



范丹娜,王敏,张敏,等.山蜡梅叶黄酮微胶囊制备工艺优化及其稳定性研究[J].江西农业大学学报,2026,48(2):541–558.
FAN Danna,WANG Min,ZHANG Min,et al.Study on preparation and stability of flavonoid microcapsules from *Chimonanthus nitens* Oliv. leaf[J].Acta agriculturae universitatis Jiangxiensis,2026,48(2):541–558.

山蜡梅叶黄酮微胶囊制备工艺优化及其稳定性研究

范丹娜^{1,2},王 敏^{1,2},张 敏^{1,2},王文君^{1,2},林苏芸^{1,2},胡文兵^{1,2},
陈凌利^{1,2},韩 艺^{1,2},何绍浪³,陈 慧^{1,2*}

(1.江西农业大学 食品科学与工程学院,江西 南昌 330045;2.江西省天然产物与功能食品重点实验室,江西 南昌 330045;3.江西省红壤及种质资源研究所 耕地改良与质量提升江西省重点实验室/国家红壤改良工程技术研究中心,江西 南昌 330046)

摘要:【目的】旨在研究锐孔法制备山蜡梅叶黄酮微胶囊的最佳工艺,以提高其稳定性。【方法】通过单因素试验考察海藻酸钠质量分数、氯化钙质量分数、壁芯比和固定浴温度对包埋率与载药量的影响,进而利用响应面法获得最佳工艺条件,并对该工艺条件下制备的山蜡梅叶黄酮微胶囊进行表征分析、稳定性试验和抗氧化活性测定。【结果】(1)单因素和响应面法优化得到最佳工艺条件为:海藻酸钠质量分数为2.0%、氯化钙质量分数为3.0%,壁芯比为10:1,固定浴温度为54℃,在此工艺下山蜡梅叶黄酮微胶囊包埋率达75.0%。(2)山蜡梅叶黄酮微胶囊呈球形,表面光滑致密,平均粒径为248.9 μm,傅里叶红外光谱(FT-IR)结果显示黄酮被有效物理包埋于壁材中。(3)微胶囊化显著提高了山蜡梅叶黄酮在高温、光照及贮藏条件下的保留率,高温孵育4 h后,微胶囊黄酮保留率为72.4%,比未包埋黄酮保留率高16.2%;光照8 h后,微胶囊黄酮保留率为81.6%,而未包埋黄酮保留率下降至68.6%;贮藏28 d后,微胶囊黄酮保留率为94.5%,是未包埋黄酮保留率的5倍以上;且其在贮藏期内对1,1-二苯基-2-三硝基苯肼(DPPH)自由基、2,2'-联氨-双-3-乙基苯并噻唑啉-6-磺酸(ABTS⁺)自由基的清除能力、铁离子还原能力(FRAP值),以及亚铁离子螯合率随贮藏时间的增加而下降,但下降趋势较平缓;而未包埋黄酮在贮藏7 d后,其各项抗氧化指标随贮藏时间的增加呈急剧下降趋势;贮藏28 d后微胶囊的DPPH自由基清除率、ABTS⁺自由基清除率、FRAP值、亚铁离子螯合率分别为89.8%、42.6%、4.0、5.1%,未包埋黄酮为17.0%、26.8%、1.3、2.2%。山蜡梅叶黄酮微胶囊不仅具有稳定的黄酮物质基础,且具备稳定的抗氧化活性。山蜡梅叶黄酮保留率与抗氧化活性之间存在显著正相关性。【结论】建立了一种锐孔法制备山蜡梅叶黄酮微胶囊的最佳工艺,制备的微胶囊结构完整,山蜡梅叶黄酮稳定性得到显著改善。研究结果可为山蜡梅叶黄酮在功能食品或药品等领域中的稳态化应用提供技术支持和理论依据。

关键词:山蜡梅叶;黄酮;微胶囊;工艺优化;稳定性;抗氧化活性

中图分类号:TS201.2 文献标志码:A

开放科学(资源服务)标识码(OSID):

文章编号:1000-2286(2026)02-0541-18

CSTR:32399.14.aauj.2026045



收稿日期:2025-12-17 修回日期:2026-01-14 接受日期:2026-01-22

基金项目:国家自然科学基金项目(82460646)和江西省自然科学基金项目(20224BAB216091)

Project supported by the National Natural Science Foundation of China (82460646) and Jiangxi Natural Science Foundation Project (20224 BAB 216091)

作者简介:范丹娜,硕士生,orcid.org/0009-0004-6263-4575,13949175002@163.com;*通信作者:陈慧,讲师,博士,主要从事食品营养与安全研究,orcid.org/0000-0003-1897-6303,ch2568@jxau.edu.cn。

©《江西农业大学学报》编辑部,开放获取CC BY-NC-ND协议

Study on preparation and stability of flavonoid microcapsules from *Chimonanthus nitens* Oliv. leaf

FAN Danna^{1,2}, WANG Min^{1,2}, ZHANG Min^{1,2}, WANG Wenjun^{1,2}, LIN Suyun^{1,2},
HU Wenbing^{1,2}, CHEN Lingli^{1,2}, HAN Yi^{1,2}, HE Shaolang³, CHEN Hui^{1,2*}

(1.School of Food Science and Engineering, Jiangxi Agricultural University, Nanchang 330045, China; 2.Jiangxi Provincial Key Laboratory of Natural Products and Functional Food, Nanchang 330045, China; 3.Jiangxi Institute of Red soil and Germplasm Resources, Key Laboratory of Arable Land Improvement and Quality Improvement of Jiangxi Province, National Engineering and Technology Research Center for Red Soil Improvement, Nanchang 330046, China)

Abstract: [Objective] This study aims to optimize the optimal process for preparing *Chimonanthus nitens* Oliv. leaf flavonoid microcapsules via the piercing method to enhance their stability. [Method] Single-factor experiments were conducted to investigate the effects of sodium alginate mass fraction, calcium chloride mass fraction, wall-to-core ratio, and coagulation bath temperature on the encapsulation efficiency and drug loading capacity. Subsequently, the response surface methodology (RSM) was employed to obtain the optimal process conditions, and the *Chimonanthus nitens* Oliv. leaf flavonoid microcapsules prepared under these conditions were subjected to characterization analysis, stability tests, and antioxidant activity determination. [Result] The optimal process parameters obtained by single-factor and response surface methodology (RSM) optimization were as follows: sodium alginate mass fraction of 2.0%, calcium chloride mass fraction of 3.0%, wall-to-core ratio of 10:1, and coagulation bath temperature of 54 °C. Under these conditions, the encapsulation efficiency of *Chimonanthus nitens* Oliv. leaf flavonoid microcapsules reached 75.0%. After drying, the *Chimonanthus nitens* Oliv. leaf flavonoid microcapsules exhibited a spherical shape with a smooth and dense surface, and an average particle size of 248.9 μm. The result of fourier transform infrared spectroscopy (FT-IR) confirmed that the flavonoids were effectively physically encapsulated within the wall material. Microencapsulation significantly enhanced the retention rate of *Chimonanthus nitens* Oliv. leaf flavonoids under high-temperature, light exposure, and storage conditions. After 4 hours of high-temperature incubation, the flavonoid retention rate of the microcapsules was 72.4%, which was 16.2% higher than that of the unencapsulated flavonoids. Following 8 hours of light exposure, the flavonoid retention rate of the microcapsules reached 81.6%, while that of the unencapsulated flavonoids decreased to 68.6%. After 28 days of storage, the flavonoid retention rate of the microcapsules was 94.5%, more than 5 times higher than that of the unencapsulated flavonoids. Furthermore, during the storage period, the microcapsules exhibited a mild downward trend in their scavenging capacity against 1, 1-diphenyl-2-picrylhydrazyl (DPPH) radicals and 2, 2'-azino-bis (3-ethylbenzothiazoline-6-sulfonic acid) (ABTS⁺) radicals, as well as in their ferric reducing antioxidant power (FRAP) value and ferrous ion chelating rate with the prolongation of storage time. In contrast, after 7 days of storage, all antioxidant indices of the unencapsulated flavonoids showed a sharp decline with the increase of storage time. After 28 , the DPPH radical scavenging rate, ABTS⁺ radical scavenging rate, FRAP value, and ferrous ion chelating rate of the microcapsules were 89.8%, 42.6%, 4.0, and 5.1%, respectively, while those of the unencapsulated flavonoids were 17.0%, 26.8%, 1.3, and 2.2%. The *Chimonanthus nitens* Oliv. leaf flavonoid microcapsules not only possess a stable flavonoid content foundation but also exhibit consistent antioxidant activity. The correlation analysis showed that the flavonoid content was significantly positively correlated with its antioxidant activity. [Conclusion] This study established an optimal process for preparing *Chimonanthus nitens* Oliv. leaf flavonoid microcapsules via the piercing method, these microcapsules had complete structure and significantly improved stability of *Chimonanthus nitens* Oliv. leaf flavonoids. It provides technical support and a theoretical basis for the

stabilized application of flavonoids from *Chimonanthus nitens* Oliv. leaf in functional foods or pharmaceuticals.

Keywords: *Chimonanthus nitens* Oliv. leaf; flavonoids; microcapsules; process optimization; stability; antioxidant activity

【研究意义】山蜡梅(*Chimonanthus nitens* Oliv.)为蜡梅科蜡梅属植物,产于我国多个省区,是我国特有的茶药两用野生常绿灌木植物,其叶片经干制后又称作黄金茶、毛山茶,可作茶饮^[1-2]。山蜡梅叶在民间药用历史悠久,被《中国药典》等权威典籍收录,是我国南方地区常用的清热解毒、疏风解表药材^[3]。黄酮类化合物为山蜡梅叶主要活性成分之一,包括芦丁、槲皮素、山奈酚及其糖苷衍生物等^[4],不仅具有良好的体外抗氧化活性^[5],还有护肝、降尿酸、抗炎、抗菌、免疫调节等多重生物活性^[6-8],为其在食品、药品、化妆品等多领域的开发应用提供了科学理论基础。黄酮化学结构不稳定,其在加工制备与贮藏过程中,对光照、温度、氧气及湿度等外界环境因素的耐受性较差,发生氧化、降解,导致其生物活性显著衰减^[9-10]。微胶囊技术作为一种高效的活性物质保护与递送策略,已被广泛应用于功能性成分的分子包埋和改性研究中^[12-14]。将现代剂型工程技术与特色药用植物资源相结合,提高山蜡梅叶黄酮稳定性,是响应《中医药发展战略规划纲要》号召、推动中药资源高值化利用的重要途径^[11]。【前人研究进展】微胶囊技术通过天然或合成的成膜材料(壁材)将功能性成分(芯材)包裹形成微小胶囊结构,构建物理隔离屏障,有效减少芯材与外界不良环境的接触,从而延缓其降解速率并维持生物活性^[15-16]。陈书明等^[17]采用酵母微胶囊包封杜仲黄酮,通过响应面法优化了工艺,显著提高了其在高温、紫外光照射及长期贮存条件下的稳定性。余金橙等^[18]研究结果显示,微胶囊化能有效保护山楂多酚,使其在贮藏期间保持更高的抗氧化活性,包埋后活性成分的保留率显著提升^[19]。

【本研究切入点】常用的微胶囊制备方法有冷冻干燥法、喷雾干燥法、锐孔法和分子包埋法^[20]。锐孔法具有操作简便、反应条件温和、无需高温处理等优势^[21],可避免热敏性活性成分在制备过程中发生结构破坏^[22],特别适用于黄酮类热敏性成分的包封。相比于喷雾干燥法和冷冻干燥法,锐孔法具有节省时间、在实验室条件下能快速制备微胶囊等优势^[20]。海藻酸钠作为一种天然阴离子多糖,具有良好的生物相容性、生物降解性及成膜特性,在二价钙离子作用下可发生温和的离子凝胶反应形成稳定凝胶网络,因此被广泛用作微胶囊壁材^[23-24]。目前,山蜡梅叶黄酮微胶囊制备工艺等相关研究尚未见报道。【拟解决的关键问题】本研究以山蜡梅叶黄酮为芯材、海藻酸钠为壁材,采用锐孔法制备山蜡梅叶黄酮微胶囊,通过单因素试验与响应面法优化制备工艺,利用激光粒度分析仪、扫描电镜(SEM)、傅里叶变换红外光谱(FT-IR)进行表征分析,并评价山蜡梅叶黄酮微胶囊化前后的稳定性及抗氧化活性,从而为山蜡梅叶黄酮在功能食品或药品等领域的稳态化应用提供理论依据与技术支持。

1 材料与方法

1.1 试验材料

山蜡梅叶采购于江西省婺源县钟吕堂生物科技有限公司,于2022年7月份采自3年生山蜡梅树,采后立即干燥。

1.2 方法

1.2.1 山蜡梅叶黄酮的制备

根据盛丹丹等^[25]的方法稍作修改,称取一定质量的山蜡梅叶粉末,按照料液比1:25(g/mL)加入体积分数60%乙醇,200 W 40℃超声(昆山市超声仪器有限公司)提取40 min,过滤,将滤液60℃减压浓缩至原体积1/5。取AB-8型大孔树脂(广州伟伯科技有限公司)于20 L体积分数20%乙醇搅匀放置过夜,弃去上层,重复3次;下层填料用水搅拌均匀,装入直径10 cm,高度为180 cm的玻璃层析柱中。按照浓缩液与大孔树脂1:4的比例上样,洗脱流速400 mL/min。先用蒸馏水洗脱,除去水溶性成分,随后用体积分数10%乙醇洗脱,除去大极性成分,最后用体积分数60%乙醇洗脱,收集黄酮类成分。HPLC监测洗脱过程,收集黄酮特征吸收峰,合并浓缩黄酮类成分洗脱液,60℃减压浓缩至原体积1/5,冷冻干燥72 h,即得黄酮含量为70%的山蜡梅叶黄酮。

1.2.2 山蜡梅叶黄酮微胶囊的制备

(1)壁材溶液的配制。用200 mL烧杯称取一定质量的海藻酸钠(青岛明月海藻集团有限公司),加入去离子水,配制成质量分数为2.0%的海藻酸钠溶液,放入转子,放在磁力搅拌器(上海尚仪仪器设备有限公司)上至完全溶解。

(2)芯材和壁材混合液的配制。按照10:1壁芯比,称取一定质量的山蜡梅叶黄酮,加入海藻酸钠溶液中配成芯壁混合溶液,放在磁力搅拌器上至完全溶解。

(3)固定浴溶液的配制。用200 mL烧杯称取一定质量的氯化钙(天津市大茂化学试剂厂),用50 mL蒸馏水溶解,配制成质量分数为4.0%的氯化钙溶液。

(4)锐孔滴出。将固定浴溶液放在磁力搅拌器上60℃水浴搅拌,用装有0.45 mm针头的滴管吸取芯壁混合液在流动泵的循环压力下垂直滴落固定浴中,搅拌包埋,固化时间10~30 min。

(5)洗涤和干燥。固化完成后,倒掉凝固浴,将微胶囊表面残留的凝固浴用纯水冲洗干净,抽滤至微胶囊表面无明显液体,将微胶囊倒入直径为10 cm培养皿,放入烘箱(上海跃进医疗器械有限公司)中40℃干燥1 h,即得到微胶囊成品。

1.2.3 山蜡梅叶黄酮含量的测定

(1)标准曲线的绘制。根据张敏等^[26]的方法,精确称取60℃下烘干至恒重的芦丁标准品10 mg,并使用10 mL体积分数60%乙醇水溶液定容,即为1 mg/mL芦丁标准溶液,转移至15 mL离心管中保存。精确吸取0,0.2,0.4,0.6,0.8,1.0,1.2,1.4 mL标准溶液,分别置于8个10 mL容量瓶中,加5% 0.4 mL亚硝酸钠,静置6 min,再加10% 0.4 mL硝酸铝溶液,静置6 min,最后加4% 4 mL氢氧化钠溶液,用体积分数60%乙醇水溶液定容至刻度,摇匀,放置15 min后用酶标仪在510 nm波长下测定吸光度。以吸光度A对质量浓度C作线性回归。根据试验数据,得到回归方程: $Y=2.843\ 1X-0.013\ 4$, $R^2=0.995\ 6$ 。

(2)黄酮含量的计算。根据张敏等^[26]的方法稍作修改,称取10 mg冷冻干燥后的样品于15 mL离心管中,用10 mL体积分数60%乙醇水溶液溶解,吸取1 mL样液到10 mL容量瓶中,按照制定标准曲线中的显色方法显色,测定吸光度,计算总黄酮的含量,公式如下:

$$W = \frac{c \times v \times 10}{m} \times 100\% \quad (1)$$

式(1)中:W为总黄酮的含量;c为总黄酮的质量浓度,mg/mL;v为反应体系总体积,mL;m为样品质量,mg。

1.2.4 山蜡梅叶黄酮微胶囊包埋率和载药量的测定

根据孟翔宇等^[22]的方法稍作修改,称取0.1 g山蜡梅叶黄酮微胶囊两份,一份用于测定表面游离黄酮,另一份用于测定微胶囊总黄酮。分别加入5 mL体积分数60%乙醇和蒸馏水。溶解于水的样品则用于测定微胶囊总黄酮含量,加入乙醇的样品在4 000 r/min下离心(上海安亭科学仪器厂)10 min,过0.45 μm滤膜,取上清液1 mL,按上述黄酮测定方法进行测定,所得结果为表面游离黄酮含量。包埋率和载药量计算公式如下:

$$\text{包埋率} = \frac{W_1 - W_2}{W_1} \times 100\% \quad (2)$$

$$\text{载药量} = \frac{M_1}{M_2} \times 100\% \quad (3)$$

式(2)和式(3)中: W_1 为微胶囊总黄酮含量,mg/mL; W_2 为微胶囊表面游离黄酮含量 mg/mL; M_1 为微胶囊总黄酮质量,mg; M_2 为微胶囊质量,mg。

1.2.5 单因素试验

(1)不同质量分数海藻酸钠对微胶囊包埋率和载药量的影响。在氯化钙质量分数为2.0%,壁芯比10:1,固定浴温度60℃的条件下,考察海藻酸钠质量分数在1.0%、1.5%、2.0%、2.5%和3.0%时的微胶囊包埋率。

(2)不同质量分数氯化钙对微胶囊包埋率和载药量的影响。在海藻酸钠质量分数为2.0%,壁芯比10:1,固定浴温度60℃的条件下,考察氯化钙质量分数在2.0%、2.5%、3.0%、3.5%和4.0%时的微胶囊包埋率。

(3)不同壁芯比对微胶囊包埋率和载药量的影响。在海藻酸钠质量分数为2%,氯化钙质量分数为

3.0%,固定浴温度 60 °C的条件下,考察壁芯比在 5:1、10:1、15:1、20:1 和 25:1 时的微胶囊包埋率。

(4)不同固定浴温度对微胶囊包埋率和载药量的影响。在海藻酸钠质量分数为 2.0%,氯化钙质量分数为 3.0%,壁芯比 10:1 的条件下,考察固定浴温度在 30,40,50,60,70 °C时的微胶囊包埋率。

1.2.6 响应面试验设计

根据单因素试验结果,使用 Design-Expert 13 软件进行响应面试验设计,考察制备山蜡梅叶微胶囊各因素包括壁材质量分数、氯化钙质量分数、壁芯比和固定浴温度对包埋率和载药量的影响,探究山蜡梅叶微胶囊制备的最优工艺条件。试验因素水平设计如表 1 所示。

表 1 响应面试验因素与水平表

Tab.1 Factors and levels of response surface methodology experiments

水平 Level	因素 Factors			
	壁材质量分数(A)/%	氯化钙质量分数(B)/%	壁芯比(C)	固定浴温度(D)/°C
	Wall material mass fraction	Calcium chloride mass fraction	Wall-core ratio	Fixed bath temperature
-1	1.5	2.5	5:1	40
0	2.0	3.0	10:1	50
1	2.5	3.5	15:1	60

1.2.7 山蜡梅叶黄酮微胶囊的结构表征

(1)粒径分析。参考张宏源等^[27]的方法稍作修改,称取一定质量微胶囊,以超纯水为分散剂,使用激光粒度分析仪(美国 Microtrac 公司)测定样品粒径,测量条件采用分散剂折射率为 1.330,颗粒折射率为 1.520。

(2)FT-IR 分析。参考樊俊伟等^[28]的方法,采用红外光谱仪(美国 Thermo Fisher Scientific 公司)结合溴化钾压片法分别对山蜡梅叶黄酮、微胶囊壁材及山蜡梅叶黄酮微胶囊在波长为 400~4 000 cm⁻¹ 范围内进行红外光谱扫描分析,分析样品的红外光谱图。

(3)SEM 分析。参考陈书明等^[17]的方法,采用扫描电子显微镜(Regulus 8100 日本 HITACHI)分别观察山蜡梅叶黄酮与山蜡梅叶黄酮微胶囊微观形貌。取铜片洗净擦干,在铜片上粘上导电胶,将一层薄薄的粉末样品涂在导电胶上,然后使用离子溅射仪通过溅射涂覆技术在样品上镀上一层薄薄的金。用扫描电镜观察所制微胶囊微观形态和尺寸大小。

1.2.8 山蜡梅叶黄酮微胶囊的稳定性试验

热稳定性:参考陈书明等^[17]的方法,称取相同质量的微胶囊和黄酮,于烘箱 110 °C 干燥 4 h,每隔 1 h 取样测定黄酮含量,按照下列公式计算黄酮保留率。光稳定性:根据参考文献[22]的方法稍作修改,将微胶囊和黄酮在室外自然光下照射 8 h,每隔 2 h 取样测定黄酮含量,按照下列公式计算黄酮保留率,同时设置避光对照组。贮藏稳定性:根据参考文献[17]的方法,将微胶囊和黄酮置于 10 cm 培养皿常温下贮存 28 d,每隔 7 d 取样测定黄酮含量,按照下列公式计算黄酮保留率。

$$\text{黄酮保留率} = \frac{M_1}{M_2} \times 100\% \quad (4)$$

式(4)中: M_1 为处理后黄酮质量浓度,mg/mL; M_2 为处理前黄酮质量浓度,mg/mL。

1.2.9 山蜡梅叶黄酮微胶囊贮藏抗氧化活性的测定

根据参考文献[29]的方法稍作修改,将微胶囊和黄酮置于 10 cm 培养皿常温下贮存 28 d,每隔 7 d 取样测定其 DPPH 自由基清除率、ABTS⁺自由基清除率、铁离子还原能力(FRAP 值)和铁离子螯合能力。

(1)DPPH 自由基清除能力的测定。根据张敏等^[26]的方法,移取 0.2 mmol/L DPPH-无水乙醇溶液 1.0 mL,分别加入至含 1.0 mL 0.1 mg/mL 山蜡梅叶黄酮和 10 mg/mL 微胶囊溶液的试管中,避光反应 30 min,作为试验组;移取 DPPH-无水乙醇溶液 1.0 mL,加入至含 1.0 mL 对应样品溶液的溶剂的试管中,作为空白组;移取无水乙醇 1.0 mL,分别加入至含有 1.0 mL 山蜡梅叶黄酮和微胶囊溶液的试管中,作为对照组。各组均在 517 nm 波长处测定吸光度,每组进行 3 次平行试验。

$$\text{DPPH 自由基清除率} = 1 - \frac{A_1 - A_2}{A_0} \times 100\% \quad (5)$$

式(5)中: A_0 为空白组的吸光度; A_1 为样品的吸光度; A_2 为对照组的吸光度。

(2) ABTS⁺自由基清除能力的测定。根据张敏等^[26]的方法,以2.45 mmol/L过硫酸钾溶液为溶剂配制7 mmol/L ABTS⁺母液,避光静置16 h后使用。用去离子水稀释混合液使其在734 nm处吸光度为0.70±0.01。移取0.030 mL 0.1 mg/mL山蜡梅叶黄酮和10 mg/mL微胶囊溶液至酶标板中,再加入0.17 mL ABTS⁺工作液,避光反应10 min,作为试验组;移取0.030 mL 0.1 mg/mL山蜡梅叶黄酮和10 mg/mL微胶囊溶液至酶标板中,加蒸馏水0.17 mL,混合均匀,作为对照组;移取0.030 mL对应样品溶液的溶剂至酶标板中,分别加入ABTS⁺工作液0.17 mL,混合均匀,作为空白组。各组均在734 nm波长测吸光度,每组进行3次平行试验。

$$\text{ABTS}^+\text{自由基清除率} = 1 - \frac{A_1 - A_2}{A_0} \times 100\% \quad (6)$$

式(6)中: A_0 为空白组的吸光度; A_1 为样品的吸光度; A_2 为对照组的吸光度。

(3) 铁离子还原能力的测定。根据张敏等^[26]的方法,取300 mmol/L醋酸缓冲液、10 mmol/L TPTZ溶液和20 mmol/L FeCl₃溶液按照体积比10:1:1混合,于37℃反应10 min,即得FRAP工作液。称取适量FeSO₄·7H₂O加超纯水配制成浓度为1.6 mmol/L FeSO₄母液,稀释母液制备0, 0.2, 0.4, 0.6, 0.8, 1.0, 1.2, 1.4, 1.6 mmol/L系列浓度FeSO₄标准溶液。取0.1 mL不同浓度梯度的FeSO₄标准溶液加入3 mL FRAP工作液,37℃反应10 min于593 nm处测定吸光度。以FeSO₄浓度为横坐标,吸光度为纵坐标,建立线性回归方程,根据试验数据得到回归方程 $Y=0.329X-0.0004$, $R^2=0.9966$ 。取0.10 mL 0.10 mg/mL山蜡梅叶黄酮和10 mg/mL微胶囊溶液加入3 mL FRAP工作液,37℃反应10 min,于593 nm测定吸光度,进行3次平行试验。将吸光度值代入标曲得到的Y值即为铁离子还原能力(FRAP值)。

(4) 亚铁离子螯合能力的测定。根据谢普军等^[30]的方法稍作修改,移取0.25 mL 1 mmol/L的FeCl₂溶液、0.5 mL 5 mmol/L的非洛嗪溶液,分别加入至0.050 mL为0.1 mg/mL的山蜡梅叶黄酮和10 mg/mL的微胶囊溶液,再加入2.5 mL超纯水稀释静置10 min,在512 nm下检测混合液的吸光度,同时以EDTA对照,铁离子螯合率计算公式如下:

$$\text{亚铁离子螯合率} = \frac{A_0 - A_1}{A_0} \times 100\% \quad (7)$$

式(7)中: A_0 为超纯水代替样品的吸光度值; A_1 为样品的吸光度值。

1.3 数据统计与分析

试验数据采用SPSS Statistics 25软件进行统计分析,各组间采用LSD法进行多重比较,各试验均重复3次,结果以平均值±标准差(mean±SD)表示。以 $P<0.05$ 为差异具有统计学意义。使用GraphPad Prism 9.5.1绘图软件进行绘图。

2 结果与分析

2.1 单因素试验结果分析

2.1.1 壁材质量分数对山蜡梅叶黄酮微胶囊包埋率和载药量的影响

由图1可知,当海藻酸钠质量分数为1.0%~3.0%时,山蜡梅叶黄酮微胶囊的包埋率和载药量呈现先升高后下降的趋势,在质量分数为2.0%时达到峰值,包埋率达到69.0%,载药量达到6.4%。适中质量分数的壁材能够形成致密完整的囊壁,从而有效包封芯材^[31]。然而,当质量分数超过2.0%后,溶液黏度过高,导致液滴在锐孔滴落过程中拖尾现象加剧,难以形成规则球体,从而使固化后的微胶囊结构完整性下降^[32],包埋率和载药量也随之降低,包埋率显著降低至27.4%。因此,选择2.0%为最佳的海藻酸钠质量分数。

2.1.2 氯化钙质量分数对山蜡梅叶黄酮微胶囊包埋率和载药量的影响

由图2可知,在氯化钙质量分数为2.0%~4.0%时,微胶囊的包埋率和载药量呈现先升高后降低的趋势,当氯化钙质量分数为3%时,包埋率和载药量均达到最大值,分别为50.4%、9.3%。氯化钙质量分数超过3.0%后,包埋率和载药量下降的原因可能是过高的交联速度会引发囊壁表面异常收缩并形成微裂纹,使得芯材在后续洗涤和干燥阶段发生渗漏现象^[33]。因此,选择3.0%为最佳的氯化钙质量分数。

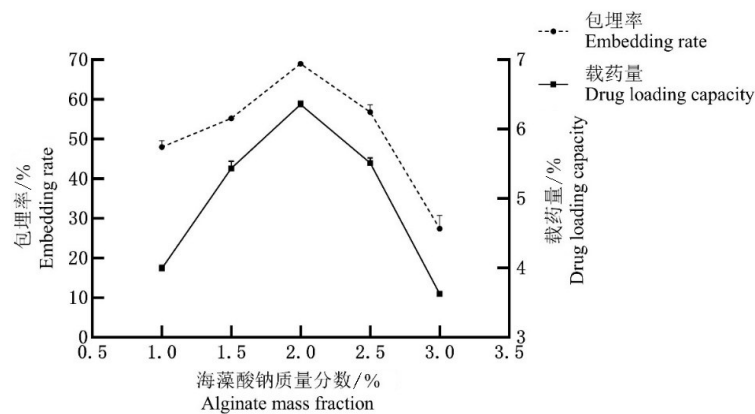


图1 海藻酸钠质量分数对山蜡梅叶黄酮微胶囊包埋率和载药量的影响

Fig.1 Effects of sodium alginate mass fraction on encapsulation rate and drug loading capacity of flavonoid microcapsules from *Chimonanthus nitens* Oliv. leaf

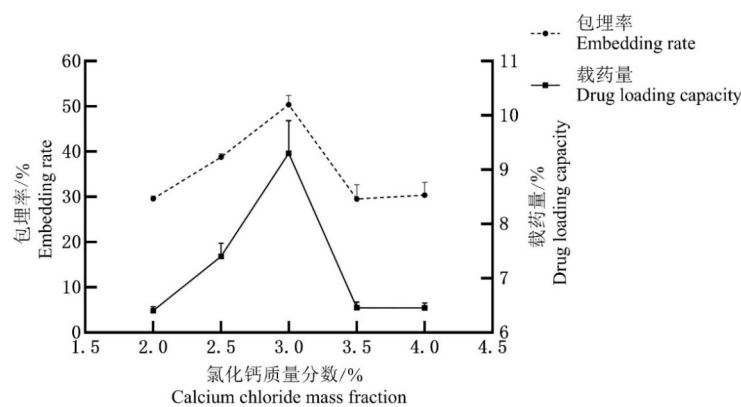


图2 氯化钙质量分数对山蜡梅叶黄酮微胶囊包埋率和载药量的影响

Fig.2 Effects of calcium chloride mass fraction on encapsulation rate and drug loading capacity of flavonoid microcapsules from *Chimonanthus nitens* Oliv. leaf

2.1.3 壁芯比对山蜡梅叶黄酮微胶囊包埋率和载药量的影响

由图3可知,随着壁芯比的增大,包埋率和载药量先升高后降低,当壁芯比从5:1增至10:1时,充足的壁材可有效包覆芯材^[33],包埋率与载药量分别达到65.8%和8.1%。当壁芯比继续增大时,过量的壁材导致微胶囊的包埋率和载药量均显著降低。因此,选择10:1为最佳壁芯比。

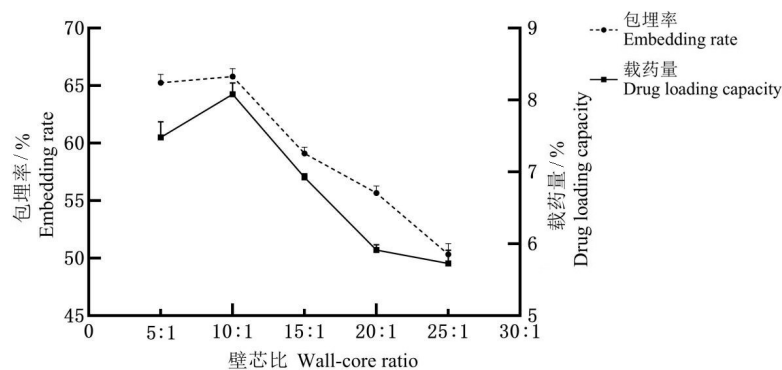


图3 壁芯比对山蜡梅叶黄酮微胶囊包埋率和载药量的影响

Fig.3 Effects of wall-to-core ratio on encapsulation rate and drug loading capacity of flavonoid microcapsules from *Chimonanthus nitens* Oliv. leaf

2.1.4 固定浴温度对山蜡梅叶黄酮微胶囊包埋率和载药量的影响

从图4可知,当温度从30℃升至50℃时,包埋率和载药量均显著升高为75.1%和9.7%,适宜的温度促进了钙离子向海藻酸钠液滴内部的扩散,使交联更为充分。但当温度超过50℃时,包埋率和载药量均

显著下降,可能是温度过高导致溶剂过快蒸发以及囊壁结构快速定型,形成缺陷,同时高温可能引起热敏性黄酮的降解,共同导致包埋率下降^[17]。赵梦媛等^[34]发现过热造成黄酮核心成分芦丁含量显著下降。因此,选择 50 ℃为最佳固定浴温度。

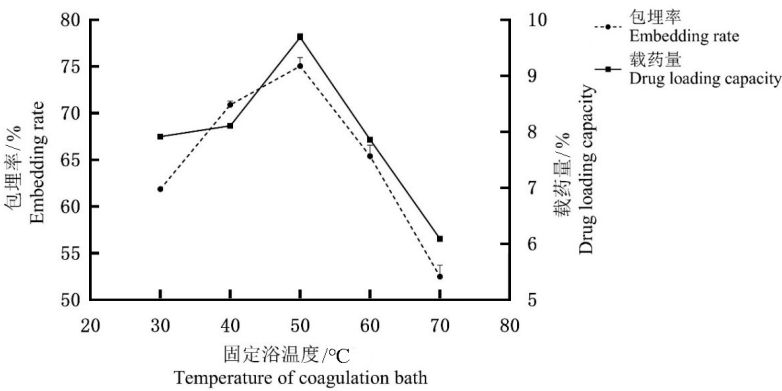


图4 固定浴温度对山蜡梅叶黄酮微胶囊包埋率和载药量的影响

Fig.4 Effects of immobilization bath temperature on encapsulation rate and drug loading capacity of flavonoid microcapsules from *Chimonanthus nitens* Oliv. leaf

2.2 响应面试验结果分析

响应面试验设计与结果如表2所示。对试验数据进行多元回归拟合,得到山蜡梅叶黄酮微胶囊包埋

表2 响应面试验设计及结果

Tab.2 Design and results of response surface methodology experiments

试验号 Test number	海藻酸钠质量分数(A) Alginate mass fraction	氯化钙质量分数(B) Calcium chloride mass fraction	壁芯比(C) Wall-core ratio	固定浴温度(D) Temperature of coagulation bath	包埋率(Y)/% Embedding rate
1	-1	-1	0	0	34.87
2	1	-1	0	0	53.17
3	-1	1	0	0	43.05
4	1	1	0	0	34.38
5	0	0	-1	-1	36.78
6	0	0	1	-1	48.83
7	0	0	-1	1	55.40
8	0	0	1	1	54.74
9	-1	0	0	-1	48.51
10	1	0	0	-1	37.23
11	-1	0	0	1	42.31
12	1	0	0	1	64.64
13	0	-1	-1	0	47.05
14	0	1	-1	0	50.24
15	0	-1	1	0	51.51
16	0	1	1	0	43.48
17	-1	0	-1	0	46.16
18	1	0	-1	0	34.55
19	-1	0	1	0	34.70
20	1	0	1	0	54.00
21	0	-1	0	-1	46.60
22	0	1	0	-1	46.22
23	0	-1	0	1	60.44
24	0	1	0	1	53.89
25	0	0	0	0	74.42
26	0	0	0	0	75.44
27	0	0	0	0	73.23
28	0	0	0	0	74.50
29	0	0	0	0	72.21

率(Y)对各因素的二次回归模型方程:

$$Y=73.96+2.36A-1.86B+1.42C+5.60D-6.74AB+7.72AC+8.40AD-2.81BC-1.54BD-3.18CD-17.81A^2-13.15B^2-14.08C^2-9.31D^2。$$

该模型的方差分析结果(表3)显示,回归模型的 P 值 $<0.000\ 1$,表明方程极其显著;失拟项 P 值为 $0.083\ 7>0.05$,决定系数 $R^2=0.984\ 1$,校正决定系数 $R^2=0.968\ 1$,预测决定系数 $R^2=0.913\ 8$,且校正决定系数与预测决定系数差值 <0.2 ,表明模型拟合度良好,能准确预测工艺结果。通过对比 A 、 B 、 C 、 D 的 F 值可知,各因素对包埋率的影响显著性由高到低依次为固定浴温度(D)、海藻酸钠质量分数(A)、氯化钙质量分数(B)和壁芯比(C)。

表3 响应面回归方程方差分析

Tab.3 Analysis of variance for the response surface regression equation

方差来源 Source of variation	平方和 Sum of squares	自由度 df	均方 Mean square	F 值 F -value	P 值 P -value	显著性 Significant
模型 Model	4 643.58	14	331.68	61.72	$<0.000\ 1$	**
海藻酸钠质量分数(A) Alginate mass fraction	67.07	1	67.07	12.48	0.003 3	**
氯化钙质量分数(B) Calcium chloride mass fraction	41.72	1	41.72	7.76	0.014 6	*
壁材与芯材质量比(C) Wall-to-core rate	24.32	1	24.32	4.53	0.051 6	
固定浴温度(D) Temperature of coagulation bath	376.71	1	376.71	70.10	$<0.000\ 1$	**
AB	181.79	1	181.79	33.83	$<0.000\ 1$	**
AC	238.66	1	238.66	44.41	$<0.000\ 1$	**
AD	282.53	1	282.53	52.57	$<0.000\ 1$	**
BC	31.47	1	31.47	5.86	0.029 7	*
BD	9.49	1	9.49	1.77	0.205 1	
CD	40.37	1	40.37	7.51	0.015 9	**
A^2	2 058.51	1	2 058.51	383.03	$<0.000\ 1$	**
B^2	1 121.67	1	1 121.67	208.71	$<0.000\ 1$	**
C^2	1 286.36	1	1 286.36	239.36	$<0.000\ 1$	**
D^2	562.44	1	562.44	104.65	$<0.000\ 1$	**
残差 Residual	75.24	14	5.37			
失拟项 Lack of fit	68.94	10	6.89	4.38	0.083 7	
净误差 Pure error	6.29	4	1.57			
总和 Cor total	4 718.82	28				
$R^2=0.984\ 1$			$R_{Adj}^2=0.968\ 1$			

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

“*” indicates a significant difference ($P<0.05$); “**” indicates an extremely significant difference ($P<0.01$).

此外,通过响应面图(图5)与等高线图(图6)能直观反映出各因素及因素之间的交互作用对包埋率的影响。在3D响应面曲线图(图5)中,颜色从绿变红代表响应值从小到大,颜色变化的快慢表示曲面图坡度的平缓或陡峭,而曲面图坡度的陡峭程度与该因素对响应值影响的显著性呈正相关^[35]。由图5可知,海藻酸钠质量分数(A),氯化钙质量分数(B)与壁芯比(C)以及固定浴温度(D)四者两两之间有交互作用。其中,图5c中海藻酸钠质量分数与固定浴温度(AD)的交互作用曲面最为陡峭,表明二者交互作用最强。这与表3方差分析中 AD ($P<0.000\ 1$)的 P 值结果一致。在等高线图(图6)中,闭合曲线越接近椭圆,表明交互作用越强。如图6c中等高线接近椭圆,而图6d中等高线接近正圆,表明海藻酸钠质量分数与固定浴温度(AD)的交互作用强,氯化钙质量分数与壁芯比(BC)交互作用弱。

模型预测得到山蜡梅叶黄酮微胶囊的最佳制备工艺参数为:海藻酸钠质量分数为2.097%,氯化钙质量分数为2.924%,壁芯比为10.512:1,固定浴温度为54.160℃,考虑到实际操作上的可能性,调整工艺参数为:海藻酸钠质量分数为2.0%,氯化钙质量分数为3.0%,壁芯比为10:1,固定浴温度为54℃。采用最优工艺条件制备山蜡梅叶黄酮微胶囊进行验证试验,3次重复试验得出微胶囊实际平均包埋率为75.0%,预测值为75.481%。测定值与预测值接近,表明模型具有较好的可靠性。

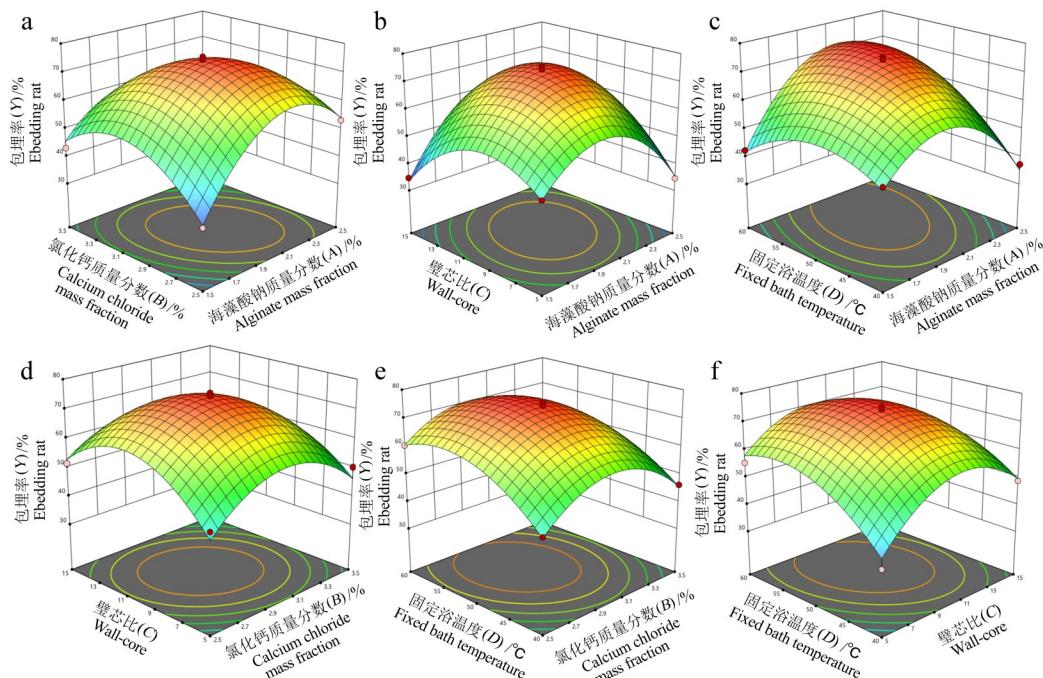


图5 各试验因素交互作用的响应面分析

Fig.5 Response surface plots of the interactive effects of test factors

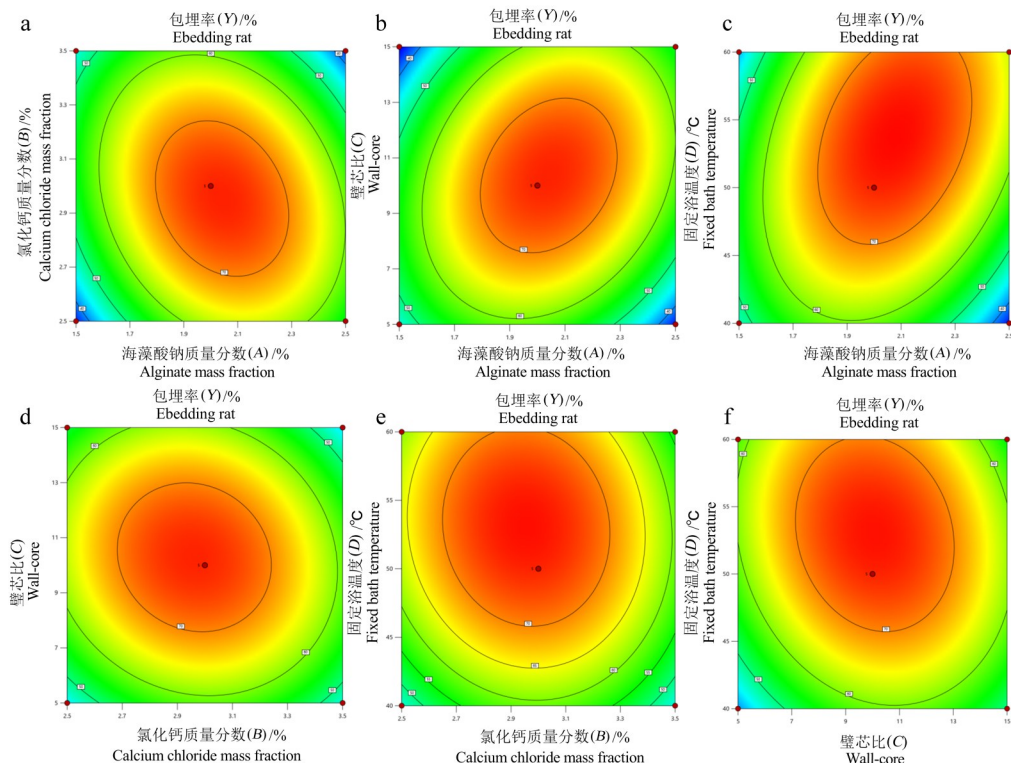


图6 各试验因素交互作用的等高线分析

Fig.6 Contour plots of the interactive effects of test factors

2.3 山蜡梅叶黄酮微胶囊结构表征

2.3.1 山蜡梅叶黄酮微胶囊形貌观察

制备所得山蜡梅叶黄酮湿胶囊(图 7A)形貌呈现出均一的类球形结构,整体呈半透明状,颗粒间分散性较好,无明显粘连现象。经烘干后的微胶囊成品(图 7B)呈现出金黄色的颗粒状形貌,颗粒大小均一性良好,无明显团聚,较湿胶囊颗粒缩小,颜色加深。

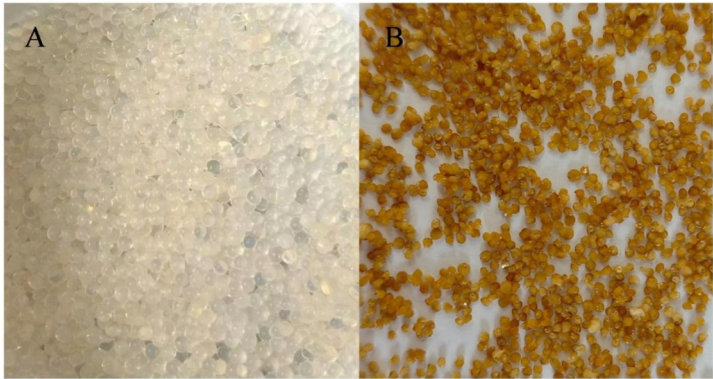


图 7 山蜡梅叶黄酮湿胶囊(A)和微胶囊(B)宏观形貌

Fig.7 Macroscopic morphologies of wet capsules (A) and microcapsules (B) of flavonoids from *Chimonanthus nitens* Oliv. leaf

通过 SEM 对山蜡梅叶黄酮纯品及微胶囊的微观形貌进行观察(图 8)。山蜡梅叶黄酮纯品(图 8A、B):整体观察(图 8A)显示,黄酮纯品无规则形态,呈片状、块状颗粒的团聚体,颗粒大小不均且分散性差;局部放大观察(图 8B)可见其表面粗糙,呈纤维状堆叠结构,无连续的包膜或规整的颗粒形态,这是黄酮类物质未经过包埋处理的典型微观特征。微胶囊整体观察(图 8C)中,微胶囊呈现较均一的类球形结构,分散性良好,无严重粘连团聚现象,颗粒形态规整;局部放大观察(图 8D)可见其表面虽有轻微褶皱但整体致密,无裸露的黄酮原料颗粒,表明壁材已成功包裹黄酮芯材,形成了完整的核壳结构。综上,SEM 结果直观表明,山蜡梅叶黄酮经微胶囊化后,微观形貌从无规则团聚体转变为规整的类球形颗粒,且壁材形成了连续致密的包裹层,充分证实了微胶囊化黄酮的成功制备。

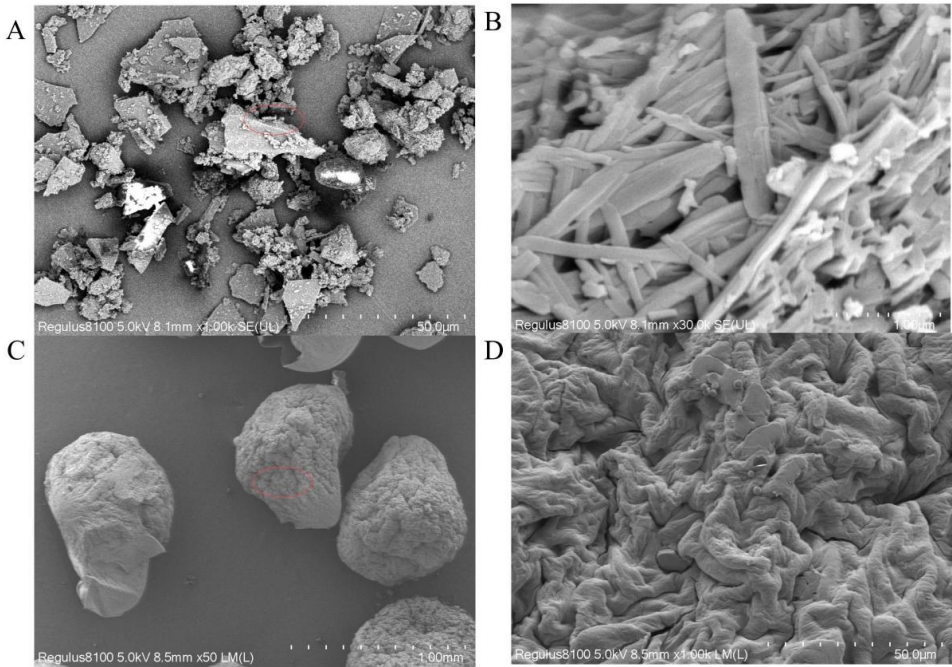


图 8 山蜡梅叶黄酮(A、B)和微胶囊(C、D)微观形貌

Fig.8 Microscopic morphologies of flavonoids from *Chimonanthus nitens* Oliv. leaf (A,B) and their microcapsules(C,D)

2.3.2 山蜡梅叶黄酮微胶囊粒径分析

由图9可知,粒径分布曲线呈单峰正态分布,最佳工艺条件所制备的微胶囊粒径主要分布在200~300 μm ,分布较为集中,90%粒径为248.9 μm 。这种均一的粒径分布表明在山蜡梅叶黄酮微胶囊制备过程中,壁材与芯材混合均匀,固化等工艺参数适配性良好,有利于微胶囊在贮藏和应用过程中保持稳定的理化性能。

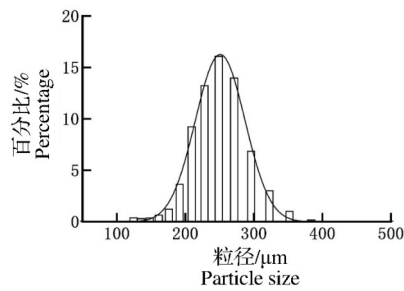


图9 山蜡梅叶黄酮微胶囊粒径分布

Fig.9 Particle size distribution diagram of morphologies of flavonoids from *Chimonanthus nitens* Oliv. leaf

2.3.3 山蜡梅叶黄酮微胶囊FT-IR 分析

通过FT-IR对海藻酸钠、山蜡梅叶黄酮及微胶囊进行化学结构分析,结果如图10所示。海藻酸钠(壁材)特征峰:在波数3 400 cm^{-1} 附近呈现强且宽的吸收峰,对应羟基($-\text{OH}$)的伸缩振动;1 600 cm^{-1} 附近的吸收峰归属于羧基($-\text{COO}^-$)的不对称伸缩振动,这些特征峰体现了海藻酸钠的分子结构特征。山蜡梅叶黄酮(芯材)特征峰:在波数1 640 cm^{-1} 等区域呈现出黄酮类物质特有的苯环、羰基等官能团的特征吸收峰,反映了其自身的化学结构信息。微胶囊特征峰:同时呈现出海藻酸钠壁材的特征峰(3 400 cm^{-1} 处的羟基伸缩振动峰、1 600 cm^{-1} 处的羧基不对称伸缩振动峰)和山蜡梅叶黄酮芯材的特征峰(1 640 cm^{-1} 附近的黄酮类官能团吸收峰),且各特征峰未发生明显位移或消失。综上,微胶囊同时保留了壁材与芯材的特征吸收峰,且无新的特征峰生成,也无芯材特征峰的显著衰减,这表明山蜡梅叶黄酮芯材已被成功包埋于海藻酸钠壁材中^[36],二者以物理包埋结合为主,未发生化学反应,芯材的结构完整性得以保留。

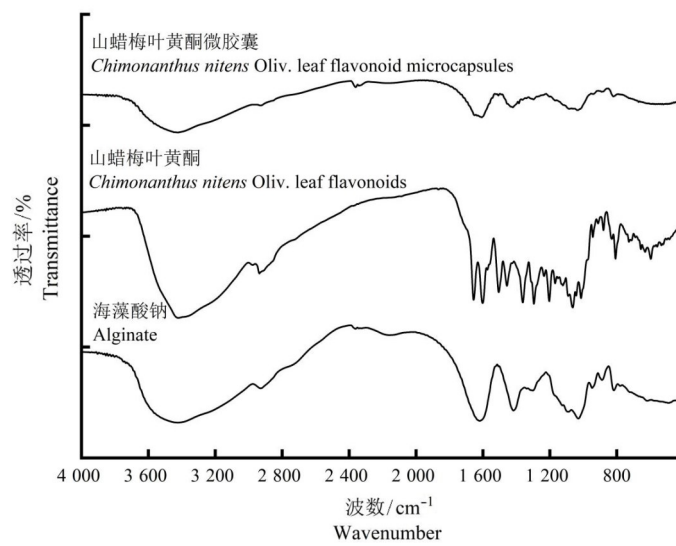


图10 海藻酸钠、山蜡梅叶黄酮及其微胶囊红外光谱分析

Fig.10 Fourier transform infrared spectroscopy analysis of sodium alginate, flavonoids from *Chimonanthus nitens* Oliv. leaf, and their microcapsules

2.4 山蜡梅叶黄酮微胶囊稳定性试验结果

2.4.1 高温、光照和贮藏对山蜡梅叶黄酮微胶囊稳定性的影响

为探究微胶囊化对山蜡梅叶黄酮的保护作用,分别考察了其在高温、光照及长期贮藏条件下的黄酮保留率。随着高温孵育时间的延长,未包埋黄酮和微胶囊的黄酮保留率均有下降趋势(图11A)。高温

孵育4 h后,未包埋黄酮保留率为56.2%,而微胶囊的黄酮保留率为72.4%,与未包埋黄酮相比,微胶囊提高了16.2%,表明山蜡梅叶黄酮微胶囊化有利于提高其稳定性。海藻酸钠-钙交联形成的凝胶壁材有效减缓了热氧降解过程^[37]。Zhang等^[38]将柑橘果皮黄酮提取物进行微胶囊化后,其热稳定性显著提高,本研究所得结果与其一致。由此可得,微胶囊化处理有利于提高山蜡梅叶黄酮的热稳定性。

由图11B可知光照对山蜡梅叶黄酮保留率的影响。在光照和避光条件下,微胶囊的黄酮保留率均高于未包埋黄酮。光照至8 h,微胶囊的黄酮保留率为81.6%,而未包埋黄酮保留率下降至68.6%;与光照微胶囊相比,避光条件下微胶囊的黄酮保留率更高;与光照条件下的未包埋黄酮相比,微胶囊的黄酮保留率更高。壁材对光线具有良好的屏蔽作用,降低了光照对芯材的降解^[39]。孟翔宇等^[22]研究表明玫瑰花色苷微胶囊化后其光照稳定性更好。避光条件更有利于提高山蜡梅叶黄酮的稳定性,微胶囊化处理也有利于提高其光稳定性。

由图11C可知28 d常温贮藏对山蜡梅叶黄酮保留率的影响。在28 d常温贮藏期间,未包埋与微胶囊的黄酮保留率均随着贮藏时间的增加而呈现下降的趋势,而微胶囊黄酮保留率始终高于未包埋黄酮。微胶囊化能有效延缓黄酮在常温储存条件下的氧化与分解,从而延长其货架期^[18]。结果表明,山蜡梅叶黄酮微胶囊具有良好的贮藏稳定性。

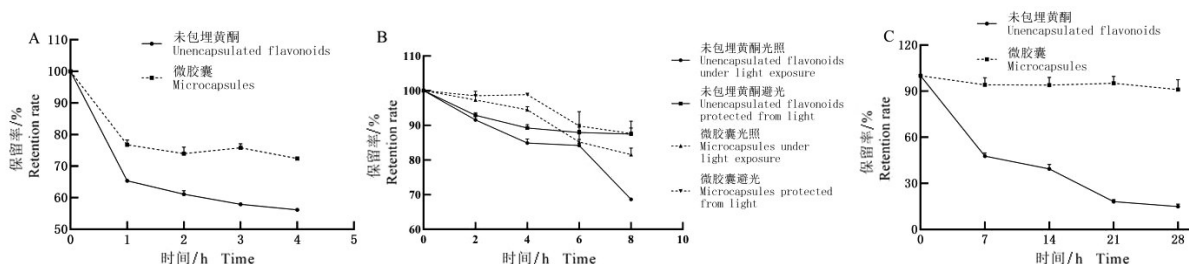


图11 高温(A)、光照(B)和贮藏(C)对山蜡梅叶黄酮和微胶囊的黄酮保留率的影响

Fig.11 Effects of high temperature (A), light exposure (B), and storage (C) on the flavonoid retention rate of flavonoids from *Chimonanthus nitens* Oliv. leaf and their microcapsules

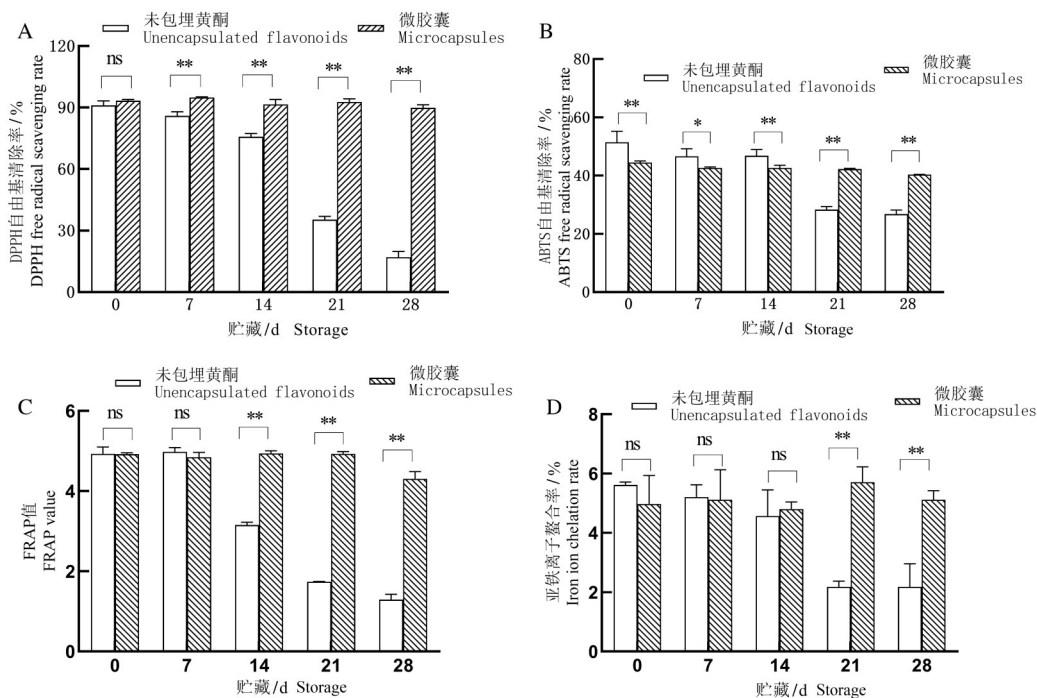
2.4.2 山蜡梅叶黄酮微胶囊抗氧化活性在贮藏过程中的变化

图12通过测定山蜡梅叶黄酮微胶囊化前后的DPPH自由基清除率、ABTS⁺自由基清除率、铁离子还原能力及铁离子螯合率来探究两者在28 d贮藏期间的抗氧化活性变化。未包埋黄酮的DPPH自由基清除率在贮藏0 d时为90%以上,7 d后开始快速衰减,28 d时清除率降至17.0%,较初始值降低70%以上;微胶囊的DPPH自由基清除率在贮藏0 d时为93.3%,28 d的清除率仍能保留在89.8%,且整个贮藏期间其对DPPH自由基的清除作用较稳定,表明山蜡梅叶黄酮微胶囊具有稳定的DPPH自由基清除能力(图12A)。微胶囊壁材形成的物理屏障可有效阻隔外界因素与黄酮的接触,保护黄酮分子中供氢活性基团的结构完整性,从而维持相对未包埋黄酮更稳定的DPPH自由基清除能力^[40]。Li等^[41]研究表明花青素微胶囊的DPPH自由基清除能力较稳定,与本试验结果一致。

由图12B可知山蜡梅叶黄酮微胶囊化前后对ABTS⁺自由基清除作用的变化。未包埋黄酮的ABTS⁺自由基清除率在贮藏0 d时清除率为51.4%,14 d后清除率下降速度加快,28 d时降至26.8%;微胶囊在整个贮藏期间ABTS⁺自由基清除率0 d时为44.5%,28 d时为40.4%,说明其具有稳定的ABTS⁺自由基清除能力。微胶囊壁材的包埋作用减少了黄酮共轭结构的破坏,使其电子转移能力得以持续保留,从而实现对黄酮抗氧化活性的保护效应^[42]。

山蜡梅叶黄酮微胶囊化前后的铁离子还原能力的测定结果如图12C所示。未包埋黄酮铁离子还原能力呈急剧下降趋势,0 d时FRAP值为4.9,28 d后降至1.3;微胶囊在0 d时FRAP值为4.9,28 d末的FRAP值仍维持在4.0以上,保留了初始活性的80%以上,说明山蜡梅叶黄酮微胶囊在贮藏期间保持稳定的铁离子还原能力。未包埋黄酮的酚羟基易被氧化为醌类结构,失去提供电子还原Fe³⁺的能力^[43]。微胶囊的物理隔离作用有效减少了黄酮酚羟基的氧化,使其电子供体功能得以持续发挥,从而维持了稳定的铁离子还原能力^[44]。Oo等^[45]研究发现万寿菊花提取物经微胶囊包埋后,提高了其铁离子还原作用的稳定性,与本研究结果一致。

山蜡梅叶黄酮微胶囊化前后的铁离子螯合能力测定结果如图 12D 所示。未包埋黄酮螯合率随贮藏时间持续降低,0 d 时螯合率 5.6%,28 d 时降至 2.2%,铁离子螯合率下降了 3.4%;微胶囊的铁离子螯合率在 0 d 为 5.0%,28 d 为 5.1%,表明山蜡梅叶黄酮微胶囊在贮藏期间保持稳定的铁离子螯合能力。微胶囊壁材的包埋作用保护了黄酮的螯合活性位点,使其与铁离子的配位结构得以稳定保留,从而维持了良好的亚铁离子螯合能力^[46]。综上结果,山蜡梅叶黄酮微胶囊在贮藏期间表现出稳定的 DPPH 和 ABTS⁺自由基清除能力,铁离子还原能力和亚铁离子螯合能力,表明其具有稳定的抗氧化活性。

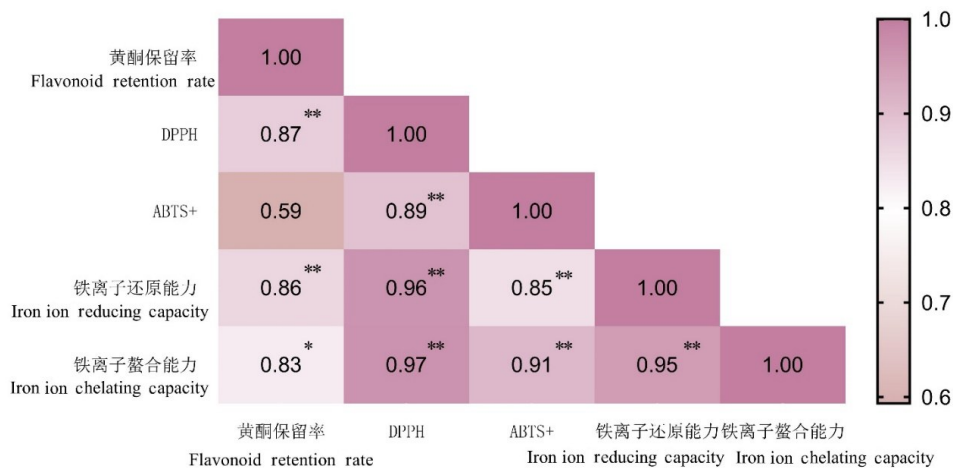


A: DPPH 自由基清除率; B: ABTS 自由基清除率; C: 铁离子还原能力; D: 亚铁离子螯合能力。“ns”表示差异不显著; “*”表示差异显著 ($P < 0.05$); “**”表示差异极显著 ($P < 0.01$)。

A: DPPH free radical scavenging rate; B: ABTS free radical scavenging rate; C: Ferric ion reducing power; D: Ferrous ion chelating capacity. “ns” indicates no significant difference; “*” indicates a significant difference ($P < 0.05$); “**” indicates an extremely significant difference ($P < 0.01$).

图 12 贮藏期间未包埋山蜡梅叶黄酮和山蜡梅叶黄酮微胶囊的抗氧化活性

Fig.12 Changes of antioxidant activities of flavonoids from *Chimonanthus nitens* Oliv. leaf and their microcapsules during storage



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

“*” indicates a significant difference ($P < 0.05$); “**” indicates an extremely significant difference ($P < 0.01$).

图 13 山蜡梅叶黄酮保留率与抗氧化活性 DPPH、ABTS⁺、铁离子还原能力、铁离子螯合能力的 Pearson 相关性分析

Fig.13 Pearson correlation analysis between flavonoid retention rate of *Chimonanthus nitens* Oliv. leaf and antioxidant activities (DPPH, ABTS⁺, Ferric ion reducing power, and Ferric ion chelating capacity)

2.4.3 山蜡梅叶黄酮保留率与抗氧化活性相关性分析

为山蜡梅叶黄酮保留率与抗氧化活性 DPPH 自由基清除率、ABTS⁺自由基清除率、铁离子还原能力、铁离子螯合能力的相关性分析结果如图 13 所示。黄酮保留率与 DPPH 自由基清除率、FRAP 值、铁离子螯合能力的 Pearson 相关系数分别为 0.87、0.86、0.83,呈极显著正相关,说明山蜡梅叶黄酮保留率与其抗氧化能力呈下相关,进一步说明了山蜡梅叶黄酮微胶囊化后在贮藏期间良好的稳定性对其维持稳定的抗氧化活性起着重要的作用。此外,各抗氧化指标之间均表现为极显著正相关性,表明不同抗氧化评价体系间具有良好的一致性。

3 结 论

本研究以山蜡梅叶黄酮为芯材,海藻酸钠为壁材,氯化钙溶液为固定剂制备山蜡梅叶黄酮微胶囊。通过单因素试验与响应面试验优化山蜡梅叶黄酮微胶囊的制备工艺,确定最优制备工艺为 2.0% 海藻酸钠、3.0% 氯化钙溶液、10:1 壁芯比、固定浴温度为 54 ℃,在此条件下包埋率达到 75.0%。山蜡梅叶黄酮微胶囊整体呈现球形,表面虽有褶皱,但无裂痕,无孔洞,致密性好,其平均粒径为 248.9 μm,大小均一,分散性好,保留了海藻酸钠壁材的特征峰和山蜡梅叶黄酮芯材的特征峰,该制备工艺成功实现了山蜡梅叶黄酮的物理包埋。此外,山蜡梅叶黄酮微胶囊在高温、光照和贮藏条件下均表现出较高的黄酮保留率,且在 28 d 常温贮藏期间,可保持良好的 DPPH 自由基、ABTS⁺自由基的清除能力,铁离子还原能力和亚铁离子螯合能力,表明微胶囊化可以改善山蜡梅叶黄酮的稳定性。研究结果可为黄酮类天然活性成分的稳态化技术开发提供数据支撑,也可为山蜡梅叶高值化利用提供理论依据与技术支持。

致谢:江西农业大学食品科学与工程学院于传龙博士对研究给予了帮助,谨致谢意!

参考文献 References:

- [1] 郭娜,田燕元,舒任庚,等.山蜡梅叶酚性成分的研究[J].中成药,2021,43(12):3378-3382.
GUO N, TIAN Y Y, SHU R G, et al. Phenolic constituents from the leaves of *Chimonanthus nitens* [J]. Chinese traditional patent medicine, 2021, 43(12): 3378-3382.
- [2] 吴艳秋,刘宇灵,林龙飞,等.山蜡梅叶化学成分、药理作用及临床应用研究进展[J].中华中医药杂志,2021,36(11): 6599-6607.
WU Y Q, LIU Y L, LIN L F, et al. Research progress on chemical composition, preparation, pharmacological action and clinical application of *Chimonanthus Nitens Folium* [J]. Journal of traditional Chinese medicine, 2021, 36(11): 6599-6607.
- [3] 姚瑶,黄赞兴,舒任庚,等.山蜡梅叶化学成分研究(II)[J].中药材,2019,42(1):100-102.
YAO Y, HUANG Z X, SHU R G, et al. Chemical constituents from the leaves of *Chimonanthus nitens* (II) [J]. Journal of Chinese medicinal materials, 2019, 42(1): 100-102.
- [4] CHEN H, OUYANG K H, JIANG Y, et al. Constituent analysis of the ethanol extracts of *Chimonanthus nitens* Oliv. leaves and their inhibitory effect on α -glucosidase activity [J]. International journal of biological macromolecules, 2017, 98: 829-836.
- [5] 陈慧,盛丹丹,王文君.黄金茶醇提取物成分及抗氧化活性的研究[J].现代食品科技,2017,33(1):26-32.
CHEN H, SHENG D D, WANG W J. Study on the constituents and antioxidant activity of gold tea alcohol extract [J]. Modern food science and technology, 2017, 33(1): 26-32.
- [6] MENG W, ZHAO Z, CHEN L, et al. Total flavonoids from *Chimonanthus nitens* Oliv. leaves ameliorate HFD-induced NAFLD by regulating the gut-liver axis in mice [J]. Foods, 2022, 11(14): 2169.
- [7] MENG W Y, CHEN L L, OUYANG K H, et al. *Chimonanthus nitens* Oliv. leaves flavonoids alleviate hyperuricemia by regulating uric acid metabolism and intestinal homeostasis in mice [J]. Food science and human wellness, 2023, 12(6): 2440-2450.
- [8] SHU R G, WAN Y L, WANG X M. Non-volatile constituents and pharmacology of *Chimonanthus*: a review [J]. Chinese journal of natural medicines, 2019, 17(3): 161-186.
- [9] ZHANG R Y, BELWAL T, LI L, et al. Recent advances in polysaccharides stabilized emulsions for encapsulation and deliv-

- ery of bioactive food ingredients: a review[J]. Carbohydrate polymers, 2020, 242: 116388.
- [10] 徐虹, 王琮琮, 龚凌霄. 莲子红衣黄酮对馒头品质和消化特性的影响[J]. 食品与生物技术学报, 2024, 43(10): 120-129.
- XU H, WANG C C, GONG L X. Effect of lotus seed red-skin flavonoids on quality and digestibility of steamed buns[J]. Journal of food science and biotechnology, 2024, 43(10): 120-129.
- [11] XIE Y Y, SHEN X L, XU F N, et al. Research progress of nano-delivery systems for the active ingredients from traditional Chinese medicine[J]. Phytochemical analysis, 2025, 36(8): 2266-2279.
- [12] 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.
- [13] LI D L, ZHU M J, LIU X M, et al. Insight into the effect of microcapsule technology on the processing stability of mulberry polyphenols[J]. LWT-food science and technology, 2020, 126: 109144.
- [14] YIN C Y, CHENG L, ZHANG X, et al. Nanotechnology improves delivery efficiency and bioavailability of tea polyphenols[J]. Journal of food biochemistry, 2020, 44(9): 1-7.
- [15] CAO H, SAROGLU O, KARADAG A, et al. Available technologies on improving the stability of polyphenols in food processing[J]. Food frontiers, 2021, 2(2): 109-139.
- [16] LI M J, GUO Q Y, LIN Y C, et al. Recent progress in microencapsulation of active peptides-wall material, preparation, and application: a review[J]. Foods, 2023, 12(4): 896.
- [17] 陈书明, 韩四海, 刘欢龙. 杜仲黄酮酵母微胶囊工艺优化及其缓释特性[J]. 食品与生物技术学报, 2025, 44(2): 143-153.
- CHEN S M, HAN S H, LIU H L. Process optimization and sustained release characterization of microcapsules of *Eucommia ulmoides* flavonoids encapsulated in yeast cells[J]. Journal of food science and biotechnology, 2025, 44(2): 143-153.
- [18] 余金橙, 王淑玉, 崔楠, 等. 山楂多酚微胶囊制备及理化性质分析[J]. 食品工业科技, 2023, 44(2): 222-231.
- YU J C, WANG S Y, CUI N, et al. Preparation and physicochemical properties of hawthorn polyphenol microcapsules[J]. Science and technology of food industry, 2023, 44(2): 222-231.
- [19] ROMERO-GONZÁLEZ J, AH-HEN K S, LEMUS-MONDACA R, et al. Total phenolics, anthocyanin profile and antioxidant activity of maqui, *Aristotelia chilensis* (mol.) Stuntz, berries extract in freeze-dried polysaccharides microcapsules[J]. Food chemistry, 2020, 313: 126115.
- [20] 成莹莹. 黑老虎花青素稳态化载体的构建及其性能研究[D]. 长沙: 中南林业科技大学, 2024.
- CHENG Y Y. Study on construction and performance of anthocyanin stable carrier of *Kadsura coccinea* [D]. Changsha: Central South University of Forestry and Technology, 2024.
- [21] 杨芙莲, 刘文彦. 锐孔法制备黄酮类化合物微胶囊及其释放性的研究[J]. 现代食品科技, 2013, 29(2): 297-300.
- YANG F L, LIU W Y. Microencapsulation of flavonoids compounds by piercing method and their release *in vitro* [J]. Modern food science and technology, 2013, 29(2): 297-300.
- [22] 孟翔宇, 赵彦巧, 李钰琨, 等. 玫瑰茄花色苷微胶囊的制备及其稳定性与释放性的评价[J]. 食品工业科技, 2019, 40(14): 174-181.
- MENG X Y, ZHAO Y Q, LI Y K, et al. Preparation of anthocyanin from *Hibiscus sabdariffa* microcapsules and evaluation of stability and release[J]. Science and technology of food industry, 2019, 40(14): 174-181.
- [23] ZHU A M, CHEN J H, LIU Q L, et al. Controlled release of berberine hydrochloride from alginate microspheres embedded within carboxymethyl chitosan hydrogels[J]. Journal of applied polymer science, 2011, 120(4): 2374-2380.
- [24] 刘欣, 郭星尧, 韩亚, 等. 海藻酸钠为囊材锐孔法制备铁叶绿酸钠微囊[J]. 现代食品科技, 2009, 25(9): 1043-1045, 1015.
- LIU X, GUO X Y, HAN Y, et al. Preparation of sodium iron chlorophyllin microcapsules with sodium alginate by piercing method[J]. Modern food science and technology, 2009, 25(9): 1043-1045.
- [25] 盛丹丹, 李楠, 叶振南, 等. 黄金茶中总黄酮超声提取工艺[J]. 食品研究与开发, 2014, 25(12): 1-4.
- SHENG D D, LI N, YE Z N, et al. The extraction technology of total flavonoids from golden tea by ultrasonic method[J]. Food research and development, 2014, 25(12): 1-4.

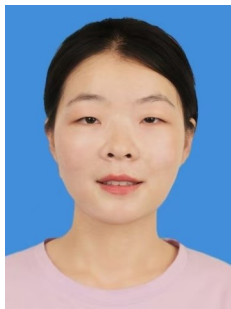
- [26] 张敏, 范丹娜, 王文君, 等. 山蜡梅叶黄酮和多糖同步提取工艺优化及其体外抗氧化活性研究[J]. 江西农业大学学报, 2025, 47(4): 1093-1106.
- ZHANG M, FAN D N, WANG W J, et al. Optimization of synchronous extraction technology of flavonoids and polysaccharides from *Chimonanthus nitens* Oliv. leaves and their *in vitro* antioxidant activity[J]. Acta agriculturae universitatis Jiangxiensis, 2025, 47(4): 1093-1106.
- [27] 张宏源, 张梅, 娄本勇, 等. 枳椇子和余甘子提取物共包埋微胶囊的制备及性能研究[J]. 中国食品学报, 2025, 25(2): 224-237.
- ZHANG H Y, ZHANG M, LOU B Y, et al. Preparation and performance study of co-embedded microcapsules with extracts from *Hovenia dulcis* thunb. and *Phyllanthus emblica* L.[J]. Journal of Chinese institute of food science and technology, 2025, 25(2): 224-237.
- [28] 樊俊玮, 刘延浩, 王洋, 等. 负载茶多酚的双醛淀粉微胶囊制备及理化性质[J]. 卫生研究, 2025, 54(2): 291-300.
- FAN J W, LIU Y H, WANG Y, et al. Preparation and physicochemical properties of double aldehyde starch microcapsules loaded with tea polyphenols[J]. Journal of hygiene research, 2025, 54(2): 291-300.
- [29] 陈丽, 张喻, 谭亦成, 等. 响应面法优化锐孔法制备大米抗氧化肽微胶囊工艺[J]. 食品科学, 2014, 35(22): 97-103.
- CHEN L, ZHANG Y, TAN Y C, et al. Response surface methodology for the optimization of preparation process for rice antioxidant peptide microcapsules by piercing method[J]. Food science, 2014, 35(22): 97-103.
- [30] 谢普军, 黄立新, 张彩虹, 等. 油橄榄叶提取物中橄榄苦苷稳定性及对亚铁离子的螯合作用[J]. 食品工业科技, 2013, 34(4): 133-136.
- XIE P J, HUANG L X, ZHANG C H, et al. Stability of oleuropein in olive leaves extracts and its chelating action to ferrous ions[J]. Science and technology of food industry, 2013, 34(4): 133-136.
- [31] 李昕瑶, 王瑞瑶, 鲁鲲鹏, 等. 阿拉伯树胶/麦芽糊精负载山葡萄皮渣花色苷微胶囊的制备、表征及稳态研究[J/OL]. 食品工业科技, 2025: 1-15[2026-02-03]. <https://doi.org/10.13386/j.issn1002-0306.2025060135>.
- LI X Y, WANG R Y, LU K Y, et al. Characterization and stability evaluation of gum-arabic- and maltodextrin-loaded anthocyanin microcapsules prepared from grape-skin pomace[J/OL]. Science and technology of food industry, 2025: 1-15[2026-02-03]. <https://doi.org/10.13386/j.issn1002-0306.2025060135>.
- [32] 邓少颖, 陈青, 田莉, 等. 葡萄酒皮渣中葡萄籽油提取及微胶囊产品制备[J]. 宁夏农林科技, 2018, 59(12): 100-104.
- DENG S Y, CHEN Q, TIAN L, et al. Extraction and microencapsulation of grape seed oil in grape pomace after wine-making[J]. Journal of Ningxia agriculture and forestry science and technology, 2018, 59(12): 100-104.
- [33] 梅薇, 吴荣书. 锐孔法对玫瑰花花青素微胶囊包埋工艺的优化[J]. 贵州农业科学, 2017, 45(7): 93-97.
- MEI W, WU R S. Optimization of rose anthocyanin microencapsulated technology by piecing method[J]. Guizhou agricultural sciences, 2017, 45(7): 93-97.
- [34] 赵梦媛, 王香玉, 尚盼盼, 等. 过热蒸汽对苦荞粉中黄酮类物质及其抗氧化活性的影响[J]. 食品工业科技, 2025, 46(6): 147-154.
- ZHAO M Y, WANG X Y, SHANG P P, et al. Effects of superheated steam on flavonoids and antioxidant activity in tartary buckwheat flour[J]. Science and technology of food industry, 2025, 46(6): 147-154.
- [35] 俞益芹, 张焕新, 唐劲松. 喷雾干燥法制备蜂胶微胶囊的研究[J]. 食品工业科技, 2010, 31(1): 301-303.
- YU Y Q, ZHANG H X, TANG J S. Study on the processing of propolis extract microencapsulation by spray-drying method[J]. Science and technology of food industry, 2010, 31(1): 301-303.
- [36] GE X, HE J, QI F M, et al. Inclusion complexation of chlorophyll with β -cyclodextrin: preparation, characterization and molecular modeling[J]. Spectrochimica acta part A: molecular and biomolecular spectroscopy, 2011, 81(1): 397-403.
- [37] YAMDECH R, ARAMWIT P, KANOKPANONT S. Stability of anthocyanin from mulberry extracts in alginate microspheres at high temperature[J]. Advanced materials research, 2012, 506: 587-590.
- [38] ZHANG X Y, LI Q L, WU S S, et al. Microcapsule preparation and properties of flavonoid extract from immature *Citrus reticulata* 'Chachiensis' peel[J]. Foods, 2024, 13(19): 3096.
- [39] COUTO J, FIGUEIRINHA A, BATISTA M T, et al. *Fragaria vesca* L. extract: a promising cosmetic ingredient with antioxidant properties[J]. Antioxidants, 2020, 9(2): 154.

- [40] WEI P, ZHANG Y, WANG Y Y, et al. Efficient extraction, excellent activity, and microencapsulation of flavonoids from *Moringa oleifera* leaves extracted by deep eutectic solvent[J]. Biomass conversion and biorefinery, 2023, 13(16): 15095-15109.
- [41] LI Y F, ZHANG H, ZHAO Y, et al. Encapsulation and characterization of proanthocyanidin microcapsules by sodium alginate and carboxymethyl cellulose[J]. Foods, 2024, 13(5): 740-759.
- [42] XIE L P, DENG Z Y, ZHANG J, et al. Comparison of flavonoid O-glycoside, C-glycoside and their aglycones on antioxidant capacity and metabolism during *in vitro* digestion and *in vivo*[J]. Foods, 2022, 11(6): 882-899.
- [43] ZENG Y X, SONG J J, ZHANG M M, et al. Comparison of *in vitro* and *in vivo* antioxidant activities of six flavonoids with similar structures[J]. Antioxidants, 2020, 9(8): 732-746.
- [44] STACH M, KOLNIAK-OSTEK J. The influence of the use of different polysaccharide coatings on the stability of phenolic compounds and antioxidant capacity of chokeberry hydrogel microcapsules obtained by indirect extrusion[J]. Foods, 2023, 12(3): 515-528.
- [45] OO N, SHIEKH K A, JAFARI S, et al. Characterization of marigold flower (*Tagetes erecta*) extracts and microcapsules: ultrasound-assisted extraction and subsequent microencapsulation by spray drying[J]. Foods, 2024, 13(15): 2436.
- [46] MIRA L, TEREZA FERNANDEZ M, SANTOS M, et al. Interactions of flavonoids with iron and copper ions: a mechanism for their antioxidant activity[J]. Free radical research, 2002, 36(11): 1199-1208.

(责任编辑:刘俊峰)



第一作者简介:范丹娜,硕士生,主要从事天然产物与功能食品研究。在研究生期间学业优异,连续3年获得学业奖学金。参与发表《山蜡梅叶黄酮和多糖同步提取工艺优化及其体外抗氧化活性研究》、《Development and Application of a Method to Enhance Lipase Performance and Wastewater Treatment Capacity Using DES》。



通信作者简介:陈慧,讲师,博士。主要从事食源性活性成分的健康效应及分子机制、功能性食品研究,重点关注植物源天然活性成分提取分离纯化及其对代谢性疾病的影响。主持国家级、省部级项目和市厅级项目各1项,参与国家级项目2项,省部级项目2项、市厅级项目2项。以第一作者和通讯作者身份在 International Journal of Biological Macromolecules、Food Science and Human Wellness、Cancers、《食品科学》、《中国食品学报》等国内外学术期刊发表期刊论文15篇,其中SCI论文9篇。