



**Universidad Autónoma del Estado de México**

Facultad de Química

**“ESTUDIO DE LA ESTABILIDAD Y  
LIBERACIÓN DEL ACEITE DE  
AJONJOLÍ ENCAPSULADO MEDIANTE  
GELACIÓN IÓNICA CON ALGINATO DE  
SODIO Y MUCÍLAGO DE NOPAL COMO  
AGENTES ENCAPSULANTES”**

**DOCTORADO EN CIENCIAS QUÍMICAS**

**Por:**

**SANDRA KARINA VELÁZQUEZ GUTIÉRREZ**

**Dirigido por:**

**DR. CÉSAR PÉREZ ALONSO**

**DR. JULIAN CRUZ OLIVARES**

**DRA. MARÍA FERNANDA BALLESTEROS RIVAS**



**Toluca, México, Abril 2023**

## AGRADECIMIENTOS

A la Universidad Autónoma del Estado de México por brindar los recursos necesarios mediante el proyecto con clave 6661/2022SF, “Diseño y análisis de la estructura física de microcápsulas de aceite de linaza mediante secado por aspersión empleando mezclas de proteína de chícharo y polisacáridos como agentes encapsulantes”

Al Consejo Nacional de Ciencia y Tecnología (CONACyT) por el apoyo económico brindado que hizo posible la culminación de este doctorado.

## ÍNDICE

RESUMEN.....	2
ABSTRACT.....	5
INTRODUCCIÓN.....	8
CONTRIBUCIÓN SOCIAL.....	11
ANTECEDENTES.....	13
ACEITE DE AJONJOLÍ.....	13
ÁCIDOS GRASOS POLIINSATURADOS.....	13
ENCAPSULACIÓN.....	14
AGENTES ENCAPSULANTES.....	15
ALGINATO DE SODIO.....	16
MUCÍLAGO DE NOPAL.....	16
JUSTIFICACIÓN.....	19
HIPÓTESIS.....	21
OBJETIVOS.....	23
MATERIALES Y MÉTODOS.....	25
MATERIALES.....	25
EXTRACCIÓN DEL ACEITE DE AJONJOLÍ.....	25
EXTRACCIÓN DEL MUCÍLAGO DE NOPAL.....	25
PREPARACIÓN DE PERLAS DE HIDROGEL.....	26
MORFOLOGÍA DE HIDROGELES.....	26
CARACTERIZACIÓN DE LOS HIDROGELES.....	27
ESTABILIDAD TÉRMICO-OXIDATIVA DE LOS HIDROGELES.....	28
CINÉTICA DE OXIDACIÓN LIPÍDICA DE ACEITE EN LOS HIDROGELES.....	28
CINÉTICA DE LIBERACIÓN DE ACEITE EN LOS HIDROGELES.....	29
ISOTERMAS DE ADSORCIÓN DE AGUA DE LOS HIDROGELES.....	29
PROPIEDADES DE SORCIÓN DE LOS HIDROGELES.....	30

CONDICIONES DE ESTABILIDAD DE LOS HIDROGELES .....	31
TEORÍA DE COMPENSACIÓN .....	32
RESULTADOS Y DISCUSIÓN .....	34
MORFOLOGÍA DE HIDROGELES.....	34
CARACTERIZACIÓN DE LOS HIDROGELES.....	35
ESTABILIDAD TÉRMICO-OXIDATIVA DE LOS HIDROGELES .....	36
CINÉTICA DE OXIDACIÓN LIPÍDICA DE ACEITE EN LOS HIDROGELES .....	38
CINÉTICA DE LIBERACIÓN DE ACEITE EN LOS HIDROGELES .....	40
ISOTERMAS DE ADSORCIÓN DE AGUA DE LOS HIDROGELES .....	41
PROPIEDADES DE SORCIÓN DE LOS HIDROGELES.....	44
CONDICIONES DE ESTABILIDAD DE LOS HIDROGELES .....	44
TEORÍA DE COMPENSACIÓN .....	48
CONCLUSIONES .....	50
PRODUCTIVIDAD.....	53
REFERENCIAS.....	55
ANEXOS .....	62
ARTÍCULO DE INVESTIGACIÓN 1.....	62
ARTÍCULO DE INVESTIGACIÓN 2.....	63

## ÍNDICE DE FIGURAS

Figura 1. Imágenes de microscopía óptica interna y externa de los hidrogeles.....	35
Figura 2. Curvas de oxidación lipídica del a) aceite de ajonjolí libre y las perlas de hidrogel: b) AS, c) AS-MN (1:1), y d) AS-MN (1:1.5) almacenados a diferentes temperaturas durante ocho semanas.....	37
Figura 3. Perfiles de liberación del AA en los tres diferentes sistemas a 25 °C.....	40
Figura 4. Isotermas de adsorción de agua de los hidrogeles (a) AS-MN (1:0), (b) AS-MN (1:1) y (c) AS-MN (1:1.5) a diferentes temperaturas.....	42
Figura 5. Entalpía integral de los hidrogeles formulados: (a) AS, (b) AS-MN (1:1) y (c) AS-MN (1:1.5) a diferentes temperaturas.....	45
Figura 6. Entropía integral de los hidrogeles formulados a diferentes temperaturas: (a) 25, (b) 35 y (c) 45 °C.....	46
Figura 7. Compensación entalpía-entropía para la adsorción de agua de los hidrogeles formulados a diferentes temperaturas: (a) 25, (b) 35 y (c) 45 °C .....	47

## ÍNDICE DE TABLAS

Tabla 1. Caracterización de los hidrogeles formulados.....	35
Tabla 2. Parámetros cinéticos de orden cero para el AA libre y encapsulado.....	38
Tabla 3. Energía de activación aparente para los sistemas analizados.....	39
Tabla 4. Parámetros estimados del modelo de GAB para los diferentes sistemas de hidrogel.....	43

# RESUMEN

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

## RESUMEN

Este trabajo de investigación se centró en la evaluación y análisis de hidrogeles formados mediante la técnica de gelación iónica que contenían aceite de ajonjolí (AA) empleando como matriz el alginato de sodio (AS) y mezclas de AS con mucílago de nopal (MN), con la finalidad de brindar a la industria alimentaria una nueva opción de materiales para la obtención de sistemas de encapsulación y liberación controlada.

El AA obtenido mediante prensado en frío fue encapsulado mediante gelación iónica usando matrices de AS y MN en relaciones peso de 1:0, 1:1 y 1:1.5. La producción de perlas de hidrogel consistió en agregar las dispersiones homogéneas de los sistemas aceite-agente encapsulante mediante goteo utilizando una jeringa hacia una solución de cloruro de calcio 2.5% (p/v) en agitación continua para promover el proceso de gelación. Los hidrogeles obtenidos se secaron por convección forzada y se almacenaron en frascos ámbar para su posterior caracterización.

Las perlas de los hidrogeles formados con AS presentaron morfologías de tipo esférico con diámetro promedio de 2.19 mm, mientras que los hidrogeles de AS-MN presentaron formas semiesféricas con diámetro promedio entre 2.06 y 2.10 mm, de acuerdo con el contenido de MN.

La eficiencia de encapsulación de AA en los hidrogeles se vio influenciada por la adición de MN en los sistemas de AS, obteniendo valores de 80.64% para AS-MN (1:1.5), seguido de 75.44% para AS-MN (1:1) y 63.48% para AS.

Se evaluó la estabilidad oxidativa del AA libre y en las perlas de los hidrogeles durante 6 semanas bajo tres temperaturas de almacenamiento (25, 35 y 45°C). Los resultados mostraron valores de entre 20 - 21.3 meq HP/kg aceite para las perlas de AS, 9.56 - 17.1 meq HP/kg aceite para las perlas AS-MN (1:1) y 6.6 - 15.1 meq HP/kg aceite para las perlas AS-MN (1:1.5). De acuerdo con éstos valores, el efecto protector contra la oxidación de AA se incrementó conforme se aumentó la concentración de MN en la mezcla AS-MN.

La evaluación de los perfiles de liberación del AA mostró que los procesos de transferencia de masa del centro de la perla de hidrogel hacia el medio de liberación fueron dominados por los procesos difusivos, siendo más lento en los sistemas AS-MN. Estos cambios en la liberación de AA

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

encapsulado, pueden asociarse a cambios estructurales y de conformación de las perlas de los hidrogeles, donde la adición de MN permitió controlar la liberación de AA.

Para establecer una posible relación entre las diferentes estructuras conformadas por los tres sistemas de hidrogeles y la estabilidad del aceite encapsulado, se procedió a realizar un estudio termodinámico de sorción de vapor de agua en los hidrogeles. Las isotermas de adsorción de los tres diferentes tipos de hidrogeles obtenidas experimentalmente a temperaturas de 25, 35 y 45 °C se ajustaron adecuadamente al modelo cinético de GAB mostrando una curva característica tipo II sigmoidal. El radio de poro de las perlas de hidrogel se encontró en el intervalo de 0.81 a 7.59 nm, el cual corresponde a tamaños de poro del orden de microporos y mesoporos de acuerdo a la IUPAC.

A partir del análisis termodinámico se determinó que el punto de máxima estabilidad, es decir, las condiciones de humedad donde los hidrogeles no presentan cambios físicos evidentes, fue de 3.31 a 5.59 kg H<sub>2</sub>O/100 kg s.s. ( $a_w$  de 0.23 a 0.59). La teoría de compensación entalpía-entropía mostró la presencia de dos zonas indicativas de mecanismos de adsorción entrópicos y entálpicos que, a su vez, reiteran la existencia de micro y mesoporos en la estructura de los tres tipos de perlas evaluados.

De acuerdo con los resultados de eficiencia de encapsulación, estabilidad oxidativa y perfiles de liberación obtenidos en este proyecto, se puede considerar que la mezcla de AS-MN tiene potencial como material de pared para la aplicación en la industria alimentaria en la protección de aceites grasos polinsaturados como es el caso del aceite de ajonjolí.

# ABSTRACT

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

## ABSTRACT

This project was focused on the evaluation and analysis of hydrogels containing sesame seed oil (AA) and formed by the ionic gelation method using sodium alginate (AS) and mixtures of AS and nopal mucilage (MN) as wall material, in order to provide a new material alternative for encapsulating and controlled release systems in Food Industry.

The AA obtained by cold pressing was encapsulated by ionic gelation using AS and MN as matrices with weight ratios of 1:0, 1:1 and 1:1.5. The production of hydrogel beads consisted on addition by dropping of the homogenized dispersions oil-wall material into a calcium chloride solution 2.5% w/v utilizing a syringe, continuous stirring was applied to promote gelation process. The obtained hydrogels were dried by forced convection and stored in amber flasks for further evaluation.

AS hydrogel beads showed a spheric shape of approximately 2.19 mm mean diameter; meanwhile, hydrogels containing AS-MN, displayed a semi-spheric shape of mean diameter from 2.06 to 2.10 mm.

Encapsulation efficiency of AA was influenced by MN addition into AS systems, obtaining a maximum of 80.64% for AS-MN beads with ratio of 1:1.5, a value of 75.44% for AS-MN 1:1 hydrogels, and 63.48% for AS beads.

Free and encapsulated AA oxidative stability were evaluated during six weeks of storage at three different temperatures (25, 35 and 45 °C). Results obtained were of 20 – 21.3 meq HP/kg oil for AS beads, 9.56 – 17.1 meq HP/kg oil for AS-MN (1:1) hydrogels, and 6.6 – 15.1 meq HP/kg oil for AS-MN (1:1.5) particles. According to the results, protective effect against AA oxidation increased as far as MN concentration augmented in AS-MN mixtures.

Release profiles evaluation of AA showed that mass transfer from hydrogel beads core to release medium were controlled by diffusion processes being slower in AS-MN systems. Those changes in encapsulated AA release could be associated to structural and conformational changes of hydrogel beads where MN addition allowed a AA controlled release.

To determine a possible connection between the different structures and the encapsulated oil stability, a thermodynamic study of water vapor sorption into hydrogels were performed experimentally.

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

Sorption isotherms of the three types of hydrogels at temperatures of 25, 35 and 45 °C were adequately adjusted to GAB model showing characteristic type II sigmoidal-curves. Pore radius of beads were found in the range of 0.81 to 7.59 nm which corresponds to micro and mesopores according to IUPAC classification.

From thermodynamic study the point of maximum stability, it means, moisture conditions where hydrogel beads do not have evident physical changes, was at the range of 3.31 – 5.59 kg H<sub>2</sub>O/100 kg d.s. ( $a_m$  de 0.23 a 0.59). Enthalpy-entropy compensation showed the presence of two zones indicating entropic and enthalpic sorption mechanisms that confirmed the existence of micro and mesopores in the structure of the three types of hydrogel studied.

According to encapsulation efficiency, oxidative stability and release profiles obtained in this project, AS-MN mixture can be considered as a potential wall material for encapsulation in food industry applications to protect polyunsaturated fatty acids (PUFA) as sesame seed oil.

# INTRODUCCIÓN

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

## INTRODUCCIÓN

En la última década, una de las tendencias con mayor relevancia a nivel global está enfocada en promover y preservar la vida saludable de la población, esto aplicado en la industria alimentaria implica el desarrollo de alimentos funcionales, es decir, alimentos que no solo suministren energía o promuevan el crecimiento humano, sino que también ayuden a mejorar la salud física y mental, además de coadyuvar en la prevención de enfermedades.

A pesar de que en la mayoría de los países los alimentos funcionales no están reconocidos oficialmente, las definiciones en Europa, Australia y Japón coinciden en tomar en cuenta el aspecto de que sean alimentos que mejoren la salud. Específicamente en Japón, se consideran doce categorías de alimentos con propiedades saludables, entre ellos los hidrocoloides y los ácidos grasos insaturados.

Los alimentos funcionales contienen compuestos bioactivos que brindan beneficios a la salud de los consumidores, sin embargo, éstas sustancias son susceptibles a degradarse principalmente por factores ambientales, una forma de preservarlos es la encapsulación y, dentro de las diferentes tecnologías, la gelación iónica es una de las que compite con el secado por aspersion para fines de recubrir y prolongar la vida de anaquel de materiales bioactivos, además es un método que implica un procesamiento mínimo, sostenible y ecológico.

El aceite de ajonjolí es un ingrediente que ha generado interés para ser incorporado en alimentos funcionales procesados debido a su contenido de ácidos grasos insaturados y a que se le han atribuido diversos beneficios a la salud por sus funciones anti-inflamatoria, antimutagénica y de regulación lipídica, entre otras.

Para llevar a cabo la encapsulación de compuestos bioactivos, se requiere de materiales de pared que generalmente son carbohidratos y proteínas. Dentro de los materiales de pared, algunos hidrocoloides naturales que han atraído la atención en los últimos años son los mucílagos, ya que son compuestos con propiedades benéficas para el consumo humano y su proceso de extracción generalmente es económico y amigable con el ambiente, por lo tanto, este tipo de hidrocoloides se vuelven atractivos y potencialmente útiles para la industria alimentaria. Uno de los mucílagos que ha llamado la atención en gran medida para ser investigado y aplicado en el sector industrial es el mucílago de nopal, el cual

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

está conformado por una mezcla de polisacáridos con propiedades fisicoquímicas y funcionales que pueden aplicarse en técnicas de encapsulación.

El agente encapsulante comúnmente utilizado para la gelación iónica es el alginato, el cual es un biopolímero no tóxico y económico con la capacidad de generar películas poliméricas protectoras, sin embargo, se ha encontrado que las estructuras formadas únicamente con éste material son extremadamente porosas.

Por lo anterior, en este trabajo se produjeron mediante la técnica de gelación iónica, hidrogeles que contienen AA empleando como matriz protectora mezclas de AS y MN. Posteriormente se evaluaron las perlas de hidrogel fisicoquímicamente con la finalidad de determinar la potencial aplicación de estas mezclas biopoliméricas en la industria alimentaria como agentes protectores de aceites esenciales.

# CONTRIBUCIÓN SOCIAL

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

## CONTRIBUCIÓN SOCIAL

El consumo de alimentos funcionales mínimamente procesados que ayuden a promover la salud física y mental del ser humano es una de las actividades que son parte de una megatendencia enfocada a contribuir en la vida saludable del consumidor.; a nivel mundial, contribuye al cumplimiento de uno de los Objetivos de Desarrollo Sostenible (ODS) planteados por los líderes mundiales: Salud y Bienestar. A nivel nacional, este trabajo forma parte del Programa Nacional Estratégico (PRONACE)-Salud del Consejo Nacional de Ciencia y Tecnología en México (CONACyT).

Dentro de los alimentos que favorecen la salud y el bienestar del ser humano se encuentran los ácidos grasos poliinsaturados que, en este proyecto en particular, se encuentran contenidos en el aceite obtenido de la semilla de ajonjolí. A su vez, dos tipos de hidrocoloides (mucílago de nopal y alginato de sodio) fueron empleados como agentes encapsulantes para producir hidrogeles que fuesen útiles para brindar protección al aceite de ajonjolí y al mismo tiempo ofrecer una opción a la industria alimenticia para la producción de alimentos funcionales mediante el desarrollo de un proceso de encapsulación sostenible y amigable con el ambiente.

Por lo anterior, se considera que este proyecto retribuye socialmente tanto a nivel nacional (PRONACE) como a nivel mundial (ODS), ya que el empleo de sistemas coloidales (hidrogeles) en la producción de alimentos mínimamente procesados al ser consumidos garantizan una mejora en la salud física y mental de la población, además, en el caso particular de México, el uso de semillas de ajonjolí y cladodios de nopal, favorece al sector agroindustrial y las poblaciones productoras de estos insumos para generar e impulsar más empleo y mejoras en las condiciones de vida de las comunidades productoras de estos alimentos.

# ANTECEDENTES

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

## ANTECEDENTES

### ACEITE DE AJONJOLÍ

La semilla de ajonjolí es, probablemente, la semilla que más se ha cultivado durante los últimos 2000 años en Asia y África. En México se cultiva principalmente en los Estados de Sinaloa, Guerrero, Michoacán y Oaxaca (Servicio de Información Agroalimentaria y Pesquera [SIAP], 2022; Fuentes-Ortega *et al.*, 2017). Una de las características relevantes de esta semilla es su alto contenido de aceite compuesto principalmente por ácido linoléico (~ 47%) y ácido oleico (~ 37%), ambos ácidos grasos esenciales son importantes en el consumo humano debido a los beneficios que proveen; además esta semilla se ha utilizado para aplicaciones médicas, farmacéuticas, cosméticas, nutricionales, gastronómicas, agrícolas e industriales.

En los últimos años se ha reportado que el consumo del aceite de ajonjolí tiene efectos positivos en el perfil lipídico de la sangre, incrementa la función anti-inflamatoria y presenta actividad antimutagénica (Alpizar-Reyes *et al.*, 2020; Brigante *et al.*, 2020). A pesar de que el aceite de ajonjolí es un compuesto de interés para la industria de los alimentos, su inestabilidad química limita los medios para su incorporación en alimentos funcionales procesados debido a su deterioro oxidativo; es por esto que se buscan sistemas estratégicos que permitan dar estabilidad para su posterior incorporación en matrices alimenticias.

### ÁCIDOS GRASOS POLIINSATURADOS

Los ácidos grasos poliinsaturados (PUFA por sus siglas en inglés: Polyunsaturated Fatty Acids) (omega – 3, omega – 6 y omega – 9) son ácidos que se encuentran comúnmente en los aceites de origen vegetal y marino, son importantes nutricionalmente para coadyuvar a tener buena salud, y se han utilizado como remedios caseros durante siglos debido a que contienen componentes de valor terapéutico y nutricional, se ha asociado su uso con la prevención de enfermedades cardiovasculares y neurodegenerativas, diabetes, cáncer, hipertensión y otras, es por eso que el uso de estos aceites ricos en PUFA's se ha incrementado en los últimos años en las industrias alimentaria, cosmética,

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

farmacéutica y de fragancias (Alpizar-Reyes *et al.*, 2020; Shi, *et al.*, 2020; da Silva Soares *et al.*, 2019; Cortés-Camargo *et al.*, 2018). Sin embargo, debido a su alto grado de insaturación, cuando estos compuestos son expuestos a factores ambientales tales como la luz, temperatura y aire, son susceptibles a la oxidación, este proceso genera la descomposición de los ácidos grasos que dan como resultado sabores desagradables y productos que pueden ser dañinos para la salud, además de que se afectan las propiedades sensoriales del aceite (Velázquez-Gutiérrez *et al.*, 2020).

La composición de los aceites poliinsaturados puede modificarse como resultado de la oxidación, interacciones químicas o volatilización. Para limitar la pérdida o degradación de su composición durante el procesamiento y almacenamiento, y para controlar la liberación del compuesto en un tiempo y sitio deseado, la encapsulación es benéfica previa a su aplicación en alimentos (Di Giorgio, Salgado & Mauri, 2019).

La tecnología de la encapsulación es una opción viable para mantener las características funcionales y biológicas de los materiales químicamente inestables y ha sido aplicada en la industria alimentaria para proporcionar ingredientes que funcionen como una barrera efectiva contra condiciones ambientales que pueden afectar negativamente la estabilidad en la vida de anaquel y las propiedades sensoriales del producto (Di Giorgio, Salgado & Mauri, 2019; Alcântara *et al.*, 2019).

## ENCAPSULACIÓN

En la producción de alimentos funcionales procesados se vuelve un reto constante la preservación y recuperación máxima de ingredientes activos durante el procesamiento y almacenamiento de los alimentos; para esto, una de las soluciones comúnmente utilizadas es la encapsulación.

La encapsulación es un proceso que consiste en recubrir de manera uniforme con “matrices encapsulantes” (por ejemplo, hidrocoloides de grado alimentario y biodegradables) a “ingredientes activos” que generalmente son inestables en condiciones ambientales, es decir, se deterioran o degradan cuando están en presencia de oxígeno, calor, luz solar, etc. Algunas de las finalidades del proceso de encapsulación son: facilitar el almacenamiento, mejorar las características sensoriales y retardar el proceso de degradación del ingrediente activo (Boostani y Jafari, 2021; Alpizar-Reyes *et al.*, 2020; Ye, Georges, y Selomulya, 2018).

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

Otro de los objetivos de la encapsulación es promover la liberación del agente encapsulado a tasas de liberación controlada, es decir, transportar el ingrediente activo desde una posición inicial hasta un sitio específico, y de ser posible, con cierto perfil de liberación (Boostani y Jafari, 2021). La tecnología de liberación controlada se usa para compuestos tales como fármacos, cosméticos, pesticidas, fragancias o saborizantes, entre otros, para tener una mejor eficacia en el suministro del compuesto encapsulado.

Existe una gran variedad de tecnologías para llevar a cabo la encapsulación de compuestos activos, entre las más utilizadas se encuentran el secado por aspersion, liofilización, lecho fluidizado, emulsionamiento, extrusión, fluidos supercríticos, entre otras.

Para el caso de sustancias termosensibles, tales como los aceites grasos poliinsaturados, la gelación iónica es una técnica interesante debido a que permite tanto la protección del compuesto activo como su aplicación en sistemas alimenticios donde los efectos térmicos son importantes. Este método químico consiste en la interacción entre un biopolímero y una solución electrolítica, se basa en la interacción iónica entre polímeros con cargas opuestas o entre un polímero y un polianión, lo cual se sugiere para agentes bioactivos hidrofóbicos. La gelación iónica es una técnica cuyo uso ha incrementado para la encapsulación de compuestos bioactivos debido a la simplicidad de su operación y bajos costos (Sampaio *et al.*, 2019; Silva *et al.*, 2019).

## AGENTES ENCAPSULANTES

Una de las etapas fundamentales del proceso de encapsulación es la selección del agente encapsulante (material de pared), ya que esto contribuye al mecanismo de liberación del compuesto activo. Además, el material de pared no debe reaccionar con el compuesto activo, debe ser económico, mostrar propiedades consistentes durante el almacenamiento y ser de grado alimenticio si esa fuese su aplicación (Labuschagne, 2018).

El material encapsulante se puede seleccionar de acuerdo a las características deseadas del producto final, ya que ésta matriz afectará las propiedades y la velocidad de liberación del material encapsulado (Boostani y Jafari, 2021). Los materiales usados comúnmente para la encapsulación de aceites incluyen polímeros sintéticos y biomateriales naturales (generalmente polisacáridos y proteínas). No obstante,

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

se suelen utilizar combinaciones de materiales encapsulantes debido a que no siempre se obtienen las propiedades requeridas con un solo material.

Los polisacáridos se encuentran de manera abundante en la naturaleza en las paredes celulares de las plantas y son considerados como base de los hidrocoloides. Éstos compuestos comúnmente son útiles como modificadores de viscosidad y han sido empleados en diversas aplicaciones alimentarias y farmacéuticas (Alpizar-Reyes *et al.*, 2023).

## ALGINATO DE SODIO

Los alginatos son polisacáridos que se encuentran ampliamente en la naturaleza, sin embargo, el alginato de sodio obtenido de las algas marrones es el más empleado debido a su solubilidad en agua, facilidad de enlazar con iones de  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Sr}^{2+}$  y  $\text{Ba}^{2+}$ , biocompatibilidad, no toxicidad y bajo costo. Su estructura se compone de: ácido  $\beta$ -D-manurónico (M) y de ácido  $\alpha$ -L-gulurónico (G) que se encuentran covalentemente enlazados (Yamashita *et al.*, 2021; Zhou *et al.*, 2018).

La obtención de hidrogeles formados con AS se da con la formación de la estructura reticulada que se conoce como “caja de huevo” la cuál es generada por el intercambio de iones de sodio con cationes divalentes, éstas pueden ser permanentes o temporales dependiendo de la concentración de la solución salina utilizada que suele ser de cloruro de calcio (George y Abraham, 2006).

A pesar de la capacidad del alginato para formar hidrogeles, se ha reportado que cuando sólo se utiliza este biopolímero como material de pared en la encapsulación de aceites, las perlas que forma tienen una estructura interna con poros relativamente grandes y además son estructuras extremadamente porosas (Bannikova *et al.*, 2018; Menin *et al.*, 2018).

## MUCÍLAGO DE NOPAL

Los mucílagos se encuentran en la clasificación de hidrocoloides y son polisacáridos presentes comúnmente en diferentes partes de las plantas cuya principal función es ofrecer un mecanismo de defensa en los periodos de sequía, esto es debido a que tienen una alta cantidad de grupos hidroxilo, lo cuál les da la propiedad de retener agua en altas cantidades (Chen *et al.*, 2017). Debido a estas

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

propiedades, los mucílagos se han utilizado en aplicaciones farmacológicas, para acondicionamiento del suelo y para diseñar alimentos (Di-Marsico *et al.*, 2018; Fernandes y de las Mercedes, 2017; Haseeb *et al.*, 2016). Además, el uso de este tipo de compuestos da la ventaja de ser de bajo costo, fácil acceso y buena funcionalidad.

El mucílago de nopal se constituye por arabinosa (24.6 – 42%), galactosa (21 – 40.1%), ácido galacturónico (8 – 12.7%), ramnosa (7 – 13.1%), xilosa (22 – 22.2%) y glicoproteínas (Sáenz *et al.*, 2004); además, tiene un comportamiento polielectrolítico (Cortés-Camargo *et al.*, 2018).

Este mucílago es uno de los más estudiados y se ha aplicado como retenedor de agua, emulsionante, espesante, formador de películas, agente encapsulante y en combinación con otros biopolímeros para formar matrices biodegradables (Macías-Cortés *et al.*, 2020; Zambrano-Zaragoza *et al.*, 2014; Medina-Torres *et al.*, 2013; León-Martínez *et al.*, 2010). En su aplicación para la formación de geles se ha encontrado que ayuda a aumentar la rigidez, elasticidad y a mejorar su estructura (Cortés-Camargo *et al.*, 2018).

# JUSTIFICACIÓN

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

## JUSTIFICACIÓN

En los últimos años, la industria alimentaria ha observado que el consumidor tiende a preferir productos benéficos para su salud, es decir, alimentos que contengan nutrientes y que promuevan una mejor calidad de vida; esto ha generado un incremento en la demanda de hidrocoloides de origen natural debido a que su aporte calórico es bajo, suelen ser sostenibles y además, se ha encontrado que poseen propiedades fisicoquímicas y funcionales que los vuelven agentes encapsulantes potenciales, uno de los hidrocoloides recientemente empleado en la tecnología de encapsulación es el mucílago de nopal.

Es bien sabido que los aceites vegetales brindan múltiples beneficios a la salud humana, en el caso del AA, su alto contenido de ácido linoléico (Omega-6), provoca que sea una sustancia de interés para la industria alimentaria; sin embargo, es un compuesto susceptible al deterioro por factores ambientales tales como la luz, el oxígeno, la humedad y el calor, por lo que es necesario brindarle protección previo a su procesamiento para garantizar que llegue de manera adecuada al organismo y evitar que genere sabores desagradables y compuestos que puedan ser dañinos para la salud.

La gelación iónica es una técnica de encapsulamiento que permite conservar las propiedades funcionales del compuesto activo, prolongar su vida de anaquel y lograr una liberación de manera controlada en productos procesados. Para llevar a cabo este proceso, el biopolímero más empleado es el AS, dado que se ha observado su capacidad de generar películas poliméricas protectoras en el transporte de aceites esenciales y además tiene las ventajas de ser económico y no tóxico.

En este trabajo de investigación se propuso obtener hidrogeles que contengan AA mediante la técnica de gelación iónica empleando como matriz mezclas de AS y MN para posteriormente caracterizar estas partículas y determinar su funcionalidad como agente encapsulante con la finalidad de brindar una nueva opción a la industria alimentaria para la generación de productos que contengan el compuesto de interés.

# HIPÓTESIS

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

## HIPÓTESIS

Mediante la técnica de encapsulación por gelación iónica, mezclas de AS con MN utilizadas como materiales de pared brindarán mayor estabilidad contra la oxidación y tasas de liberación controlada al AA respecto a hidrogeles conformados únicamente con AS.

# OBJETIVOS

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

## OBJETIVOS

### Objetivo general

Evaluar el efecto del MN en la estabilidad y liberación de AA encapsulado en hidrogeles de AS mediante gelación iónica.

### Objetivos particulares

- Extraer el aceite de la semilla de ajonjolí y el MN mediante procesos de separación convencionales libres de solventes.
- Formular hidrogeles de AA utilizando el MN y el AS como materiales de pared mediante el proceso de encapsulación de gelación iónica.
- Determinar la eficiencia de encapsulamiento, rendimiento y capacidad de carga de los hidrogeles formulados.
- Analizar la morfología de los hidrogeles.
- Determinar la capacidad de los materiales de pared para retardar los mecanismos de oxidación del AA mediante un estudio de formación de peróxidos a diferentes condiciones de temperatura y tiempo de almacenamiento.
- Determinar la cinética de liberación de aceite, las isothermas de adsorción de agua y las propiedades termodinámicas de los hidrogeles.

# MATERIALES Y MÉTODOS

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

## MATERIALES Y MÉTODOS

### MATERIALES

Semillas de ajonjolí y cladodios de nopal (*Opuntia ficus indica*) fueron adquiridos en un mercado local de la ciudad de Toluca, México. El AS comercial (Protanal® RF 6650 Alginate) fue donado por FMC Health & Nutrition (Ciudad de México, México), de acuerdo con la especificación del proveedor, éste biopolímero tiene una pureza del 90%, 65% de contenido de ácido gulurónico y viscosidad entre 400 y 600 mPas a 20 °C en solución 1%. Se utilizaron reactivos de grado analítico que fueron adquiridos de la compañía Sigma Aldrich S.A. de C.V. (Toluca, México). En todas las pruebas experimentales se utilizó agua deionizada.

### EXTRACCIÓN DEL ACEITE DE AJONJOLÍ

La extracción del aceite se llevó a cabo mediante un proceso físico de prensado a temperatura ambiente, el cual consistió en colocar 300 g de semilla dentro de un émbolo de acero inoxidable cuyas dimensiones son: 10 cm de diámetro por 40 cm de largo, y éste a su vez se colocó en una prensa hidráulica Tamer (modelo PHT-20, Shanghai, China). Se ejerció presión gradualmente hasta 9 ton sobre el pistón. El aceite extraído se recolectó, filtró y almacenó en frascos ámbar de vidrio a 5 °C en un refrigerador comercial hasta su uso posterior.

### EXTRACCIÓN DEL MUCÍLAGO DE NOPAL

El MN se extrajo de los cladodios de nopal siguiendo el método de Cortés–Camargo et al. (2018). Los cladodios de nopal se cortaron en rebanadas con un área de contacto de 36 cm<sup>2</sup> y un grosor de 2 ± 0.2 mm. Las rebanadas se pesaron y se colocaron en un contenedor de acero inoxidable al cual se adicionó agua deionizada en una proporción 1:2.5 nopal – agua deionizada. La mezcla se llevó a una temperatura de 86°C por 2.5 h bajo agitación constante con un agitador modelo BDC-3030 (Caframo, Ontario, Canadá). El mucílago extraído se separó de la fase sólida por filtración usando una malla metálica No.100. El MN filtrado se colocó en charolas de aluminio y se secó a una temperatura de 65°C por 4 h utilizando un horno de convección modelo HCX II (San-son plus, Estado de México,

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

México). Posteriormente el mucílago se estandarizó en tamaño mediante un proceso de tamizado empleando una malla No. 40 (420  $\mu\text{m}$ ).

## PREPARACIÓN DE PERLAS DE HIDROGEL

Se dispersaron el AS y el MN en agua desionizada en agitación durante 24 horas para formar dispersiones al 2% (w/v) y garantizar la correcta hidratación de los biopolímeros. Las mezclas de AS-MN empleadas como materiales de pared estuvieron en relación másica 1:0, 1:1 y 1:1.5. Después, 10 g de AA se añadieron por cada 100 g de dispersión acuosa de AS-MN bajo condiciones de agitación constante con un homogeneizador Ultra-Turrax T50 basic (IKA-WERKE Works Inc., Wilmington, NC, EUA) a 6400 rpm durante 10 min. Posteriormente, una muestra de cada dispersión fue extraída con una jeringa de 0.70 mm de diámetro de boquilla y se hizo gotear dentro de 100 mL de una solución de cloruro de calcio 2.5% (w/v) que se encontraba dentro de un vaso de precipitados con agitación mecánica a 250 rpm para prevenir la aglomeración de las perlas de hidrogel. La altura de la aguja fue de 30 cm sobre la solución de cloruro de calcio. La velocidad de goteo fue de 20 gotas por minuto. La solución resultante se agitó durante 60 min a 20 °C para completar el proceso de gelación y producir los geles. La solución gelante se enjuagó con agua desionizada y se filtró a través de una malla de 355  $\mu\text{m}$  y posteriormente se secó en una estufa a 45 °C durante 24 h. Finalmente, los hidrogeles se almacenaron en frascos ámbar hasta ser utilizados.

## MORFOLOGÍA DE HIDROGELES

Para observar la cara interna, se cortaron las perlas a la mitad con un escalpelo, se obtuvieron imágenes de microscopía óptica (10 $\times$ ) de la estructura, tamaño y forma de los hidrogeles mediante un sistema conformado por un microscopio óptico (MOTIC BA-400, microscopio Xiamen, Shanghai, China), una cámara digital y el software (MOTIC IMAGES PLUS 3.0, Shanghai, China). El factor de esfericidad ( $FE$ ) se calculó de acuerdo con la Ec. (1):

$$FE = \frac{D_{max} - D_{per}}{D_{max} + D_{per}} \quad \text{Ec. (1)}$$

donde:

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

$D_{max}$  = Diámetro máximo atravesando el centro de la perla (mm)

$D_{per}$  = Diámetro perpendicular atravesando el centro de la perla (mm)

## CARACTERIZACIÓN DE LOS HIDROGELES

El rendimiento de encapsulación ( $R$ ) es la relación entre la cantidad de hidrogeles obtenidos y la cantidad de dispersión utilizada en la encapsulación y se calculó con la Ec. (2):

$$R(\%) = \frac{M_b}{M_{em}} \times 100 \quad \text{Ec. (2)}$$

donde:

$M_b$  = Peso de los hidrogeles obtenidos (g)

$M_{em}$  = Peso de la dispersión AA-AS-MN utilizada (g)

La capacidad de carga ( $CC$ ) se determinó de la relación entre el aceite total y el peso de los hidrogeles empleados, usando la Ec. (3). Finalmente, la eficiencia de encapsulación ( $EE$ ) se calculó con la Ec. (4) (Vasile *et al.*, 2016; Rodea-González *et al.*, 2012).

$$CC(\%) = \frac{A_{total}}{P_{perlas}} \times 100 \quad \text{Ec. (3)}$$

$$EE(\%) = \frac{A_{total} - A_{sup}}{A_{total}} \times 100 \quad \text{Ec. (4)}$$

donde:

$A_{total}$  = Contenido de AA interno y superficial de los hidrogeles (g)

$A_{sup}$  = Contenido de AA superficial en los hidrogeles, que corresponde al aceite no encapsulado (g)

$P_{perlas}$  = Peso de los hidrogeles utilizados (g)

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

## ESTABILIDAD TÉRMICO-OXIDATIVA DE LOS HIDROGELES

La oxidación lipídica se evaluó con los valores de peróxido expresado en miliequivalentes de oxígeno activo por kilogramo de aceite (mEq / kg aceite). Las muestras de AA libre y encapsulado fueron almacenadas a 25, 35 y 45 °C con actividad de agua de 0.329, 0.318 y 0.313, respectivamente. El aceite en los hidrogeles se extrajo de acuerdo a la metodología descrita por Escalona-García *et al.* (2016), la muestra se trituró en mortero y se enjuagó con 2.5 mL de metanol, 2 mL de agua deionizada y 2.4 mL de cloroformo, una vez homogenizada la mezcla, se agregaron 3 mL de agua deionizada y 3.5 mL de cloroformo; posteriormente, la mezcla se colocó en un embudo de separación, la fase superior fue evaporada para obtener el aceite que finalmente se almacenó a -5 °C. La determinación del valor peróxido se realizó espectrofotométricamente a 510 nm en un espectrómetro Genesis 10 UV (Thermo Scientific, Waltham, MA, USA).

## CINÉTICA DE OXIDACIÓN LIPÍDICA DE ACEÍTE EN LOS HIDROGELES

Los valores de peróxido obtenidos para la evaluación de la oxidación lipídica del AA libre y encapsulado se ajustaron a los modelos cinéticos de cero, primer y segundo orden (Ec. 5, 6 y 7):

$$C_{HP} = -K_{HP}t + C_{HP_0} \quad \text{Ec. (5)}$$

$$\ln C_{HP} = \ln C_{HP_0} - K_{HP}t \quad \text{Ec. (6)}$$

$$1/C_{HP} = K_{HP}t + (1/C_{HP_0}) \quad \text{Ec. (7)}$$

donde:

$C_{HP}$  = Valor peróxido al tiempo  $t$  a cierta temperatura (mEq/kg aceite)

$C_{HP_0}$  = Valor peróxido inicial en el día 0 cuando las muestras están acondicionadas a la  $a_w$  y temperatura específica (mEq/kg aceite)

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

$K_{HP}$  = Constante de formación de hidroperóxidos, se obtiene de la pendiente de la gráfica de hidroperóxidos *vs.* tiempo (mEq/kg aceite • semana)

La ecuación de Arrhenius describe el efecto de la temperatura en la formación de hidroperóxidos, por lo tanto se calculó la energía de activación aparente para todos los sistemas utilizando la (Ec. (8)):

$$\ln K_{HP} = \left(-\frac{Ea}{RT}\right) + \ln A_{HP} \quad \text{Ec. (8)}$$

donde:

$Ea$  = Energía de activación aparente (kJ/mol)

$A_{HP}$  = Factor de frecuencia

## CINÉTICA DE LIBERACIÓN DE ACEITE EN LOS HIDROGELES

Las cinéticas de liberación del aceite encapsulado en las matrices de los hidrogeles se llevaron a cabo a 25°C y una actividad de agua de 0.329. Un gramo de perlas de cada sistema se enjuagó con n-hexano durante 60 s para remover el aceite superficial. Posteriormente, las muestras se colocaron en 12 vasos de precipitados con 20 mL de n-hexano y se agitaron lentamente, se retiraron las muestras a intervalos de 1, 5, 10, 15, 20, 25, 30, 40, 60, 90, 120 y 180 min mediante filtración. El supernadante de cada vaso se secó en estufa a 35°C para evaporar el solvente. Finalmente, la liberación de aceite se cuantificó por diferencia de peso de los hidrogeles.

## ISOTERMAS DE ADSORCIÓN DE AGUA DE LOS HIDROGELES

Las isotermas de adsorción de agua de los geles obtenidos se obtuvieron mediante gravimetría de acuerdo a la metodología empleada por Alpizar-Reyes *et al.* (2017) a las temperaturas de 25, 35 y 45 °C y los valores experimentales se ajustaron al modelo de GAB.

## PROPIEDADES DE SORCIÓN DE LOS HIDROGELES

El área de sorción ( $S_0$ ) de los hidrogeles se estimó mediante la Ec. (9) (Rosa *et al.*, 2010; Cassini *et al.*, 2006):

$$S_0 = M_0 \frac{1}{M_w} N_0 A_{H_2O} = 3.5 \times 10^3 M_0 \quad \text{Ec. (9)}$$

donde:

$M_w$  = Peso molecular del agua (kg/mol)

$N_0$  = Número de Avogadro ( $6.0 \times 10^{23}$  molecules/mol)

$A_{H_2O}$  = Área molecular del agua ( $1.06 \times 10^{-19}$  m<sup>2</sup>)

El radio de poro es un parámetro útil para entender el proceso de adsorción (Sonwane y Bhatia, 2000), se calculó mediante la ecuación de Kelvin (Ec. (10)):

$$r_c = - \frac{2\sigma V_M}{RT \ln a_w} \quad \text{Ec. (10)}$$

donde:

$r_c$  = Radio crítico (m)

$V_M$  = Volumen molar del adsorbato (m<sup>3</sup>/mol)

$\sigma$  = Tensión superficial (N/m)

$R$  = Constante universal de los gases ( $8.314 \times 10^{-3}$  kJ/mol K)

$a_w$  = Actividad de agua

Además, se utilizó la ecuación de Halsey (Ec. (11)) para estimar el agua adsorbida en el espesor de la multicapa ( $t$ ) (Moraes y Pinto, 2012; Rosa *et al.*, 2010):

$$t = 0.354 \left( \frac{-5}{\ln a_w} \right)^{1/3} \quad \text{Ec. (11)}$$

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

El radio de poro se calculó con la Ec. (12) (Esquerdo *et al.*, 2019; Monte *et al.*, 2018; Moraes y Pinto, 2012; Rosa *et al.*, 2010):

$$r_p = r_c + t \quad \text{Ec. (12)}$$

## CONDICIONES DE ESTABILIDAD DE LOS HIDROGELES

La estimación de la entropía integral mínima da un indicativo de la región de máxima estabilidad de almacenamiento ya que en este punto el agua está menos disponible para el deterioro de los sistemas de sorción. Por otro lado, la entalpía integral es la energía promedio de las moléculas de agua adsorbidas en el adsorbato a un contenido de humedad específico (Alpizar-Reyes *et al.*, 2017). El cambio en la entalpía integral a una presión de difusión constante se determinó con la Ec. (13):

$$\left(\frac{\partial \ln a_w}{\partial(1/T)}\right)_\varphi = \frac{H_s - H_l}{R} = \frac{(\Delta H_{int})_T}{R} \quad \text{Ec. (13)}$$

donde:

$H_s$  = Entalpía integral molar de las moléculas de agua (kJ/mol)

$H_l$  = Entalpía integral molar a temperatura y presión constantes (kJ/mol)

$\Delta H_{int}$  = Cambio en la entalpía integral a una temperatura específica (kJ/mol)

$T$  = Temperatura (K)

El cambio en la entropía integral se estimó usando la Ec. (14):

$$(\Delta S_{int})_T = \frac{(\Delta H_{int})_T}{T} - R \ln a_w \quad \text{Ec. (14)}$$

donde:

$\Delta S_{int}$  = Cambio en la entropía integral a una temperatura específica (kJ/mol K)

## TEORÍA DE COMPENSACIÓN

La teoría isocinética o de compensación entalpía-entropía es una herramienta importante para identificar los mecanismos de adsorción de agua y está basada en el argumento de que la relación entalpía-entropía es lineal de acuerdo con la Ec. (15) y que  $T_{hm} \neq T_B$ .

$$(\Delta H_{int})_T = T_B(\Delta S_{int})_T + \Delta G_B \quad \text{Ec. (15)}$$

donde:

$T_B$  = Temperatura isocinética (K)

$\Delta G_B$  = Energía libre correspondiente a la temperatura isocinética (kJ/mol)

La temperatura armónica se determina utilizando la Ec. (16):

$$T_{hm} = \frac{N}{\sum_{i=1}^N (1/T)} \quad \text{Ec. (16)}$$

donde:

$N$  = Número de isoterms utilizados en los cálculos

# RESULTADOS Y DISCUSIÓN

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

## RESULTADOS Y DISCUSIÓN

Derivado de las actividades experimentales realizadas, se publicaron 2 artículos en revistas indizadas en los cuáles se proporcionan y analizan a detalle los resultados obtenidos. En los Anexos se muestran las imágenes de la página inicial de los artículos publicados y su respectiva dirección electrónica para consulta.

En el primer artículo se analizan los resultados obtenidos para: el rendimiento del proceso de encapsulación por gelación iónica; la morfología, eficiencia de encapsulamiento y capacidad de carga de los hidrogeles formados; y la influencia del material de pared en los procesos oxidativos del AA encapsulado y la liberación del mismo. Estos análisis se llevaron a cabo con la finalidad de conocer la funcionalidad de los sistemas coloidales formulados en la protección y encapsulación que brindan al AA.

En el segundo artículo se estudian las isotermas de adsorción, las propiedades de sorción y termodinámica de las perlas de hidrogel formuladas para determinar las condiciones de máxima estabilidad fisicoquímica de almacenamiento.

A continuación se presentan los resultados obtenidos del proyecto.

### MORFOLOGÍA DE HIDROGELES

En la Figura 1 podemos observar el aspecto interno y externo de los tres tipos de hidrogel formulados. Las perlas formadas solamente con AS mostraron una forma esférica con tamaño promedio de  $\sim 2.19$  mm, en tanto, las perlas formadas con mezcla AS-MN presentaron formas semiesféricas irregulares con tamaño promedio de  $\sim 2.06$ - $2.10$  mm, significativamente menor. El valor del factor de esfericidad para los hidrogeles de AS-MN fueron mayores a 0.05 (0.062-0.065), por lo que ya no son considerados como esferas, para los hidrogeles formados con AS el *FE* obtenido fue de 0.049, por lo tanto, aún pueden ser considerados como esféricos. Las unidades de ácido gúlico del alginato se entrecruzan con los iones de calcio haciendo posible la formación de los geles estructurados en forma de “caja de huevo”, lo cual genera una estructura más esférica.

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

Además, al analizar las microscopías se infiere que el MN actuó como soporte estructural ya que no se observaron fracturas en la estructura de las perlas de hidrogel conformadas por la mezcla de biopolímeros.

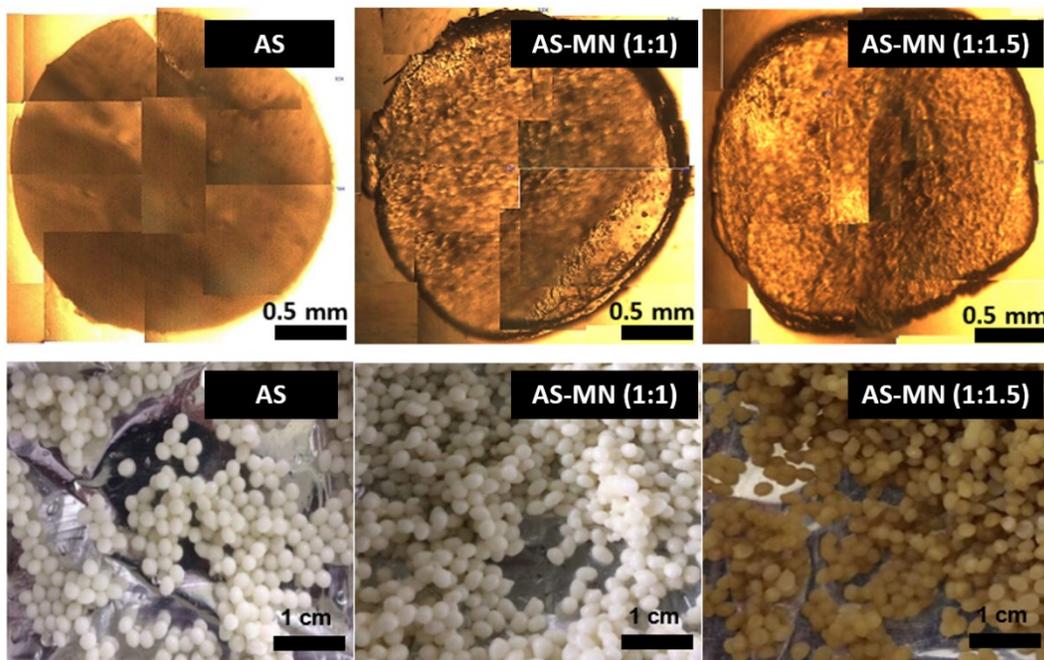


Figura 1. Imágenes de microscopía óptica interna (parte superior) y externa (parte inferior) de los hidrogeles

## CARACTERIZACIÓN DE LOS HIDROGELES

Como se observa en la Tabla 1, el rendimiento del proceso de encapsulación fue mayor para los hidrogeles que contenían MN, al igual que se obtuvieron mejores resultados de eficiencia de encapsulación y capacidad de carga en estas perlas.

Tabla 1. Caracterización de los hidrogeles formulados

	AS	AS-MN (1:1)	AS-MN (1:1.5)
<i>R (%)</i>	72.50 ± 0.42	83.34 ± 0.51	91.67 ± 0.87
<i>EE (%)</i>	63.48 ± 0.35	75.44 ± 0.37	80.64 ± 0.51
<i>CC (%)</i>	15.01 ± 0.07	25.24 ± 0.16	40.44 ± 0.14

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

Los valores de rendimiento fueron relativamente altos para los tres sistemas, es decir, hubo poca pérdida de la dispersión durante el proceso de encapsulación y, a medida que se agregó MN en las formulaciones, el rendimiento aumentó, esto se debe a una interacción más compleja y robusta comparada con el sistema de AS.

De acuerdo con la Ec. (4), podemos decir que una *EE* mayor involucra una menor cantidad de aceite superficial, en el caso de las perlas de hidrogel formadas únicamente con AS se obtuvo un menor porcentaje de eficiencia lo cual da un indicativo de tener más aceite en la superficie y esto nos habla de una estructura más porosa que facilita la migración de las moléculas de aceite desde el interior hacia la superficie. Para las perlas de hidrogel conformadas con la mezcla de biopolímeros, se obtuvieron mejores valores de *EE*, estos resultados pueden explicarse debido al contenido de proteína del MN (~6.4%) el cuál le da una alta capacidad de retención de aceite a la mezcla y genera una interacción más robusta y compleja entre los componentes del sistema.

La *CC* es un parámetro que mide la cantidad de aceite que puede contenerse en una perla, el bajo valor obtenido para las perlas que no contienen MN es señal de que posiblemente el proceso de secado modificó su microestructura haciéndola más porosa y menos robusta a comparación de las perlas con AS-MN.

## ESTABILIDAD TÉRMICO-OXIDATIVA DE LOS HIDROGELES

En la Figura 2 se muestran las curvas de oxidación lipídica del AA libre y encapsulado en las diferentes perlas de hidrogel almacenados a diferentes temperaturas (25, 35 y 45 °C) y actividades de agua de 0.329, 0.318 y 0.313, respectivamente, durante ocho semanas.

De acuerdo con el CODEX Alimentarius, el valor peróxido máximo en el aceite de ajonjolí para el consumo humano es de 10 mEq/kg de aceite, como podemos apreciar en las gráficas, las perlas de hidrogel de AS-MN (1:1.5) durante las ocho semanas de almacenamiento se mantienen por debajo de ese valor.

La formación de peróxidos aumenta a medida que avanza el tiempo de almacenamiento hasta llegar a un punto donde se observa un decremento en el valor peróxido, aproximadamente después de 6

semanas, esto se debe a la formación de otros compuestos producto secundario de la oxidación lipídica tales como los aldehídos y los carbonilos.

Analizando el comportamiento de las curvas respecto a la temperatura, a medida que esta se incrementa, el valor peróxido también aumenta. Los procesos de degradación oxidativa en los aceites conllevan a la pérdida de valor nutricional y a la formación de sabores desagradables que pueden llegar a ser dañinos a la salud.

La modificación de la estructura, siendo ésta más robusta, y la reducción de la porosidad en los hidrogeles formados con MN explican el mayor efecto protector brindado al AA contra la oxidación aunado al contenido de antioxidantes (principalmente ácido ascórbico) que el mucílago posee.

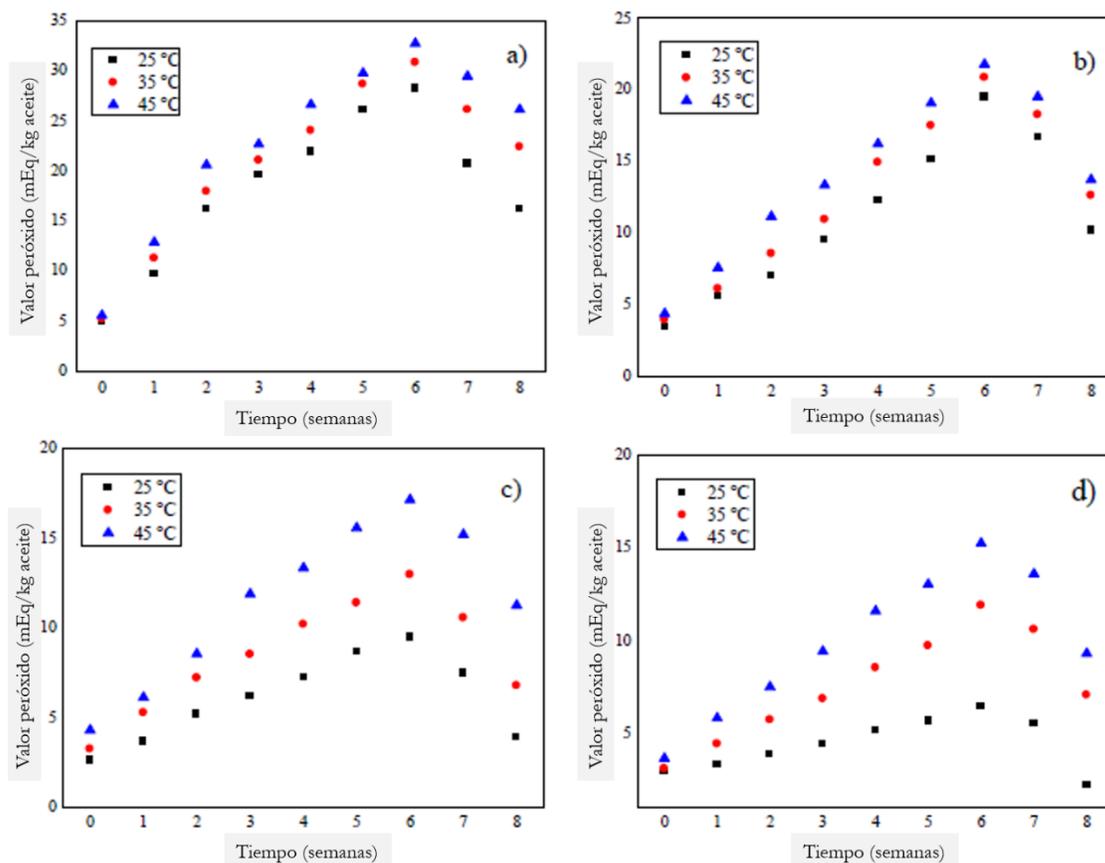


Figura 2. Curvas de oxidación lipídica del a) aceite de ajonjolí libre y las perlas de hidrogel: b) AS, c) AS-MN (1:1), y d) AS-MN (1:1.5) almacenados a diferentes temperaturas durante ocho semanas.

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

## CINÉTICA DE OXIDACIÓN LIPÍDICA DE ACEÍTE EN LOS HIDROGELES

Tabla 2. Parámetros cinéticos de orden cero para el AA libre y encapsulado

Modelo cinético $C_{HP} = K_{HP}t + C_{HP0}$		
$r^2$		
T = 25 °C		
AA Libre	$C_{HP} = 3.869t + 6.528$	0.974
AS	$C_{HP} = 2.584t + 2.642$	0.976
AS-MN (1:1)	$C_{HP} = 1.167t + 2.653$	0.996
AS-MN (1:1.5)	$C_{HP} = 0.595t + 2.807$	0.993
T = 35 °C		
AA Libre	$C_{HP} = 4.205t + 7.268$	0.973
AS	$C_{HP} = 2.848t + 3.326$	0.993
AS-MN (1:1)	$C_{HP} = 1.585t + 3.652$	0.994
AS-MN (1:1.5)	$C_{HP} = 1.418t + 2.958$	0.992
T = 45 °C		
AA Libre	$C_{HP} = 4.333t + 8.571$	0.954
AS	$C_{HP} = 2.864t + 4.008$	0.997
AS-MN (1:1)	$C_{HP} = 2.218t + 4.333$	0.990
AS-MN (1:1.5)	$C_{HP} = 1.900t + 3.794$	0.998

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

Los datos experimentales de la Figura 2 se ajustaron a las ecuaciones 5, 6 y 7 mostrando el mejor ajuste con el modelo cinético de orden cero, lo cuál significa que la tasa de formación de hidroperóxidos no depende de la concentración sino de los efectos térmicos. Las ecuaciones de las cinéticas obtenidas para los diferentes sistemas analizados se muestran en la Tabla 2.

Se observa en los datos obtenidos que el valor de las constantes de formación de peróxidos para el AA libre es significativamente mayor que para el aceite encapsulado, a la vez que, las constantes resultantes de los sistemas con MN son menores que las de los sistemas formados únicamente con AS. Un mayor valor de dicha constante indica una mayor difusión de oxígeno y por lo tanto, menor protección del aceite contra el proceso de oxidación. Si recordamos, en las microscopías del sistema AS-MN (1:1.5) no se observaron fracturas evidentes, esto está relacionado con una menor permeabilidad de oxígeno en las perlas de hidrogel y, por lo tanto, un mayor retardo en las reacciones de oxidación.

Se calcularon las energías de activación aparentes para los diferentes sistemas estudiados y se obtuvieron los valores mostrados en la Tabla 3, el sistema con mayor contenido de mucílago tuvo el mayor valor de  $E_a$ , esto indica que en ese sistema, se requiere mayor energía para comenzar la reacción de oxidación del aceite.

Tabla 3. Energía de activación aparente para los sistemas analizados

	$E_a$ (kJ/mol)
AA Libre	$3.49 \pm 1.13$
AS	$3.09 \pm 1.02$
AS-MN (1:1)	$24.29 \pm 1.05$
AS-MN (1:1.5)	$45.04 \pm 1.01$

De acuerdo con las energías de activación previamente calculadas, los mecanismos de transporte del AA están controlados por la difusión, esto está relacionado con la estructura formada por los materiales de pared.

## CINÉTICA DE LIBERACIÓN DE ACEITE EN LOS HIDROGELES

La Figura 3 representa los perfiles de liberación del AA en los tres diferentes sistemas a 25 °C en un solvente no polar. En los hidrogeles conformados únicamente con AS, el AA se transfiere a la superficie más rápido que en los hidrogeles que contienen MN, indicando así una mejora en la retención de aceite cuando se agrega este biopolímero y también coincide con lo reportado en la literatura respecto a que el AS forma estructuras más porosas con tamaños de poro relativamente grandes que favorecen una liberación más rápida del agente activo.

En el caso de las perlas de hidrogel con contenido de mucílago, los resultados sugieren que se tiene una estructura interna tortuosa que permite retener el AA y disminuir el proceso de liberación del mismo.

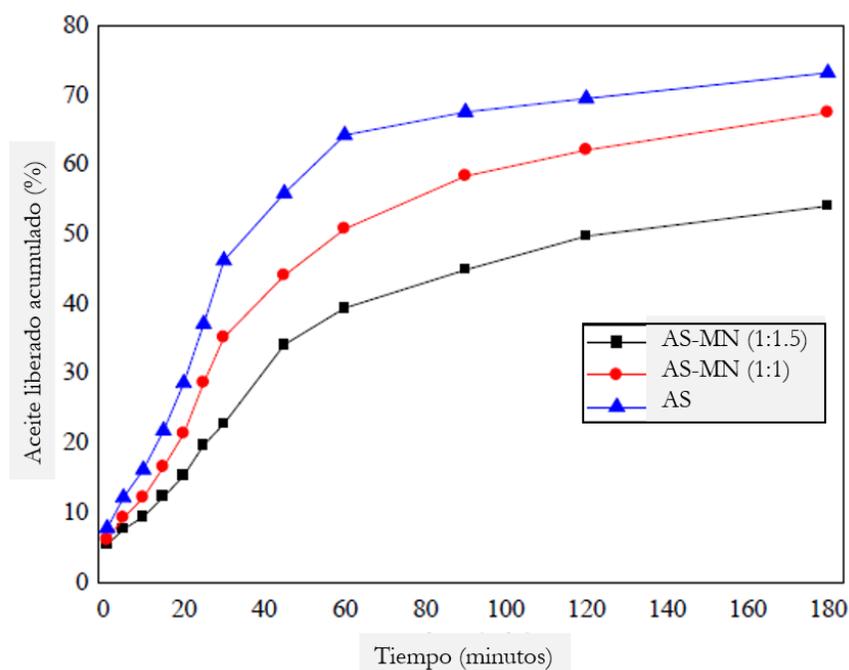


Figura 3. Perfiles de liberación del AA en los tres diferentes sistemas a 25 °C.

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

## ISOTERMAS DE ADSORCIÓN DE AGUA DE LOS HIDROGELES

Se realizaron las isotermas de adsorción de los tres tipos de hidrogeles a 25, 35 y 45 °C y se ajustaron al modelo de GAB formando una curva sigmoideal tipo II, estas gráficas se muestran en la Figura 4 y las ecuaciones obtenidas del ajuste se presentan en la Tabla 4.

Se puede apreciar que las perlas de hidrogel de AS tienen menor capacidad de adsorción de agua comparando con las perlas que contienen MN debido a que el mucílago es altamente higroscópico, esta característica favorece en este caso a una mayor retención de aceite debido a que las moléculas de agua bloquean los poros superficiales del hidrogel.

Las isotermas obtenidas presentan tres regiones. La primera región ( $a_w$  menor a 0.4) refleja la adsorción de la monocapa, en ésta sección existe una fuerte unión entre las moléculas de agua y el hidrogel. La segunda región se relaciona con la formación de multicapas ( $a_w$  de 0.4 a 0.65), aquí la adsorción de moléculas de agua en gran cantidad para los sistemas con MN reducen la rigidez inicial de los hidrogeles. En la última región ( $a_w$  de 0.65 a 0.85) se observa un incremento en el contenido de humedad en el equilibrio debido a la condensación capilar.

En la Tabla 4 se muestran los parámetros estimados para el modelo de GAB de los tres sistemas evaluados, los valores de  $E$  menores al 5% y  $R^2$  mayores a 0.998 nos indican un buen ajuste a este modelo.

El valor del contenido de humedad en la monocapa ( $M_0$ ) se considera el valor óptimo en el que el alimento es más estable. Los valores de la monocapa para el sistema de AS son menores que los de los sistemas con mucílago, esto indica un mayor número de sitios disponibles para la adsorción de moléculas de agua en los sistemas AS-MN.

El parámetro  $C$  se relaciona con la fuerza de enlace de sorción de las moléculas a los sitios activos primarios, podemos observar que estos valores disminuyen a medida que aumenta la temperatura y que el sistema de AS tiene los mayores valores, esto sugiere que se tiene una mayor estabilidad de las moléculas de agua adsorbidas en esta superficie de hidrogel en la monocapa. También se ha reportado que este parámetro puede carecer de significado físico y podría ser solamente una constante de ajuste al modelo.

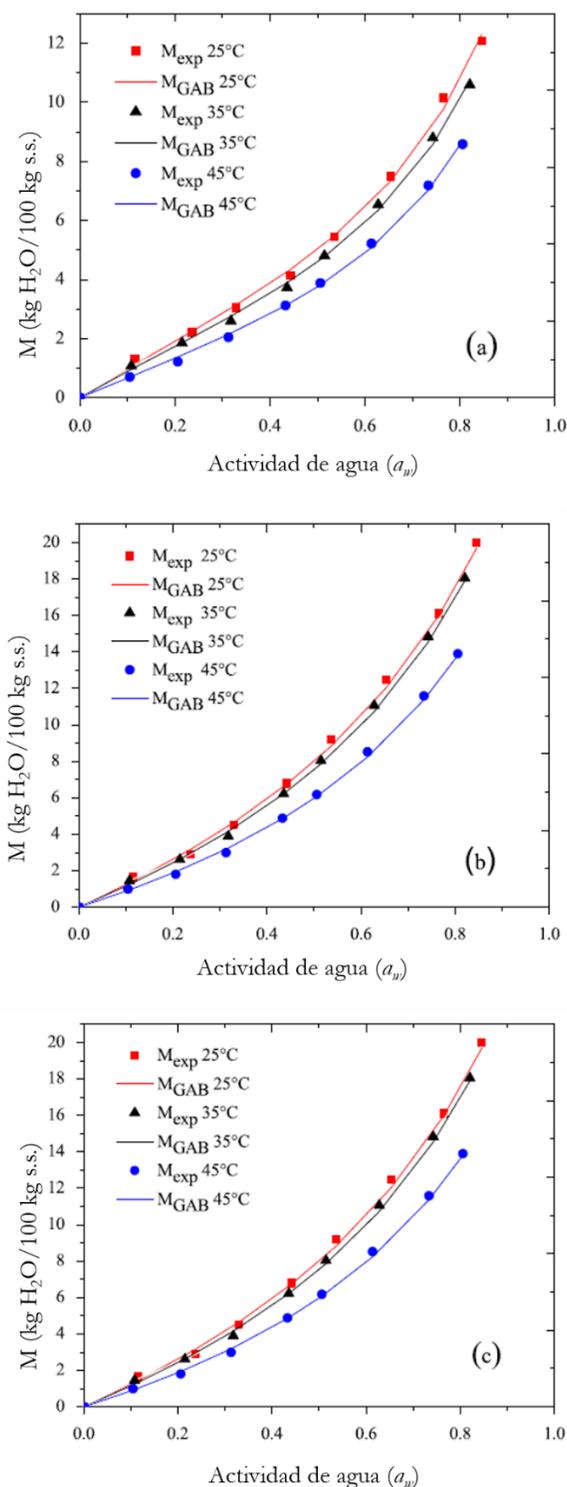


Figura 4. Isothermas de adsorción de agua de los hidrogeles (a) AS-MN (1:0), (b) AS-MN (1:1) y (c) AS-MN (1:1.5) a diferentes temperaturas

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

Tabla 4. Parámetros estimados del modelo de GAB para los diferentes sistemas de hidrogel

Sistema	Parámetro	25 °C	35 °C	45°C
AS	$M_0$	$4.61 \pm 0.21$	$4.13 \pm 0.22$	$3.61 \pm 0.22$
	$C$	$2.80 \pm 0.05$	$2.76 \pm 0.08$	$2.29 \pm 0.08$
	$K$	$0.80 \pm 0.04$	$0.82 \pm 0.04$	$0.82 \pm 0.06$
	$R^2$	0.998	0.998	0.999
	$E$ (%)	3.92	3.66	3.20
AS-MN (1:1)	$M_0$	$12.50 \pm 0.57$	$11.49 \pm 0.62$	$10.09 \pm 0.62$
	$C$	$1.37 \pm 0.03$	$1.33 \pm 0.04$	$1.17 \pm 0.04$
	$K$	$0.69 \pm 0.03$	$0.71 \pm 0.04$	$0.70 \pm 0.05$
	$R^2$	0.999	0.999	0.999
	$E$ (%)	4.24	3.76	3.59
AS-MN (1:1.5)	$M_0$	$12.57 \pm 0.57$	$11.64 \pm 0.63$	$10.42 \pm 0.64$
	$C$	$1.55 \pm 0.03$	$1.54 \pm 0.05$	$1.32 \pm 0.04$
	$K$	$0.70 \pm 0.03$	$0.73 \pm 0.04$	$0.72 \pm 0.05$
	$R^2$	0.999	0.999	0.999
	$E$ (%)	3.92	3.91	3.22

El valor del parámetro  $K$  representa la interacción adsorbente-multicapa, se considera que, a diferencia de la monocapa, las multicapas son atraídas débilmente hacia el adsorbente. Los valores obtenidos para este parámetro en los diferentes sistemas implica un estado estructurado de las multicapas y una movilidad restringida de las moléculas de agua, lo cual conlleva a una disponibilidad limitada de las mismas para participar en procesos deteriorativos.

## PROPIEDADES DE SORCIÓN DE LOS HIDROGELES

Se estimó el área superficial de sorción para los tres sistemas formulados y se encontró que los hidrogeles que contienen MN tienen valores de entre 353 y 440 m<sup>2</sup>/g, mientras que, los hidrogeles conformados únicamente con AS arrojaron valores significativamente menores (entre 126 y 161 m<sup>2</sup>/g), teniendo los valores máximos a la temperatura de 25 °C ya que, a medida que se aumenta la temperatura, se reduce la disponibilidad de los sitios activos. El incremento en la cantidad de sitios activos cuando se añade MN se debe a su gran afinidad por el agua y es un indicativo de una estructura intrínseca microporosa.

El radio de poro obtenido para las perlas se encontró entre 0.81 y 7.59 nm, correspondientes a la clasificación de microporos (menor a 2 nm) y mesoporos (2-50 nm) de acuerdo con la IUPAC, esto involucra mecanismos de transporte dados por la interacción pared-adsorbato y adsorbato-adsorbato.

Las características estructurales de las matrices porosas, las propiedades dimensionales de los poros y la heterogeneidad superficial, así como la temperatura, influyen determinadamente en los mecanismos de transferencia dentro de los sólidos.

## CONDICIONES DE ESTABILIDAD DE LOS HIDROGELES

El estudio de las propiedades termodinámicas es necesario para determinar el punto de máxima estabilidad el cual se encuentra dado por el valor mínimo de entropía integral.

La entalpía máxima integral indica que se han cubierto todos los sitios activos de interacción más fuerte entre el sólido y las moléculas de agua, una disminución en la entalpía refleja la formación de multicapas. Como se puede observar en la Figura 5, el sistema de AS tiene el mayor valor de entalpía indicando menor estabilidad que las perlas de hidrogel con MN.

La entropía mínima integral representa las condiciones en las que las moléculas de agua se encuentran más ordenadas y por lo tanto menos disponibles para ser parte de reacciones deteriorativas. Se encontró que la entropía integral mínima para los sistemas evaluados está en el rango de 3.31-5.59 kg H<sub>2</sub>O/100 kg s.s. (correspondiente a la actividad de agua de 0.23-0.59) (Figura 6).

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

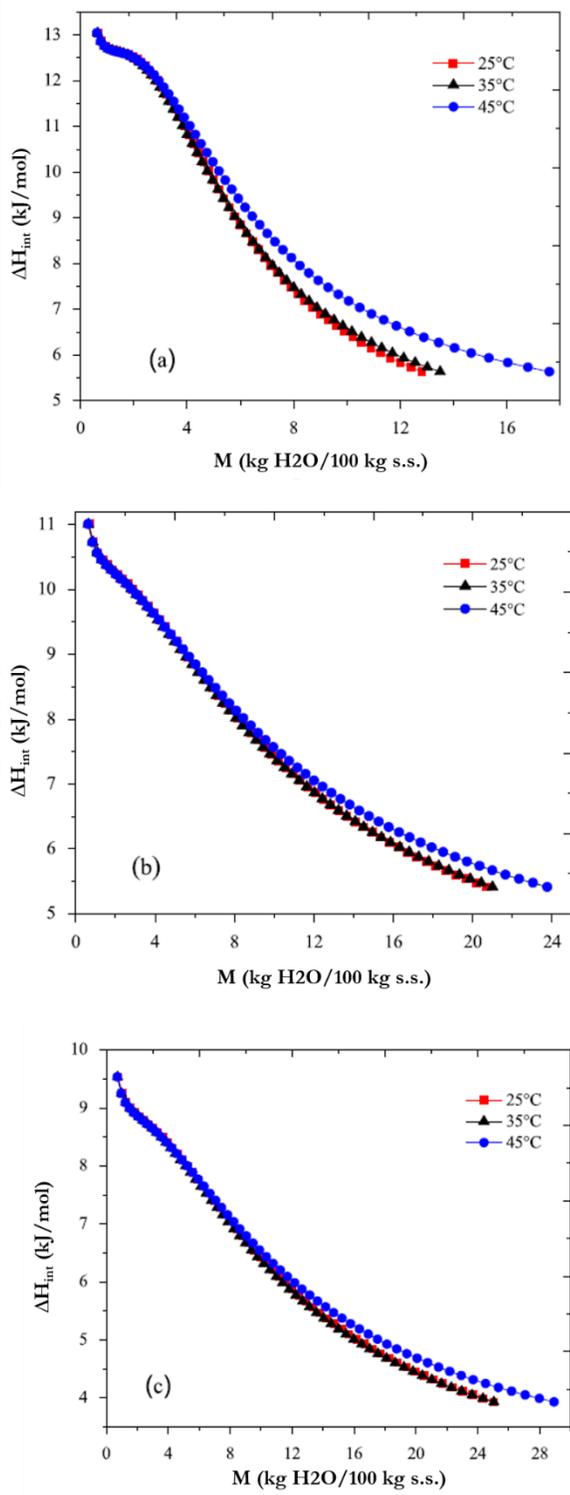


Figura 5. Entalpía integral de los hidrogeles formulados: (a) AS, (b) AS-MN (1:1) y (c) AS-MN (1:1.5) a diferentes temperaturas

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

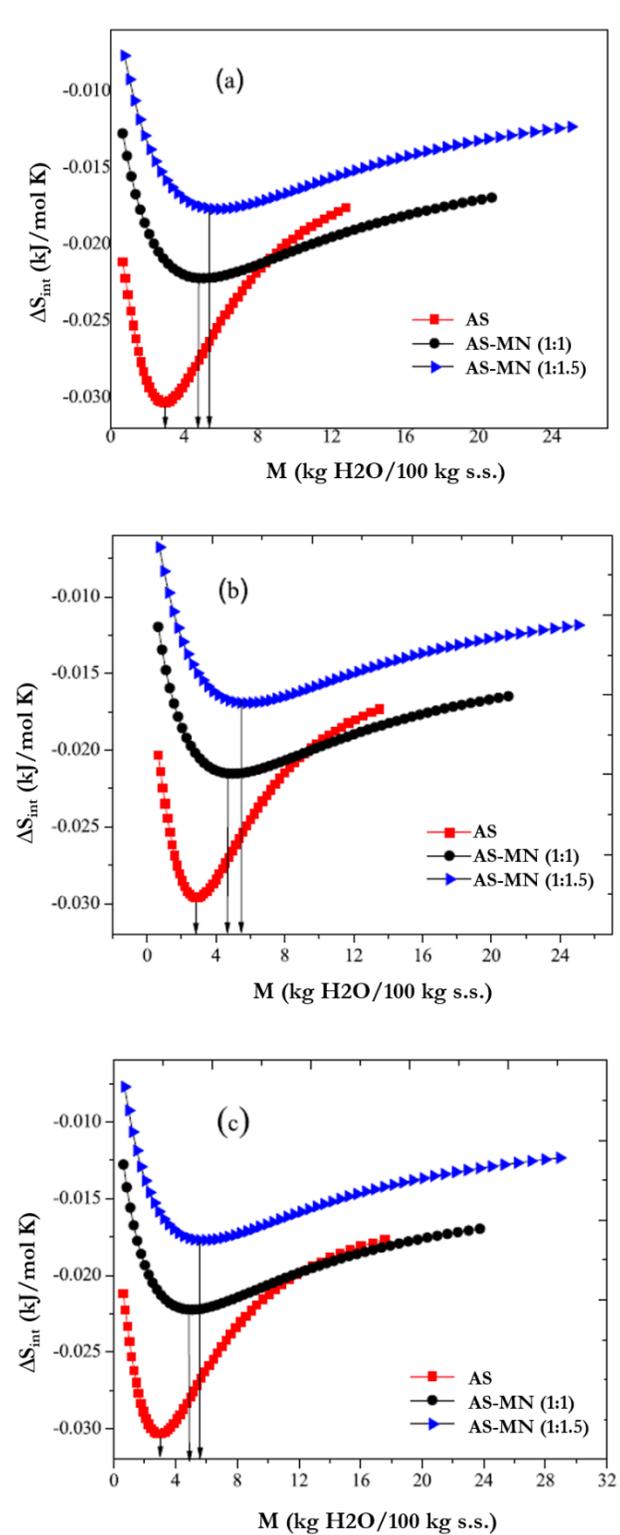


Figura 6. Entropía integral de los hidrogeles formulados a diferentes temperaturas: (a) 25, (b) 35 y (c) 45 °C

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

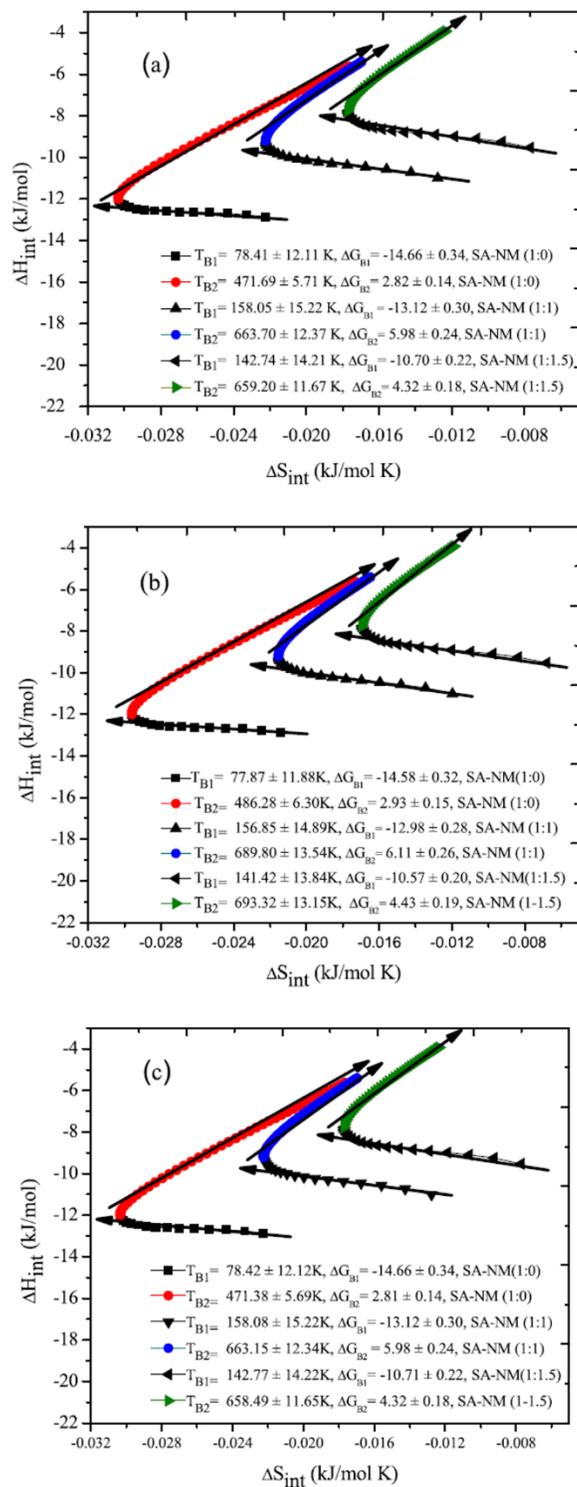


Figura 7. Compensación entalpía-entropía para la adsorción de agua de los hidrogeles formulados a diferentes temperaturas: (a) 25, (b) 35 y (c) 45 °C

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

Los sistemas conformados por las mezclas de biopolímeros presentaron menores valores de entropía integral, dado que el MN tiene una fracción de proteína en su composición, posee un carácter anfifílico, y esto conlleva a una estructura más organizada al enlazar el aceite con los biopolímeros mejorando así la estabilidad del AA y aumentando su protección contra factores deteriorativos.

## TEORÍA DE COMPENSACIÓN

Los resultados obtenidos para la evaluación de la teoría isocinética se muestran en la Figura 7, dado que  $T_{hm} \neq T_B$ , los tres sistemas formulados cumplen con ésta teoría y presentaron 2 líneas en las gráficas. La energía libre está asociada con la espontaneidad de los mecanismos de adsorción, si es negativa indica un proceso espontáneo y si es positiva se habla de un proceso no espontáneo.

De acuerdo a los parámetros obtenidos, a bajos contenidos de humedad se mostró la existencia de mecanismos entrópicos y espontáneos mientras que, posterior al punto de entropía integral mínima, predominan los procesos entálpicos y son no espontáneos. Los valores positivos de la energía libre en estos casos particulares sugieren que posterior al punto de máxima estabilidad, las perlas de hidrogel no son capaces de adsorber humedad del ambiente y este efecto es deseable para tener hidrogeles estables.

# CONCLUSIONES

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

## CONCLUSIONES

De acuerdo con los resultados obtenidos se observó que las mezclas de AS con MN utilizadas como materiales de pared para encapsular el AA mediante gelación iónica brindaron mayor estabilidad contra la oxidación y tasas de liberación controlada en comparación con los hidrogeles conformados solamente con AS.

En comparación con los hidrogeles conformados con AS, los sistemas de AS-MN resultaron ser menos esféricos, esto puede atribuirse a que el AS tiene mayor contenido de ácido gulurónico y éste compuesto es el que hace posible la formación de la estructura “caja de huevo” cuando se entrelaza con los cationes de calcio, a su vez, genera una estructura más esférica. Los hidrogeles conformados con las mezclas de biopolímeros no mostraron fracturas evidentes en su estructura, por lo que se evidencia que el mucílago de nopal actúa como soporte estructural en la formación de perlas de hidrogel.

La adición de MN en los sistemas provee mayor rendimiento, estabilidad y protección a la oxidación del aceite de ajonjolí, así como una tasa de liberación más controlada en comparación con los hidrogeles formados únicamente con AS, esto se debe a la interacción compleja, más fuerte y más robusta entre los componentes del hidrogel (AS-MN-AA).

La incorporación del MN a los sistemas brindó un carácter anfifílico a la matriz encapsulante debido a la presencia de proteína en este biopolímero y esto generó una estructura más estable, lo cuál se pudo observar en la estimación de la entalpía y entropía integral. Además, el estudio termodinámico mostró que el punto de máxima estabilidad donde los hidrogeles no presentan cambios físicos evidentes fue en el intervalo de humedad de 3.31 a 5.59 kg H<sub>2</sub>O/100 kg s.s. ( $a_w$  de 0.23 a 0.59).

De acuerdo con la teoría de compensación Entalpía – Entropía, el fenómeno de adsorción de humedad en los hidrogeles implicó procesos entálpicos y entrópicos, por lo tanto, se confirmó que las estructuras de los hidrogeles formados tienen valores de radio de poro correspondientes al orden de micro y mesoporos de acuerdo con la clasificación de la IUPAC.

Los resultados obtenidos en este proyecto indican que la mezcla de AS-MN se puede considerar como un potencial agente encapsulante para la aplicación en la industria alimentaria en la protección de aceites grasos polinsaturados como es el caso del aceite de ajonjolí.

# PRODUCTIVIDAD

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

## PRODUCTIVIDAD

### PUBLICACIONES EN REVISTAS INDIZADAS

Velázquez-Gutiérrez, S.K., Alpizar-Reyes, E., Cruz-Olivares, J., Barrera-Pichardo J.F., Rodríguez-Huezo, M.E., & Pérez-Alonso, C. (2020). Ionic gelation encapsulation of sesame oil with sodium alginate-nopal mucilage blends: Encapsulation efficiency and oxidative stability. *Revista Mexicana de Ingeniería Química*, 19(1), 349-362. <https://doi.org/10.24275/rmiq/Alim1642>

Velázquez-Gutiérrez, S.K., Alpizar-Reyes, E., Guadarrama-Lezama, A.Y., Báez-González, J.G., Alvarez-Ramírez, J., & Pérez-Alonso, C. (2021). Influence of the Wall material on the moisture sorption properties and conditions of stability of sesame oil hydrogel beads by ionic gelation. *LWT-Food Science and Technology*, 140, 110695. <https://doi.org/10.1016/j.lwt.2020.110695>

Cortés-Camargo, S., Román-Guerrero, A., Alvarez-Ramírez, J., Alpizar-Reyes, E., Velázquez-Gutiérrez, S.K., & Pérez-Alonso, C. (2023). Microstructural influence on physical properties and release profiles of sesame oil encapsulated into sodium alginate-tamarind mucilage hydrogel beads. *Carbohydrate Polymer Technologies and Applications*, 5, 100302. <https://doi.org/10.1016/j.carpta.2023.100302>

### CAPÍTULO DE LIBRO

Alpizar-Reyes, E., Román-Guerrero, A., Cortés Camargo, S., Velázquez-Gutiérrez, S.K., & Pérez-Alonso, C. (2023). Recent Approaches in Alginate-based Carriers for Delivery of Therapeutics and Biomedicine. En Jana, S., Jana, S., & Domb, A.J. (Ed.), *Polysaccharide-based Biomaterials: Delivery of Therapeutics and Biomedical Applications* (pp. 27-68). The Royal Society of Chemistry. ISSN Electrónico: 2397-141X

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

# REFERENCIAS

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

## REFERENCIAS

Alcântara, M.A., de Lima, A.E.A., Braga, A.L.M., Tonon, R.V., Galdeano, M.C., Mattos, M.C, Brígida, A.I.S., Rosenhaim, R., dos Santos, N.A., & Cordeiro, A.M.T.M. (2019). Influence of the emulsion homogenization method on the stability of chia oil microencapsulated by spray drying. *Powder Technology*, 354, 877-885. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2019.06.026>

Alpizar-Reyes, E., Carrillo-Navas, H., Romero-Romero, R., Varela-Guerrero, V., Alvarez-Ramírez, J., & Pérez-Alonso, C. (2017b). Thermodynamic sorption properties and glass transition temperature of tamarind seed mucilage (*Tamarindus indica* L.). *Food and Bioproducts Processing*, 101, 166–176. <https://doi.org/10.1016/j.fbp.2016.11.006>

Alpizar-Reyes, E., Román-Guerrero, A., Cortés Camargo, S., Velázquez-Gutiérrez, S.K., & Pérez-Alonso, C. (2023). Recent Approaches in Alginate-based Carriers for Delivery of Therapeutics and Biomedicine. En Jana, S., Jana, S., & Domb, A.J. (Ed.), *Polysaccharide-based Biomaterials: Delivery of Therapeutics and Biomedical Applications* (pp. 27-68). The Royal Society of Chemistry.

Alpizar-Reyes, E., Varela-Guerrero, V., Cruz-Olivares, J., Carrillo-Navas, H., Alvarez-Ramirez, J., & Pérez-Alonso, C. (2020). Microencapsulation of sesame seed oil by tamarind seed mucilage. *International Journal of Biological Macromolecules*, 145, 207-215. <https://doi.org/10.1016/j.ijbiomac.2019.12.162>

Bannikova, A., Evteev, A., Pankin, K., Evdokimov, I., & Kasapis, S. (2018). Microencapsulation of fish oil with alginate: In-vitro evaluation and controlled release. *LWT*, 90(December 2017), 310–315. <https://doi.org/10.1016/j.lwt.2017.12.045>

Boostani, S., & Jafari, S.M. (2021). A comprehensive review on the controlled release of encapsulated food ingredients; fundamental concepts to design and applications. *Trends in Food Science & Technology*, 109, 303–321. <https://doi.org/10.1016/j.tifs.2021.01.040>

Brigante, F. I., Lucini Mas, A., Pigni, N. B., Wunderlin, D. A., & Baroni, M. V. (2020). Targeted metabolomics to assess the authenticity of bakery products containing chia, sesame and flax seeds. *Food Chemistry*, 312(December 2019), 126059. <https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2019.126059>

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

- Cassini, A. S., Marczak, L. D. F., & Noreña, C. P. Z. (2006). Water adsorption isotherms of texturized soy protein. *Journal of Food Engineering*, 77(1), 194–199. <https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2005.05.059>
- Chen, F., Fan, G. Q., Zhang, Z., Zhang, R., Deng, Z. Y., & McClements, D. J. (2017). Encapsulation of omega-3 fatty acids in nanoemulsions and microgels: Impact of delivery system type and protein addition on gastrointestinal fate. *Food Research International*, 100, 387–395. <https://doi.org/10.1016/j.foodres.2017.07.039>
- Cortés-Camargo, S., Gallardo-Rivera, R., Barragán-Huerta, B. E., Dublán-García, O., Román-Guerrero, A., & Pérez-Alonso, C. (2018). Exploring the Potential of Mesquite Gum–Nopal Mucilage Mixtures: Physicochemical and Functional Properties. *Journal of Food Science*, 83(1), 113–121. <https://doi.org/10.1111/1750-3841.13937>
- Da Silva Soares, B., Pinto Siqueira, R., Geraldo de Carvalho, M., Vicente, J., & Garcia-Rojas, E.E. (2019). Microencapsulation of sacha inchi oil (*Plukenetia volubilis* L.) using complex coacervation: Formation and structural characterization. *Food Chemistry*, 298, 125045. <https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2019.125045>
- Di Giorgio, L., Salgado, P.R., & Mauri, A.N. (2019). Encapsulation of fish oil in soybean protein particles by emulsification and spray drying. *Food Hydrocolloids*, 87, 891-901. <https://doi.org/10.1016/j.foodhyd.2018.09.024>
- Di-Marsico, A., Scrano, L., Amato, M., Gámiz, B., Real, M., & Cox, L. (2018). Mucilage from seeds of chia (*Salvia hispanica* L.) used as soil conditioner; effects on the sorption-desorption of four herbicides in three different soils. *The Science of the Total Environment* 625, 531–538. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2017.12.078>
- Escalona-García, L. A., Pedroza-Islas, R., Natividad, R., Rodríguez-Huezo, M. E., Carrillo-Navas, H., & Pérez-Alonso, C. (2016). Oxidation kinetics and thermodynamic analysis of chia oil microencapsulated in a whey protein concentrate-polysaccharide matrix. *Journal of Food Engineering*, 175, 93–103. <https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2015.12.009>

- Esquerdo, V. M., Monte, M. L., & Pinto, L. A. de A. (2019). Microstructures containing nanocapsules of unsaturated fatty acids with biopolymers: Characterization and thermodynamic properties. *Journal of Food Engineering*, 248(December 2018), 28–35. <https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2018.12.015>
- Fernandes, S., & de las Mercedes, M. (2017). Addition of chia seed mucilage for reduction of fat content in bread and cakes. *Food Chemistry* 227, 237–244. <https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2017.01.075>
- Fuentes-Ortega, T., Martínez-Vargas, S.L., Cortés-Camargo, S., Guadarrama-Lezama, A.Y., Gallardo-Rivera, R., Baeza-Jiménez, R., & Pérez-Alonso, C. (2017). Effects of the process variables of microencapsulation sesame oil (*Sesamum indica* L.) by spray drying. *Revista Mexicana de Ingeniería Química*, 16(2), 477-490. <http://www.rmiq.org/iqfvp/Pdfs/Vol.%2016,%20No.%202/Alim8/RMIQTemplate.pdf>.
- George, M., & Abraham, T. E. (2006). Polyionic hydrocolloids for the intestinal delivery of protein drugs: alginate and chitosan—a review. *Journal of Controlled Release* 114(1), 1-14. <https://doi.org/10.1016/j.jconrel.2006.04.017>
- Haseeb, M., Hussain, M., Yuk, S., Bashir, S., & Nauman, M. (2016). Polysaccharides based superabsorbent hydrogel from Linseed: Dynamic swelling, stimuli responsive on–Off switching and drug release. *Carbohydrate Polymers* 136, 750–756. <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2015.09.092>
- Labuschagne, P. (2018). Impact of wall material physicochemical characteristics on the stability of encapsulated phytochemicals: A review. *Food Research International*, 107, 227-247. <https://doi.org/10.1016/j.foodres.2018.02.026>
- León-Martínez, F.M., Méndez-Lagunas, L.L., & Rodríguez-Ramírez, J. (2010). Spray drying of nopal mucilage (*Opuntia ficus-indica*): effects on powder properties and characterization. *Carbohydrate Polymers*, 81(4), 864–70. <https://doi:10.1016/j.carbpol.2010.03.061>
- Macías-Cortés, E., Gallegos-Infante, J. A., Rocha-Guzmán, N. E., Moreno-Jiménez, M. R., Medina-Torres, L., & González-Laredo, R. F. (2020). Microencapsulation of phenolic compounds: Technologies and novel polymers. *Revista Mexicana de Ingeniería Química* 19(2), 491-521. <https://doi.org/10.24275/rmiq/Alim642>

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

- Medina-Torres, L., García-Cruz, E.E., Calderas, F., González-Laredo, R.F, Sánchez-Olivares, G., Gallegos-Infante, J.A., Rocha-Guzmán, N.E., & Rodríguez-Ramírez, J. (2013). Microencapsulation by spray drying of gallic acid with nopal mucilage (*Opuntia ficus indica*). *LWT - Food Science & Technology*, 50, 642–650. <http://dx.doi.org/10.1016/j.lwt.2012.07.038>.
- Menin, A., Zanoni, F., Vakarelova, M., Chignola, R., Donà, G., Rizzi, C., Mainente, F., & Zoccatelli, G. (2018). Effects of microencapsulation by ionic gelation on the oxidative stability of flaxseed oil. *Food Chemistry*, 219, 293-299. <https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2018.06.144>.
- Monte, M. L., Moreno, M. L., Senna, J., Arrieche, L. S., & Pinto, L. A. A. (2018). Moisture sorption isotherms of chitosan-glycerol films: Thermodynamic properties and microstructure. *Food Bioscience*, 22(February), 170–177. <https://doi.org/10.1016/j.fbio.2018.02.004>
- Moraes, K., & Pinto, L. A. A. (2012). Desorption isotherms and thermodynamics properties of anchovy in natura and enzymatic modified paste. *Journal of Food Engineering*, 110(4), 507–513. <https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2012.01.012>
- Rosa, G. S., Moraes, M. A., & Pinto, L. A. A. (2010). Moisture sorption properties of chitosan. *Lebensmittel-Wissenschaft und -Technologie- Food Science and Technology*, 43(3), 415–420. <https://doi.org/10.1016/j.lwt.2009.09.003>
- Rodea-González, D.A., Cruz-Olivares, J.C., Román-Guerrero, A., Rodríguez-Huezo, M.E., Vernon-Carter, E.J., & Pérez-Alonso, C. (2012). Spray-dried encapsulation of chia essential oil (*Salvia hispanica* L.) in whey protein concentrate-polysaccharide matrices. *Journal of Food Engineering* 111, 102-109. doi: 10.1016/j.jfoodeng.2012.01.020
- Sáenz, C., Sepúlveda, E., & Matsuhira, B. (2004). *Opuntia* spp mucilage's: a functional component with industrial perspectives. *Journal of Arid Environments* 57(3), 275-290. [https://doi.org/10.1016/S0140-1963\(03\)00106-X](https://doi.org/10.1016/S0140-1963(03)00106-X)
- Saha, D., & Bhattacharya, S. (2010). Hydrocolloids as thickening and gelling agents in food: a critical review. *Journal of Food Science and Technology* 47(6), 587-597. <https://doi.org/10.1007/s13197-010-0162-6>.

Sampaio, G.L.A., Pacheco, S., Ribeiro, A.P.O., Galdeano, M.C., Gomes, F.S., & Tonon, R.V. (2019). Encapsulation of a lycopene-rich watermelon concentrate in alginate and pectin beads: Characterization and stability. *LWT – Food Science and Technology*, 116, 108589. <https://doi.org/10.1016/j.lwt.2019.108589>

Servicio de Información Agroalimentaria y Pesquera (SIAP). (2022). Anuario estadístico de la Producción Agrícola. Recuperado el 24 de noviembre de 2022 de <https://nube.siap.gob.mx/cierreagricola/>

Shi, M., Ying, D.Y., Hlaing, M.M., Ye, J.H., Sanguansri, L., & Augustin M.A. (2020). Oxidative stability of spray dried matcha-tuna oil powders. *Food Research International*, 132, 109050. <https://doi.org/10.1016/j.foodres.2020.109050>

Silva, K.F.C, Carvalho, A.G.S., Rabelo, R.S., & Hubinger M.D. (2019). Sacha inchi oil encapsulation: Emulsion and alginate beads characterization. *Food and Bioproducts Processing*, 116, 118-129. <https://doi.org/10.1016/j.fbp.2019.05.001>

Sonwane, C. G., & Bhatia, S. K. (2000). Characterization of pore size distributions of mesoporous materials from adsorption isotherms. *Journal of Physical Chemistry B*, 104(39), 9099–9190. <https://doi.org/10.1021/jp000907j>

Varela, P., & Fiszman, S. M. (2011). Hydrocolloids in fried foods. A review. *Food Hydrocolloids* 25(8), 1801-1812. <https://doi.org/10.1016/j.foodhyd.2011.01.016>

Vasile, F.M., Romero, A.M., Judis, M.A., & Mazzobre, M.F. (2016). *Prosopis alba* exudate gum as excipient for improving fish oil stability in alginate-chitosan beads. *Food Chemistry* 190,1093-1101. <http://dx.doi.org/10.1016/j.foodchem.2015.06.071>

Velázquez-Gutiérrez, S.K., Alpizar-Reyes, E., Cruz-Olivares, J., Barrera-Pichardo J.F., Rodríguez-Huezo, M.E., & Pérez-Alonso, C. (2020). Ionic gelation encapsulation of sesame oil with sodium alginate-nopal mucilage blends: Encapsulation efficiency and oxidative stability. *Revista Mexicana de Ingeniería Química*, 19(1), 349-362. <https://doi.org/10.24275/rmiq/Alim1655>

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

- Yamashita, K., Nohara, Y., Katayama, K., & Namiki, M. (1992). Sesame Seed Lignans and  $\gamma$ -Tocopherol Act Synergistically to Produce Vitamin E Activity in Rats. *The Journal of Nutrition*, 122(12), 2440–2446. <https://doi.org/10.1093/jn/122.12.2440>
- Ye, Q., Georges, N., & Selomulya, C. (2018a). Microencapsulation of active ingredients in functional foods: From research stage to commercial food products. *Trends in Food Science and Technology*, 78(June), 167–179. <https://doi.org/10.1016/j.tifs.2018.05.025>
- Zambrano-Zaragoza, M.L., Gutiérrez-Cortez, E., Del Real, A., González-Reza, R.M., Galindo-Pérez, M.J., & Quintanar-Guerrero, D. (2014). Fresh-cut Red Delicious apples coating using tocopherol/mucilage nanoemulsion: Effect of coating on polyphenol oxidase and pectin methylesterase activities. *Food Research International* 62, 974–983. <https://doi:10.1016/J.FOODRES.2014.05.011>
- Zhou, M., Hu, Q., Wang, T., Xue, J., & Luo, Y. (2018). Alginate hydrogel beads as a carrier of low density lipoprotein/pectin nanogels for potential oral delivery applications. *International Journal of Biological Macromolecules*, 120, 859–864. <https://doi.org/10.1016/j.ijbiomac.2018.08.135>

# ANEXOS

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*

## ANEXOS

## ARTÍCULO DE INVESTIGACIÓN 1

Ionic gelation encapsulation of sesame oil with sodium alginate-nopal mucilage blends: Encapsulation efficiency and oxidative stability

<https://doi.org/10.24275/rmiq/Alim1642>

Vol. 19, Sup. 1 (2020) 349-362



Revista Mexicana de Ingeniería Química

**Ionic gelation encapsulation of sesame oil with sodium alginate-nopal mucilage blends: Encapsulation efficiency and oxidative stability**

**Encapsulación por gelación iónica de aceite de sésamo con mezclas de alginato de sodio-mucilago de nopal: Eficiencia de encapsulación y estabilidad oxidativa**

S.K. Velázquez-Gutiérrez<sup>1</sup>, E. Alpizar-Reyes<sup>1</sup>, J. Cruz-Olivares<sup>1</sup>, J.F. Barrera-Pichardo<sup>1</sup>, M.E. Rodríguez-Huezo<sup>2</sup>, C. Pérez-Alonso<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup>Departamento de Ingeniería Química, Facultad de Química, Universidad Autónoma del Estado de México, Paseo Colón esq. Paseo Tollocan s/n, Col. Residencial Colón, C.P. 50120, Toluca, Estado de México, México.

<sup>2</sup>Departamento de Ingeniería Química y Bioquímica, Tecnológico de Estudios Superiores de Ecatepec, Av. Tecnológico s/n esq. Av. Central, Col. Valle de Anáhuac, Ecatepec, C.P. 55210, Estado de México, México.

Received: April 29, 2020; Accepted: June 25, 2020

#### Abstract

Hydrogel beads were formed by ionic gelation between sodium alginate-nopal mucilage (SA-NM) for enhancing the encapsulation efficiency and oxidative stability of sesame oil (SO). SA-NM blends (2% w/v) were used 1:1 and 1:1.5 (w/w) ratios. Ionic gelation was induced by dripping the SO-SA-NM homogenized dispersions with the help of a syringe into CaCl<sub>2</sub> (2.5% w/v) solution with continuous stirring. The resulting beads were oven-dried and stored under controlled temperature conditions. The hydrogel beads were evaluated for size and shape, and for SO encapsulation efficiency, oxidative stability, and release kinetics. Results were compared with hydrogel beads made with only SA (2% w/v). The SA beads had a regular spherical shape with a mean size of ~2.19 mm, while the SA-NM hydrogels beads had an irregular semi-spherical shape with a significant smaller (~2.06-2.10 mm) size. SA-NM hydrogel beads displayed higher encapsulation efficiency (> 75.44%) than SA beads (63.48%), and provided better protection to SO against oxidation during storage than the SA beads and free SO oil. Oxidation kinetics were of zero-order in all cases. The release kinetics of SO was diffusion controlled and was significantly slower for SA-NM than for SA beads. Our results indicate that SA-NM mixtures may be considered as potential additives for food industry applications.

**Keywords:** nopal mucilage, sodium alginate, ionic gelation, sesame oil, oxidative stability, encapsulation efficiency.

#### Resumen

Se formaron perlas de hidrogel por gelación iónica entre alginato de sodio - mucilago de nopal (SA - NM) para mejorar la eficiencia de encapsulación y la estabilidad oxidativa del aceite de sésamo (SO). Las mezclas SA - NM (2% w/v) se usaron en relaciones peso de 1:1 y 1:1.5 (w/w) a una concentración de 2% (w/v). La gelación iónica se indujo goteando las dispersiones homogeneizadas de SO - SA - NM con la ayuda de una jeringa en una solución de CaCl<sub>2</sub> (2.5% p/v) bajo agitación continua para inducir la gelación iónica. Las perlas resultantes se secaron en un horno de convección forzada y se almacenaron en condiciones controladas de temperatura. El tamaño y forma de las perlas de hidrogel se evaluaron, así como la eficiencia de encapsulación, la estabilidad oxidativa y la cinética de liberación de SO. Los resultados se compararon con perlas de hidrogel hechas con solo SA (2% w/v). Las perlas de hidrogel de SA presentaron una forma esférica regular de ~2.19 mm de tamaño promedio, mientras que las perlas de hidrogel de SA-NM tuvieron una forma semiesférica irregular con un tamaño promedio significativamente menor (~2.06-2.10 mm). Las perlas de los hidrogel SA-NM mostraron una mayor eficiencia de encapsulación (> 75.44%) que las perlas de SA (63.48%), y también ofrecieron una mejor protección al SO contra la oxidación durante el almacenamiento en comparación con el aceite libre y las perlas de SA. Las cinéticas de oxidación fueron de orden cero. La cinética de liberación de SO fue controlada por difusión y fue más lenta para las perlas SA - NM que para las de SA. Nuestros resultados indican que mezclas de SA-NM pueden considerarse como aditivos potenciales para aplicaciones en la industria alimentaria.

**Palabras clave:** mucilago de nopal, alginato de sodio, gelación iónica, aceite de ajonjolí, estabilidad oxidativa, eficiencia de encapsulación.

\* Corresponding author. E-mail: cpereza@uaemex.mx

<https://doi.org/10.24275/rmiq/Alim1655>

ISSN:1665-2738, tsm-e: 2395-8472

## ARTÍCULO DE INVESTIGACIÓN 2

Influence of the wall material on the moisture sorption properties and conditions of stability of sesame oil hydrogel beads by ionic gelation

<https://doi.org/10.1016/j.lwt.2020.110695>

LWT - Food Science and Technology 140 (2021) 110695



Contents lists available at ScienceDirect

LWT

journal homepage: [www.elsevier.com/locate/lwt](http://www.elsevier.com/locate/lwt)



Influence of the wall material on the moisture sorption properties and conditions of stability of sesame oil hydrogel beads by ionic gelation

S.K. Velázquez-Gutiérrez<sup>a</sup>, E. Alpizar-Reyes<sup>a</sup>, A.Y. Guadarrama-Lezama<sup>a</sup>, J.G. Báez-González<sup>b</sup>, J. Alvarez-Ramírez<sup>c</sup>, C. Pérez-Alonso<sup>a,\*</sup>

<sup>a</sup> Facultad de Química, Universidad Autónoma del Estado de México, Paseo Colón esq. Paseo Tollocan s/n, Col. Residencial Colón, Toluca, Estado de México, C.P. 50120, México

<sup>b</sup> Departamento de Alimentos, Facultad de Ciencias Biológicas, Universidad Autónoma de Nuevo León, Av. Universidad s/n, Cd. Universitaria, Monterrey, Nuevo León, C. P. 66455, México

<sup>c</sup> Departamento de Ingeniería de Procesos e Hidráulica, Universidad Autónoma Metropolitana-Iztapalapa, San Rafael Atlixco No. 186, Col. Vicentina, Mexico City, C.P. 09340, México

## ARTICLE INFO

## Keywords:

Sodium alginate  
Nopal mucilage  
Hydrogel beads  
Ionic gelation  
Minimum integral entropy

## ABSTRACT

Sesame oil was encapsulated by ionic gelation using matrices of sodium alginate and nopal mucilage as wall material. Moisture sorption isotherms of three different types of hydrogels beads formed by SA-NM (1:0 w/w), SA-NM (1:1 w/w) and SA-NM (1:1.5 w/w) were performed at 25, 35 and 45 °C. Experimental isotherms were described by means of the GAB model, showing sigmoidal shape. Pore radius values of beads ranged from 0.81 to 7.59 nm, corresponding to micropores and mesopores classification. The integral thermodynamic properties were estimated to define conditions of maximum stability of the hydrogel beads. The point of maximum stability, linked to minimum integral entropy, was in the range 3.31–5.59 kg H<sub>2</sub>O/100 kg d.s. (corresponding to water activity,  $a_w$ , of 0.23–0.59) in the studied temperature range. Enthalpy-entropy compensation for the beads exhibited the presence of two isokinetic temperatures; one at low moisture contents (0–5.95 kg H<sub>2</sub>O/100 kg d.s.) controlled by variations of the water entropy, and a second given by enthalpy-driven mechanisms. Overall, the results showed that the hydrogel beads exhibited features of micro- and meso-porous biomaterials. Besides, the composition of the wall material has central implications for the characteristics of the sorption process.

*Estudio de la estabilidad y liberación del aceite de ajonjolí encapsulado mediante gelación iónica con alginato de sodio y mucílago de nopal como agentes encapsulantes*