



李天笑,蒋忠荣,贾玉红,等. 挤压法复合焦甜香料的制备及卷烟应用研究[J]. 轻工学报,2021,36(4): 51-57.

LI T X, JIANG Z R, JIA Y H, et al. Study on the preparation and cigarette application of synergistic caramel products by extrusion method[J]. Journal of Light Industry, 2021, 36(4): 51-57. DOI: 10. 12187/2021. 04. 007

中图分类号: TS41 文献标识码: A 文章编号: 2096-1553(2021)04-0051-07

挤压法复合焦甜香料的制备及卷烟应用研究

Study on the preparation and cigarette application of synergistic caramel products by extrusion method

李天笑^{1,2}, 蒋忠荣¹, 贾玉红¹, 施丰成¹, 罗诚¹, 李东亮¹

LI Tianxiao^{1,2}, JIANG Zhongrong¹, JIA Yuhong¹, SHI Fengcheng¹, LUO Cheng¹, LI Dongliang¹

1. 四川中烟工业有限责任公司 技术中心, 四川 成都 610051;
2. 郑州轻工业大学 食品与生物工程学院, 河南 郑州 450001
1. Technology Center, China Tobacco Sichuan Industrial Co., Ltd., Chengdu 610051, China;
2. College of Food and Bioengineering, Zhengzhou University of Light Industry, Zhengzhou 450001, China

关键词:

不适用烟叶; 焦糖化反应; 挤压法; 香味成分; GC-MS 检测

Key words:

discarded tobacco leave; caramel reaction; extrusion method; flavor compound; GC-MS detection

摘要:为合理利用不适用烟叶, 开发甜感明显、香味丰富的烟用焦甜香料, 以焦糖化反应为基础, 研发一种挤压法复合焦甜香料。采用单因素试验确定该复合焦甜香料的制备工艺, 并利用 GC-MS 检测和感官评价分析该香料的香味成分和制备工艺的适用性。结果表明: 葡萄糖适宜添加质量分数为 30%, 适宜的挤压温度为三区 170 ℃、二区 150 ℃; 与对照组相比, 利用挤压法制备的复合香料焦甜香韵成分含量提升了 4.4 倍, 烟草萜烯类本香成分含量也显著提高; 复合焦甜香料能提升卷烟香味的丰富性, 增加甜感, 改善口感; 该复合焦甜香料的制备工艺对不同产地的不适用烟叶有一定的适用性。

收稿日期: 2021-04-22

基金项目: 河南省高校科技创新团队支持计划项目(20IRTSTHN022); 四川中烟工业有限责任公司科技项目(hx201908)

作者简介: 李天笑(1990—), 男, 河南省漯河市人, 四川中烟工业有限责任公司博士后, 郑州轻工业大学讲师, 主要研究方向为烟草工程。

通信作者: 李东亮(1973—), 男, 山西省平遥市人, 四川中烟工业有限责任公司研究员, 博士, 主要研究方向为卷烟工艺和烟用香料。

Abstract: To make better use of discarded tobacco leaves and yield caramel spices for tobacco with obvious sweetness and rich fragrance, synergistic caramel products by extrusion method were developed on the basis of the caramel reactions. The single factor experiment was used to determine the preparation process of the synergistic caramel products. GC-MS detection and sensory evaluation were used to analyze the flavor components of the products and the applicability of the preparation process. The results show that the optimal mass fraction of glucose was 30%. The extrusion temperature of area III 170 °C and area II 150 °C was suitable. Compared with the control group, the aroma components content of the synergistic caramel products were increased by 4.4 folds, and the contents of tobacco terpenes fragrances were also significantly increased. The synergistic caramel products could improve the flavor richness, sweetness and taste of cigarette. The preparation method of the synergistic caramel products had certain applicability to the discarded tobacco leaves from different producing areas.

0 引言

焦糖化反应是指糖或者糖与水在 140 °C 以上高温环境下生成聚合糖和焦甜香味成分的反应^[1-2]。在焦糖香料的生产过程中,既可以使用液体法,也可以使用固体法如挤压法^[3-4]。挤压法是利用挤压膨化机密闭机筒的外周热能和双螺杆的高剪切力进行加热反应,使淀粉或蔗糖等原料转化为固体焦糖香料^[5-6]。挤压膨化机从进料口到出料口共有 3 个加热区域,其中一区温度较低,主要对物料进行预热,二区和三区温度较高,是主要的反应区^[5-6]。挤压法生产效率高、成本低,便于自动化生产。

不适用烟叶是烟叶评定中质量不合格或者不符合标准无法用于生产的烟叶原料。目前,国内各中烟公司库存不适用烟叶约有 3×10^5 t^[7]。此外,部分库存烟叶由于储存时间过长,品质下降,也成为不适用烟叶。这些不适用烟叶既增加了企业仓储管理的成本,又存在被报废或者丢弃处理会产生环境污染问题^[8]。

在卷烟燃烧过程中,烟叶的水溶性糖可以转化为焦甜香韵成分,可丰富烟香、增加甜感、改善余味^[9]。研究表明,不适用烟叶的水溶性糖含量较低,糖碱比不合适,这是其刺激感较强的关键原因之一^[10-11]。鉴于此,本文拟选取不适用烟叶为研究对象,以焦糖化反应为基础,开发一种较为新颖的挤压法复合焦甜香料,并结合

GC-MS 检测和感官评价分析该香料的香味成分和制备工艺的适用性,以期为此类香料的工业化生产和卷烟产品应用提供参考。

1 材料与amp;方法

1.1 实验材料

不适用烟叶:宜宾不适用烟叶(K326, B2F, 2013年)、德昌不适用烟叶(红花大金元, B4F, 2011年)、河南不适用烟叶(中烟100, X3F, 2016年)、陕西不适用烟叶(国内认定品种, CXBK, 2013年)。

1.2 主要试剂及仪器

主要试剂:葡萄糖、乙醇,均为分析纯,国药集团化学试剂有限公司产;5-羟甲基糠醛、糠醛,纯度均为 99.0%,上海麦克林生化科技有限公司产;丙酸-2-苯乙酯,纯度 98.0%,阿法埃莎(中国)化学有限公司产。

主要仪器:SY-III型切丝机,河南富邦实业有限公司产;SLG65-III型双螺杆挤压膨化机,济南大彤仪器有限公司产;Agilent 6890/5973型 GC-MS 联用仪,美国 Agilent 仪器有限公司产;R-210型旋转蒸发仪,瑞士 Buchi 仪器有限公司产;DRT-SX型加热套,郑州长城科工贸有限公司产。

1.3 实验方法

1.3.1 挤压法复合焦甜香料的制备 将烟叶蒸制 30 s 后切成 1.0 mm 宽的烟丝,取一定量烟丝,加入葡萄糖和纯水拌匀。挤压膨化机开机预热,分别设置不同的三区温度和二区温度,挤

压膨化机主转速设为 12.4 Hz. 温度达到预设值后开启主电机,每份烟丝样品挤压处理 3 次^[5]. 将挤压后的样品取 10.0 g,加入体积分数为 50%的乙醇 50.0 g,加热回流提取 40.0 min;过滤,将滤液用体积分数为 50%乙醇补足至 25.0 g,即得复合焦甜香料溶液.

1.3.2 单因素试验设计 加糖量:取宜宾烟丝 5 组各 200 g,分别加入 20.0 g、40.0 g、60.0 g、80.0 g 葡萄糖拌匀,然后各加入 40.0 g 纯水拌匀;以加入 40.0 g 纯水但不加糖的烟丝为对照组. 设置挤压膨化机温度为三区 170 ℃、二区 150 ℃,分别进行挤压处理. 处理结束后,制备复合焦甜香料溶液和对照组烟丝乙醇提取液.

利用 GC-MS 法检测复合焦甜香料溶液总香味成分含量(Total Flavor Compounds, TFCs). GC-MS 法检测前处理:各取 15.0 mL 上述复合焦甜香料溶液及对照组烟丝乙醇提取液,分别用 10.0 mL CH₂Cl₂ 萃取 2 次,合并 CH₂Cl₂ 层,并浓缩至 0.9 mL,加入 0.1 mL (1.782 μg/mL) 丙酸-2-苯乙酯作为内标.

将复合焦甜香料溶液和对照组烟丝乙醇提取液以 1.0 μL/支的添加量,添加于四川中烟 2[#] 模块空白烟支中作为试验组卷烟、对照组卷烟,以不添加上述产物的空白组卷烟为参照,将卷烟于 22 ℃、60%相对湿度平衡后进行感官评价.

挤压温度:取 5 组宜宾烟丝各 200 g,分别加入 60.0 g 葡萄糖拌匀,然后加入纯水 40.0 g 混匀,分别设置挤压膨化机温度为三区 120 ℃、二区 110 ℃;三区 140 ℃、二区 125 ℃;三区 160 ℃、二区 145 ℃;三区 170 ℃、二区 150 ℃;三区 180 ℃、二区 160 ℃,进行挤压处理. 以加入质量分数为 30% (如无特指,本文的百分数均为质量分数)的葡萄糖不进行挤压处理的烟丝为挤压对照组. 结束后,制备复合焦甜香料溶液和挤压对照组烟丝乙醇提取液.

取 5 种复合焦甜香料溶液和挤压对照组烟

丝乙醇提取液,以 5-HMF (5-羟甲基糠醛)和 DDMP (2,3-二氢-3,5-二羟基-6-甲基-4-(H)-吡喃-4-酮)为焦甜香韵代表成分,使用 GC-MS 检测进行总香味成分含量测定^[12-13].

用复合焦甜香料溶液和挤压对照组烟丝乙醇提取液制备试验组卷烟、挤压对照组卷烟,以不添加上述产物的空白组卷烟为参照进行感官评价.

1.3.3 挤压法复合焦甜香料香味成分分析

取 1.3.2 中确定的最优制备条件下制得的挤压法复合焦甜香料溶液,以 1.3.2 中的挤压对照组烟丝乙醇提取液为参照,采用 GC-MS 法进行香味成分分析.

1.3.4 制备工艺的适用性分析 选取德昌、陕西及河南不适用烟叶,切丝,加入 30%葡萄糖拌匀,分别在挤压膨化机温度为三区 170 ℃、二区 150 ℃进行挤压处理,提取获得复合焦甜香料溶液. 以 3 种不适用烟丝加入 30%葡萄糖不进行挤压处理作为挤压对照组,提取获得挤压对照组烟丝乙醇提取液. 将 3 种焦甜香料溶液、3 种挤压对照组烟丝乙醇提取液以每支烟 1.0 μL 的添加量,添加于四川中烟 2[#] 模块空白烟中作为试验烟、挤压对照烟,以不添加上述产物的空白烟为参照进行感官评价.

1.3.5 GC-MS 检测方法 GC-MS 检测条件: Supelco DB-5 MS 色谱柱, 60 m × 0.25 mm × 0.25 μm;初始温度 50 ℃,保持 2 min,以 6 ℃/min 升温至 120 ℃,然后以 12 ℃/min 升温至 240 ℃,保持 5 min,以 15 ℃/min 升温至 280 ℃,保持 3 min;进样口温度 280 ℃;载气 He (>99.999%),流速 1.0 mL/min;进样量 1.0 μL,分流比 10:1;传输线温度 280 ℃;电离(EI)能量 70 eV;离子源温度 230 ℃;四极杆温度 150 ℃;电子倍增器电压 1.139 kV;质量扫描范围 33~400 amu.

将获得的 GC-MS 总离子流图利用 NIST 17 标准质谱库进行检索,选取匹配度大于 80%的峰,参考标准品,确定主要香味成分的化学结

构,根据内标法计算各香味成分的含量。

1.3.6 感官评价方法 由7名具有感官评资质的评委组成评吸小组进行感官特点评价并进行打分,取平均值。

2 结果与讨论

2.1 单因素试验结果分析

2.1.1 加糖量 不同加糖量下复合焦甜香料总香味成分含量变化如图1所示。由图1可知,随着加糖量的增大,总香味成分含量呈先升高后降低的趋势,当加糖量为30%时,总香味成分含量达到最高,比对照组(0%)提高了14.7%。

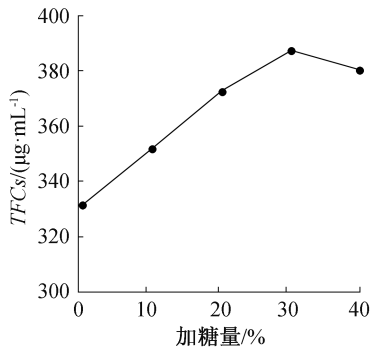


图1 不同加糖量下复合焦甜香料总香味成分含量变化

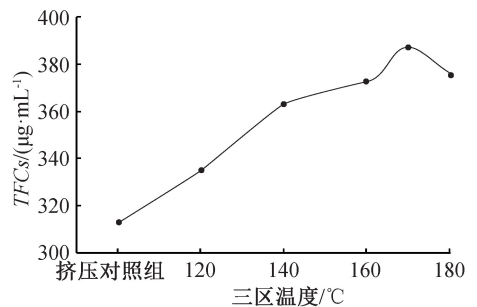
Fig. 1 The TFCs of synergistic caramel products with different glucose supplement

不同加糖量下复合焦甜香料的感官特点如下:加糖量30%的复合焦甜香料,焦甜香韵突出,烟香味丰富,刺激感降低;加糖量为40%时难以拌匀,且甜感没有进一步提升,余味稍有不适;加糖量低于30%时,焦甜感和丰富性减弱,效果不明显。不同加糖量下复合焦甜香料的感官评价得分如表1所示。由表1可知,加糖量为30%时,感官评价得分最高。因此,选择加糖量为30%较为适宜。

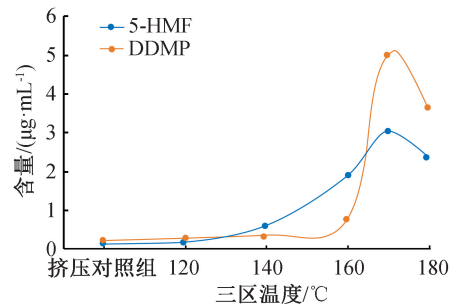
2.1.2 挤压温度 不同挤压温度下复合焦甜香料的香味成分含量变化如图2所示,感官评价得分如表2所示。由图2a)可知,随着挤压温度升高总香味成分含量先升高后降低,当三区温

表1 不同加糖量下复合焦甜香料的感官评价得分
Table 1 Sensory evaluation scores of the synergistic caramel products with different glucose supplement

样品	glucose supplement						合计
	光泽	香气	谐调	杂气	刺激	余味	
空白组	5.0	27.5	4.5	9.0	15.5	20.5	82.0
对照组	5.0	28.2	4.6	9.0	16.1	20.6	83.5
加糖量10%	5.0	28.3	4.7	9.1	16.5	20.8	84.4
加糖量20%	5.0	28.6	4.8	9.2	17.0	20.9	85.5
加糖量30%	5.0	29.0	5.0	9.6	17.0	21.1	86.7
加糖量40%	5.0	29.0	4.9	9.5	16.9	20.9	86.2



a) 总香味成分含量



b) 5-HMF和DDMP含量

图2 不同挤压温度下复合焦甜香料的香味成分含量变化

Fig. 2 The change of the flavor compounds of synergistic caramel products at different reaction temperature

度为170℃时,总香味成分含量达到最高。由图2b)可知,复合香料焦甜香韵成分5-HMF和DDMP在三区温度分别为120℃和140℃挤压处理时略有提升,160℃挤压处理时明显升高,在170℃时达到最大。与挤压对照组相比,三区170℃挤压处理的复合焦甜香料5-HMF含量提高了6.4倍,DDMP含量提高了16.1倍,总香味成分含量提高了23.6%。温度升至180℃时,由于温度过高,香味成分有所损失,总香味成分和焦甜香韵成分含量均有所下降。由表2可知,三区170℃处理的复合焦甜香料感官评价

得分最高,香气丰富性显著提升,烟气细腻,刺激性降低明显;三区 180 °C 处理的复合焦甜香料焦感过强,烟香协调性不足,细腻柔和感也稍差,余味舒适性不足.整体而言,三区 170 °C、二区 150 °C 较为适宜.

2.2 挤压法复合焦甜香料香味成分分析结果

宜宾不适用烟叶挤压处理前后香味成分含量的变化如表 3 所示.由表 3 可知,与挤压对照

表 2 不同挤压温度下复合焦甜香料的感官评价得分

Table 2 Sensory evaluation scores of the synergistic caramel products at different reaction temperature 分

样品	光泽	香气	谐调	杂气	刺激	余味	合计
空白组	5.0	27.5	4.5	9.0	15.5	20.5	82.0
挤压对照组	5.0	27.9	4.6	9.0	15.8	20.6	82.9
三区 120 °C	5.0	28.5	4.7	9.0	16.6	20.8	84.6
三区 140 °C	5.0	28.5	4.7	9.1	16.8	21.0	85.1
三区 160 °C	5.0	28.7	4.8	9.2	17.0	21.0	85.7
三区 170 °C	5.0	29.0	5.0	9.6	17.0	21.1	86.7
三区 180 °C	5.0	28.9	4.8	9.5	16.7	20.9	85.8

表 3 宜宾不适用烟叶挤压处理前后香味成分含量的变化

Table 3 The change of the contents of flavor compounds after extrusion reaction for Yibin discarded tobacco leaves

类型	香味成分	t_R /min	含量/($\mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$)	
			挤压对照组	挤压处理组
焦甜香韵成分	糠醛	9.78	0.27	0.28
	2-乙酰基吡咯	15.98	0.53	0.26
	DDMP	17.88	0.18	3.07
	3,5-二羟基-2-甲基-4(<i>H</i>)-吡喃-4-酮	18.63	—	0.36
	5-HMF	19.36	0.68	5.05
	合计		1.66	9.02
萜烯及其衍生物类	巨豆三烯酮	24.88	1.27	3.72
	3-羟基- β -大马酮	25.23	3.82	5.11
	烟叶酮	25.49	3.93	3.16
	3,5,5-三甲基-4-(3-羟基-1-丁烯基)-2-环己烯酮	25.63	13.21	14.93
	3-羟基-烟叶酮	26.39	5.33	6.54
	茛酮	28.02	—	4.67
	香树烯	28.09	4.52	9.29
	日齐素	28.17	10.25	6.49
	卡巴拉丁烯	31.55	—	0.62
	1,5,9-三甲基-12-异丙基-4,8,13-十四三烯-1,3-二醇	33.83	24.30	24.18
生物碱类	西柏三烯-1,3-二醇	34.54	38.69	93.53
	11,12-二羟基螺维特瓦二烯-2-酮	34.95	—	12.20
	合计		105.32	184.44
	烟碱	21.72	52.74	51.13
	麦思明	22.93	3.54	2.76
	可替宁	26.50	3.84	3.89
酸类	合计		60.12	57.78
	苯甲酸	18.01	0.91	0.67
	苯乙酸	19.66	5.63	1.80
	棕榈酸	29.54	27.49	12.60
	亚麻酸	32.57	29.25	19.13
内酯类	合计		63.28	34.20
	二氢猕猴桃内酯	24.46	5.05	5.82
	东莨菪素	30.12	51.08	58.33
小分子醇类	合计		56.13	64.15
	苯甲醇	15.33	0.57	0.33
	苯乙醇	17.25	0.55	0.50
	对羟基苯乙醇	22.69	1.26	—
其他	合计		2.38	0.83
	苯乙醛	15.63	0.13	—
	4-(3-羟基丙烯基)-2-甲氧基苯酚	26.76	3.95	3.17
	油酸酰胺	34.82	19.37	33.81
总计		23.45	36.98	
			313.42	387.40

注:“—”表示未检测到.

组相比,三区 170 °C、二区 150 °C 挤压处理的复合香料焦甜香韵成分,如 5-HMF、3,5 二羟基-2-甲基-4(H)-吡喃-4-酮、DDMP 等均有不同程度的提高,焦甜香韵成分总量提高了 4.4 倍。这些焦甜香韵成分赋予卷烟焦糖、咖啡及焙烤香气,能丰富烟香,增加甜感,改善余味^[14]。巨豆三烯酮、3-羟基- β -大马酮、西柏三烯-1,3-二醇等烟草本香萜烯类成分也有明显提高,这些成分可以提升卷烟香气的丰富性^[15-16]。酸类成分和小分子醇类成分含量有所降低,其他类型的香味成分含量变化不大。

整体而言,通过高温挤压处理后,复合焦甜香料香味成分含量明显提升,其加香效果也显著增强。分析其原因可能为:一是烟叶自身的单糖及外加的单糖发生了一定的焦糖化反应,增加了焦甜成分的含量;二是烟叶的大分子香味前体化合物发生了分解,使萜烯类本香成分增多^[14-15]。

2.3 制备工艺的适用性分析

不同产地不适用烟叶复合焦甜香料的感官评价特点如表 4 所示。由表 4 可知,与挤压对照组相比,不同产地的不适用烟叶经三区 170 °C、二区 150 °C 挤压处理后,得到的复合焦甜香料加香效果明显提升,主要体现在香气量增加、香气提升、刺激感降低等,说明该方法对不同产地的不适用烟叶有一定的适用性。

3 结论

本研究以焦糖化反应为基础,开发了一种

表 4 不同产地不适用烟叶复合焦甜香料的感官评价特点

Table 4 Sensory evaluation characteristics for the synergistic caramel products of discarded tobacco leaves from different producing areas

烟叶产地	挤压对照烟	试验烟
德昌	烟香不足,稍有清新细腻感	焦香明显,香气量提升,香气质改善
陕西	烟香缺失严重,带有苦味和异味	香气量提升,刺激性降低,有回甜
河南	烟气粗糙,香气质乱,残留明显	香气量提升,刺激感明显降低

挤压法复合焦甜香料,采用单因素试验进行该复合焦甜香料制备工艺的确定,并利用 GC-MS 法和感官评价分析该香料的香味成分和制备工艺的适用性。结果表明:加糖量 30%,三区温度 170 °C、二区温度 150 °C 是比较合适的香料制备条件;挤压法制备的复合香料焦甜香韵成分和萜烯类烟草本香成分均有不同程度的提高;该香料有较好的卷烟加香效果,能提升卷烟香味的丰富性,增加甜感,改善口感,并且该香料的制备工艺对于不同产地的不适用烟叶有一定的适用性。

参考文献:

- [1] CHAPPEL C I, HOWELL J C. Caramel colours: a historical introduction [J]. Food & Chemical Toxicology, 1992, 30(5):351.
- [2] GOLON A, KUHNERT N. Characterisation of "caramel-type" thermal decomposition products of selected monosaccharides including fructose, mannose, galactose, arabinose and ribose by advanced electrospray ionization mass spectrometry methods [J]. Food & Function, 2013, 4(7):1040.
- [3] 杨伟. 以葡萄糖和麦芽糖生产焦糖色素的工艺研究与性质对比[D]. 无锡:江南大学, 2008.
- [4] 李美玲, 王卓琳, 黎庆涛, 等. 焦糖色素及其研究进展[J]. 中国调味品, 2019, 44(9): 189.
- [5] 李祥, 苏秀霞, 吴桂霞, 等. 挤压法焦糖色素生产工艺研究[J]. 中国酿造, 2007, 26(2):43.
- [6] 乐毅, 刘学文, 伍学明, 等. 挤压法生产焦糖色素机理分析及试制产品考察[J]. 食品与发酵科技, 2010, 46(4):53.
- [7] 魏忠保, 代惠娟, 张鹏, 等. 不适用烟叶在造纸法再造烟叶中的应用研究[J]. 造纸装备及材料, 2020, 49(5):70.
- [8] ZHANG X Z, GAO H J, ZHANG L F, et al. Extraction of essential oil from discarded tobacco

- leaves by solvent extraction and steam distillation, and identification of its chemical composition[J]. *Industrial Crops & Products*, 2012, 39:162.
- [9] 雷声, 杨锡洪, 张玲, 等. 糖及糖衍生物在卷烟增香保润中的研究进展[J]. *农产品加工*, 2016(12):44.
- [10] 米兰, 熊珍, 秦瑜, 等. 工业不适用烟叶打叶复烤内在品质改善研究[J]. *湖北农业科学*, 2016, 55(19):5144.
- [11] ZHAO G H, YU Y L, ZHOU X T, et al. Effects of drying pretreatment and particle size adjustment on the composting process of discarded flue-cured tobacco leaves[J]. *Waste Management & Research*, 2017, 35:534.
- [12] LI T X, JI L B, JIANG Z R, et al. Caramel products of glucose with water during heating process and their bioactivities[J]. *International Journal of Food Properties*, 2020, 23:978.
- [13] LI T X, LUO C, GENG Z Z, et al. Type I caramel products of maltose and sucrose with water and their antioxidant activities [J/OL]. *Food Science and Technology*, 2021. [2021-04-22]. <https://doi.org/10.1590/fst.58520>.
- [14] 戴魁, 李诗平, 王文斌, 等. 模拟红薯烘烤制备焦甜香香料及其卷烟应用[J]. *烟草科技*, 2015, 48(9):27.
- [15] 许春平, 熊亚妹, 刘远上, 等. 不同加热醇化时间对烟草薄片浓缩液香味成分的影响[J]. *轻工学报*, 2021, 36(1):30.
- [16] 叶建斌, 吕丽文, 王璐, 等. 造纸法再造烟叶工艺流程中中性香味物质的变化[J]. *河南农业大学学报*, 2019, 53(3):415.

本刊数字网络传播声明

本刊已许可中国知网, 万方数据资源系统, 维普网, 国家科技学术期刊开放平台, 博视网, 超星, 中国科技论文在线, 中教数据库, EBSCOhost, CA, Ulrichs, FSTA 等在其系列数据库产品中以数字化方式复制、汇编、发行、信息网络传播本刊全文. 其相关著作权使用费与本刊稿酬一并支付. 作者向本刊提交文章发表的行为即视为同意我刊上述声明.