

多层生物基薄膜在食品包装领域的应用研究进展

张婷^{1,2}, 王晓芸^{1,2}, 汪兰², 石柳², 吴文锦², 陈胜², 陈朗², 熊光权², 郭晓嘉^{2*}, 孙卫青^{1*}

(1. 长江大学生命科学学院, 湖北荆州 434025) (2. 农业农村部农产品冷链物流技术重点实验室, 湖北省农业科学院农产品加工与核农技术研究所, 湖北省农业科技创新中心农产品加工研究分中心, 湖北武汉 430064)

摘要: 食品包装在保持食品质量和延长货架寿命方面起着关键作用。然而, 传统的塑料包装存在环境污染和可持续性问

题, 因此, 寻找可持续、环保的替代材料已成为当前研究的热点。与单层生物基膜相比, 多层生物基薄膜表现出更好的机械性能、阻隔性等, 由于多层包装材料在各层之间有更为复杂的内部结构和更大的层间空间使其更合适活性物质的引入, 因此近年来引起了广泛的关注和研究。该文综述了多层生物基薄膜的构建方法及其在包装食品领域中的应用。讨论了生物基包装材料的分类, 对多层生物基薄膜的制备方法包括层层自组装技术 (LbL)、电流体力学方法、共挤压方法和溶剂浇铸法的制备过程及其优缺点进行介绍, 通过近年来对多层生物基包装在食品领域的研究进展进行综合分析和总结, 提出了生物基多层薄膜未来的研究方向和发展趋势。

关键词: 生物基材料; 多层膜; 食品包装; 活性物质

文章编号: 1673-9078(2025)03-426-434

DOI: 10.13982/j.mfst.1673-9078.2025.3.0009

Research Progress on the Application of Multilayer Biomass-based Films in the Field of Food Packaging

ZHANG Ting^{1,2}, WANG Xiaoyun^{1,2}, WANG Lan², SHI Liu², WU Wenjin², CHEN Sheng², CHEN Lang², XIONG Guangquan², GUO Xiaojia^{2*}, SUN Weiqing^{1*}

(1.College of Life Sciences, Yangtze University, Jingzhou 434025,China)(2.Key Laboratory of Cold Chain Logistics Technology for Agro-product, Ministry of Agriculture and Rural Affairs, Institute of Agro-product Processing and Nuclear Agricultural Technology, Hubei Academy of Agricultural Sciences, Agro-product Processing Research Sub-center of Hubei Innovation Center of Agriculture Science and Technology, Wuhan 430064, China)

Abstract: Food packaging plays a key role in maintaining food quality and extending shelf life. However, the traditional plastic packaging has environmental pollution and sustainability problems, so seeking sustainable and environmentally friendly alternative materials has become a hot spot of current research. Compared with single-layer bio-based films, multi-layer bio-based films show better mechanical properties, barrier properties, etc. Since the multi-layer packaging materials have a more complex internal structure and larger interlayer spaces between the layers (which makes them more suitable for the introduction of active substances), these materials have attracted extensive attention and research in recent years. In this paper, the construction methods of multilayer bio-

引文格式:

张婷,王晓芸,汪兰,等.多层生物基薄膜在食品包装领域的应用研究进展[J].现代食品科技,2025,41(3):426-434.

ZHANG Ting, WANG Xiaoyun, WANG Lan, et al. Research progress on the application of multilayer biomass-based films in the field of food packaging [J]. Modern Food Science and Technology, 2025, 41(3): 426-434.

收稿日期: 2024-01-02

基金项目: 湖北省博士后创新实践: 国家现代农业产业技术体系建设专项 (CARS-46)

作者简介: 张婷 (1999-), 女, 硕士研究生, 研究方向: 水产品保鲜, E-mail: 1427707504@qq.com

通讯作者: 郭晓嘉 (1994-), 女, 博士, 研究方向: 水产保鲜材料, E-mail: guoxiaojia1994@hotmail.com; 共同通讯作者: 孙卫青 (1971-), 女, 博士, 教授, 研究方向: 肉品加工与质量控制发酵, E-mail: sunweiqing@163.yangtzeu.edu.cn

based films and their applications in the field of packaged foods are reviewed. The classification of biobased packaging materials is discussed, and the preparation methods of multi-layer biobased films, including layer self-assembly technology (LbL), electrodynamic method, co-extrusion method and solvent casting method, as well as their advantages and disadvantages are introduced. The recent research progress of multi-layer biobased packaging in the field of food are comprehensively analyzed and summarized. The future research direction and development trend of bio-based multilayer films are proposed.

Key words: bio-based materials; multilayer film; food packaging; active substances

近年来，为了抵制人为造成的环境破坏，生物聚合物材料正在逐步代替石油基包装材料。然而单层生物聚合物薄膜的性能较差^[1]，难以开发满足具有高机械强度、高疏水性、高阻隔性且能包埋大量活性物质的单层包装材料。为了克服单层薄膜的功能缺陷，研究人员逐渐开发出各种多层结构包装材料^[2]。多层结构的概念可以追溯到天然生物材料，生物材料的天然结构经过数百万年的演变，赋予它们传统人造材料无法实现的优异性能^[3,4]。天然生物材料的优异和独特性能源于其多层结构。例如，洋葱外表皮形成 2~3 层膜质鲜鳞片，具有不透水不透水特性，是洋葱良好的保护组织^[5]。受天然生物材料多层结构的启发，研究人员提出了设计多层复合材料的策略。

多层包装薄膜大多为三层及以上，通常包括外部阻隔层、中间活性膜层、内部释控层^[6]。阻隔层是多层膜的最外层，由于与环境直接接触因此常被设计成具有防水、隔氧以及机械性能良好的屏障层，用于防止包装接触外界的水分、氧气和微生物等^[7]。活性层为中间层，在该层中通常包埋活性物质如抗氧化剂、防腐剂以及催熟剂等，控制层位于最内层，活性物质在活性层内保持稳定的形式，控制层使得活性物质在特定的条件下进行扩散以及释放^[8]。

1 生物基包装材料的分类

食品包装是食品工业的重要部分，传统意义上来说，食品包装的主要作用是使食品免受物理、化学和生物来源的污染，保持食品的质量和安全。由于合成塑料的易得性和低制造成本，超过 40% 的塑料可用于食品包装。传统塑料食品包装虽然具有质量轻便、力学性能好等优点但使用后被丢弃在环境中，需要超过 100 年以上的时间才能够使其完全分解，这对自然环境产生极大损害^[9]。生物基包装材料是以纤维素、蛋白质、淀粉、甲壳素等天然可再生的食品级资源为原料，通过共混改性、接枝聚合、稳态成型等技术工艺制备的一类新型包装材料。这

类包装材料具有可生物降解、安全环保、使用方便等优点。从天然可再生资源得到的高分子聚合物，按照来源可分为下列 3 种，如图 1 所示。

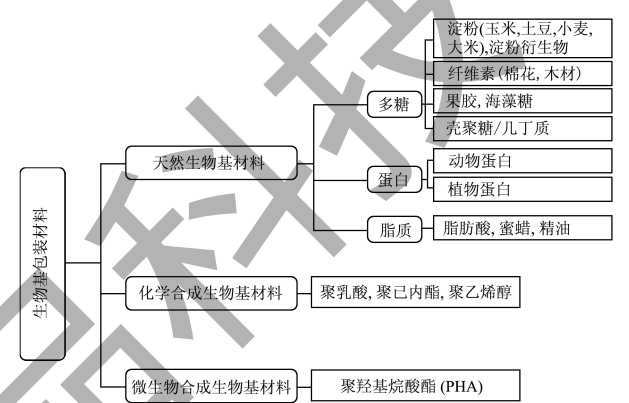


图 1 生物基包装材料的分类
Fig.1 Classification of bio-based packaging materials

(1) 可以直接从可再生资源移除 / 提取出来的高分子聚合物，如一些多糖类物质（如纤维素、壳聚糖、淀粉等）、蛋白质（如酪蛋白、玉米醇溶蛋白和小麦面筋蛋白等）及其它高分子聚合物^[10]。

(2) 用可再生的生物来源的单体进行化学合成，可以获得一些高分子聚合物，如乳酸、聚乙烯醇、聚乙醇酸等^[11]，其中最典型的例子就是聚乳酸（PLA）。乳酸单体本身是以碳水化合物为原料通过发酵获得的。PLA 引起大家广泛重视的另一个原因是它的可降解性，PLA 聚合物链在接触到水 / 水分的情况下，可以水解断裂成小分子，被自然界的微生物缓慢代谢。

(3) 从转基因型微生物体或细菌体获得的高分子聚合物。很多微生物具有把有机物作为碳源进行合成生物降解脂肪族聚酯的能力，可通过生物发酵的方法进行聚酯生物可降解塑料的合成^[12]。常用的有机物如聚羟基脂肪酸酯（PHA）、聚-β-羟基烷酸、普鲁兰多糖和热凝胶等；常见的聚合物类型如 PHA，PHA 族的主要作用就是在微生物中作为碳储存和能量物质。

表 1 多层工艺生产技术的优缺点

方法	优势	劣势	参考文献
LbL	制备工艺简单，成本低廉，不需要专门设备；通过选择改变薄膜的物理化学性质和结构性质（如组成、厚度、电荷等），可以根据不同的成膜材料类型、数量和顺序制备出具有不同功能属性的多层结构包装材料；LbL 逐层组装技术不只适用于制备多层膜和涂层，目前制备多层微胶囊也主要是采用该方法；生产的薄膜或涂层可以通过改变成分和工艺操作来控制其形态和功能性质；可制备纳米尺寸的纤维或颗粒，从而制备出具有大比表面积和高孔隙率的薄膜或涂层。	生产过程耗时较长；产生化学品浪费；难以扩大生产规模	[42-44]
共挤压	有利于商业应用，处理时间相对较短，能耗较低；粉状成膜材料可作为挤出机的输入，即成膜后不需要去除任何溶剂；操作条件范围较宽，可以使用不同熔点的成膜材料；提高食品包装的机械和光学性能；能准确控制物料的混合程度和所形成的膜厚。	操作过程复杂，制备成本高；不适合扩大生产；在共挤压过程中所需的高温 and 剪切力可能导致活性物质的功能丧失。	[45-47]
静电纺丝	聚合物纳米纤维可直接、连续、大规模制备，有利于商业应用；用于形成薄膜或涂层的条件相对温和，允许使用更为广泛的原材料；生产设备相对便宜，操作方便；生产的薄膜或涂层可以通过改变成分和工艺操作来控制其形态和功能性能；可制备纳米尺寸的纤维或颗粒，从而制备出具有大比表面积和高孔隙率的薄膜或涂层。	制备过程需要大量使用有毒溶剂；受温度、湿度、电压电流等影响；难以扩大生产规模	[48-51]
浇筑	简单，低成本，通用性使用各种类材料，可以控制厚度。	蒸发过程耗费大量时间和能量	

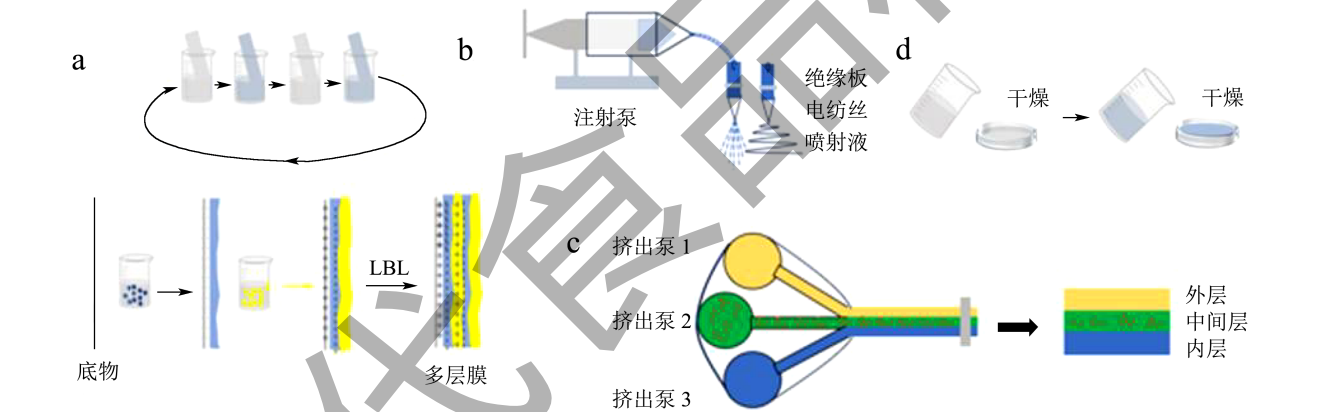


图 2 多层膜的制备方法

Fig.2 Preparation method of multilayer film

注：(a) 逐层自主装技术；(b) 电流体动力学方法；(c) 共挤压技术；(d) 溶剂浇筑法。

2 多层生物基薄膜的制备方法

本节介绍了制备具有不同结构和功能特性的多层生物基薄膜的主要技术和条件，以及各种多层生物基薄膜制备方法的优缺点，如表 1。根据文献，制备多层结构薄膜应用最广泛的方法主要有层层自组装技术（Layer-by-layer, LbL）、电流体力学方法、共挤压方法、溶剂浇筑法等，如图 2 所示。

2.1 逐层自主装技术（LbL）

一般来说，LbL 主要是通过在一个表面上连续沉积大量成膜材料而形成多层膜或涂层，利用连续

层之间的静电吸引是组装多层薄膜最常见方法之一^[13]。它将带负电荷的基材浸入含有正电荷物质的溶液中，从而使带有正电荷的物质被吸引到基材的表面，再冲洗掉多余的溶液后，形成的带正电的基材被浸入另一种含有带负电物质的溶液中，这使得这些物质形成一个新的层。这一过程可以重复多次来生产多层薄膜或涂层^[14]。通常，这种静电 LbL 沉积过程中使用的材料是能溶于水的带电生物聚合物或胶体粒子^[15]。形成的薄膜或涂层的性质（如组成、厚度和电荷）可以通过改变用于组装层的带电物质的类型、数量和顺序来控制^[16]。除了静电吸引，分子间的其他相互作用也可用于组装 LbL 薄膜或涂

层,如氢键、共价键和疏水相互作用,所涉及的相互作用取决于用于制备多层结构物质的性质^[17]。例如,蛋白质经常通过疏水、静电、共价键和氢键的结合与邻近分子形成交联^[18]。

Dai 等^[19]利用阳离子瓜尔豆胶和阴离子纤维素纳米纤维制备了多糖多层薄膜,将带阳离子的水性瓜儿豆胶和带相反电荷的阴离子纤维素纳米纤维交替沉积到多层薄膜上,所制备的聚电解质多层膜透明、延展性强、强度高。更重要的是,该多层膜表现出优异的气体(水蒸气和氧气)和油阻隔性能。刘思思等^[20]通过 LbL 和物理吸附的方法,制备出负载天然抗菌药物小檗碱的壳聚糖/丝素纳米纤维多层膜。实验表明,该多层膜可通过调节膜厚度控制其载药量,并且对金黄色葡萄球菌具备抗黏附和生长抑制作用。Zhao 等^[21]使用 LbL 和共混法分别制备海藻酸钠和壳聚糖薄膜,通过比较两种薄膜制备方法发现与 LbL 相比,混合方法的拉伸强度值更低,不透明度更高,LbL 制备的复合材料厚度更高,水蒸汽透过率结果未出现显著性差异。

2.2 电流体力学方法

电流体力学过程是通过施加高压电场将聚合物溶液喷射到微米尺度或纳米尺度的纤维或颗粒中。电流体力学工艺中常用的方法有静电纺丝和静电喷涂两种^[22]。静电纺丝制备的多层结构具有优良的方向性排列同时拥有较高的比表面积,在食品领域中有较大的应用潜力^[23,24]。利用静电纺丝形成多层薄膜可以提升包装材料的机械性能、光学特性和功能性能^[22]。使用静电纺丝技术创建多层包装结构的设备通常由四个主要部分组成:高压电源、注射泵、带尖端的毛细管和金属收集器。将聚合物溶液放入毛细管,然后在毛细管尖端与收集板之间施加高压电场。聚合物溶液将从喷嘴中抽出,形成一个扭曲的泰勒锥状的流体射流^[25]。在从尖端到收集板的过程中,溶剂迅速蒸发,从而形成沉积在收集器上的富含聚合物的纳米纤维^[26]。静电喷涂的工作原理与静电纺丝基本相同,但所使用的聚合物溶液和操作条件都经过了设计,因此所产生的泰勒锥射流能长时间保持稳定^[27]。

Bharathi 等^[28]通过静电纺丝在溶剂浇铸的壳聚糖薄膜上开发了具有更高抗氧化活性的双层膜,壳聚糖膜上的玉米醇溶蛋白纳米纤维包被将壳聚糖薄膜的抗氧化活性从 12.41% 提高到 44.17%,玉米醇溶蛋白纳米纤维在双层膜中具有更高的表面体积比

和更好的亲和力,用于包装鲜切水果有助于增强其抗褐变能力。Wang 等^[29]采用顺序静电纺丝法制备了以乙基纤维素纳米纤维为外层,姜黄素负载明胶纳米纤维为内层的多层薄膜,研究结果表明疏水性乙基纤维素纳米纤维外层降低了亲水性内层的水蒸气渗透性,提高了疏水性,由于相邻两层之间氢键的密切相互作用该双层膜的热稳定性得到增强。Figuerola 等^[30]以明胶、甘油和微晶纤维素为原料,用天然提取物聚己内酯(PCL)和黑胡椒树脂(OR)进行静电纺丝开发多层体系薄膜,结果发现含有 PCL 和 OR 的多层体系增加了机械性能,降低了屏障性能,而且还抑制了金黄色葡萄球菌的生长。

2.3 共挤压技术

采用共挤压方法可以制备多层结构的薄膜,方法是将两种或多种不同的聚合物材料加热到其玻璃化转变温度以上,然后通过特殊设计的喷嘴将其挤压分离^[31]。共挤工艺一般包括四个主要步骤:加料、熔炼、流汇合和共挤^[32]。根据不同的聚合物流在成膜过程的聚集方式,共挤可分为两种主要类型:模具和进料块。在模具共挤过程中,两种或多种材料分别被送入挤出机并加热,然后不同的材料熔体流在模具出口聚集在一起。在进料块共挤压过程中,两种或多种材料在挤压模具前聚集在一起,形成一层熔融流,然后通过挤压模具挤出。共挤已广泛应用于食品领域多层膜的工业生产。

Ortega-Toro 等^[33]通过共挤压获得 PCL 单层膜和 PCL 与热塑性淀粉(S)和热塑性淀粉(S95)组成的双层薄膜。在压缩之前,将抗坏血酸或山梨酸钾的水溶液喷洒到 S 或 S95 层上,以使其塑化并促进各层之间的附着力。结果表明所有的双层膜均增强了对水蒸气(与净淀粉膜相比高达 96%)和氧气(与 PCL 纯水相比高达 99%)的阻隔性能。Messin 等^[34]由单层 PLA 采用共挤压技术添加结晶聚丁二酸丁二醇酯(PBS)生产了一种双层结构 PLA/PBS 薄膜,相对于单分子膜而言,封闭多层结构使其对氧气、水、二氧化碳的阻隔程度分别提升 30%、40%、70%。Ahmed 等^[35]采用共挤压技术开发一种具有三层结构的聚丙交酯基抗菌纳米包装,该三层膜由 PLA 的内部挤出层、装有封装百里香精油的 PLA 中间层和带有石墨烯纳米片的 PLA 外层组成,研究结果表明该三层膜相比于 PLA 单层膜在热学、机械学和流变学性能方面均有所改善。

表 2 多层薄膜的物理和功能特性
Table 2 Physical and functional properties of multilayer films

聚合体	活性化合物	薄膜的物理和功能特性	参考文献
第 1 层: 羧甲基纤维素 第 2 层: 糠酚聚糖	越橘提取物、 明胶	不透明度, 热稳定性增加 水蒸气透过率 (WVTR) 降低 0.19%~1.82% 含水量 (WCA) 降低 4.13%~34.54% 断裂伸长率 (EAB) 高达 3.19%~32.36% 穿刺强度 (PS) 高达 2.05%~15.38% 抗氧化活性的提高 378.74%~1291.69% 对金黄色葡萄球菌、大肠杆菌、粪肠杆菌和 铜绿假单胞菌的抗菌活性提高	[59]
第 1 层: 红藻胶钙 第 2 层: 黄豆麸皮	大豆麸皮蛋白 水解物	WVTR 增幅高达 5.51%~15.14% WCA 减少 2.52%~11.15% (第二层) WCA 增加 5.51%~15.14% (第一层) 抗氧化活性提高高达 52.90%~436.77% 对金黄色葡萄球菌、大肠杆菌、沙门氏菌属的抑制性提高	[60]
第 1 层: 玉米醇溶蛋白 第 2 层: 壳聚糖	姜黄素、 β -环糊精 复合物、茜素、 肉桂醛	双层膜的 WC 显著低于其它薄膜 氧气透过率 (OP) [$8.48 \times 10^{-13} \text{ g/(m s Pa)}$] 和水蒸气 透过量 (WVP) 为 $2.42 \times 10^{-11} \text{ g/(m s Pa)}$ 自由基清除率分别为 79.29% (DPPH) 和 89.84% (ABTS ⁺) 抑菌效率分别为金黄色葡萄球菌 96.2% 和大肠杆菌 85.78%	[61]
第 1 层: 魔芋葡甘露糖 第 2 层: 卡拉胶	精油、姜黄素、 花青素	拉伸强度 (TS) 从 80% 降低到 48% WVP 从 9.9% 降低到 1.9% 所有测试薄膜的 TS 和 EAB 值相似 热降解率从 27.70% 降低至 10.41%	[62]

2.4 溶剂浇铸法

用于获得多层膜的方法最简便的方法之一是溶剂浇铸法, 该方法在于逐一倒出每种成膜溶液^[36]。为了施加第二层和随后的层, 第一层必须呈现凝胶的形式, 因此该方法只适用于能形成凝胶的生物基材料^[37], 主要包括淀粉、壳聚糖和羧甲基纤维素等, 并且这种类型的生物聚合物可以构成多层膜的最底 (内部) 层。在使用溶剂浇铸法制备多层结构的过程中涂下一层前, 必须等前一层完全干燥^[38]。

Gui 等^[39]浇注 6 wt.% 的羟丙基玉米淀粉 (HPS) 薄膜后在室温下干燥, 然后将 15% 的玉米醇溶蛋白溶液倒在 HPS 薄膜表面, 室温下干燥形成双层膜。与单层膜相比, 双层膜具有光滑的表面、耐水性和紫外线阻隔性, 并改善了机械性能。Hanani 等^[40]以壳聚糖和明胶为生物聚合物, 甘油为增塑剂, 月桂酰精氨酸乙酯 (LAE) 为抗菌化合物, 采用溶剂浇铸技术制备了共混单层薄膜和双层生物基活性膜, 双层薄膜对紫外线的屏障性相比于共混单层膜增加, 并显示出较低的透明度值。Ewelina 等^[41]基于溶剂浇铸法制备了糠草聚糖和蛋白质水解物的单层薄膜, 此外, 还将大豆麸皮中的乙醇提取物沉积到第一层上制备出双层薄膜, 研究发现单层薄膜添加层数后, 其热性能、弹性模量和抗氧化活性均有所提高。

3 多层薄膜在食品包装领域的应用进展

多层生物基薄膜在具有生物可降解性的同时由于在各层之间有较大的层间空间和复杂的内部结构, 在空间中相比于单层薄膜表现出更为优异的化学和物理性质, 多层生物基复合材料在空间结构上提供更多的自由层级空间, 非常适合活性物质的引入, 使得多层结构薄膜成为一种新型有前途的载体^[52]。

3.1 具有生物可降解性

生物降解材料是指在微生物的酶促作用, 可以分解成水、二氧化碳、甲烷和生物质的物质, 生物基包装材料具有非常高的水溶性和良好的透气性, 使得它们易于降解^[53], 其降解过程可能从几天到一年或更长时间不等^[9]。Tkaczewska 等^[54]开发了基于糠多糖和羧甲基纤维素的双层薄膜, 并对其进行了生物降解测试。结果表明, 孵育 14 d 后该双层膜完全降解。多层生物基薄膜的降解过程受包装材料的生物聚合物种类以及包装材料所处环境条件 (湿度、温度等)^[55]影响。Wu 等^[56]采用共挤吹塑法制备了不同淀粉 / 聚酯层厚比的聚酯 / 淀粉 / 聚酯三层薄膜。随着材料中聚酯厚度的增加, 在实际土壤条件下的生物降解速率降低。Tampau 等^[57]制备出

负载含有香芹酚(CA)的PLA和热塑性淀粉多层静电纺丝垫。研究发现不含CA的薄膜在堆肥25 d后完全降解,而含有CA的薄膜在45 d后生物降解率为85%。

3.2 物理和功能特性提升

如表2所示,具有多层结构的天然生物基聚合薄膜可以增强食品包装薄膜的性能,与单层生物基薄膜相比,其透明度、热性能、水蒸气渗透性和水溶性等物理性能以及拉伸强度和断裂伸长率等机械性能均有所提高^[58]。

3.3 作为活性物质载体

近年来越来越多的研究发现,可以通过调控多层包装结构中各层级材料的性质,控制每一层的功能性能。并且通过控制包装的层级结构和层级数可以控制有效成分的释放,从而延长活性物质的释放时间和活性物质的效果保留^[63,64]。与传统释放体系相比多层包装缓释体系能维持活性物质有效浓度的时间更长,提升利用效率的同时减少了活性物质挥发、流失和分解等损失^[65,66]。

Wu等^[67]制备出多层可生物降解膜来控制水果和蔬菜采后吸作用和蒸腾损失,将具有疏水性的乙基纤维素设计为外层,乙烯抑制(1-MCP)为中间层,亲水性水凝胶为内层,内部的亲水凝胶被设计用来吸收水果和蔬菜中多余的水分,从而避免冷凝水的积累,吸湿后由于水凝胶内部的渗透性发生改变,促进了1-MCP的扩散从而减缓乙烯的产生,延缓了蘑菇在贮藏期间的软化褐变和体重减轻。Dong等^[68]使用层压技术将茶多酚、山梨酸钾和海藻糖掺入由L-聚乳酸、聚乙烯醇和聚己内酯制成的多层薄膜中。以这种方式获得的多层薄膜用于包装冷冻肉。挥发性盐基氮(TVB-N)和菌落总数(TVC)值受到显著抑制,肉的贮藏时间延长至31 d。多层膜除了作为活性包装材料外,还可以作为智能指标来监测食品的新鲜度。Sun等^[69]制作了一种双层薄膜,其中第一层是富含冻干覆盆子提取物的加兰胶,而第二层是壳聚糖,将形成的多层包装膜用于猪肉饼包装,在肉饼的储存过程中,薄膜从粉红色(第0天)变成棕色(第6天),最后变成深绿色(第10天)。同样,Wang等^[29]通过顺序静电纺丝将疏水性乙基纤维素外层覆盖到负载姜黄素的明胶内层后,观察与单层明胶膜96 min内的爆发释放相比,

多层膜显示姜黄素在30 h内持续释放,并保留抗氧化活性,由于疏水性乙基纤维素和明胶多形成所谓的“三明治”多层结构,能保护内部姜黄素不会过快释放。Chen等^[70]采用逐层溶剂浇铸法制备出中间层负载茶多酚的玉米醇溶蛋白-茶多酚-明胶多层膜,释放实验结果表明,多层膜中的茶多酚释放速率相较于单层明胶膜要减慢一倍,对猕猴桃、鳄梨和香蕉这三种鲜切水果的微生物抑制作用强于单层膜。这表明多层膜的构建延长了茶多酚在膜基质中的释放时间,有效实现了活性物质的缓慢释放。

4 结论与展望

在本文中,首先介绍了常见生物基材料类型,多层结构的概念,以及对多层结构实现缓释效应的原理进行了归纳,然后对制备多层级结构的方法,及其优缺点进行概述。最后总结了一些近年来多层结构在食品行业的应用。在设计多层包装结构时,选择合适的控释机制取决于活性物质的特性、食品的性质和预期的释放效果。通过合理组合不同的层次结构和材料,可以实现对活性物质释放的精确控制,从而满足不同食品领域中的应用需求。然而,同时也需要在设计中考虑包装材料的安全性、稳定性和可持续性,以确保食品的质量和安全性。未来,多层生物基薄膜包装发展趋势能包括以下几个方面:

设计更复杂、更实用的微观多层结构。微观结构设计对于设计多层复合材料至关重要,人造材料构建的微观结构仍然远不如天然材料精细。为此,更深入地了解生物微结构及相关制造机制将有利于使用较为先进的制造技术开发精细可行的微观多层包装结构。

开发商业上易于获取且价格合理新型可持续多层结构包装材料。在资源有限的情况下,包装材料需要更加关注可持续发展。这可能涉及到更有效的资源利用、环保措施和社会责任,以确保长期的可持续性。

将多层缓释结构与数学建模相结合实现更为精确的释放控制。随着材料科学和制造技术的进步,未来多层结构可能会采用可编程控释技术,即通过设计和调控包装层次和组分,实现根据特定时间、条件和剂量进行物质控释的能力。这种技术可以适应不同需求的食品应用,提供更灵活、精准和个性化的控释方案。

参考文献

- [1] GOULAS A E, RIGANAKOS K A, KONTOMINAS M G. Effect of ionizing radiation on physicochemical and mechanical properties of commercial multilayer coextruded flexible plastics packaging materials [J]. Radiation Physics and Chemistry, 2003, 68(5): 865-872.
- [2] WANG X, WANG J, SONG S, et al. Preparation and properties of soil conditioner microspheres based on self-assembled potassium alginate and chitosan [J]. International Journal of Biological Macromolecules, 2020, 147: 877-889.
- [3] CHEN Y, MA Y, YIN Q, et al. Advances in mechanics of hierarchical composite materials [J]. Composites Science and Technology, 2021, 214: 108970.
- [4] 余娅洁,李静茹,周树锋,等.基于天然生物模板构建纳米材料及集成催化剂研究进展[J].化工学报,2023,74(7): 2735-2752.
- [5] KUMAR M, BARBHAI M D, HASAN M, et al. Onion (*Allium cepa* L.) peels: A review on bioactive compounds and biomedical activities [J]. Biomedicine & Pharmacotherapy, 2022, 146: 112498.
- [6] ALMASI H, JAHANBAKHSO M, SALEH A. A review on techniques utilized for design of controlled release food active packaging [J]. Critical Reviews in Food Science and Nutrition, 2020, 61(15): 2601-2621.
- [7] TKACZEWSKA J, JAMRÓZE, GUZIK P, et al. Attempt to extend the shelf-life of fish products by means of innovative double-layer active biodegradable films [J]. Polymers, 2022, 14(9): 1717.
- [8] Tkaczewska J, Jamróz E, Zajac M, et al. Antioxidant edible double-layered film based on waste from soybean production as a vegan active packaging for perishable food products [J]. Food Chemistry, 2023, 400: 134009.
- [9] 王秀超,秦莹莹,郭红革.生物基可降解包装薄膜的研究进展[J].材料导报,2022,36(S01):528-535.
- [10] 王漫阳,王飞杰,马淑凤,等.多糖基气凝胶食品包装的研究进展[J].食品科学,2023,44(19):340-349.
- [11] VERSINO F, ORTEGA F, MONROY Y, et al. Sustainable and bio-based food packaging: a review on past and current design innovations [J]. Foods, 2023, 12(5): 1057.
- [12] BABU R P, OCONNOR K, SEERAM R. Current progress on bio-based polymers and their future trends [J]. Progress in Biomaterials, 2013, 2: 1-16.
- [13] ZHANG X, CHEN H, ZHANG H. Layer-by-layer assembly: from conventional to unconventional methods [J]. Chem Commun (Camb), 2007, 14: 1395-1405.
- [14] DECHER G, HONG J D. Buildup of ultrathin multilayer films by a self-assembly process, 1 consecutive adsorption of anionic and cationic bipolar amphiphiles on charged surfaces [C]. Makromolekulare Chemie. Macromolecular Symposia. Basel: Hüthig & Wepf Verlag, 1991, 46(1): 321-327.
- [15] DELMERCATO L L, FERRARO M M, BALDASSARRE F, et al. Biological applications of LbL multilayer capsules: from drug delivery to sensing [J]. Advances in Colloid and Interface Science, 2014, 207: 139-154.
- [16] JECKSON T A, NEO Y P, SISIBTHY S P, et al. Delivery of therapeutics from layer-by-layer electrospun nanofiber matrix for wound healing: an update [J]. Journal of Pharmacy and Pharmaceutical Sciences, 2021, 110(2): 635-653.
- [17] HASSAN B, CHATHA S A S, HUSSAIN A I, et al. Recent advances on polysaccharides, lipids and protein based edible films and coatings: A review [J]. International Journal of Biological Macromolecules, 2018, 109: 1095-1107.
- [18] CALVA-ESTRADA S J, JIMÉNEZ-FERNÁNDEZ M, LUGO-CERVANTES E. Protein-Based Films: Advances in the development of biomaterials applicable to food packaging [J]. Food Engineering Reviews, 2019, 11(2): 78-92.
- [19] DAI L, LONG Z, CHEN J, et al. Robust guar gum/cellulose nanofibrils multilayer films with good barrier properties [J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2017, 9(6): 5477-5485.
- [20] 刘思思,陈杰,林祥德,等.壳聚糖/丝素纳米纤维载药多层膜的构建和抗菌应用[J].高分子学报,2023,53(12):12-27
- [21] ZHAO K, WANG W, TENG A, et al. Using cellulose nanofibers to reinforce polysaccharide films: Blending vs layer-by-layer casting [J]. Carbohydrate Polymers, 2020, 227: 115246.
- [22] FABRA M J, BUSOLO M A, LOPEZ-RUBIO A, et al. Nanostructured biolayers in food packaging [J]. Trends in Food Science & Technology, 2013, 31(1): 79-87.
- [23] THAKKAR S, MISRA M. Electrospun polymeric nanofibers: New horizons in drug delivery [J]. European Journal of Pharmaceutical Sciences, 2017, 107: 148-167.
- [24] WU J, HU T, WANG H, et al. Electrospinning of PLA nanofibers: Recent advances and its potential application for food packaging [J]. Journal of Agricultural and Food Chemistry, 2022, 70(27): 8207-8221.
- [25] MEINEL A J, GERMERSHAUS O, LUHMANN T, et al. Electrospun matrices for localized drug delivery: current technologies and selected biomedical applications [J]. European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics, 2012, 81(1): 1-13.
- [26] DENG L, LI Y, FENG F, et al. Study on wettability, mechanical property and biocompatibility of electrospun gelatin/zein nanofibers cross-linked by glucose [J]. Food Hydrocolloids, 2018, 87: 1-10.
- [27] GORDON V, MAROM G, MAGDASSI S. Formation of hydrophilic nanofibers from nanoemulsions through electrospinning [J]. International Journal of Pharmaceutics, 2015, 478(1): 172-179.
- [28] BHARATHI S K V, LEENA M M, MOSES J A, et al.

- Nanofibre-based bilayer biopolymer films: enhancement of antioxidant activity and potential for food packaging application [J]. *International Journal of Food Science & Technology*, 2020, 55(4): 1477-1484.
- [29] WANG P, LI Y, ZHANG C, et al. Sequential electrospinning of multilayer ethylcellulose/gelatin/ethylcellulose nanofibrous film for sustained release of curcumin [J]. *Food Chemistry*, 2020, 308: 125599.
- [30] FIGUEROA-LOPEZ K, CASTRO-MAYORGA J, ANARADE-MEHECHA M, et al. Antibacterial and barrier properties of gelatin coated by electrospun polycaprolactone ultrathin fibers containing black pepper oleoresin of interest in active food biopackaging applications [J]. *Nanomaterials*, 2018, 8(4): 199.
- [31] MEMZEL C. Improvement of starch films for food packaging through a three-principle approach: Antioxidants, cross-linking and reinforcement [J]. *Carbohydrate Polymers*, 2020, 250: 116828.
- [32] ANUKIRUTFIKA T, SETHUPATHY P, WILSON A, et al. Multilayer packaging: Advances in preparation techniques and emerging food applications [J]. *Comprehensive Reviews In Food Science and Food Safety*, 2020, 19(3): 1156-1186.
- [33] ORTEGA-TORO R, MOMEY I, TALENS P, et al. Active bilayer films of thermoplastic starch and polycaprolactone obtained by compression molding [J]. *Carbohydrate Polymers*, 2015, 127: 282-290.
- [34] MESSIN T, FOLLAIN N, GUINAULT A, et al. Confinement effect in PC/MXD6 multilayer films: Impact of the microlayered structure on water and gas barrier properties [J]. *Journal of Membrane Science*, 2017, 525: 135-145.
- [35] AHMED J, BHER A, AURAS R, et al. Morphological, thermo-mechanical, and barrier properties of coextruded multilayer polylactide composite films reinforced with graphene nanoplatelets and encapsulated thyme essential oil [J]. *Food Packaging and Shelf Life*, 2023, 40: 101179.
- [36] WANG L F, RHIM J W, HONG S I. Preparation of poly(lactide)/poly(butylene adipate-co-terephthalate) blend films using a solvent casting method and their food packaging application [J]. *LWT-Food Science and Technology*, 2016, 68: 454-461.
- [37] 王和平.壳聚糖/海藻酸钠/羧甲基壳聚糖-ZnO复合抗菌膜的制备及表征[C].2018(第3届)抗菌科学与技术论坛.2018.
- [38] 石洁,王雪嵘,徐朝阳.壳聚糖/明胶/苹果多酚复合膜的制备及性能研究[J].*包装工程*,2023,44(1):1-6.
- [39] CUI H, SURENDRHIRAN D, LI C, et al. Biodegradable zein active film containing chitosan nanoparticle encapsulated with pomegranate peel extract for food packaging [J]. *Food Packaging and Shelf Life*, 2020, 24: 100511.
- [40] HAGHIGHI H, DELEO R, BEDIN E, et al. Comparative analysis of blend and bilayer films based on chitosan and gelatin enriched with LAE (lauroyl arginate ethyl) with antimicrobial activity for food packaging applications [J]. *Food Packaging and Shelf Life*, 2019, 19: 31-39.
- [41] JAMRÓZ E, TKACZEWSKA J, ZAJAC M, et al. Utilisation of soybean post-production waste in single- and double-layered films based on furcellaran to obtain packaging materials for food products prone to oxidation [J]. *Food Chemistry*, 2022, 387: 132883.
- [42] WU G, ZHANG X. Layer-by-Layer Assembly: From Conventional to Unconventional Methods [M]. *Multilayer Thin Films*, 2012.
- [43] CALVA-ESTRADA S J, JIMÉNEZ-FERNÁNDEZ M, LUGO-CERVANTES E. Protein-based films: advances in the development of biomaterials applicable to food packaging [J]. *Food Engineering Reviews*, 2019, 11: 78-92.
- [44] HASSAN B, CHATHA S A S, HUSSAIN A I, et al. Recent advances on polysaccharides, lipids and protein based edible films and coatings: A review [J]. *International Journal of Biological Macromolecules*, 2018, 109: 1095-1107.
- [45] FOLLAIN N, GUINAULT A, MIQUELARD-GARNIER G, et al. Confinement effect in PC/MXD6 multilayer films: Impact of the microlayered structure on water and gas barrier properties [J]. *Journal of Membrane Science*, 2017, 525: 135-145.
- [46] HERNANDEZ-IZQUIERDO V M, KROCHTA J M. Thermoplastic processing of proteins for film formation-A review [J]. *Journal of Food Science*, 2010, 73(2): R30-R9.
- [47] ANDREUCCETTI C, CARVALHO R A, GALICIA-GARCIA T, et al. Functional properties of gelatin-based films containing Yucca schidigera extract produced via casting, extrusion and blown extrusion processes: A preliminary study [J]. *Journal of Food Engineering*, 2012, 113(1): 33-40.
- [48] ZHAO L, DUAN G, ZHANG G, et al. Electrospun Functional Materials toward Food Packaging Applications: A Review [J]. *Nanomaterials*, 2020, 10(1): 150.
- [49] WANG P, LI Y, ZHANG C, et al. Characterization and antioxidant activity of trilayer gelatin/dextran-propyl gallate/gelatin films: Electrospinning versus solvent casting [J]. *LWT-Food Science and Technology*, 2020, 128(1): 109536.
- [50] DEEPAK A, GOYAL A K, RATH G. Nanofiber in transmucosal drug delivery [J]. *Journal of Drug Delivery Science and Technology*, 2018, 43: 379-387.
- [51] JAWOREK A, SOBCZYK A T. Electrospinning route to nanotechnology: An overview [J]. *Journal of Electrostatics*, 2008, 66(3-4): 197-219.
- [52] AVILA L B, SCHNORR C, SILVA L F, et al. Trends in bioactive multilayer films: perspectives in the use of

- polysaccharides, proteins, and carbohydrates with natural additives for application in food packaging [J]. *Foods*, 2023, 12(8): 1692.
- [53] MARANFONI J L, VIEIRA R P, JAMRÓZ E, et al. Furcellaran: An innovative biopolymer in the production of films and coatings [J]. *Carbohydrate Polymers*, 2021, 252: 117221.
- [54] TKACZEWSKA J, JAMRÓZ E, GUZIK P, et al. Attempt to extend the shelf-life of fish products by means of innovative double-layer active biodegradable films [J]. *Polymers*, 2022, 14(9): 1717.
- [55] 刘佳欣,赵晓颖,翁云宣.生物基可降解聚合物食品包装材料发展及应用综述[J].*包装工程*,2023,44(13):19-26.
- [56] WU S, WANG W, ZHANG R, et al. Preparation and characterization of biodegradable trilayer films based on starch and polyester [J]. *International Journal of Biological Macromolecules*, 2021, 183: 1058-1066.
- [57] TAMPAU A, GONZÁLEZ-MARTINEZ C, CHIRALT A. Biodegradability and disintegration of multilayer starch films with electrospun PCL fibres encapsulating carvacrol [J]. *Polymer Degradation and Stability*, 2020, 173: 19100.
- [58] 陈洪彬,李书亮,蒋璇靓,等.鱼皮明胶-壳聚糖复合涂膜对‘黄金’西番莲的保鲜效果[J].*食品与发酵工业*,2022, 48(18):134-141.
- [59] JAMROZ E, TKACZEWSKA J, JUSZCZAK L, et al. The influence of lingonberry extract on the properties of novel, double-layered biopolymer films based on furcellaran, CMC and a gelatin hydrolysate [J]. *Food Hydrocolloids*, 2022, 124: 107334.
- [60] JAMROZ E, TKACZEWSKA J, ZAJAC M, et al. Utilisation of soybean post-production waste in single- and double-layered films based on furcellaran to obtain packaging materials for food products prone to oxidation [J]. *Food Chemistry*, 2022, 387: 132883.
- [61] LIN W, ZHANG Y, HUANG J, et al. pH-responsive double-layer film based on chitosan/curcumin- β -cyclodextrin complex/cinnamaldehyde and zein/alizarin for pork freshness monitoring and maintaining [J]. *Food Research International*, 2023, 173: 113460.
- [62] ZHOU X, YU X, XIE F, et al. pH-responsive double-layer indicator films based on konjac glucomannan/camellia oil and carrageenan/anthocyanin/curcumin for monitoring meat freshness [J]. *Food Hydrocolloids*, 2021, 118(3): 106695.
- [63] KUAI L, LIU F, CHIOU B-S, et al. Controlled release of antioxidants from active food packaging: A review [J]. *Food Hydrocolloids*, 2021, 120: 106992.
- [64] YIN W, QIU C, JI H, et al. Recent advances in biomolecule-based films and coatings for active and smart food packaging applications [J]. *Food Bioscience*, 2023, 52: 102378.
- [65] 许超群,梁旭茹,岳淑丽,等.基于果蔬保鲜的活性包装技术研究进展[J].*食品与发酵工业*,2022,48(16):305-310.
- [66] BOOSTANI S, JAFARI S M. A comprehensive review on the controlled release of encapsulated food ingredients; fundamental concepts to design and applications [J]. *Trends in Food Science & Technology*, 2021, 109: 303-321.
- [67] WU P G, NI X Y. Novel packaging film for humidity-controlled manipulating of ethylene for shelf-life extension of *Agaricus bisporus* [J]. *LWT-Food Science & Technology*, 2021, 145: 111331.
- [68] DONG T, ZHANG Y, QI X, et al. Evaluation of the effects of prepared antibacterial multilayer film on the quality and shelf-life stability of chilled meat [J]. *Journal of Food Processing and Preservation*, 2017, 41(5): 13151.
- [69] SUN Y, ZHANG M, ADHIKARI B, et al. Double-layer indicator films aided by BP-ANN-enabled freshness detection on packaged meat products [J]. *Food Packaging and Shelf Life*, 2022, 31: 100808.
- [70] CHEN X, WANG W B, LING W, et al. Multilayer zein/gelatin films with tunable water barrier property and prolonged antioxidant activity [J]. *Food Packaging and Shelf Life*, 2019, 19: 76-85.