

绿豆淀粉/纤维素纳米晶胶囊壳的制备及表征

陈启杰¹, 赵雅兰¹, 踪张扬¹, 张朋¹, 王凤¹, 谢琼华¹, 王建辉²

(¹长沙理工大学化学化工学院 长沙 410076

²长沙理工大学食品与生物工程学院 长沙 410076)

摘要 以绿豆淀粉(MBS)和纤维素纳米晶(CNC)为原料,辅以甘油和卡拉胶作为增塑剂和胶凝剂,通过流延法和浸渍法分别制备 MBS/CNC 胶囊膜和其对应的胶囊壳,并采用傅里叶变换红外光谱(FT-IR)、X 射线衍射(XRD)、扫描电子显微镜(SEM)对其进行表征。结果表明,CNC 能够有效增强 MBS 基胶囊壳的拉伸强度,当 CNC 用量为 6.0%时,绿豆淀粉基胶囊膜的拉伸强度为 15.61 MPa,提高了 175.2%。MBS/CNC 胶囊壳的透明度随 CNC 用量的增加而略微下降。MBS/CNC 胶囊壳的干燥失重率在 14.14%~14.99%之间,且在蒸馏水和模拟人工胃液中的崩解时限为 14 min 内,均符合《中国药典》(2015)的规定要求。

关键词 绿豆淀粉; 纤维素纳米晶; 胶囊壳; 制备; 表征

文章编号 1009-7848(2022)08-0182-08 **DOI:** 10.16429/j.1009-7848.2022.08.020

硬胶囊作为胶囊剂的药用辅料用于掩盖药物的异味,已成为现代医药和功能食品的重要包装,具有生物利用度高、肠胃崩解快、载药稳定性好和药物定位释放能力强等优点^[1]。目前,我国国内药用和保健食品用空心胶囊产量约为 5 500 亿粒,其中国内市场需求总量约为 5 000 亿粒,表明我国对空心胶囊的需求很大。目前大部分药用和保健食品用空心胶囊的主要成分是明胶、甘油和水。传统制备胶囊所用明胶主要是动物明胶,因其具有黏度高、成膜性好的优点而被用于胶囊壳原材料^[2]。

原材料价格较高以及明胶胶囊的缺点,比如动物源性成分、较低的软性温度和明胶在水中的不稳定性,使得人们尝试寻找动物明胶的替代物。随着“疯牛病”和“毒胶囊”事件的发生,人们对从牛、猪和其它动物的骨头中提取出来的明胶产生某种不安全感。动物源性的明胶胶囊对一些特殊人群也存在一定的限制,例如穆斯林和素食主义者等。由于来源和制备方法的不同,明胶的结构和

组成不同,明胶胶囊的溶出度不能得到很好的控制,容易发生交联反应而影响胶囊的质量^[3]。开发低成本的非明胶共混物,利用传统工艺生产胶囊,克服明胶产品的不足,已成为更多研究者关注的方向。

淀粉是最丰富的天然生物聚合物之一,由葡萄糖聚合而成,一般由直链淀粉和支链淀粉组成。近些年来,由于淀粉具有的低成本、良好的成膜性、可生物降解性、绿色环保、可再生等特点,引起生物基胶囊壳领域的关注。Zhang 等^[4]在淀粉和纤维素上接枝羟丙基基团,改善了羟丙基淀粉(HPS)和羟丙基甲基纤维素(HPMC)的相容性,通过添加聚乙二醇作为增塑剂和增容剂,采用浸渍法制备出 HPMC/HPS 胶囊壳。Oladzadabbasabadi 等^[5]以变性西米淀粉和 κ -卡拉胶为原料制备复合薄膜作为药用胶囊中的明胶替代品,复合薄膜的干燥动力学和力学性能与明胶膜相近,透气性和含水率低于明胶,溶解度高于明胶,且在较高的相对湿度下复合膜的稳定性优于明胶膜。绿豆淀粉(MBS)是由绿豆经水浸涨、磨碎后,沉淀而成的粉末,具有吸水性小、抗菌、抑菌,色洁白且有光泽等特点,其直链淀粉含量达 40.44%~41.82%,是一种良好的成膜原料^[6]。纤维素纳米晶(CNC)是由天然纤维素制备而成,是由一种平均长度 100~400 nm,直径 5~10 nm 的高晶棒状颗粒组成,具有许多独特的性能,如高强度、高纵横比、高比表面积、

收稿日期: 2021-08-12

基金项目: 科技部基础资源研究项目(2019FY100900);湖南省自然科学基金项目(2020JJ4095);湖南省企业科技创新创业团队项目(201918);湖南省高新技术产业科技创新引领计划项目(2021GK4040)

作者简介: 陈启杰(1980—),男,博士,教授

E-mail: chenqjie@126.com

低密度等。

本文以绿豆淀粉为原料,以纤维素纳米晶为增强剂,辅以甘油和卡拉胶作为增塑剂和胶凝剂,通过流延法和浸渍法分别制备 MBS/CNC 胶囊膜和对应的胶囊壳,研究胶囊的相关性能,并采用傅里叶变换红外光谱 (FT-IR)、X 射线衍射 (XRD)、扫描电子显微镜 (SEM) 等对其进行表征,为淀粉基胶囊壳的制备提供新的思路。

1 材料与方法

1.1 原料

绿豆淀粉,新乡良润谷物食品有限公司;纤维素纳米晶,天津市木精灵生物科技有限公司提供;甘油、吐温-80、HCl、KBr,国药集团化学试剂有限公司; κ -卡拉胶,购自山东优索化工科技有限公司;胃蛋白酶,上海展云化工有限公司。

1.2 设备与仪器

HH-2 数显恒温水浴锅,天津市塞得利斯实验分析仪器制造厂;JJ-6 数显直流恒速搅拌器,金坛市医疗仪器厂;GZX-9076 MBE 数显鼓风干燥箱,上海博迅实业有限公司医疗设备厂;DZF-6050 真空干燥箱,上海新苗医疗器械制造有限公司;UP-400S 超声波细胞粉碎机,宁波新芝生物科技股份有限公司;DV-II +Pro Brookfield 数字粘度计,美国 Brookfield 公司;5202 电子数显千分尺,上海思为仪器制造有限公司;KT-300 切割仪,杭州轻通博科自动化技术有限公司;WZL-300B 卧式电脑拉力仪,杭州轻通博科自动化技术有限公司;TU-1080 紫外-可见分光光度计,北京普析通用仪器有限责任公司;LB-2D 崩解时限测定仪,上

海黄海药检仪器有限公司。

1.3 试验方法

1.3.1 绿豆淀粉/纤维素纳米晶 (MBS/CNC) 凝胶溶液的制备 称取 5 g 的绿豆淀粉于锥形瓶中,加入 100 g 蒸馏水和不同用量 (0%, 2%, 4%, 6%, 8%, 基于 MBS 质量) 的 CNC 摇匀,同时滴加 30% (基于 MBS 质量) 的甘油于悬浮液中,在 90 °C 水浴锅中先高速 (560 r/min) 搅拌 30 min, 后低速 (260 r/min) 搅拌 30 min, 直至获得均一、半透明状的 MBS/CNC 凝胶溶液。

1.3.2 绿豆淀粉/纤维素纳米晶 (MBS/CNC) 胶囊膜的制备 将 MBS/CNC 凝胶溶液室温静置冷却至 55 °C, 然后将凝胶溶液通过流延法倒在直径为 150 mm 的聚丙烯 (PP) 培养皿上。将流延好的胶囊膜转入 45 °C 的真空干燥箱中干燥 18 h, 得到了不同用量 CNC 的 MBS/CNC 胶囊膜。制备的复合膜平均厚度为 0.18 mm 左右。其中, MBS/CNC-0、MBS/CNC-2、MBS/CNC-4、MBS/CNC-6 和 MBS/CNC-8 分别代表着 CNC 含量为 0%, 2%, 4%, 6% 和 8% 时的 MBS/CNC 胶囊膜。

1.3.3 绿豆淀粉/纤维素纳米晶 (MBS/CNC) 胶囊壳的制备 MBS/CNC 凝胶溶液中添加卡拉胶 (1.5 g/100 g) 作为凝胶剂, 继续在 90 °C 温度下以 800 r/min 的转速搅拌 2 h, 将其在 60 °C 下养胶 30 min, 即可得到成壳凝胶溶液。利用浸渍法将不锈钢模具浸入凝胶溶液中 8 s, 然后在 60 °C 的烘箱中烘干可获得 MBS/CNC 胶囊壳, 干燥时间为 30 min 左右, 最后进行脱壳裁剪即可得到 MBS/CNC 胶囊壳 (图 1), 保存备用。

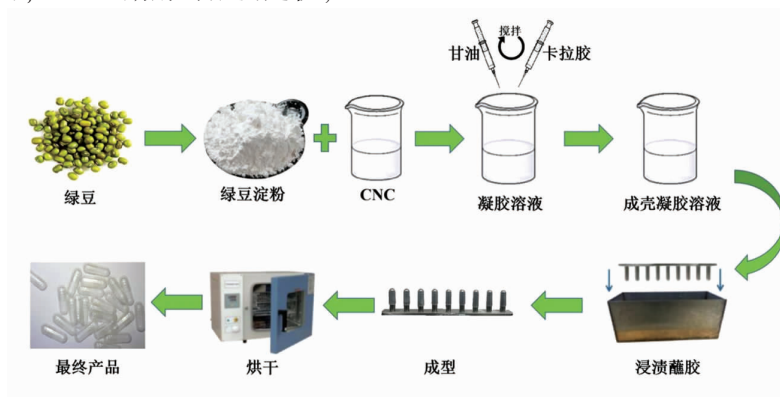


图 1 MBS/CNC 胶囊壳的制备流程图

Fig.1 The preparation process of MBS/CNC capsule

1.3.4 MBS/CNC 成膜/成壳凝胶溶液黏度测量

采用 Brookfield 数字粘度计对凝胶溶液进行黏度测量。将转子浸入到凝胶溶液中并开始转动,使凝胶溶液和转子达到热平衡后读取记录数据。由于绿豆淀粉的黏度特性,对于成膜凝胶溶液的黏度测量,从 90 °C 开始每下降 5 °C 记录一个黏度值,直至下降到 55 °C 为止。对于成壳凝胶溶液,测定从 90 °C 到 60 °C,每下降 5 °C 的对应黏度值。

1.3.5 拉伸强度 将 CNS/CNC 胶囊膜裁剪成 15 mm×100 mm 的长条,放入干燥器中平衡水分 24 h。然后在卧式电脑拉力仪上按照 ASTM 标准方法对其进行拉伸强度(TS)的测定。平行测试 5 次,取其平均值。

$$TS(\text{MPa}) = \frac{F}{A} \quad (1)$$

式中,TS——拉伸强度,MPa; F ——抗拉力,N; A ——横截面积, m^2 。

1.3.6 透明度 将 MBS/CNC 胶囊膜裁剪成长方形紧贴在比色皿一侧,以蒸馏水为对照组,采用紫外-可见分光光度计在波长 650 nm 处测试膜的透光率。平行测试 3 次,取其平均值。

$$T(\%) = 10^{-A} \times 100 \quad (2)$$

式中, T ——透光率,%; A ——吸光度。

1.3.7 干燥失重(LD) 根据《中国药典》(2015)方法研究了 MBS/CNC 胶囊壳的干燥失重损失。称取约 1.0 g(精确至 0.1 mg)的胶囊壳置于干燥的恒重瓶中,然后将其放在 105 °C 的干燥箱中干燥 6 h。干燥后,将胶囊壳在干燥器中冷却至室温,并准确称量。

$$LD(\%) = \frac{W_{\text{undried}} - W_{\text{dried}}}{W_{\text{undried}}} \times 100 \quad (3)$$

式中, W_{undried} ——干燥前总质量,g; W_{dried} ——干燥后总质量,g。

1.3.8 崩解时限 通过崩解时限测定仪按照《中国药典》(2015)方法,在去离子水或者模拟人工胃液中测定 MBS/CNC 胶囊壳的崩解时间。

1.3.9 FTIR 分析 采用真空光谱仪来测定 MBS/CNC 胶囊壳的红外光谱。在钨灯的照射下,将干燥的样品和 KBr(约 1:100,质量比)混合研磨成粉末,并通过压片机压成透明薄片。光谱范围为 4 000~400 cm^{-1} ,分辨率为 2 cm^{-1} 。

1.3.10 XRD 分析 采用 X-射线衍射仪测记录 MBS/CNC 胶囊的 X-射线衍射图谱。其中,X-射线源为 Cu-K α 线,2 θ 扫描范围为 5°~90°,扫描速度为 3°/min。利用 MDI Jade 和 Origin 软件对 XRD 曲线进行处理。结晶度参考公式(4)进行计算:

$$CI(\%) = \frac{I_{002} - I_{AM}}{I_{002}} \times 100 \quad (4)$$

式中,CI——结晶指数,%; I_{002} ——002 结晶衍射峰的强度,a.u.; I_{AM} ——无定形衍射峰的强度,a.u.。

1.3.11 SEM 分析 采用场发射扫描电子显微镜对 MBS/CNC 胶囊的形貌进行了分析。将 1 cm×1 cm 的样品置于 LEICA EM SCD 500 中进行镀金,并在加速电压为 10.0 kV 时在扫描电镜中进行观察。

2 结果与分析

2.1 MBS/CNC 成膜/成壳凝胶溶液的黏度分析

凝胶溶液的黏度对成膜/成壳过程有直接的影响。对于成膜操作,黏度过高,在流延法的过程中薄膜厚度不易均匀,难于成型。对于成壳操作,黏度过低,则成壳过程中凝胶溶液不易挂在模具上,难以成壳;黏度过高,浸渍法的过程中凝胶溶液在模具上蘸胶不均匀,成壳均匀性差。图 2 为不同温度下 MBS/CNC 成膜/成壳凝胶溶液黏度的变化曲线。由图 2a 可知,随着 CNC 用量的增加,成膜凝胶溶液黏度有所增加,溶液的黏度都随温度的降低逐渐增大,当 CNC 用量大于 4%,CNC 用量的增加对 MBS/CNC 成膜凝胶溶液黏度的影响不大,且在 65~90 °C,溶液黏度随温度影响很小,溶液黏度较稳定。

由于成膜溶液的黏度较低,不能满足浸渍法蘸胶工艺,需在成膜溶液中加入一定量的卡拉胶凝胶,提高绿豆淀粉基溶液黏度。从图 2b 可以看出,卡拉胶的加入,显著提高了 MBS/CNC 溶液的黏度,随着 CNC 用量的增加,MBS/CNC 成壳凝胶溶液的黏度逐渐增加,在 90 °C,CNC 用量 8% 时,成壳凝胶溶液黏度从 1.21 Pa·s 提高到 3.12 Pa·s,提高了 157.9%,经大量的蘸胶试验操作,选定了成壳凝胶溶液 65 °C 下养胶 0.5 h 然后通过浸渍法制备胶囊壳,此时成壳凝胶溶液的黏度范围为 1.95~3.85 Pa·s。

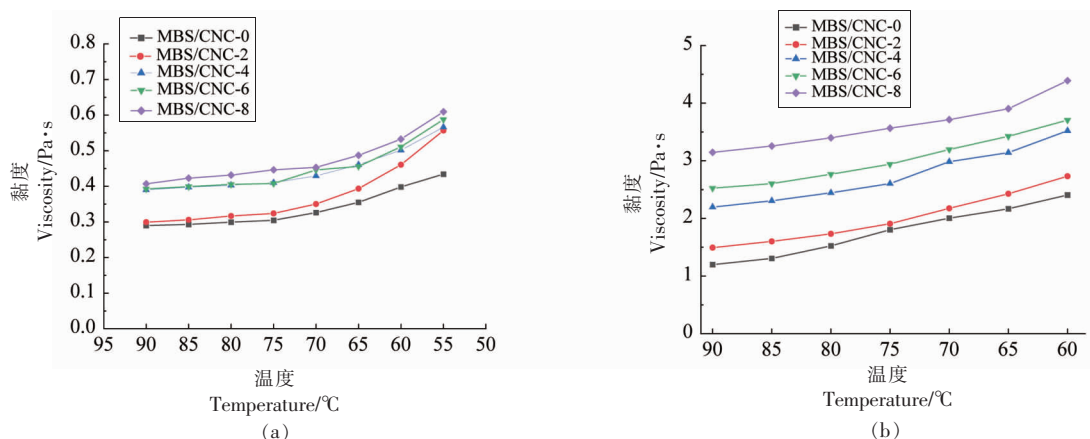


图 2 不同温度下成膜凝胶溶液 (a) 和成壳凝胶溶液 (b) 黏度的变化曲线

Fig.2 The viscosity variation curves of film-forming gel solutions (a) and capsule-forming gel solutions (b) at different temperature

2.2 拉伸强度

纤维素纳米晶由于其独特的纳米特性,在作为复合材料增强剂时表现出优异的性能。胶囊膜的拉伸强度在一定程度上也反映对应胶囊壳的力学性能。图 3 为不同 CNC 用量对绿豆淀粉基胶囊膜拉伸强度的影响,由图可以看出,CNC 可以明显改善 MBS/CNC 胶囊膜的拉伸强度,随着 CNC 用量的增大,MBS/CNC 胶囊膜的拉伸强度呈现先升高后降低的趋势。与未添加 CNC 的胶囊膜相比,添加了 CNC 的胶囊膜的拉伸强度都提高了。这是因为 CNC 表面富含羟基,为刚性分子链,表面自由能大,与绿豆淀粉有着较强的表面结合力,相互结合形成氢键,使 MBS/CNC 胶囊膜的拉伸强度得到提高,这与 Fazeli 等^[7]的研究结果一致。当 CNC

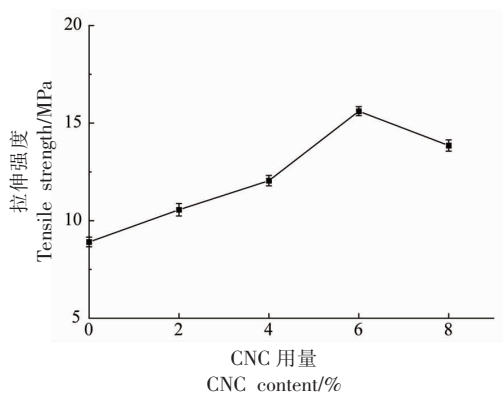


图 3 CNC 用量对 MBS/CNC 胶囊膜拉伸强度的影响
Fig.3 Effects of CNC content on the tensile strength of MBS/CNC capsule-film

用量为 6.0%,MBS/CNC 胶囊膜的拉伸强度达到最大值,为 15.61 MPa,增加了 175.2%。当 CNC 用量为 8.0%时,胶囊膜的拉伸强度有所下降,这可能是由于 CNC 用量的增加,产生了自聚集的现象,从而使 MBS/CNC 胶囊膜拉伸强度下降。

2.3 透明度

透明度是胶囊壳的一个重要的光学特性,一般常用透光率来表示,透明度一定程度上也反映制备胶囊壳原料间的相容性。如果原料之间相容性好,则胶囊壳表现出高透光率,反之则表现出低透光率。胶囊壳的透明度也决定了装载药物的种类,有些特殊药物要求胶囊壳具有一定的透明度。图 4 为不同用量 CNC 对 MBS/CNC 胶囊膜透明度的影响,由图可以看出,当不添加 CNC 时,MBS/

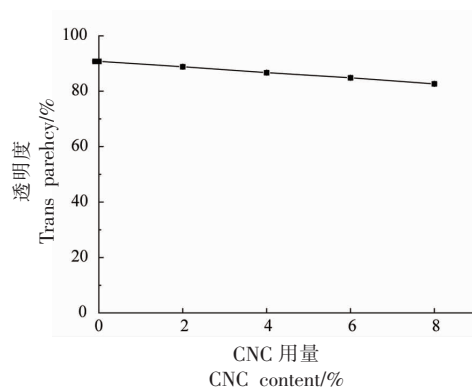


图 4 CNC 用量对 MBS/CNC 胶囊膜透明度的影响
Fig.4 Effects of CNC content on the transparency of MBS/CNC capsule-film

CNC-0 胶囊膜的透光率为 90.78%，随着 CNC 用量的增加，MBS/CNC 胶囊膜的透光率在一定程度上略微下降。当 CNC 用量为 6.0%，MBS/CNC-6 胶囊膜的透光率为 83.5%，这可能是由于 CNC 纳米颗粒的光散射性而影响了胶囊膜的透光率。MBS/CNC 胶囊膜的透光率均高于 80%，表明 MBS 和

CNC 具有很好的相容性。

从图 5 和图 6 可以看出，MBS/CNC 具有很好的成膜性和成壳性，MBS/CNC 胶囊膜和胶囊壳均为无色透明且有光泽，说明 MBS 与 CNC 相容性好，为绿豆淀粉制备高质量淀粉基胶囊壳提供了依据。

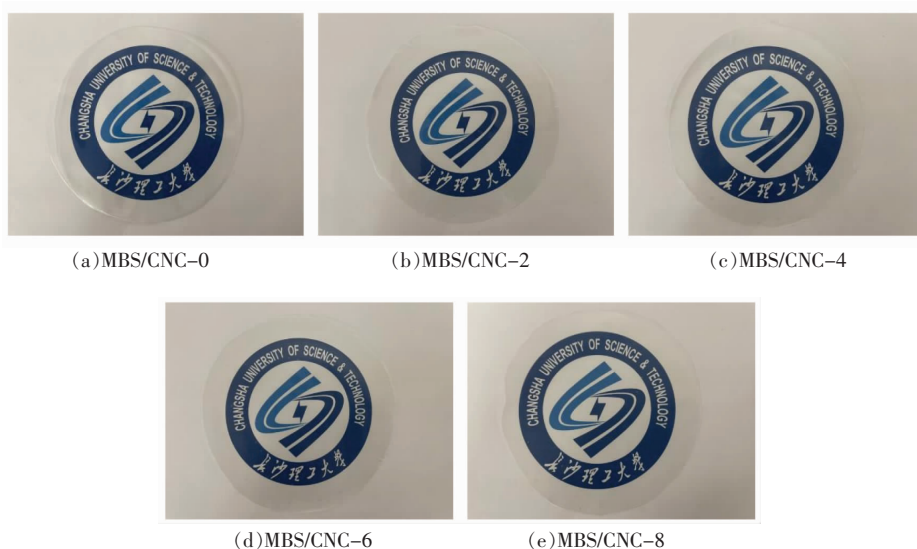


图 5 不同 CNC 用量的 MBS/CNC 胶囊膜照片

Fig.5 The photos of the MBS/CNC capsule-film with different CNC content

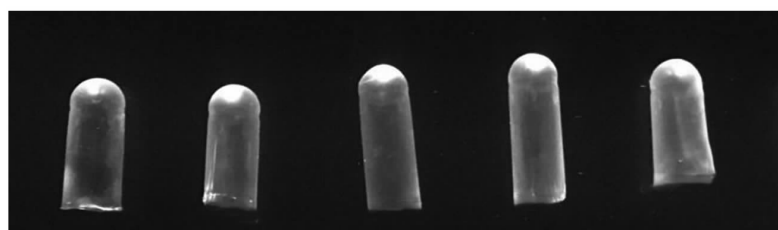


图 6 不同 CNC 用量的 MBS/CNC 胶囊壳照片

Fig.6 The photos of the MBS/CNC capsules with different CNC content

2.4 干燥失重

胶囊壳的干燥失重是衡量胶囊壳质量的一个重要因素，与胶囊壳的性能、使用、保存等有着密切的关系，干燥失重太低会导致胶囊壳易脆碎开裂，干燥失重太高则影响胶囊壳的使用，降低保质期限。参考中国药典 2015 版的规定，胶囊壳的干燥失重率范围应为 12.5%~17.5%。表 1 为 MBS/CNC 胶囊壳的干燥失重，由表可以看出，不同用量 CNC 的 MBS/CNC 胶囊壳的干燥失重相差不大，均处于 14.14%~14.99%之间，符合中国药典

2015 版的规定，表明绿豆淀粉和 CNC 凝胶溶液在优化的工艺下，能制备出干燥失重满足要求的淀粉基胶囊壳。

2.5 崩解时限

胶囊壳的崩解时限是其在食用过程中的一个重要参数，它直接影响胶囊壳内药物载体释放的时机，且在药物载体作用完后，胶囊壳的完全可降解也很重要，这会直接影响到人体的健康状况。MBS/CNC 胶囊壳因其原料为绿豆淀粉和纤维素，是一种绿色生物可降解的胶囊壳。表 2 为 MBS/

CNC 胶囊壳在蒸馏水和模拟人工胃液中的崩解时限,由表可以看出,相比于在蒸馏水中崩解,胶囊壳在模拟人工胃液中的崩解时限更快一些,且在 14 min 之内可以完全溶解。随着 CNC 用量的增加,与之对应的胶囊壳的崩解时限会有一些的延长,这是由于 CNC 表面自由能高易聚集,使得相互缠绕增加了阻碍崩解的动力,随着 CNC 用量的增加,阻碍崩解的阻力随之增加,导致崩解时限的增加。中国药典 2015 版规定了胶囊壳的崩解时限最大为 30 min,表中数据表明 MBS/CNC 胶囊壳的崩解时限均满足药典要求,可用作胃溶性胶囊。

2.6 FTIR 分析

图 7 为不同用量 CNC 的 MBS/CNC 胶囊壳的红外图谱,从图可以看出,MBS/CNC 胶囊壳试样在 3410 cm^{-1} 附近均有一个极强且宽的吸收峰,这主要是葡萄糖单元中 O-H 键的伸缩振动峰;在 2940 cm^{-1} 附近出现了一个中等强度的吸收峰,主要是葡萄糖环上 -CH 基团的对称振动峰;在 1650 cm^{-1} 附近出现的吸收峰为淀粉中吸附水的无定形区域的伸缩振动峰^[8]。当添加 CNC 后,MBS/CNC 胶囊壳在 $1380, 1080\text{ cm}^{-1}$ 和 1030 cm^{-1} 附近出现吸收峰,分别对应纤维素纳米晶的 -CH₂ 剪切振动峰、纤维素纳米晶吡喃环上 O-C 和 C-O-C 的伸缩振动峰。 882 cm^{-1} 处为纤维素纳米晶 β -1,4-苷糖中的 C-H 特征吸收峰^[9]。此外, 2910 cm^{-1} 处是甘油的特征吸收峰,甘油的羟基与绿豆淀粉的羟基通过氢键链接,可以提高淀粉分子链的流动性,一定程度上改善了淀粉胶囊膜和胶囊壳的柔韧

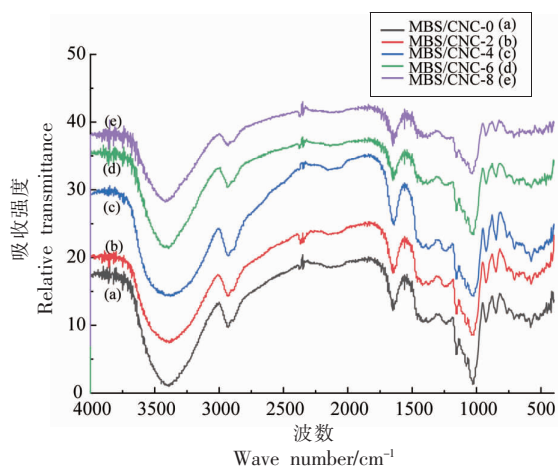


图 7 MBS/CNC 胶囊壳的 FTIR 图

Fig.7 FTIR spectra of the MBS/CNC capsules

表 1 MBS/CNC 胶囊壳的干燥失重

Table 1 The loss on drying of the MBS/CNC capsules

MBS/CNC 胶囊壳	干燥失重/%
MBS/CNC-0	14.98 ± 0.08
MBS/CNC-2	14.72 ± 0.06
MBS/CNC-4	14.99 ± 0.09
MBS/CNC-6	14.79 ± 0.05
MBS/CNC-8	14.14 ± 0.08

表 2 MBS/CNC 胶囊壳的崩解时限

Table 2 The disintegration time of the MBS/CNC capsules

MBS/CNC 胶囊壳	完全崩解时间	
	在蒸馏水中	在模拟人工胃液中
MBS/CNC-0	8'32"	7'14"
MBS/CNC-2	8'51"	7'48"
MBS/CNC-4	9'26"	8'02"
MBS/CNC-6	11'12"	8'20"
MBS/CNC-8	13'21"	12'51"

性。FTIR 表明绿豆淀粉与 CNC 之间没有发生化学反应生成新的化学物质,而是以共混溶液的形式结合,仍保留各自的特征吸收峰。

2.7 XRD 分析

不同 CNC 用量的 MBS/CNC 胶囊壳的 XRD 衍射图谱如图 8 所示,由图可以看出,MBS/CNC 胶囊壳的 XRD 在 $2\theta=20^\circ$ 左右都出现了一个宽的衍射峰,这是绿豆淀粉的无定形区^[10],相对于 MBS/CNC-0 的衍射图谱,添加 CNC 的 MBS/CNC

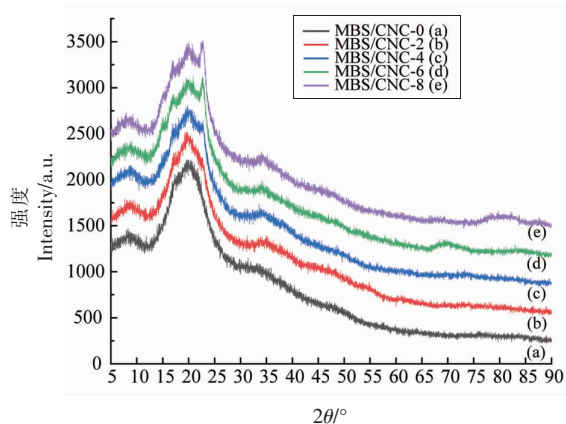


图 8 MBS/CNC 胶囊壳的 XRD 图

Fig.8 X-ray diffraction patterns of the MBS/CNC capsules

胶囊壳在 $2\theta=23^\circ$ 附近出现了一个明显的尖锐衍射峰,且随着 CNC 用量的增加愈加尖锐,这是纤维素纳米晶的 X-射线特征衍射峰,且在 $2\theta=34^\circ$ 附近出现了一个较弱衍射峰,这是天然纤维素典型的 I 型结构^[11]。从表 3 的结晶指数来看,MBS/CNC-0 胶囊壳的结晶指数为 32.10%,随着 CNC 用量的增加,对应胶囊壳的结晶指数随之增加。当 CNC 用量为 6%时,MBS/CNC-6 胶囊壳的结晶指数为 43.30%,提高了 34.9%,表明 CNC 的加入提高了 MBS/CNC 胶囊壳共混体系的结晶度。

2.8 SEM 分析

不同用量 CNC 的 MBS/CNC 胶囊壳的 SEM 如图 9 所示,由图可以看出,未添加 CNC 的胶囊壳(图 9a)表面光滑无杂质、比较平整,添加 CNC 之后的胶囊壳(图 9b~e)整体上表面较为平整,结构紧凑,表明 MBS 和 CNC 都是连续相且相容性

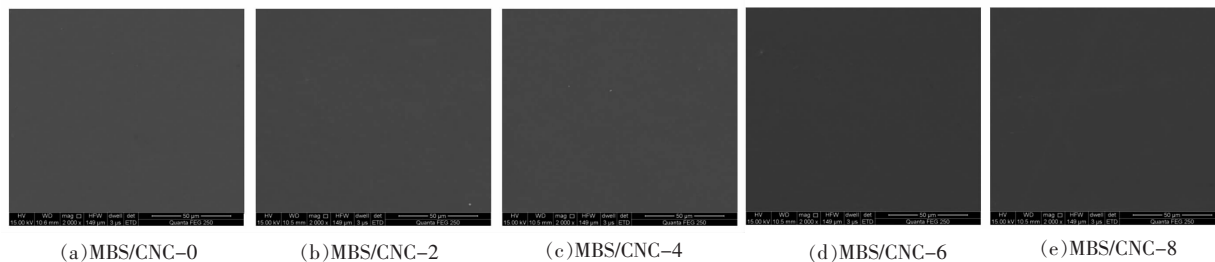


图 9 MBS/CNC 胶囊壳的 SEM 图

Fig.9 SEM of the MBS/CNC capsules

3 结论

以绿豆淀粉和纤维素纳米晶为原料,辅以甘油和卡拉胶分别作为增塑剂和胶凝剂,采用浸渍法制备了新型 MBS/CNC 淀粉基胶囊壳。温度和 CNC 用量均对 MBS/CNC 成膜/成壳凝胶溶液黏度有一定的影响。CNC 作为增强剂有效提高了绿豆淀粉基胶囊膜的拉伸强度,当 CNC 用量为 6.0%时,绿豆淀粉基胶囊膜的拉伸强度为 15.61 MPa,增加了 175.2%。绿豆淀粉与 CNC 之间没有发生化学反应生成新的化学物质,而是以共混溶液的形式结合,仍保留各自的特征吸收峰。MBS/CNC 胶囊壳成膜平整光滑,相容性好,CNC 的加入提高了 MBS/CNC 胶囊壳共混体系的结晶度。MBS/CNC 胶囊壳的干燥失重率处于 14.14%~14.99%之间,且在蒸馏水和模拟人工胃液中的崩解时限为 14

表 3 不同 CNC 用量的 MBS/CNC 胶囊壳的结晶指数

Table 3 The crystallinity index of the MBS/CNC capsules with different CNC content

MBS/CNC 胶囊	结晶指数 CI/%
MBS/CNC-0	32.10
MBS/CNC-2	32.82
MBS/CNC-4	33.75
MBS/CNC-6	43.30
MBS/CNC-8	45.33

比较好。然而,当 CNC 含量过高时表面会出现少量小颗粒,这可能是由于随着 CNC 用量的增加,部分 CNC 很容易在 MBS 的表面与其形成氢键,相互吸引引发自聚集的现象^[12]。结合前面的研究结果,综合 CNC 不同用量的 SEM 图,MBS/CNC-6 胶囊壳具有较好的性能,是一种较好的绿豆淀粉基胶囊壳。

min 以内,均符合《中国药典》(2015)的规定要求。绿豆淀粉和纤维素纳米晶为原料制备淀粉基胶囊壳具有广阔的应用前景。

参 考 文 献

- [1] BUILDERS P F, ARHEWOH M I. Pharmaceutical applications of native starch in conventional drug delivery[J]. Starch-Starke, 2016, 68(9): 864-873.
- [2] 刘李梅, 韩丽, 杨明, 等. 植物空心胶囊的研究进展[J]. 中药与临床, 2014, 5(5): 60-63.
LIU L M, HAN L, YANG M, et al. The research process of plant hollow capsules[J]. Pharmacy and Clinics of Chinese Materia Medica, 2014, 5(5): 60-63.
- [3] 喻淑丹, 陈梅新. 明胶硬胶囊的交联反应和溶出[J].

- 齐鲁药事, 2005, 24(7): 430-431.
- YU S D, CHEN M X. The cross-linking reaction and elution of gelatin hard capsules[J]. Qilu Pharmaceutical Affairs, 2005, 24(7): 430-431.
- [4] ZHANG L, WANG Y F, LIU H S, et al. Developing hydroxypropyl methylcellulose/hydroxypropyl starch blends for use as capsule materials[J]. Carbohydrate Polymers, 2013, 98(1): 73-79.
- [5] OLADZADABBASABADI N, EBADI S, NAFCHI A M, et al. Functional properties of dually modified sago starch/ κ -carrageenan films: An alternative to gelatin in pharmaceutical capsules[J]. Carbohydrate Polymers, 2017, 160(12): 43-51.
- [6] LI W H, GUO H M, WANG P, et al. Physicochemical characteristics of high pressure gelatinized mung bean starch during recrystallization[J]. Carbohydrate Polymers, 2015, 131(5): 432-438.
- [7] FAZELI M, KELEY M, BIAZA E. Preparation and characterization of starch-based composite films reinforced by cellulose nanofibers[J]. International Journal of Biological Macromolecules, 2018, 116(4): 272-280.
- [8] HASAN M, GOPAKUMAR D A, OLAIYA N G, et al. Evaluation of the thermomechanical properties and biodegradation of brown rice starch-based chitosan biodegradable composite films [J]. International Journal of Biological Macromolecules, 2020, 156(4): 896-905.
- [9] MIAO X R, LI J Y, TIAN F, et al. Cellulose nanofibrils extracted from the byproduct of cotton plant[J]. Carbohydrate Polymers, 2016, 136(9): 841-850.
- [10] 满建民, 蔡金文, 徐斌, 等. 作物淀粉晶体结构的波谱分析[J]. 作物学报, 2012, 38(4): 691-698.
- MAN J M, CAI J W, XU B, et al. Spectrum analysis of crystalline structure of crop starches[J]. Acta Agronomica Sinica, 2012, 38(4): 691-698.
- [11] CHEN Q J, ZHOU L L, ZOU J Q, et al. The preparation and characterization of nanocomposite film reinforced by modified cellulose nanocrystals[J]. International Journal of Biological Macromolecules, 2019, 132(4): 1155-1162.
- [12] MARQUES G S, CARVALHO G R, MARINHO N P, et al. Production and characterization of starch-based films reinforced by ramie nanofibers (*Boehmeria nivea*) [J]. Journal of Applied Polymer Science, 2019, 136(36): 47919.

Preparation and Characterization of Mung Bean Starch / Cellulose Nanocrystals Capsules

Chen Qijie¹, Zhao Yalan¹, Zong Zhangyang¹, Zhang Peng¹, Wang Feng¹, Xie Qionghua¹, Wang Jianhui²
(¹School of Chemistry and Chemical Engineering, Changsha University of Science and Technology, Changsha 410076
²School of Food Science and Bioengineering, Changsha University of Science and Technology, Changsha 410076)

Abstract The starch based capsules were prepared with mung bean starch (MBS) and cellulose nanocrystals (CNC), the glycerol and carrageenan were used as plasticizer and gelling agents. The MBS/CNC capsule-film was prepared by casting method, and the dipping method was used in preparation of the corresponding capsules. The MBS/CNC capsules were analyzed by FTIR, XRD, and SEM. The results showed that CNC could significantly improve the tensile strength of the MBS based capsule. When the content of CNC was 6.0%, the tensile strength of the capsule-film was 15.61 MPa and increased by 175.2%. The transparency of the capsule with different CNC contents was slightly reduced. The loss on drying of the MBS/CNC capsules were between 14.14% and 14.99%, and the disintegration time in distilled water and simulated artificial gastric juice were less than 14 min, which all met the requirements of Chinese Pharmacopoeia (2015).

Keywords mung bean starch; cellulose nanocrystals; capsules; preparation; characterization