



## بررسی غلظت و نوع ماده دیواره بر خصوصیات ریزکپسول د-لیمونن تهیه شده جهت تعیین شرایط بهینه تولید نبات طعم‌دار

شهرزاد وطن خواه لطف آبادی<sup>۱</sup>، سید علی مرتضوی<sup>۲\*</sup>، سمیرا یگانه زاد<sup>۳</sup>، علیرضا صادقیان<sup>۳</sup>

۱. دانشجوی دکتری، علوم و صنایع غذایی، پردیس بین الملل دانشگاه فردوسی مشهد

۲. استاد، گروه علوم و صنایع غذایی، دانشگاه فردوسی مشهد

۳. استادیار، گروه فراوری مواد غذایی، پژوهشکده علوم و صنایع غذایی

(تاریخ دریافت: 96/2/8، تاریخ بازنگری: 96/4/11، تاریخ پذیرش: 96/4/12)

### چکیده

هدف از این پژوهش ریزپوشانی د-لیمونن با پوشش مقاوم صمغ عربی و مالتودکسترین جهت تهیه نبات طعم‌دار بود. بدین منظور امولسیون‌های روغن در آب با غلظت‌های 10 و 20٪ تهیه گردید و خصوصیات آن‌ها شامل اندازه ذرات و پایداری مورد بررسی قرار گرفت؛ سپس امولسیون‌ها با استفاده از فرایند خشک‌کردن پاششی ریزپوشانی گردیده و ویژگی‌های آن نظیر مقدار ماده موثره سطحی، مقدار ماده موثره داخل کپسول، راندمان ریزپوشانی، سرعت رهایش و ساختار میکروسکوپی ریزکپسول‌ها مورد بررسی قرار گرفت. نتایج نشان داد نوع و غلظت دیواره دارای اثر معنی داری بر روی فاکتورهای مورد بررسی بوده است ( $p < 0/05$ ). به طوری که با افزایش نسبت صمغ عربی به مالتودکسترین اندازه ذرات کوچک‌تر شده و هم‌چنین با افزایش غلظت دیواره از 10 به 20٪، نیمه عمر د-لیمونن در مدت زمان 6 هفته نگهداری در دمای اتاق، به‌طور معنی‌داری افزایش یافت. ریزکپسول بهینه با نسبت 75 به 25 از صمغ عربی به مالتودکسترین در غلظت 20٪ از دیواره جهت تهیه نبات طعم‌دار به‌کار گرفته شد و اثر مقدار ریزکپسول مورد استفاده، pH و دمای شربت بر راندمان تشکیل محصول و زمان تشکیل اولین کریستال مورد بررسی قرار گرفت. نتایج نشان داد که اثر دما و میزان ریزکپسول بر راندمان نبات و هم‌چنین دمای شربت و تغییرات pH بر مدت زمان تشکیل اولین کریستال معنی‌دار بود ( $p < 0/05$ ). براساس آزمایش‌های انجام شده شرایط بهینه جهت حصول بالاترین راندمان تولید نبات، 11/800٪ و زمان تشکیل اولین کریستال، 33/74 min، استفاده از دمای 85°C، مقدار ریزکپسول معادل 0/04 g و  $pH = 6/99$  تعیین گردید.

واژه‌های کلیدی: ریزپوشانی، نبات، د-لیمونن، خشک‌کردن پاششی، ریز کپسول.

## 1- مقدمه

شده‌اند [4]. از دلایل عمده استفاده از فرایند ریزپوشانی می‌توان به کاهش میزان واکنش‌پذیری هسته با عوامل محیطی، کاهش سرعت انتقال مواد درون هسته به محیط بیرونی، بالابردن امکان جابه‌جایی و انتقال آسان‌تر، رهاسازی کنترل‌شده مواد در زمان مورد نظر [8، 9]، پوشاندن طعم هسته [10]، پراکندگی یکنواخت هسته در سراسر مخلوط و جلوگیری از ایجاد واکنش بین اجزای هسته و سایر اجزای مواد غذایی اشاره نمود. اهمیت انتخاب ماده مناسب به‌عنوان دیواره کپسول جهت ریزپوشانی اجزای غذایی و مواد طعم‌دهنده از یک طرف به لحاظ برخورداری بودن از ویژگی‌های عمومی نظیر خاصیت امولسیفایری مناسب، تشکیل فیلم، گرانشی پایین در غلظت‌های بالا، رطوبت‌پذیری پایین، بدون مزه و پایدار بودن، عدم واکنش با ماده ریزپوشانی شده و اثر حفاظت‌کنندگی برای اسانس‌ها، مواد طعم‌دهنده و سایر اجزای پوشش داده شده [11] و از سوی دیگر به لحاظ مباحث اقتصادی به جهت کاربرد آن در صنایع تولیدی بسیار مورد توجه است. بنابراین انتخاب ماده دیواره به عواملی شامل توقع و نیاز نهایی که از محصول انتظار می‌رود، ماهیت ماده هسته، نوع فرایند ریزپوشانی، مباحث اقتصادی و تایید ماده دیواره انتخابی به لحاظ مراجع قانونی نظارت بر مواد غذایی وابسته می‌باشد [12]. ریزپوشانی ترکیبات معطر و طعم‌دار با استفاده از روش‌های گوناگونی نظیر خشک‌کردن پاششی<sup>1</sup>، سردکردن پاششی<sup>2</sup>، اکستروژن<sup>3</sup>، خشک‌کردن انجمادی<sup>4</sup>، جداسازی فازی<sup>5</sup> انجام می‌گیرد که از میان انواع آن‌ها خشک‌کردن پاششی و اکستروژن، دو روش عمده در فرایندهای صنعتی به‌شمار می‌آید [13].

کربوهیدرات‌هایی نظیر نشاسته‌های هیدرولیزشده و اصلاح‌شده، مشتقات سلولز، مالتودکسترین و سیکلو دکسترین‌ها، انواع صمغ شامل صمغ عربی، آگار، سدیم آلژینات، کاراگینان و پروتئین‌هایی مانند پروتئین آب پنیر، کازئینات‌ها و ژلاتین از جمله مواد دیواره‌ای هستند که در این روش مورد استفاده قرار می‌گیرند [13]. انتخاب نسبت هسته به دیواره نیز از اهمیت زیادی برخوردار است [14، 15]. نتایج مطالعات گوناگون نشان داده است اکثر محصولات که به روش

نبات ماده غذایی حاصل از محلول اشباع شکر و آب می‌باشد که طی برخی از فرایندهای فیزیکی، کریستال‌های رشد یافته زیبایی ایجاد می‌کند. به‌طور کلی آبنبات‌ها به دو دسته کریستالی و آمورف تقسیم می‌شوند. آبنبات‌های کریستالی در طی فرایند کریستالیزاسیون تشکیل شده که این نوع آبنبات‌ها دارای کریستال معلق در محلول شکر اشباع می‌باشند. کریستال‌ها ممکن است بزرگ و شبیه شیشه بوده، همانند نبات و یا ممکن است کوچک با بافت صاف باشند که به راحتی در دهان شکسته می‌شوند. آبنبات‌های کریستالی دارای الگو کریستالی ساختار یافته از مولکول‌ها می‌باشند که اطراف یک هسته یا دانه شکل گرفته‌اند و بنابراین مخلوط شکر برای آبنبات‌های کریستالی باید فاقد هرگونه عامل مختل‌کننده شرایط سکون آن‌ها جهت سرد شدن باشند. ایجاد و توسعه کریستال وابسته به فاکتورهای متفاوتی شامل دما، نوع و غلظت شکر، روش سرد کردن و استفاده از مواد افزودنی است که در توسعه کریستالیزاسیون دخالت می‌کنند [1]. نبات سفید کریستال‌های رشد یافته ساکارز است، که از محلول آب و شکر سفید، طی فرایند کریستالیزاسیون حاصل می‌شود. ماده اولیه در شکر، قند و نبات یکسان است ولی کریستال‌هایی که در نبات ایجاد می‌شود از نظر وضعیت فیزیکی و رشد کریستال‌ها با قند و شکر متفاوت است. به همین دلیل خاصیت قند و شکر با خاصیت نبات متفاوت بوده و نبات طبیعت گرم‌تری نسبت به قند و شکر دارد [2]. غلامحسین‌پور و همکاران [3] به ارزیابی فرایند تولید سنتی نبات و بهینه‌یابی کریستالیزاسیون ساکاروز پرداختند. نتایج آن‌ها نشان داد که استفاده از روش سنتی به دلیل حضور مواد غیر قندی، مصرف نامناسب از مقدار آب جهت اختلاط با ساکاروز و همچنین استفاده از ضایعات نبات سبب اثرات منفی بر روی فرایند تولید و سبب کاهش راندمان می‌شود.

ریزپوشانی فرایندی است که در آن ذرات کوچک مواد جامد، مایع یا گاز به‌وسیله لایه نازکی احاطه و خشک شده و اندازه ذرات به دست آمده در این سامانه تا حدود  $5000\mu\text{m}$  می‌باشد [6، 7] به لحاظ ساختمانی، ریزکپسول‌ها از دو بخش ماده مرکزی (هسته) و دیواره یا ماده پوشش‌دهنده تشکیل

1. Spray drying  
2. Spray chilling  
3. Extrusion  
4. Freeze drying  
5. Coacervation

در کشور ایران و برخی کشورهای عربی استفاده از نبات به همراه انواع نوشیدنی‌های گیاهی و در کشورهای غربی به همراه نوشیدنی‌های الکلی جایگاه بسیار خوبی دارد. در حال حاضر تولید آن در کشور بیش تر به روش سنتی بوده و تعداد محدودی واحد صنعتی با استفاده از فناوری‌های نوین و در جهت هرچه بهتر نمودن کیفیت نبات، اقدام به تولید این فرآورده به صورت صنعتی نموده‌اند. نظر به گسترش مصرف و صنعتی شدن تولید نبات، تمایل به ایجاد تنوع در این محصول روند رو به رشدی داشته و هرگونه تغییر در فرمولاسیون، بهبود و توسعه طعم سازگار با ذائقه مصرف‌کننده، کمک شایانی به توسعه تولید این محصول در داخل و همچنین گسترش صادرات آن به خارج از مرزهای کشور خواهد داشت. از طرفی جهت تولید نبات طعم‌دار، پایداری ترکیبات آروماتیک در غذا همواره یکی از چالش‌های تولیدکنندگان مواد غذایی بوده چراکه این ترکیبات نه تنها بسیار حساس و فرار هستند بلکه بسیار گران‌قیمت نیز می‌باشند. ریزپوشانی<sup>1</sup> روش مؤثری به‌منظور حفاظت از ترکیبات معطر و طعم‌دار در برابر تبخیر، تخریب و مهاجرت از مواد غذایی می‌باشد [4] و استفاده از این فناوری سبب ایجاد پوشش مناسب در اطراف ترکیبات معطر و طعم‌دار شده و موجب کاهش فرار و آزاد سازی مواد فعال در موقع و زمان مناسب می‌شود [5].

هدف از انجام این تحقیق، بررسی تأثیر نوع ماده دیواره (صمغ عربی و مالتو دکسترین)، در دو غلظت 10 و 20٪ و همچنین در نسبت‌های مختلفی از ترکیب دیواره (75:25، 50:50 و 25:75) جهت ریزپوشانی د-لیمونن به روش خشک کردن پاششی بر پایداری ریزکپسول‌ها در طی 6 هفته نگهداری و در گام بعدی، اثر استفاده از ریزکپسول بر راندمان فرایند و مدت زمان تشکیل اولین کریستال است.

## 2- مواد و روش‌ها

### 2-1- مواد

صمغ عربی و مالتو دکسترین با معادل دکستروز 19/5-16/5 از شرکت سیگما آلدریج آمریکا، د-لیمونن از شرکت ناکالی تسکو ژاپن و شکر از شرکت پانیز شهید بینالود تهیه گردید. سایر مواد شیمیایی مورد استفاده با خلوص بالا نیز از شرکت

خشک کردن پاششی تولید می‌شود در نسبت 4 به 1 از دیواره به ترکیبات معطر و طعم‌دار تهیه می‌شوند؛ این نسبت برای دیواره‌هایی نظیر صمغ عربی و سایر مشتق‌های کربوهیدراتی گزارش شده است [16].

کریشان و همکاران [17] به مطالعه بر روی ریزپوشانی الئورزین هل در پوشش دیواره‌ای ترکیبی شامل صمغ عربی، مالتو دکسترین و نشاسته اصلاح شده پرداختند. نتایج حاکی از این بود که ترکیب حاوی نسبت صمغ عربی: مالتو دکسترین: نشاسته اصلاح شده به ترتیب 4/6، 1/6، 1/6، کارآمدترین ترکیب ساخته شده بوده و حتی بهتر از 100٪ صمغ عربی عمل نمود. باربوسا و همکاران [18] اقدام به ریزپوشانی بیکسین توسط دیواره‌هایی شامل صمغ عربی، مالتو دکسترین، نمودند. دیواره‌های مورد استفاده شامل 95٪ صمغ عربی به همراه 5٪ ساکاروز و 80٪ مالتو دکسترین و 20٪ ساکاروز بالاترین راندمان را نشان دادند. با ریز پوشانی بیکسین حاصل از درخت آناتو با صمغ عربی و مالتو دکسترین مشاهده کردند که زمان نگهداری رنگدانه‌ها تا ده برابر افزایش یافت، همچنین اشاره شده است که انواع انکپسوله با صمغ عربی، 3 تا 4 برابر مقاوم‌تر از مالتو دکسترین است. کاناکاند و همکاران [19] به ریزپوشانی اولئورزین زیره با استفاده از صمغ عربی، مالتو دکسترین و نشاسته اصلاح شده به‌عنوان پوشش دیواره‌ای توسط خشک کن پاششی پرداخته و راندمان ریزپوشانی و پایداری آن‌ها را طی مدت انبارمانی مورد بررسی قرار دادند؛ نتایج آن‌ها نشان داد که صمغ عربی نسبت به مالتو دکسترین و نشاسته اصلاح شده دارای قدرت حفاظت‌کنندگی بالاتری بود با این حال نتایج حاصل از بررسی نیمه عمر نشان داد که استفاده از ترکیب این مواد دیواره با نسبت 4/6:1/6:1/6 به ترتیب صمغ عربی، مالتو دکسترین و نشاسته اصلاح شده دارای حفاظت بهتری برای ترکیبات فرار آن نسبت به استفاده از صمغ عربی بود. فرناندس و بورگس [20] به استفاده از ترکیب دیواره‌ای شامل صمغ عربی، نشاسته، مالتو دکسترین و اینولین جهت میکروانکپسولاسیون اسانس رزماری پرداختند. در این مطالعه به بررسی جایگزینی کامل یا بخشی از صمغ عربی با نشاسته اصلاح شده، مالتو دکسترین و اینولین به‌عنوان دیواره با روش خشک کردن پاششی پرداخته شد.

مرک آلمان تهیه و جهت تهیه و آماده‌سازی کلیه محلول‌ها از آب یون‌زدایی شده دوبار تقطیر استفاده گردید.

## 2-2- روش‌ها

### 2-2-1- تهیه سوسپانسیون کلوئیدی

محلول‌های، (w/w) 10 و 20٪ شامل صمغ عربی و مالتودکسترین در نسبت‌های مختلف با استفاده از یک همزن مغناطیسی تهیه و مخلوط گردیده و سپس جهت جذب حداکثر آب به مدت یک شب در یخچال نگهداری شدند.

### 2-2-2- تهیه امولسیون

برای تهیه امولسیون روغن در آب حاوی (w/w) 25٪ د-لیمونن در ماده خشک دیواره، د-لیمونن به محلول‌های کلوئیدی اضافه گردید و به مدت 5 min توسط همزن مغناطیسی مخلوط شدند. سپس همگن‌سازی نهایی با استفاده از دستگاه هموژنایزر التراتوراکس مدل T25، شرکت IKA، ساخت کشور آلمان، به مدت 3 min در 12000 rpm و در دمای اتاق انجام گرفت.

### 2-2-3- آزمون‌ها

#### 2-2-3-1- اندازه‌گیری اندازه ذرات امولسیون

متوسط قطر ذرات امولسیون<sup>1</sup> و شاخص بس‌پاشیدگی<sup>2</sup> با استفاده دستگاه تفرق نور پویا<sup>3</sup> مدل Nano-ZS شرکت مالورن ساخت کشور انگلیس با زاویه ثابت آشکارساز 17 درجه با طول موج 633 nm در دمای 25 °C اندازه‌گیری شد. به‌منظور جلوگیری از اثرات پراش چندگانه، امولسیون‌ها به نسبت 1 به 10 با استفاده از آب یون‌زدایی‌شده رقیق‌سازی شدند. با استفاده از معادله (1) قطر متوسط قطرات و با استفاده از معادله (2) شاخص بس‌پاشیدگی به‌دست آمد.

$$D_z = \frac{\sum S_i}{\sum D_i} \quad (1)$$

$S_i$  شدت ذرات با قطر  $D_i$

$$PDI = \frac{M_w}{M_n} \quad (2)$$

1. Z-average
2. Poly Dispersity Index (PDI)
3. dynamic light scattering

### 2-2-3-2- اندازه‌گیری ظرفیت امولسیون‌کنندگی

به‌منظور اندازه‌گیری ظرفیت امولسیون‌کنندگی، مقدار 5 mL از نمونه امولسیون به لوله آزمایش با ارتفاع 100 mm، قطر داخلی 10/8 mm میلی‌متر انتقال یافته و سپس در سانتریفیوژ مدل Z36HK شرکت HERMLE، ساخت کشور آلمان، با شرایط 1800 g به مدت 10 min در دمای 25 °C سانتریفیوژ شدند و بر اساس معادله (3) محاسبه گردید [21].

$$(3) \text{ ارتفاع لایه امولسیون شده (mm)} = \frac{\text{ظرفیت امولسیون‌کنندگی}}{\text{ارتفاع کل (mm)}}$$

### 2-2-3-3- تهیه ریزکپسول

به‌منظور تهیه ریزکپسول، امولسیون‌های حاصل در خشک‌کن پاششی آزمایشگاهی مدل B-191، شرکت Buchi، ساخت کشور سوئیس، با دمای ورودی 180 ± 10 °C، دمای خروجی 90 ± 10 °C، سرعت پمپ 10 mL/min و سرعت جریان هوای 600 l/h و فشار 4 bar خشک شدند. ریزکپسول‌های تهیه شده تا زمان انجام آزمون در ظروف کاملاً درب بسته و در دمای 18 °C نگهداری شدند.

### 2-2-3-4- آزمون‌های مربوط به ریزکپسول

#### 2-2-3-4-1- تعیین میزان رطوبت

رطوبت نمونه‌ها با استفاده از دستگاه سنجش رطوبت (شرکت A&D-Limited کشور ژاپن) در دمای 105 ± 1 °C تا رسیدن به وزن ثابت اندازه‌گیری شد؛ بدین‌منظور مقدار 0/5 g از نمونه در ظرف مخصوص دستگاه قرار گرفت و به کمک اسپاتول کاملاً پخش گردید تا موجب خروج بهتر رطوبت از نمونه گردد. سپس به مدت 20 min داخل دستگاه تحت عملیات خشک‌کردن قرار گرفت [13].

#### 2-2-3-4-2- تعیین دانسیته توده<sup>1</sup>

برای محاسبه دانسیته توده ابتدا پودرها را به آرامی وارد استوانه مدرج با حجم 100 mL نموده و تا شاخص 100 mL از

1. Bulk density

**2-2-5-6- بررسی سرعت رهایش د-لیمونن**

به منظور بررسی پایداری و ثبات دیواره‌ها پودرهای تهیه شده به مدت 4 هفته در دمای اتاق نگهداری شد و درصد باقی مانده د-لیمونن از تقسیم کردن مقدار آن در زمان مورد بررسی ( $t_p$ ) بر مقدار اولیه آن در زمان ( $t_0$ ) و ضرب خارج قسمت حاصل در عدد 100 محاسبه گردید. داده‌های به دست آمده در مقیاس نیمه لگاریتمی نسبت به زمان رسم شده و شیب منحنی ( $k$ ) به عنوان سرعت رهایش محاسبه گردید. به منظور تعیین نیمه عمر د-لیمونن از معادله (5) استفاده گردید [25].

$$t_{1/2} = \frac{0.693}{k} \quad (5)$$

**2-2-5-7- مشاهده ساختار ریزکپسول‌ها با میکروسکوپ الکترونی روبشی**

به منظور مشاهده ریزساختار نمونه تهیه شده در شرایط بهینه، از میکروسکوپ الکترونی روبشی مدل 360، شرکت OXFORD، ساخت کشور انگلیس، استفاده شد. نمونه‌ها توسط دستگاه پوشش‌دهنده با لایه‌ای نازک از جنس طلا-پالادیوم پوشش داده شدند. پس از تابیده شدن شعاعی از الکترون‌های پرشتاب با ولتاژ 10 kv به نمونه‌ها، با قدرت تفکیک 100 nm و بزرگنمایی 1500 برابر تصویربرداری شد و لذا تصویر بر اساس شعاع الکترونی برگشتی از نمونه‌ها به دست آمد.

**2-2-6- بررسی راندمان فرایند تشکیل نبات و مدت زمان تشکیل اولین کریستال**

به منظور بررسی راندمان فرایند و مدت زمان تشکیل اولین کریستال در فرایند تولید نبات؛ فاکتورهای هم‌چون دمای مناسب اضافه کردن ریزکپسول‌ها به شیره نبات قبل از کریستالیزاسیون، مقدار طعم‌دهنده پوشش داده شده و pH شربت ساکاروز مورد بررسی قرار گرفت. در همین راستا راندمان فرایند و زمان تشکیل اولین کریستال به عنوان پاسخ در نظر گرفته شد؛ لازم به ذکر است که از مقادیر بهینه دیواره ریزپوشانی در این بخش استفاده گردید.

**2-3- طراحی آزمایش**

آزمایشات مربوط به تهیه امولسیون و ریزپوشانی در قالب طرح

نمونه پر و وزن شد، سپس حجم به طور مستقیم از روی استوانه مدرج خوانده شده و پس از آن جهت محاسبه دانسیته توده مطابق با رابطه‌ی جرم / حجم محاسبه می‌گردد [22].

**2-2-5-3- تعیین مقدار ماده مؤثره در سطح کپسول**

میزان د-لیمونن سطحی با استفاده از دستگاه اسپکتروفوتومتر UV-Visible، (GENWAY کشور انگلستان)، اندازه‌گیری شد. بدین منظور از روش مورد استفاده توسط نجف نجفی و کدخدایی [22] استفاده گردید. روغن موجود بر سطح یک گرم از پودر با 20 mL حلال هگزان استخراج شد. بدین منظور پودر و حلال به مدت 5 دقیقه توسط شیکر همزده شد و در دمای اتاق ذرات پودر با استفاده از کاغذ صافی واتمن شماره یک از حلال جدا گردید. حلال باقی مانده توسط بالن ژوژه 25 میلی لیتری و با کمک هگزان به حجم 25 mL رسانده شد و جذب آن در 252 nm خوانده شد. منحنی استاندارد با استفاده از غلظت‌های مختلفی از د-لیمونن در هگزان رسم گردید. از جذب نمونه هگزان به عنوان شاهد به منظور جلوگیری از خطای جذب در دستگاه استفاده شد.

**2-2-5-4- تعیین مقدار ماده مؤثره داخل کپسول**

از پودر حاصل از شستشو با هگزان برای تعیین مقدار ماده‌ی مؤثره داخل کپسول استفاده شد. یک گرم از پودر در 20 mL آب مقطر به لوله آزمایش درب پیچ‌دار منتقل شد و به مدت یک دقیقه با شیکر مخصوص لوله همزده شد. سپس به این نمونه هگزان اضافه گردیده و در داخل حمام بن ماری  $45^\circ\text{C}$  به مدت 20 min قرار داده شد. در طول این مدت هم‌زدن به صورت متناوب انجام گرفته و پس از آن لوله آزمایش در دمای اتاق سرد شد و به مدت 20 min در 4000 rpm سانتریفوژ گردید تا فاز آبی از فاز حلال جدا گردد. سپس جذب نمونه‌ها در 252 nm توسط اسپکتروفوتومتر خوانده شدند [23].

**2-2-5-5- تعیین راندمان تولید ریزکپسول**

جهت تعیین راندمان ریزپوشانی از روش ارائه شده توسط قهرمانی فر و همکاران (1389) استفاده گردید [24].

$$(4) \quad \text{مقدار د-لیمونن در ریزکپسول‌ها} = \frac{\text{مقدار د-لیمونن در امولسیون اولیه}}{\text{راندمان ریزپوشانی}}$$

کاملاً تصادفی با استفاده از فاکتوریل و با ۲ تکرار انجام نسخه ۹ استفاده شد. بدین منظور از طرح مرکب گردید؛ داده‌های به دست آمده توسط نرم افزار Minitab 16 مرکزی جهت بررسی تأثیر متغیرهای مستقل شامل آنالیز و میانگین تکرارها توسط نرم افزار MSTATC در دمای مناسب اضافه نمودن ریزکپسول‌ها به شربت قالب آزمون چند دامنه‌ای دانکن و در سطح 95٪ مورد (60-110 °C)، مقدار ریزکپسول طعم‌دهنده (0/01-0/08 g) مقایسه قرار گرفتند. در مرحله بهینه‌سازی فرایند تولید و pH شربت (6/5-7) بر ویژگی‌های محصول استفاده نبات، از روش سطح پاسخ و نرم افزار Design Expert گردید.

جدول (1) نمایش متغیرهای مستقل فرایند و مقادیر آن‌ها

Table 1 Independent variables and their values

| کد و سطح مربوطه<br>Code and their values |      |      | نماد ریاضی<br>Symbol | متغیرهای مستقل<br>Independent variables         |
|--|------|------|----------------------|---|
| -1                                       | 0    | +1   |                      |   |
| 60                                       | 85   | 110  | $x_1$                | دما (سانتی‌گراد)<br>Temperature (°C)            |
| 0.01                                     | 0.04 | 0.08 | $x_2$                | مقدار ریزکپسول (گرم)<br>Microcapsule amount (g) |
| 6.5                                      | 6.75 | 7    | $x_3$                | pH  |

جدول (2) تیمارهای راندمان فرایند تشکیل نبات و مدت زمان تشکیل اولین کریستال

Table 2 Treatments of yield and the time for formation of first crystal

| زمان تشکیل اولین کریستال (دقیقه)<br>Time for formation of first crystal | راندمان<br>Yield | pH   | میکروکپسول (گرم)<br>Microcapsule (g) | دما (سانتی‌گراد)<br>Temperature (°C) | تیمار<br>Treatment |
|---|------------------|------|--------------------------------------|--------------------------------------|--------------------|
| 35  | 10.95            | 6.75 | 0.04                                 | 85                                   | 1                  |
| 42  | 8.42             | 7    | 0.01                                 | 110                                  | 2                  |
| 11  | 9.22             | 7    | 0.08                                 | 60                                   | 3                  |
| 11  | 9.14             | 6.5  | 0.08                                 | 60                                   | 4                  |
| 30  | 11.98            | 7    | 0.04                                 | 85                                   | 5                  |
| 38  | 7.74             | 7    | 0.08                                 | 110                                  | 6                  |
| 36  | 11.85            | 6.75 | 0.04                                 | 85                                   | 7                  |
| 45  | 9.11             | 6.5  | 0.01                                 | 110                                  | 8                  |
| 30  | 12.51            | 6.75 | 0.01                                 | 85                                   | 9                  |
| 45  | 7.13             | 6.5  | 0.08                                 | 110                                  | 10                 |
| 34  | 10.13            | 6.75 | 0.08                                 | 85                                   | 11                 |
| 35  | 10.52            | 6.75 | 0.04                                 | 85                                   | 12                 |
| 39  | 11.35            | 6.5  | 0.04                                 | 85                                   | 13                 |
| 12  | 9.5              | 6.75 | 0.04                                 | 60                                   | 14                 |
| 36  | 12               | 6.75 | 0.04                                 | 85                                   | 15                 |
| 36  | 11.56            | 6.75 | 0.04                                 | 85                                   | 16                 |
| 12  | 8.52             | 6.5  | 0.01                                 | 60                                   | 17                 |
| 34  | 11.1             | 6.75 | 0.04                                 | 85                                   | 18                 |
| 40  | 8.04             | 6.75 | 0.04                                 | 110                                  | 19                 |
| 13  | 9.67             | 7    | 0.01                                 | 60                                   | 20                 |

## 3-نتایج و بحث

## 3-1- بررسی خصوصیات امولسیون‌ها

## 3-1-1- تأثیر نسبت صمغ عربی به مالتودکسترین بر توزیع

## اندازه ذرات امولسیون

اندازه قطرات امولسیون یک عامل مهم در تعیین خصوصیات امولسیون می‌باشد. نتایج جدول آنالیز واریانس توزیع اندازه قطرات نشان داد که تأثیر غلظت و نوع ماده دیواره بر قطر متوسط قطرات معنی‌دار است ( $p < 0/05$ ) به طوری که با افزایش غلظت ماده دیواره، اندازه قطرات امولسیون در تمامی نسبت‌های اختلاط کاهش یافت (جدول 3). این روند کاهشی را می‌توان به حضور مقادیر بیش‌تر هیدروکلوئید به‌منظور پوشش بهتر سطح مشترک تازه شکل گرفته بین آب و اسانس پس از همگن‌سازی نسبت داد.

هم‌چنین می‌توان گفت که ممکن است این کاهش به دلیل تشکیل امولسیون پایدارتر در غلظت‌های بالاتر مواد دیواره‌ای به سبب ایجاد حداکثر توانایی محافظت‌کنندگی در برابر تجمع و بهم چسبیدن آن‌ها طی فرایند ریزپوشانی گردد [26]؛ حسین‌زاده و همکاران [27] در بررسی ریزپوشانی روغن نعناع با استفاده از غلظت‌های دیواره‌ای 10، 20 و 30٪ از صمغ عربی و مالتودکسترین به نتایج مشابهی مبنی بر کاهش اندازه ذرات امولسیون با افزایش غلظت ماده دیواره دست یافتند. همان‌طور که در شکل (1)، ملاحظه می‌شود با افزایش

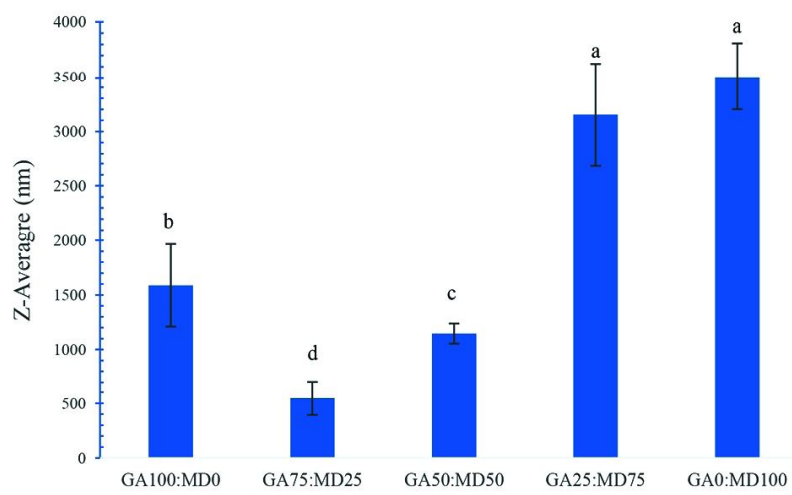
نسبت مالتودکسترین به صمغ عربی اندازه قطر قطرات افزایش یافت، به طوری که بزرگ‌ترین اندازه ذره را مالتودکسترین خالص به خود اختصاص داد ( $3505 \pm 303/62$  nm). هم‌چنین نتایج اندازه قطر قطرات نشان داد که نسبت‌های ترکیبی صمغ عربی و مالتودکسترین تفاوت معنی‌داری با میزان خالص هر کدام از آن‌ها دارد ( $p < 0/05$ ). با توجه به مقایسه اندازه ذرات، این افزایش را می‌توان مربوط به خواص امولسیون‌کنندگی ضعیف مالتودکسترین نسبت داد. دیواره صمغ عربی در سطوح مختلف ترکیب با مالتودکسترین حاکی از کاهش معنی‌دار اندازه ذرات بود که این مطلب بیانگر عملکرد بهتر صمغ عربی به‌علت خصوصیات امولسیفایری گوناگون آن مانند مکان‌های لیپوفیلیک و هیدروفوبیک بیش‌تر در زنجیره‌ی بیوپلیمری، سرعت جذب، وزن مولکولی، تعدیل شکل‌پذیری صمغ عربی مربوط می‌شود [26]؛ میرعلایی مطلق و همکاران نیز در ریزپوشانی روغن زنجبیل در عصاره چای سبز توسط مالتودکسترین و نشاسته‌ی اصلاح شده با نسبت‌های مختلف به نتایج مشابهی مبنی بر افزایش اندازه ذرات امولسیون با افزایش میزان مالتودکسترین نسبت به نشاسته اصلاح شده اشاره نمودند [28]. با توجه به مشاهده اعداد شاخص بس پاشیدگی در شکل (1)، با افزایش میزان نسبت مالتودکسترین، این شاخص افزایش داشت لیکن این تغییرات معنی‌دار نبود ( $p < 0/05$ ).

جدول (3) میانگین قطر قطرات، شاخص بس پاشیدگی و ظرفیت امولسیون‌کنندگی

Table 3 Z-average, PDI, emulsion capacity

| غلظت (%)          | نسبت اختلاط* (GA:MD) | قطر متوسط قطرات (نانومتر) | شاخص بس پاشیدگی | ظرفیت امولسیون‌کنندگی (%) |
|-------------------|----------------------|---------------------------|-----------------|---------------------------|
| Concentration (%) | Wall material ratio  | Z-average (nm)            | PDI             | Emulsion Capacity (%)     |
|                   | 100:0                | 1517±200.8                | 0.41±0.3        | 91.59±1.57                |
|                   | 75:25                | 683±4.37                  | 0.38±0.078      | 97.04±0.9                 |
| 10                | 50:50                | 1186±56.57                | 0.44±0.009      | 98.17±1.36                |
|                   | 25:75                | 3550±94.04                | 0.66±0.018      | 92.72±2.08                |
|                   | 0:100                | 3701±308.3                | 0.84±0.224      | 77±2.38                   |
|                   | 100:0                | 1659±200.8                | 0.4±0.07        | 90±1.13                   |
|                   | 75:25                | 415±16.54                 | 0.36±0.02       | 93±4.82                   |
| 20                | 50:50                | 1107±125.86               | 0.4±0.075       | 94.89±3.22                |
|                   | 25:75                | 2755±161.93               | 0.47±0.17       | 93±0.76                   |
|                   | 0:100                | 3309±166.88               | 0.51±0.033      | 84±4.75                   |

\*GA: صمغ عربی، MD: مالتودکسترین



شکل (1) تأثیر نوع و نسبت هیدروکلوئید بر قطر قطرات امولسیون

Fig. 1 Effect of the type of wall material and their ration on Z-Average

### 3-2-2- بررسی خصوصیات ریزکپسول‌ها

#### 3-2-1- اندازه‌گیری رطوبت

با توجه به این‌که شرایط تهیه ریزکپسول‌ها یکسان و تنها نوع ماده پوشش‌دهنده متفاوت بود، اختلاف معنی‌داری در رطوبت نمونه‌ها در نسبت‌های مختلف مشاهده نشد. می‌توان چنین نتیجه‌گیری کرد که میزان رطوبت در پودرهای حاصل از فرایند خشک‌کردن پاششی به ترکیبات ماده دیواره بستگی نداشته و شرایط خشک‌کردن مهم‌ترین عامل میزان رطوبت پودر می‌باشد. حتی و همکاران [31] نشان دادند که میزان رطوبت بستگی به ترکیب ماده دیواره و اندازه ذرات ندارد. نتایج آنالیز واریانس نشان داد که با افزایش غلظت ماده دیواره رطوبت به‌طور معنی‌داری (دیواره با غلظت 10 و 20٪ به ترتیب حاوی  $6/26 \pm 0/2$  و  $5/17 \pm 0/25$ ) کاهش می‌یابد ( $p < 0/05$ ) این نتیجه به دلیل افزایش میزان ماده جامد دیواره و کاهش رطوبت در دسترس برای تبخیر است بدین ترتیب با افزایش غلظت ماده جامد، میزان رطوبت پودر حاصل کاهش می‌یابد [32-34].

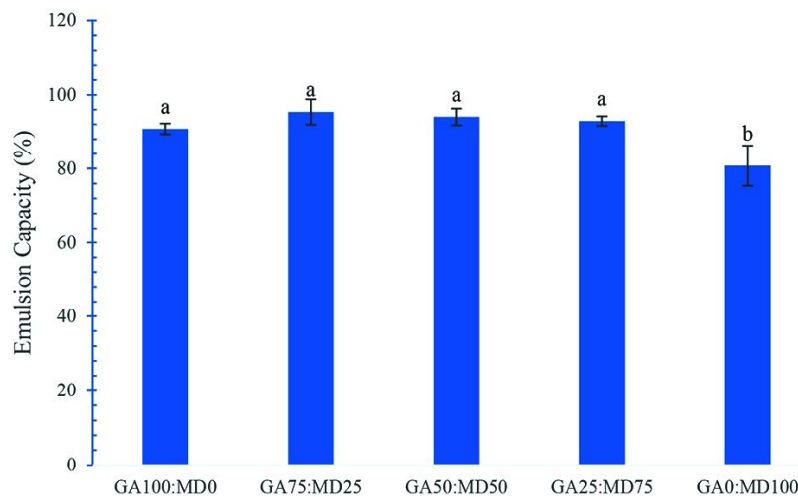
#### 3-2-2- چگالی توده

چگالی توده عامل بسیار مهمی در بسته‌بندی و حمل و نقل می‌باشد. پودرهایی با چگالی بالا فضای کم‌تری را در حین نگهداری اشغال می‌کند [20]. چگالی توده ذرات بین 0/18 تا 0/28 گرم بر میلی‌لیتر متغیر بود. نتایج آنالیز واریانس

### 3-1-2- پایداری امولسیون

نتایج پایداری امولسیون‌های حاوی دوغلظت 10 و 20 درصد از صمغ عربی، مالتودکسترین و نسبت‌های مختلفی از ترکیب آن‌ها در جدول (3) نشان داده شده است. نتایج آنالیز واریانس نشان داد که تنها نوع ماده دیواره اثر معنی‌داری بر روی پایداری امولسیون‌ها دارد. همانطور که از شکل (2) پیداست کم‌ترین پایداری (80/82٪) در امولسیون حاوی 100٪ مالتودکسترین به‌عنوان ماده دیواره مشاهده گردید. علت این ناپایداری را می‌توان به حرکات آزادانه روغن نسبت داد چرا که این حرکات (حرکات براونی) موجب تجمع قطرات می‌شود. افزایش پایداری با افزودن صمغ عربی به سامانه امولسیونی، را می‌توان با افزایش گرانیوی فاز آبی امولسیون مرتبط دانست چرا که در این حالت با توجه به قانون استوکس، همراه با افزایش گرانیوی حرکت قطرات به سمت بالا کند می‌شود و این خود موجب پایداری سامانه می‌گردد. از طرفی صمغ عربی با توجه به وزن مولکولی بالا می‌تواند قطرات را به خوبی در شبکه سه بعدی ایجاد شده محصور کند [29]. بوف و همکاران [30] با بررسی تأثیر زمان-دما بر خصوصیات امولسیون‌کنندگی صمغ عربی به نتایج مشابهی دست یافتند و مشاهده کردند که خصوصیات امولسیون‌کنندگی آن پس از حرارت بهبود یافت.





شکل (2) تأثیر نوع و نسبت هیدروکلونید پایداری امولسیون

Fig. 2 Effect of the type of wall material and their ration on emulsion capacity

به این نتیجه رسیدند که افزایش میزان دیواره سبب کاهش میزان روغن سطحی می‌گردد و علت آن نیز مربوط به افزایش پایداری امولسیون و جلوگیری از تخریب و آزاد شدن ترکیبات هسته در طی فرایند خشک‌کردن شده که در نهایت سبب کاهش میزان روغن سطحی بر روی ریزکپسول می‌گردد.

#### 3-2-4- تعیین مقدار ماده مؤثره داخل کپسول

نتایج حاصل نشان داد که با افزایش غلظت ماده دیواره و همچنین افزایش نسبت صمغ عربی به مالتودکسترین، میزان باقی ماندن د-لیمونن در داخل ریزکپسول نیز بیش‌تر می‌شود ( $p < 0/05$ ). نجف نجفی و کدخدایی [23] در ریزپوشانی لیمونن به روش خشک‌کردن انجمادی اظهار نمودند که با افزایش مقدار ماده دیواره‌ای سرعت تشکیل لایه نیمه تراوا در اطراف لیمونن بیش‌تر شده و بدین ترتیب از دست رفتن لیمونن طبق تئوری انتشار انتخابی کاهش می‌یابد. تایجسن و همکاران [37] اظهار نمودند که با کاهش غلظت آب در سطح قطره، ضریب انتشار ترکیبات فرار چندین برابر شده، بدین ترتیب هنگام خشک شدن امولسیون در حین فرایند، آب به صورت مداوم و با سرعت مشخصی از میان پوسته تشکیل شده خارج می‌شود ولی ترکیبات فرار و سایر اجزای فاز پیوسته به علت به دام افتادن در مواد دیواره‌ای در حال خشک شدن، با سرعت ناچیزی از کپسول خارج می‌شوند. این دیواره همانند

نشان داد که با افزایش غلظت ماده دیواره چگالی توده به‌طور معنی‌داری (دیواره با غلظت 10 و 20٪ به ترتیب حاوی  $0/19 \pm 0/009$  و  $0/24 \pm 0/017$ ) افزایش می‌یابد ( $p < 0/05$ ).

#### 3-2-3- تعیین مقدار ماده مؤثره در سطح کپسول

اهمیت تعیین میزان ماده مؤثره سطحی بدین سبب است که حضور روغن در سطح میکروکپسول منجر به اکسید شدن این ترکیبات شده و سبب ایجاد ترکیبات نامطلوب می‌گردد که در ماندگاری ریزکپسول‌ها تأثیر به‌سزایی دارد [35]. نتایج حاصله حاکی از آن بودند که نوع و غلظت دیواره دارای اثرات معنی‌داری بر میزان روغن سطحی داشته است به‌طوری‌که با افزایش میزان غلظت ماده دیواره روغن کم‌تری بر روی سطح ریزکپسول‌ها مشاهده گردید. هم‌چنین با افزایش میزان نسبت مالتودکسترین به صمغ عربی میزان روغن سطحی افزایش داشت (جدول 4).

سوتیتانوات و همکاران [36] بیان نمودند که هرچه اندازه ذرات امولسیون بزرگ‌تر باشد، مقدار و محتوی روغن سطحی بالاتری نسبت به امولسیون‌های کوچک‌تری وجود دارد لذا نتایج حاصل از ذرات امولسیون و مقدار ماده مؤثر سطحی این پژوهش در راستای یافته‌های آن‌ها می‌باشد. قهرمانی فر و همکاران [24] در ریزپوشانی د-لیمونن توسط پروتئین آب پنبه تغلیظ شده با غلظت‌های مختلف از این ماده دیواره‌ای

هوا و رطوبت، و اندازه ذرات پودر) فاکتورهایی هستند که بر روی راندمان ریزپوشانی اثرگذارند. اخوان مهدوی و همکاران [40] نشان دادند که بالاترین راندمان ریزپوشانی آنتوسیانین در استفاده از مخلوط صمغ عربی و مالتوکستین در مقایسه با استفاده از مالتوکستین به تنهایی و هم‌چنین مالتوکستین و ژلاتین مشاهده گردید. این گزارش در راستای بررسی قارسولی و همکاران [9] نیز به این نکته اشاره دارد که استفاده از یک نوع ماده دیواره‌ای، کلیه ویژگی‌های موردنیاز را مهیا نمی‌کند بنابراین مخلوطی از کربوهیدرات‌ها به همراه پروتئین و پلی ساکاریدها سبب ایجاد بالاترین راندمان می‌شود.

### 3-2-6- بررسی پایداری مواد مؤثره

پایداری حین انبارمانی جهت ترکیبات اصلی مولد عطر و طعم یکی از مهم‌ترین معیارهای ترکیبات حاصل از فرایند ریزپوشانی می‌باشد [41] بررسی د-لیمونن طی مدت 6 هفته پایش نشان داد میزان ماندگاری این ترکیب به شدت وابسته به ماده دیواره‌ای و غلظت آن بود ( $p < 0/05$ ).

کریشان و همکاران [17] نیز در بررسی خود بیان نمودند که از میان ماده دیواره‌ای مورد استفاده شامل صمغ عربی، مالتوکستین و نشاسته اصلاح شده به‌عنوان ترکیب دیواره‌ای جهت ریزپوشانی تعدادی ترکیبات مولد عطر و طعم، صمغ عربی بیش‌ترین میزان حفاظت‌کنندگی را در مدت زمان شش هفته‌ای در شرایط محیطی نشان می‌دهد. حسین زاده و همکاران [27] نیز در بررسی چگونگی روند رهاش منتول و لیمونن از غلظت‌های مختلف دیواره ترکیبی مالتوکستین و صمغ عربی بدین نتیجه رسیدند که روند کاهش این دو ترکیب در دمای محیط به صورت خطی می‌باشد و این‌که با افزایش غلظت دیواره، میزان رهاش در طی زمان کم‌تر می‌شود بدین معنی که کپسول‌ها در این شرایط دارای نیمه عمر بیش‌تری خواهند بود. هم‌چنین اظهار شده است که علت این به دام‌اندازی ترکیبات هسته در صمغ عربی مربوط به توانایی بسیار خوب این صمغ در تشکیل فیلم و ویژگی پلاستیک آن نسبت به حالت شیشه‌ای می‌باشد. حالت پلاستیکی سبب جلوگیری از شکافتن ماتریس حفاظتی می‌شود [15].

یک غشاء نیمه‌تراوا اجازه خروج مولکول‌های آب را داده ولی از خروج ترکیبات فرار جلوگیری نموده و یا مانع از خروج مواد فرار از سطح ریزکپسول‌های حاصله می‌گردد. بادی و همکاران [38] در ریزپوشانی روغن نعناع توسط خشک‌کن پاششی از نسبت‌های 1:1 صمغ عربی به مالتوکستین و هم‌چنین هر کدام از دیواره‌ها به تنهایی به‌عنوان ماده ی دیواره استفاده نمودند، نتایج حاکی از عملکرد ضعیف مالتوکستین به تنهایی به‌عنوان پوشش دیواره‌ای در نگهداری روغن نعناع بود که این امر را می‌توان به توانایی پایین این ماده در تشکیل فیلم نسبت داد؛ از طرفی در حین فرایند خشک‌شدن ماتریکس مرطوب می‌بایست همزمان با خروج آب، پوسته‌ای را در اطراف ترکیبات معطر و طعم دار تشکیل دهد؛ حال آن‌که مالتوکستین فاقد ویژگی امولسیفایری بوده بنابراین در نگهداری این نوع ترکیبات بسیار ضعیف عمل می‌کند. در این مطالعه استفاده از صمغ عربی به تنهایی و هم‌چنین نسبت 1:1 از آن‌ها دارای مناسب‌ترین قدرت نگهداری ترکیبات معطر و طعم دار بود.

### 3-2-5- تعیین راندمان تولید ریزکپسول

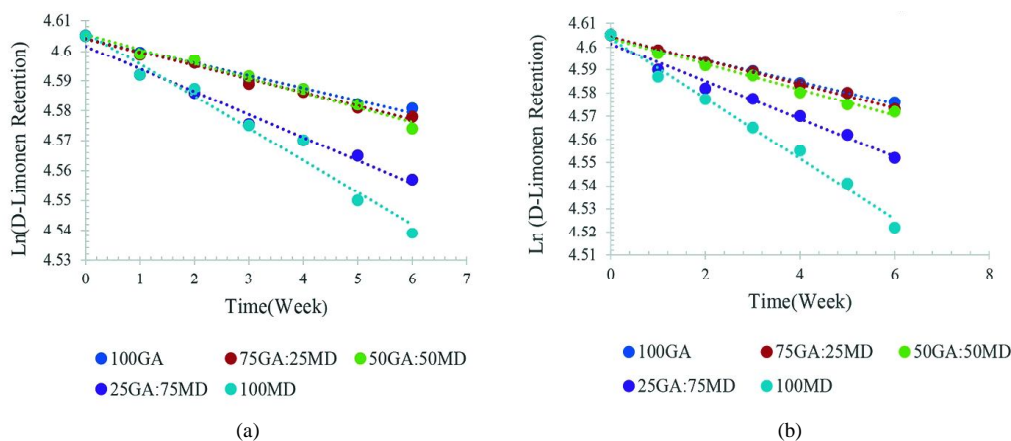
نتایج اندازه‌گیری مربوط به راندمان ریزپوشانی د- لیمونن در جدول (4) آمده است. نتایج حاکی از آن است که نوع و نسبت ماده دیواره اثر معنی‌داری بر راندمان ریزپوشانی دارد ( $p < 0/05$ ). همان‌طور که مشاهده می‌شود افزایش میزان نسبت مالتوکستین به صمغ عربی موجب کاهش راندمان ریزپوشانی می‌شود. مطابق جدول (4) بیش‌ترین راندمان ریزپوشانی مربوط به غلظت 20 درصد ماده دیواره در نسبت 3 به 1 صمغ عربی به مالتوکستین می‌باشد. بررسی محققین نشان داده است که راندمان ریزپوشانی با کاهش اندازه ذرات در امولسیون افزایش می‌یابد چرا که امولسیون‌های با ذرات بزرگ در حین فرایند خشک کردن، اتمیزه و در نتیجه مقداری از مواد هسته آزاد می‌گردد در نتیجه موجب کاهش راندمان ریزپوشانی می‌گردد [39].

جعفری و همکاران [11] بیان کردند که ویژگی‌های مواد دیواره و هسته علاوه بر ویژگی‌های امولسیون و شرایط خشک‌کردن (خصوصاً شرایط فرایند خشک‌کردن پاششی نظیر دمای ورودی و خروجی، سرعت جریان خوراک ورودی، جریان

جدول (4) خصوصیات ریزکپسول‌ها  
Table 4 Microcapsules characteristics

| عمر (روز)<br>$t_{1/2}$ | ضریب تبیین<br>$R^2$ | معادله رگرسیون<br>Regression | راندمان (%)<br>Efficiency | ماده موثره داخلی (%)<br>Total oil retention (%) | ماده موثره سطحی (%)<br>Surface oil retention (%) | رطوبت (%)<br>Moisture | نسبت اختلاط (GA:MD) *<br>Wall material ratio | غلظت (%)<br>Concentration (%) |
|------------------------|---------------------|------------------------------|---------------------------|---|--|-----------------------|--|-------------------------------|
| 147.45                 | 0.9905              | $y = -0.0047x + 4.6035$      | 75.7                      | 5.02  | 18.1   | 6.2                   | 100:0  |                               |
| 135.88                 | 0.9939              | $y = -0.0051x + 4.6042$      | 71.81                     | 44.31   | 19.945   | 6.495                 | 75:25  |                               |
| 126                    | 0.9896              | $y = -0.0055x + 4.6036$      | 69.42                     | 41.12   | 20.86  | 6.23                  | 50:50  | 10                            |
| 85.86                  | 0.9794              | $y = -0.0081x + 4.6013$      | 64.62                     | 34.64   | 22.435   | 6.345                 | 25:75  |                               |
| 53.31                  | 0.9903              | $y = -0.013x + 4.6036$       | 58.92                     | 28.035  | 23.655   | 6.02                  | 0:100  |                               |
| 165.00                 | 0.9869              | $y = -0.0042x + 4.6042$      | 79.17                     | 56.6  | 16.12  | 5.09                  | 100:0  |                               |
| 154                    | 0.9886              | $y = -0.0045x + 4.6041$      | 77.26                     | 53.55   | 17.315   | 5.285                 | 75:25  |                               |
| 141.43                 | 0.9822              | $y = -0.0049x + 4.6055$      | 69.61                     | 42.55   | 20.79  | 5.08                  | 50:50  | 20                            |
| 90                     | 0.981               | $y = -0.0077x + 4.6016$      | 67.76                     | 39.86   | 21.43  | 5.27                  | 26:75  |                               |
| 64.77                  | 0.9754              | $y = -0.0107x + 4.6062$      | 61.01                     | 31.41   | 23.24  | 5.145                 | 0:100  |                               |

\*GA: صمغ عربی، MD: مالتودکسترین



شکل (3) تأثیر نوع و نسبت هیدروکلئید در پایداری ریزکپسول‌های با غلظت 10٪ (a) و 20٪ (b) غلظت 20٪  
 Fig. 3 Effect of the type of wall material and their ratio on stability of microcapsules by wall material concentration of (a) 10%, (b) 20%

### 3-3- بررسی خصوصیات راندمان فرایند و مدت زمان تشکیل اولین کریستال

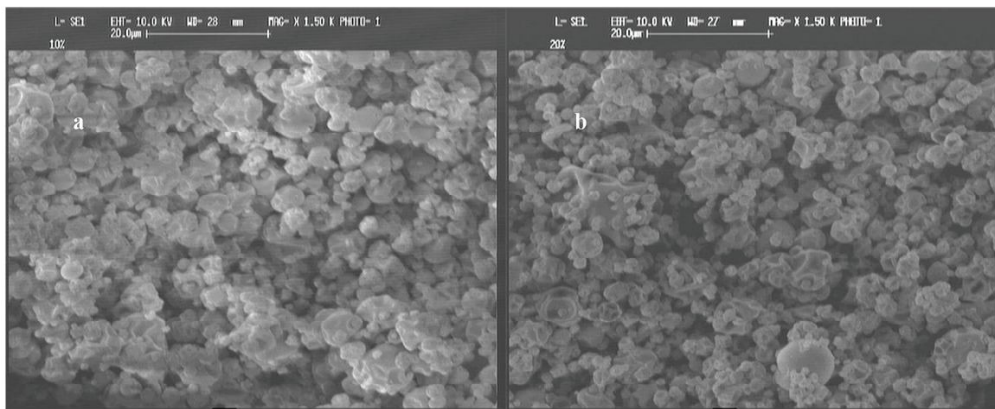
ارزیابی تناسب تمامی مدل‌های حاصل از پاسخ‌های مذکور، تحت تأثیر سه متغیر مستقل دمای شربت، مقدار ریزکپسول و تغییرات pH در سه سطح ارزیابی و نتایج در جدول (5) به اختصار ذکر گردیده است.

مدل چند متغیره درجه دوم جهت پیش‌بینی اثر متغیرهای مستقل دمای فراوری ( $x_1$ )، مقدار ریزکپسول ( $x_2$ )، pH ( $x_3$ ) و هم‌چنین اثر متقابل دمای شیره با مقدار ریزکپسول ( $x_1x_2$ )، اثر متقابل دمای شیره با pH ( $x_1x_3$ )، اثر متقابل مقدار ریزکپسول با pH ( $x_2x_3$ ) و هم‌چنین اثرات درجه دوم دمای شیره ( $x_{12}$ )، مقدار ریزکپسول ( $x_{22}$ ) و pH ( $x_{32}$ ) به ترتیب بر میزان راندمان فرایند و مدت زمان تشکیل اولین کریستال در محصول تولیدی با ضریب همبستگی  $R^2=0/9223$ ،  $R^2=0/9795$  و هم‌چنین ضریب تغییرات 6/14 و 7/64 به دست آمد که با ارزیابی ضعف برازش (Lack of fit)، تناسب مدل مذکور نیز تایید گردید.

نتایج آنالیز، نشان داد که دمای شربت و مقدار ریزکپسول بر روی راندمان محصول تولیدی در سطح 5 درصد معنی‌دار بود ( $p<0/05$ ). بدین صورت که افزایش دما موجب افزایش تجزیه ساکاروز و در نتیجه تبدیل آن به قند اینورت می‌گردد. با توجه به این‌که قند اینورت توانایی کریستال شدن ندارد با کاهش هرچه بیش‌تر pH افزایش در میزان اینورت و کاهش میزان کریستالیزاسیون را خواهیم داشت (شکل 5) از سوی دیگر با افزایش دما تا حدودی موجب از هم پاشیدگی

### 3-2-7- مشاهده ریزساختار ریزکپسول‌ها با میکروسکوپ الکترونی روبشی

با توجه به نتایج حاصل از فاکتورهای مورد ارزیابی، مناسب‌ترین دیواره جهت ریزپوشانی د-لیمون در غلظت دیواره 10 و 20٪ نسبت 3 به 1 از صمغ عربی به مالتودکسترین به‌منظور مشاهده ساختار ریزکپسول حاصله مورد تصویربرداری با میکروسکوپ الکترونی با بزرگنمایی 1500 قرار گرفت (شکل 4). همان‌طور که ملاحظه می‌گردد هر دو سطح شیاردار و صاف در شکل دیده می‌شود؛ میکروکپسول‌ها نسبتاً کروی بوده و تورفتگی را بر روی سطح خود نشان می‌دهند که این حفرات به خروج سریع آب در مراحل اولیه خشک کردن نسبت داده می‌شود [33] فرناندس و همکاران [20] نتایج کاملاً مشابهی را در استفاده از دیواره صمغ عربی و مالتودکسترین جهت ریزپوشانی اسانس رزماری به دست آوردند بدین ترتیب که این هیچ‌یک از دیواره‌ها شکافتگی را در سطح خود نشان ندادند که حاکی از اطمینان عدم نشستی دیواره‌ها در خروج ماده ی هسته و در نتیجه حفاظت بهتر بود و عموماً همگی دارای سطح کروی شکل و دارای چروکیدگی بودند. رویبانو و همکاران [42] در بررسی اثر امولسیفایرها در ریزپوشانی د-لیمون توسط صمغ عربی و مالتودکسترین نیز نشان دادند که ریزکپسول‌های حاصله دارای ساختار کروی فاقد شکاف می‌باشد. لذا جهت طعم‌دار کردن نبات در مرحله‌ی بعدی پژوهش، از غلظت دیواره 20٪ با نسبت 3 به 1 از صمغ عربی به مالتودکسترین استفاده گردید.



شکل (4) تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی در غلظت (a) 10٪ و (b) 20٪ در نسبت 3 به 1 صمغ عربی:مالتودکسترین

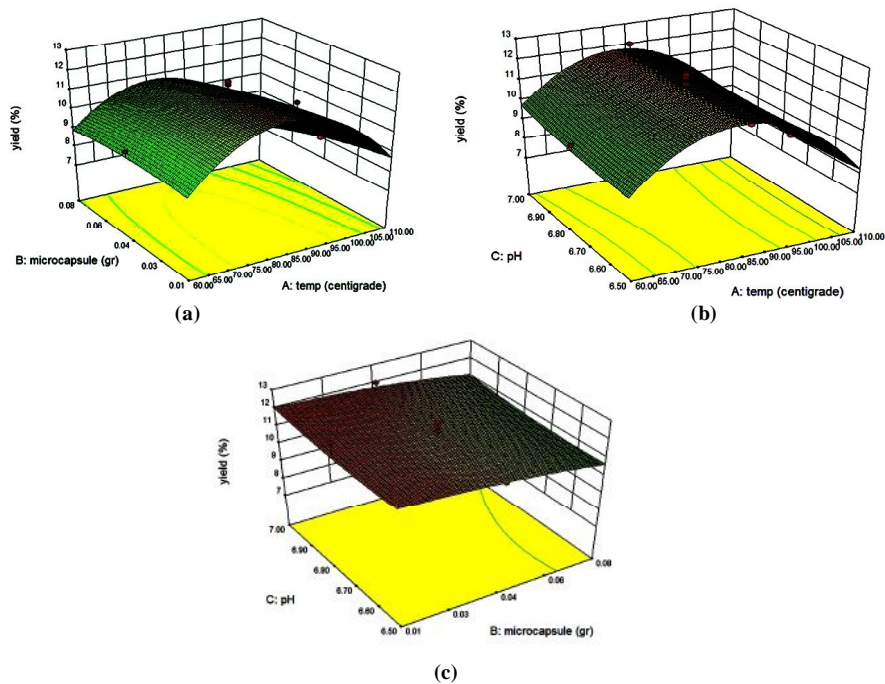
Fig. 4 SEM images of microcapsules prepared from gum Arabic:maltodextrin (3:1) (a) 10% , (b) 20%

جدول (5) آنالیز ANOVA و تحلیل آزمون ضعف برازش مدل‌های چند متغیره برای پاسخ‌های پژوهش

Table 5 Analysis of variance for responses

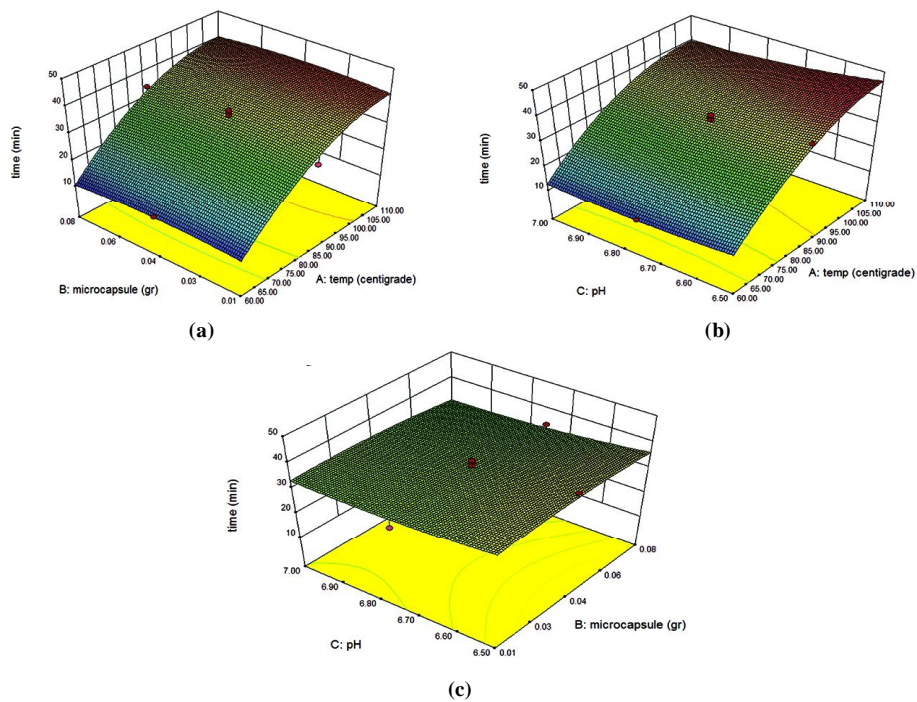
| مدت زمان تشکیل اولین کریستال<br>Time for formation of first crystal |                |             | راندمان فرایند<br>Yield |                |             | DF | Source              |
|---|----------------|-------------|-------------------------|----------------|-------------|----|---------------------|
| p-Value   | Sum of squares | Coefficient | p-Value                 | Sum of squares | Coefficient |    |                     |
| 0.0001 >  | 2604.48        | 34.21       | 0.0002                  | 44.88          | 11.40       | 9  | Model               |
| Linear  |                |             |                         |                |             |    |                     |
| 0.0001 >  | 2280.10        | 15.10       | 0.0162                  | 3.15           | -0.56       | 1  | X <sub>1</sub>      |
| 0.6930  | 0.90           | -0.30       | 0.0312                  | 2.37           | -0.49       | 1  | X <sub>2</sub>      |
| 0.0349  | 32.40          | -1.80       | 0.3815                  | 0.32           | 0.18        | 1  | X <sub>3</sub>      |
| Quadratic   |                |             |                         |                |             |    |                     |
| 0.0004  | 145.45         | -7.27       | 0.0001 >                | 20.54          | -2.73       | 1  | X <sub>11</sub>     |
| 0.3871  | 4.45           | -1.27       | 0.6319                  | 0.092          | -0.18       | 1  | X <sub>22</sub>     |
| 0.4036  | 4.14           | 1.23        | 0.6718                  | 0.072          | 0.16        | 1  | X <sub>33</sub>     |
| Interaction   |                |             |                         |                |             |    |                     |
| 0.8826  | 0.13           | -0.12       | 0.1347                  | 1.00           | -0.35       | 1  | X <sub>12</sub>     |
| 0.1266  | 15.13          | -1.37       | 0.4687                  | 0.21           | -0.16       | 1  | X <sub>13</sub>     |
| 0.4663  | 3.13           | -0.62       | 0.8974                  | 0.66           | 0.029       | 1  | X <sub>23</sub>     |
|   | 54.47          |             |                         | 3.78           |             | 10 | Residual            |
| 0.0762  | 43.64          |             | 0.7731                  | 2.15           |             | 5  | Lack of fit         |
|   | 10.83          |             |                         | 1.63           |             | 5  | Pure error          |
|   | 2658.95        |             |                         | 48.66          |             | 19 | Total               |
|   |                | 0.9795      |                         |                | 0.9223      |    | R <sup>2</sup>      |
|   |                | 0.9611      |                         |                | 0.8524      |    | Adj- R <sup>2</sup> |
|   |                | 7.64        |                         |                | 6.14        |    | CV                  |

ریزکپسول‌ها شده که این ازهم پاشیدگی موجب اختلال در فرایند کریستالیزاسیون می‌گردد در نهایت موجب کاهش راندمان می‌شود. ولیکن در دماهای پایین‌تر، از یک طرف با افزایش بریکس شربت، کم‌ترین میزان جابه‌جایی ریزکپسول‌ها را در شربت داشته که این مورد از اثر بر روی فرایند کریستاله شدن ممانعت کرده و از طرف دیگر به دلیل دمای کم‌تر، ساختار ریزکپسول دستخوش تغییر نخواهد شد. غلامحسین‌پور و همکاران [3] نیز نتایج مشابهی را نشان دادند به طوری که استفاده از دمای بالا سبب اینورت شدن ساکاروز شده و شربت در این حالت دارای مقادیر بالایی از اسیدهای مختلف و قند



شکل (5) (a) تاثیر دما و مقدار ریزکپسول بر راندمان تشکیل نبات، (b) تاثیر pH و دما بر راندمان تشکیل نبات، (c) تاثیر ریزکپسول و pH بر راندمان تشکیل نبات

Fig. 5 (a) The 3D response surface of temperature and amount of microcapsule, (b) pH and temperature, (c) amount of microcapsule and pH on rock candy yield.



شکل (6) (a) تاثیر دما و مقدار ریزکپسول بر مدت زمان تشکیل اولین کریستال، (b) تاثیر pH و دما بر مدت زمان تشکیل اولین کریستال، (c) تاثیر ریزکپسول و pH بر مدت زمان تشکیل اولین کریستال

Fig. (6) (a) The 3D response surface of temperature and amount of microcapsule, (b) pH and temperature, (c) amount of microcapsule and pH the time for formation of first crystal



به ظرف مورد نظر اتفاق افتاده و کریستال ایجاد می‌شود. از سوی دیگر حداقل تغییرات را در دیواره پودر ریزپوشانی شده در این دما خواهیم داشت؛ به علاوه در دماهای پایین‌تر اگرچه فرایند کریستاله شدن وجود دارد، اما جهت تکمیل فرایند نیاز به زمان بیش‌تری داشته به طوری که در بازه زمانی در نظر گرفته همان‌گونه که در شکل (6) نیز مشاهده می‌گردد، مدت زمان بیش‌تری را جهت تشکیل کریستال نیاز خواهد داشت.

### 3-4- ارزیابی تجربی و پیش‌بینی نقطه بهینه جهت صحت برازش مدل

برای پیش‌بینی مقدار مطلوبیت و ارزیابی تجربی (آزمایشگاهی) نقطه بهینه مدل تحت شرایط تعریف شده در این پژوهش که شامل نسبت‌های دمای استخراج  $85^{\circ}\text{C}$ ، مقدار میکروکپسول  $0/04\text{ g}$  و  $\text{pH}$  معادل  $6/99$  بودند، به بررسی میانگین پاسخ‌های به دست آمده شامل راندمان و زمان در نقطه بهینه پرداخته شد. براساس الویت پیش‌بینی بهینه نرم افزاری و تجربی به دست آمده در آزمایشگاه به ترتیب درصد راندمان  $11/800$ ،  $10/521$  و زمان  $33/742\text{ min}$  و  $30/05\text{ min}$  می‌باشد. این مجموعه شرایط توسط روش بهینه‌سازی RSM مطلوب شدند. مقدار شرایط مطلوبیت راندمان و زمان  $0/962$  از طریق آزمایشات واقعی به دست آمده در مقابل مدل پیشگویی، تأیید مدل RSM را نشان می‌دهد. مقادیر آزمایش تجربی جهت بررسی مدل در جدول (6) آمده است.

### 4- نتیجه گیری

نتایج به دست آمده نشان داد جهت ریزپوشانی د-لیمونن، استفاده از غلظت دیواره‌ای بالا سبب حفاظت بیش‌تر این ماده

اینورت بوده که از هیدرولیز ساکاروز حاصل می‌آید. علی‌رغم یکسان بودن شرایط فرایند مشاهده گردید که با افزایش مقدار ریزکپسول به علت اشغال فضای بیش‌تر به عنوان هسته، موجب کاهش راندمان در تمامی نمونه‌ها می‌گردد. از طرفی در صورت حرکت جزئی و انحلال ریزکپسول‌ها نیز راندمان را به گونه‌ای دیگر کاهش خواهد داد. ویکلاوی و کریستیان [1] نیز عنوان نمودند که حضور هرگونه عواملی خارجی که با عنوان عوامل مزاحم معرفی می‌شوند، از کریستالیزاسیون شکر ممانعت به عمل می‌آورد. چنین نتیجه‌ای نیز توسط غلامحسین‌پور و همکاران [43] بیان شد که حضور هرگونه ماده، غیر از شکر، منجر به کاهش در راندمان تولید محصول خواهد شد. پارامترهای دمای شربت و تغییرات  $\text{pH}$  بر روی مدت زمان تشکیل اولین کریستال محصول نیز معنی‌دار بود ( $p < 0/05$ ) و به‌عنوان تیمار مستقل تأثیرگذار در بین سایر تیمارها تعیین گردید (شکل 6). همان‌گونه که ذکر شد، کاهش  $\text{pH}$  به معنای تجزیه ساکاروز به عوامل تشکیل‌دهنده آن و در نتیجه کاهش راندمان می‌باشد. در حقیقت  $\text{pH}$  خنثی مناسب‌ترین شرایط جهت تشکیل کریستال می‌باشد؛ از طرفی چنانچه شربت در حالت فوق اشباع باشد جهت تشکیل کریستال، شربت را با کاهش دما وارد ناحیه ناپایدار نموده که این امر سبب تشکیل کریستال می‌شود. لذا با کاهش دما تا حدود  $85^{\circ}\text{C}$ ، مشاهده می‌شود که مناسب‌ترین شرایط جهت هسته‌گذاری و تشکیل کریستال است که مدت زمان کم‌تری را نسبت به دمای بالاتر برای رسیدن به مرحله ناپایداری و تشکیل هسته طی می‌کند؛ غلامحسین‌پور و همکاران [44] نیز افزایش میزان فوق اشباعیت تا منطقه کمی ناپایدار جهت تشکیل و رشد کریستال نیز اشاره نمودند به طوری که کاهش دما در هنگام انتقال شیره

جدول (6) ارزش تجربی و پیش‌بینی مقادیر بهینه تحت شرایط متعارف در این پژوهش  
Table 6 Predicted and experimental values of optimization process

| راندمان (X/Y)<br>Yield | بهینه تجربی (x)<br>Experimental (x) | بهینه پیش‌بینی (y)<br>Predicted (y) | pH   | مقدار ریزکپسول (g)<br>Microcapsule amount (g) | دما (درجه سانتی‌گراد)<br>Temperature ( $^{\circ}\text{C}$ ) | پاسخ‌ها<br>Responses                           |
|------------------------|-------------------------------------|-------------------------------------|------|---|---|--|
| 89.161                 | 10.521                              | 11.800                              | 6.99 | 0.04  | 85  | راندمان<br>Yield                               |
| 89.058                 | 30.05                               | 33.742                              | 6.99 | 0.04  | 85  | زمان<br>Time for formation<br>of first crystal |

ریزکپسول مورد استفاده بر راندمان تشکیل نبات حاصله از یک طرف و از سوی دیگر دمای شربت و تغییرات pH نیز بر مدت زمان تشکیل اولین کریستال موثر است.

### تشکر و قدردانی

محققان بدین‌وسیله کمال تشکر و قدردانی خود را از شرکت زعفران سحرخیز به جهت پشتیبانی در فراهم‌آوردن امکانات آزمایشگاهی لازم در این طرح اعلام می‌دارند.

می‌شود؛ هم‌چنین با افزایش نسبت استفاده از صمغ عربی به مالتودکسترین، نمونه‌ها دارای امولسیون پایدارتری نیز بودند. استفاده از غلظت دیواره 20٪ و نسبت 3 به 1 از صمغ عربی به مالتودکسترین، به‌منظور جایگزینی بخشی از صمغ عربی توسط مالتودکسترین مناسب‌ترین شرایط را به لحاظ میزان راندمان و نیمه عمر، به‌عنوان عوامل بسیار مهم در این بررسی، داشتند، لذا این دیواره جهت تهیه نبات طعم‌دار مورد استفاده قرار گرفت. مشاهدات حاصل از بررسی راندمان تشکیل نبات و مدت زمان تشکیل اولین کریستال نشان داد اثر دما و مقدار

### منابع

- ous system. *J. Agric. Food. Chem.*, 51, 3135–3139.
- [8] Zhu, F (2017). Encapsulation and delivery of food ingredients using starch based systems, *J. Food. Chem.*, 229, 542-552.
- [9] Gharsallaoui, A., G. Roudaut. (2007). Applications of spray-drying in microencapsulation of food ingredients: An overview. *J. Food Res.*, 40, 1107-1121.
- [10] Zuidam, N.J., Shimoni, E. (2010). Overview of microencapsulates for use in food products or processes and methods to make them, In Zuidam N.J, Nedovic V.A., (Eds.). *Springer-Verlag New York.*, 3-29.
- [11] Jafari, S. M., Assadpoor, E., He, Y., Bhandari, B. (2008). Encapsulation efficiency of food flavors and oils during spray drying. *Drying Tech.*, 26, 816–835.
- [12] Renu, R., Fathima, Z. (2015). *Microencapsulation of flavors. Int. J. Basic Appl. Biol.*, 2 (5), 333-338.
- [13] نجف نجفی، م. (1389) استفاده از امواج فراصوت در تولید امولسیون و ریزپوشانی ترکیبات موثره روغن هل. پایان نامه دکتری تخصصی، دانشگاه فردوسی مشهد.
- [14] Hogan, S. A., McNamee, B. F., O’Riordan, D. O’Sullivan, M. (2001). Microencapsulating properties of whey protein concentrate. *J. Food Sci.*, 66 (5), 675-680.
- [15] Bertolini, A.C., Siani, A.C., Grosso, C. R.F. (2001). [1] Vicolavi, A. V., Christian, E.W. (2008). Essential of food science, In: *Sugars, sweeteners and confections*, 3<sup>th</sup> ed., Springer, pp 331-348.
- [2] سازمان ملی استاندارد 1388. نبات-ویژگی و روش‌های آزمون. استاندارد ملی ایران شماره 739.
- [3] Gholamhosseinpour, A., Varidi, M. J., Elahi, M., Shahidi, F. (2008). Evaluation of traditional production process of rock candy and optimization of sucrose crystallization (Part2). *American-Eurasian J. Agric. Environ. Sci.*, 4 (2), 150-155.
- [4] Madene, A., Jacquot, M., Scher, J. and Desobry, S. (2006). Flavour encapsulation and controlled release- a review. *J. Food Sci. Tech.*, 41, 1-21.
- [5] Juteau, A., Cayot, N., Chabanet, C., Doublier, J. L., Guichard, E. (2004). Flavor release from  $\gamma$ -polysaccharide gels: different approaches for the determination of kinetic parameters. *Trend. Food Sci. Tech.*, 15, 394-402.
- [6] Cho, Y.H., Shin, D.S. and Park, J. (2000). Optimization of emulsification and spray drying processes for the microencapsulation of flavor compounds. *Korean J. Food Sci. Tech.*, 32, 132–139.
- [7] Chen, X.G., Lee, C.M. and Park, H.J. (2003). O/W emulsification for the self-aggregation and nanoparticle formation of linoleic acid modified chitosan in the aque-



- امولسیون بر خصوصیات پودرهای حاصل از فرایند ریزپوشانی. مجله علوم و فناوری غذایی. سال 2، شماره 2.
- [25] Vaidya, S., Bhosale, R., & Singhal, R.S. (2006). Microencapsulation of cinnamon oleoresin by spray drying using different wall materials. *Drying Tech.*, 24, 983-992.
- [26] Jafari, S. M., Bhandri, Y. H. E. (2007). Effectiveness of encapsulating biopolymers to produce sub-micron emulsions by high energy emulsification techniques. *Food Res Int.*, 40, 862-873.
- [27] حسین زاده، م؛ حداد خداپرست، م. ح؛ بستان، ا؛ محبی، م. (1395) ریزپوشانی روغن نعناع (*menthaspicata*) به روش خشک کردن پاششی. نشریه پژوهش‌های علوم و صنایع غذایی. جلد 12. شماره 4. ص 499-511.
- [28] میرعلایی مطلق، م؛ آریان فر، ا؛ شهیدی نوقابی، ا. م. (1394) ریزپوشانی روغن زنجبیل در عصاره چای سبز با نشاسته اصلاح شده و مالتودکسترین. ویژه‌نامه علوم و صنایع غذایی. جلد 13. شماره 1.
- [29] Dickinson, E. (2010). Food emulsions and foams: Stabilization by particles. *Current Opinion in Colloid & Interface Science.*, 15, 40-49.
- [30] Buff, R. A., Reineccius, G. A., and Oehlert, W. O. (2002). Influence of time-temperature treatment on the emulsifying properties of gum acacia in beverage emulsion. *J. Food Eng.*, 51, 341-345.
- [31] Hojjati, M., Razavi, H., Rezaei. K., Gilani, K. (2013). Effect of wall components on characteristics of natural canthaxanthin microencapsulated using spray-drying. *Iranian J. Nutr.Sci. Food Tech.*, 8(3), 46-54.
- [32] Muzaffar, K., Kumar, P. (2015). Parameter optimization for spray drying of tamarind pulp using response surface methodology. *Powder Tech.*, 279, 179-184.
- [33] Tonon, R. V., Brabet, C., Hubinger, M. D. (2008). Influence of process conditions on the physicochemical properties of acai (*Euterpe oleraceae* Mart.) Pow-  
Stability of monoterpenes encapsulated in gum Arabic by spray-drying. *J. Agric. Food Chem.*, 49, 780-785.
- [16] Beristain, C. I., García, H. S., Vernon-Carter, E. J. (2001). Spray-dried Encapsulation of Cardamom (*Elettaria cardamomum*) Essential oil with mesquite (*Prosopis juli-ora*) Gum. *Lebensm.-Wiss. u.-Technol.*, 34, 398-401.
- [17] Krishnan, S., Kshirsagar, A.C. and Singhal, R.S. (2005). The use of gum Arabic and modified starch in the microencapsulation of a food flavoring agent. *Carbohydr Polym.*, 62, 309-315.
- [18] Barbosa, M.I.M.J., Borsarelli, C.D. and Mercadante, A.Z. (2005). Light Stability of spray-dried bixin encapsulated with different edible polysaccharide preparations. *J. Food Res.*, 38, 989-994.
- [19] Kanakdande, D., Bhosale, R., Singhal, R. S. (2007). Stability of cumin oleoresin microencapsulated in different combination of gum arabic, maltodextrin and modified starch. *Carbohydr Polym.*, 67, 53-541.
- [20] Fernandes, R.V., Borges, S.V. (2014). Gumarabic/starch/maltodextrin/inulinas wall materials on the microencapsulation of rosemary essential oil. *Carbohydr Polym.*, 101, 524-532.
- [21] صادقیان، ع. (1392) بررسی برهمکنش‌های بین مولکولی بر ویژگی‌های امولسیون و ریزکپسول روغن هل. رساله دکتری، دانشگاه فردوسی مشهد.
- [22] Jinapong, N., Suphantharika, M., Jamnong, P. (2008). Production of instant soymilk powders by ultrafiltration, spray drying and fluidized bed agglomeration. *J. Food Eng.*, 84, 194-205.
- [23] نجف نجفی، م؛ کدخدایی، ر. (1390) ریزپوشانی لیمونین به روش خشک کردن انجمادی: تاثیر نوع و غلظت دیواره. نشریه پژوهش‌های علوم و صنایع غذایی ایران. جلد 7. شماره 3. ص 210-217.
- [24] قهرمانی فر، امین؛ محمدی ثانی، علی؛ نجف نجفی، مسعود؛ قهرمانی فر، مهدی. (1389). تاثیر ویژگی‌های

- eniería Competitividad*, 17 (2), 77-89.
- [43] Gholamhosseinpour, A., Varidi, M. J., Elahi, M., Shahidi, F. (2008). Evaluation of Traditional Production Process of Rock Candy and Optimization of Sucrose Crystallization (Part 1). *American-Eurasian J. Agric. Environ. Sci.*, 4 (1), 72-75.
- [44] غلامحسین پور، ع؛ الهی، م؛ وریدی، م. ج؛ شهیدی، ف. (1387) بررسی فرایند سنتی تولید نبات و معایب آن. پژوهش‌های علوم و صنایع غذایی ایران. دوره 4. شماره 1 (نیمه اول)، ص 23 - 35.
- der produced by spray drying. *J. Food Eng.*, 88 (3), 411-418.
- [34] Papadakis, S. E., Gardeli, C., Tzia, C. (2006). Sprays drying of raisin juice concentrate. *Drying Tech.*, 24, 173-180.
- [35] Subramaniam, A., Veazey, R. L., Schober, A., Rada, A., Rong, Y., van Sleuwen, R. A. T., Golding, R., Zhang, N. (2013). Orange oil stability in spray dry delivery systems, *Carbohydr Polym.*, 97 (2), 352-357.
- [36] Soottitantawat, A., Yoshii, H., Furuta, T., Ohgawara, M., & Linko, P. (2003). Microencapsulation by spray drying: Influence of emulsion size on the retention of volatile compounds. *J. Food Sci.*, 68, 2256 - 2262.
- [37] Thijssen, H.A.C., & Rulkens, W.H. (1968). Retention of aromas in drying food liquids. *De Ingenieur*, 47, 45-56.
- [38] Badee, A. Z. M.; Abd El- Kader, Amal E.; Aly, Hanan M. (2012). Microencapsulation of peppermint oil by spray drying. *Australian J. Basic App. Sci.*, 6(12), 499-504.
- [39] Soottitantawat, A., Bigeard, F., Yoshii, H., Furuta, T., Ohkawara, M., Linko, P. (2005). Influence of emulsion and powder size on the stability of encapsulated d-limonene by spray drying. *Innov. Food Sci. Emer. Tech.*, 6, 107- 114.
- [40] Akhavan Mahdavi. S., Jafari. S.M., Assadpoor, E., Dehnad, D. (2016). Microencapsulation optimization of natural anthocyanins with maltodextrin, gum Arabic and gelatin. *Int. J. Biol. Macromol.*, 8, 379-385.
- [41] Chraniot, C., Tzia, C. (2014). Arabic gum Mixtures as encapsulating agents of freeze-dried fennel oleoresin products. *Food Bioproc Tech.*, 7, 1057-1065.
- [42] Rubiano, K. D., Cárdenas, J. A., Ciro, V. H. J. (2015). Encapsulation of d-limonene flavors using spray drying: Effect of the addition of emulsifiers. *Ing-*