan/alginate/inulin microcapsules[J]. *Food Chemistry*, 2016, 195: 39–48.
- [24] MOHAMMADI A, HASHEMI M, HOSSEINI S M. Chitosan nanoparticles loaded with *Cinnamomum zeylanicum* essential oil enhance the shelf life of cucumber during cold storage[J]. *Postharvest Biology and Technology*, 2015, 110: 203–213.
- [25] YANG Z, PENG Z, LI J, et al. Development and evaluation of novel flavour microcapsules containing vanilla oil using complex

- coacervation approach[J]. *Food Chemistry*, 2014, 145: 272–277.
- [26] MOHAMMADI A, HASHEMI M, HOSSENIN S M. Nanoencapsulation of *Zataria multiflora* essential oil preparation and characterization with enhanced antifungal activity for controlling *Botrytis cinerea*, the causal agent of gray mould disease[J]. *Innovative Food Science & Emerging Technologies*, 2015, 28: 73–80.
- [27] AHMADI Z, SABER M, BAGHERI M, et al. *Achillea millefolium* essential oil and chitosan nanocapsules with enhanced activity against *Tetranychus urticae*[J]. *Journal of Pest Science*, 2017, 91(2): 837–848.
- [28] WU T, HUANG J, JIANG Y, et al. Formation of hydrogels based on chitosan/alginate for the delivery of lysozyme and their antibacterial activity[J]. *Food Chemistry*, 2018, 240(1): 361–369.
- [29] RAEISI M, TABARAEI A, HASHEMI M, et al. Effect of sodium alginate coating incorporated with nisin, *Cinnamomum zeylanicum*, and rosemary essential oils on microbial quality of chicken meat and fate of *Listeria monocytogenes* during refrigeration[J]. *International Journal of Food Microbiology*, 2016, 238: 139–145.
- [30] MUHOZA B, XIA S Q, WANG X J, et al. The protection effect of trehalose on the multinuclear microcapsules based on gelatin and high methyl pectin coacervate during freeze-drying[J]. *Food Hydrocolloids*, 2015: 105807.
- [31] LI N, ZHANG Z J, LI X J, et al. Microcapsules biologically prepared using *Perilla frutescens* (L.) Britt. essential oil and their use for extension of fruit shelf life[J]. *Journal of the Science of Food and Agriculture*, 2018, 98(3): 1033–1041.
- [32] DE OLIVEIRA E F, PAULA H C B, DE PAULE R C M, et al. Alginate/cashew gum nanoparticles for essential oil encapsulation[J]. *Colloids and Surfaces B: Biointerfaces*, 2014, 113: 146–151.
- [33] JU J, XIE Y, GUO Y, et al. Application of starch microcapsules containing essential oil in food preservation[J]. *Critical Reviews in Food Science and Nutrition*, 2018: 1–12.
- [34] DIMA C, COTARLET M, TIBERIUS B, et al. Encapsulation of coriander essential oil in beta-cyclodextrin: Antioxidant and antimicrobial properties evaluation[J]. *Romanian Biotechnological Letters*, 2014, 19(2): 9128–9140.
- [35] REN X, YUE S, XIANG H, et al. Inclusion complexes of eucalyptus essential oil with β -cyclodextrin: Preparation, characterization and controlled release[J]. *Journal of Porous Materials*, 2018, 25(6): 1577–1586.
- [36] MUNHUWEYI K, CALEB O J, VAN REENEN A J, et al. Physical and antifungal properties of β -cyclodextrin microcapsules and nanofibre films containing cinnamon and oregano essential oils[J]. *LWT-Food Science and Technology*, 2018, 87: 413–422.
- [37] PILETTI R, ZANETTI M, JUNG G, et al. Microencapsulation of garlic oil by β -cyclodextrin as a thermal protection method for antibacterial action[J]. *Materials Science and Engineering: C*, 2019, 94: 139–149.
- [38] HOYOS-LEYVA J D, BELLO-PÉREZ L A, ALVAREZ-RAMIREZ J, et al. Microencapsulation using starch as wall material: A review[J]. *Food Reviews International*, 2018, 34(2): 148–161.
- [39] 王楠, 王建清, 王玉峰, 等. 海藻酸钠/多孔淀粉牛至精油微胶囊的制备[J]. *食品工业科技*, 2016, 37(9): 224–227. [WANG N, WANG J P, WANG Y F, et al. Preparation of sodium alginate/porous starch oregano essential oil microcapsules[J]. *Science and Technology of Food Industry*, 2016, 37(9): 224–227.]
- [40] WANG Y, JIA J, TIAN Y, et al. Antifungal effects of clove oil microcapsule on meat products[J]. *LWT - Food Science and Technology*, 2018, 89: 604–609.
- [41] 卢延霞, 张岩, 姜文利, 等. 低压等离子体改性淀粉用于精油微胶囊的制备研究[J]. *粮油食品科技*, 2018, 89: 604–609. [LU Y X, ZHANG Y, JIANG W L, et al. Preparation of garlic oil microcapsulation with modified corn starch by low pressure plasma[J]. *Science and Technology of Cereals, Oils and Foods*, 2018, 89: 604–609.]
- [42] 刘双双, 那治国, 徐飞, 等. 壁材对香草兰精油微胶囊物性与释放特性的影响[J]. *食品科学*, 2019, 40(13): 129–134. [LIU S S, NA Z G, XU F, et al. Effects of wall materials on properties and release characteristics of vanilla essential oil microcapsules[J]. *Food Science*, 2019, 40(13): 129–134.]
- [43] SUTAPHANIT P, CHITPRASERT P. Optimisation of microencapsulation of holy basil essential oil in gelatin by response surface methodology[J]. *Food Chemistry*, 2014, 150: 313–320.
- [44] SOLOMON B, SAHLE F F, GEBRE-MARIAM T, et al. Microencapsulation of citronella oil for mosquito-repellent application: Formulation and *in vitro* permeation studies[J]. *European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics*, 2012, 80(1): 61–66.
- [45] MUHOZA B, XIA S, ZHANG X. Gelatin and high methyl pectin coacervates crosslinked with tannic acid: The characterization, rheological properties, and application for peppermint oil microencapsulation[J]. *Food Hydrocolloids*, 2019, 97: 105174.
- [46] BASTOS L P H, VICENTE J, DOS SANTOS C H C, et al. Encapsulation of black pepper (*Piper nigrum* L.) essential oil with gelatin and sodium alginate by complex coacervation[J]. *Food Hydrocolloids*, 2020, 102: 105605.
- [47] WANG S, SHI Y, HAN L. Development and evaluation of microencapsulated peony seed oil prepared by spray drying: Oxidative stability and its release behavior during *in-vitro* digestion[J]. *Journal of Food Engineering*, 2018, 231: 1–9.
- [48] ZHANG Y, GONG J, YU H, et al. Alginate-whey protein dry powder optimized for target delivery of essential oils to the intestine of chickens[J]. *Poultry Science*, 2014, 93(10): 2514–2525.
- [49] MEHYAR G F, AL-ISMAIL K M, AL-GHIZZAWI H M, et al. Stability of cardamom (*Elettaria cardamomum*) essential oil in microcapsules made of whey protein isolate, guar gum, and carrageenan[J]. *Journal of Food Science*, 2014, 79(10): C1939–C1949.
- [50] EGHBAL N, CHOUDHARY R. Complex coacervation: Encapsulation and controlled release of active agents in food systems[J]. *LWT-Food Science and Technology*, 2018, 90: 254–264.
- [51] CHEN Y, SHU M, YAO X, et al. Effect of zein-based microcapsules on the release and oxidation of loaded limonene[J]. *Food Hydrocolloids*, 2018, 84: 330–336.
- [52] 陈佳弘, 江虹锐, 姜毅, 等. 再生丝素蛋白与明胶为壁材的大蒜油微胶囊的制备研究[J]. *食品工业科技*, 2017, 38(13): 140–146. [CHEN J H, JIANG H R, JIANG Y, et al. Study on the preparation of garlic oil microcapsules with regenerated silk fibroin and gelatin as wall material[J]. *Science and Technology of Food Industry*, 2017, 38(13): 140–146.]