



UNIVERSITAT
POLITÈCNICA
DE VALÈNCIA



SÍNTESIS Y CARACTERIZACIÓN DE MICROCÁPSULAS DE ACEITE ESENCIAL DE NARANJA PARA SU USO EN AROMATERAPIA

Máster Universitario en Ingeniería Textil

Alumno: Wagner Soares Rossi
Directora: M^a Ángeles Bonet Aracil
Codirectora: Eva Bou Belda
Departamento de Ingeniería Textil y Papelera
Alcoy, julio 2017

Agradecimientos

A mis directoras, María Ángeles Bonet Aracil y Eva Bou Belda por todo el conocimiento, ayuda y comprensión para la realización de este trabajo.

A todos los profesores de la Maestría en Ingeniería Textil del Departamento de Ingeniería Textil y Papelera del Campus de Alcoy de la Universidad Politécnica de Valencia por las enseñanzas. Al técnico del laboratorio, Manolo, siempre dispuesto a ayudar en todo lo que fue necesario.

Mi familia y amigos por el apoyo en las horas difíciles, a mis colegas por todo el apoyo y ayuda, principalmente con el idioma, para la realización de este y de muchos trabajos. Y a todos aquellos que de alguna manera me ayudaron y no se mencionaron aquí.

Y me gustaría hacer un agradecimiento especial a Clarissa Felkl Prevedello mi compañera de una vida, por el incentivo, la ayuda, el apoyo y la fuerza en todo momento, muchas gracias!

Resumen

Los aceites esenciales han sido ampliamente adoptados en la sociedad moderna y tienen su importancia como fragancia con potencial curativo para el cuerpo, la mente y el espíritu. Pero, es una sustancia de alta tasa volátil y su uso directo es limitado. La tecnología de microencapsulación puede ayudar en la estabilidad,

La microencapsulación ayuda a la aplicación de aceites esenciales aromáticos en tejidos, y su utilización en la industria textil ha sido utilizada para el desarrollo de productos innovadores, dando características sensoriales a los productos textiles que pueden ser utilizados en aromaterapia.

Por medio de la microencapsulación se puede proteger a través de la membrana, la sustancia inestable y volátil del aceite esencial, facilitando el mantenimiento del olor y la posterior aplicación en textiles. Por eso, el desafío es aislar el aceite en el núcleo de las microcápsulas y posibilitar un ambiente controlado y de liberación persistente y continua de estos ingredientes activos.

El aceite esencial de naranja (*citrus sinensis*) fue seleccionado para el trabajo, pues tiene tanto características funcionales de acción biocida como propiedades sensoriales de control de ansiedad y relajación, alivio de náuseas y aliviar dolor crónico, siendo también un aroma característico ya asociado con sensaciones agradables.

Por eso, este estudio pretende optimizar el proceso de obtención de microcápsulas de aceite esencial de naranja para el uso en aromaterapia. Primeramente, se seleccionó el aceite esencial de naranja por sus propiedades aromáticas y terapéuticas como material de núcleo de las microcápsulas para después, producir, caracterizar y sistematizar los procedimientos y las condiciones de formación y de fabricación de microcápsulas de membrana de melamina-formaldehído con el aceite esencial. Se realizaron diversas pruebas de sintetización de microcápsulas por polimerización interfacial con el aceite esencial de naranja y con la fragancia pure Joy para validar la eficiencia de las microcápsulas obtenidas por en laboratorio. Las microcápsulas sintetizadas fueron caracterizadas por Microscopio Electrónico de Barrido, Microscopio Electrónico de Transmisión y Calorimetría Diferencial de Escaneado. Como resultado se obtuvo un procedimiento optimizado para la obtención de las microcápsulas de aceite esencial de naranja.

Abstract

Essential oils have been widely adopted in modern society and have their importance as a fragrance with curative potential for body, mind and spirit. But, it is a high volatile rate substance and its direct use is limited. Microencapsulation technology can help in the stability,

Microencapsulation helps the application of aromatic essential oils in fabrics, and its use in the textile industry has been used for the development of innovative products, giving sensorial characteristics to textile products that can be used in aromatherapy.

Through the microencapsulation can be protected through the membrane, the volatile and unstable substance of the essential oil, facilitating the maintenance of the aroma and the subsequent application in textiles. Therefore, the challenge is to isolate the oil in the core of the microcapsules and to enable a controlled environment and persistent and continuous release of these active ingredients.

The orange essential oil (*citrus sinensis*) was selected for the work, as it has both functional biocidal properties and sensorial properties of anxiety control and relaxation, relief of nausea and relieve chronic pain, being also a characteristic aroma already associated with sensations Nice

Therefore, this study aims to optimize the process of obtaining microcapsules of orange essential oil for use in aromatherapy. Firstly, the orange essential oil was selected for its aromatic and therapeutic properties as the core material of the microcapsules, to produce, characterize and systematize the procedures and conditions for the formation and manufacturing of melamine-formaldehyde membrane microcapsules with the essential oil. Various microcapsule synthetization tests were performed by interfacial polymerization with the orange essential oil and Joy pure fragrance to validate the efficiency of the microcapsules obtained by the laboratory. Scanning Electron Microscope, Transmission Electron Microscope and Differential Scanning Calorimetry characterized the synthesized microcapsules. As a result, an optimized procedure was obtained for the preparation of the orange essential oil microcapsules.

Contenido

1 INTRODUCCIÓN	8
1.1 Microcápsulas	10
1.1.1 Principios activos	11
1.1.2 Membrana	11
1.1.3 Proceso de Encapsulación	12
1.2 Aromaterapia	12
1.2.1 Aceites en aromaterapia.....	15
2 OBJETIVOS	19
2.1 Objetivo general.....	19
2.2 Objetivos específicos	19
3 EXPERIMENTAL.....	20
3.1 Materiales empleados	20
3.2 Métodos empleados.....	20
3.2.1 Síntesis de las microcápsulas de aceite esencial de naranja	20
3.2.2 Síntese das microcápsulas de fragancia pure Joy	22
3.3 Técnicas instrumentales empleadas.....	23
3.3.1 Microscopio Electrónico de Barrido	23
3.3.2 Calorimetría Diferencial de barrido.....	24
3.3.3 Microscopio Electrónico de Transmisión	25
4. RESULTADOS Y DISCUSSION.....	26
4.1 Caracterización de los materiales por Calorimetría Diferencial de Barrido	26
4.2 Prueba 1 - aceite esencial de naranja : aceite Triglicéridos de Cadena Media (1:1), tensioactivo Tween 20	29
4.2.1 Microscopía electrónica de Barrido	29
4.2.2 Microscopía Electrónica de Transmisión	30
4.2.3 Calorimetría Diferencial de Barrido.....	31
4.3 Prueba 2 - aceite esencial de naranja : aceite Triglicéridos de Cadena Media (1:2), tensioactivo Tween 20	32
4.3.1 Microscopía Electrónica de Barrido	32
4.3.2 Microscopía Electrónica de Transmisión	33
4.3.3 Calorimetría Diferencial de Barrido.....	33

4.4 Prueba 3 - aceite esencial de naranja : aceite Triglicéridos de Cadena Media (2:1), tensioactivo Tween 20	34
4.4.1 Microscopía Electrónica de Barrido	34
4.4.2 Microscopía Electrónica de Transmisión	35
4.4.3 Calorimetría Diferencial de Barrido.....	36
4.5 Prueba 4 - aceite esencial de naranja y tensioactivo Tween 20	37
4.5.1 Microscopía Electrónica de Barrido	37
4.5.2 Microscopía Electrónica de Transmisión	37
4.5.3 Calorimetría Diferencial de Barrido.....	38
4.6 Prueba 5 - aceite esencial de naranja : aceite Triglicéridos de Cadena Media (1:1), tensioactivo bromuro de cetiltrimetilamonio	39
4.6.1 Microscopía Electrónica de Barrido	39
4.6.2 Microscopía Electrónica de Transmisión	40
4.6.3 Calorimetría Diferencial de Barrido.....	41
4.7 Prueba 6 - aceite esencial de naranja : aceite Triglicéridos de Cadena Media (1:2), tensioactivo bromuro de cetiltrimetilamonio	41
4.7.1 Microscopía Electrónica de Barrido	41
4.7.2 Microscopía Electrónica de Transmisión	43
4.7.3 Calorimetría Diferencial de Barrido.....	43
4.8 Prueba 7 - Fragancia pure Joy, tensioactivo Tween 80	44
4.8.1 Microscopía Electrónica de Barrido	44
4.9 Prueba 8 - Fragancia pure Joy, tensioactivo Tween 80	45
4.9.1 Microscopía Electrónica de Barrido	45
4.10 Prueba 9 - Fragancia pure Joy, tensioactivo Tween 80	45
4.10.1 Microscopía Electrónica de Barrido	45
4.11 Prueba 10 - Fragancia pure Joy, tensioactivo Tween 80	46
4.11.1 Microscopía Electrónica de Barrido	46
5. CONCLUSIONES	48
6. LÍNEAS FUTURAS	49
7. LISTADO DE TABLAS E FIGURAS	50
7.1 LISTADO DE TABLAS	50
7.2 LISTADO DE FIGURAS.....	50
8 REFERENCIAS	52

9 ANEXOS..... 58
9.1 Publicaciones..... 58

1 INTRODUCCIÓN

Los aceites esenciales tienen su importancia como fragancia con potencial curativo para el cuerpo, la mente y el espíritu [1]. Son compuestos orgánicos volátiles que son producidos naturalmente por varias partes de plantas aromáticas, la función de estas moléculas de aroma son muy potentes gracias a la presencia de compuestos químicos orgánicos de las plantas, generando un entorno libre de enfermedades, bacterias, virus y hongos [1,2,3]. Por eso, han sido ampliamente adoptados en la sociedad moderna debido a su diversidad de bioactividad (actividad biocida y potencial antioxidante) [4,5,6], así como por la fuerte demanda de ingredientes naturales puros en muchos campos [7]

Dichos aceites tienen un carácter versátil, de naturaleza antibacteriana, antiviral, antiinflamatoria junto con el efecto de refuerzo inmune con efecto hormonal, glandular, emocional, circulatorio, efecto calmante, memoria y mejorador de alerta, está bien documentado por muchos científicos y su papel en el estado de ánimo, la alerta y el estrés mental en sujetos sanos fue un tema recurrente de discusión entre la comunidad científica recientemente [1,8].

Pero, debido a su alta tasa volátil, el uso directo de aceites esenciales está limitado [3]. Por eso, la tecnología de microencapsulación puede ayudar en su estabilidad, siendo un método económicamente viable, rápido y eficaz, y que deja residuos mínimos, además, protege de la luz, del aire y del calor [3,5]. La microencapsulación ha sido ampliamente utilizada en la industria textil para revestimiento de tejido, pues, evita que la cápsula se rompa durante el proceso de recubrimiento [3]. Los avances científicos actuales en el área de microencapsulación se están utilizando para el desarrollo de la innovación en productos textiles, como en el caso de la utilización de tejidos que contienen: fragancias de larga duración [9 -19] aromaterapia [14,20] y anti fúngicos [21].

Existen estudios en que los aromas de lavanda, rosa, frutas cítricas y vainilla fueron encapsulados y aplicados en tejidos, mostrándose como una buena manera de satisfacer importantes necesidades psicológicas y emocionales, así como aquellas de naturaleza puramente física y sensorial, esos tipos de tejidos se llaman 'textiles aromaterápicos' [20].

La aromaterapia ha ganado mucha atención a finales del siglo XX y es muy popular en el siglo XXI también, y debido a su importancia, la popularidad y el uso generalizado, es reconocido como ciencia en Inglaterra y Francia [1,22]. Los franceses consideran la aromaterapia una especialidad médica y los británicos utilizan la aromaterapia como una práctica alternativa y complementaria [22].

Por lo tanto, la utilización de las fragancias para el desarrollo de productos está directamente relacionada con los aspectos psicológicos, que se determinan por todos los

aspectos espirituales, psíquicos y sociales del uso [23] que pueden conferir características únicas y productos de calidad [17]. Esto, junto con el hecho de que los consumidores de todo el mundo son cada vez más exigentes y dispuestos a pagar más por productos de mayor valor añadido, que proporcionan mayor individualidad y estatus, así como comodidad y estética [16,24] hace que los aceites esenciales sean cada vez más apreciados.

Por medio de la aplicación de microcápsulas, es posible microencapsular una amplia gama de sustancias que confieren propiedades diferentes relacionadas a la naturaleza del producto, pudiendo así combinar materiales de núcleo y membrana, dando características olfativas [13,16,17,25]. En este sentido, la investigación en el área de microencapsulación en conjunto con la aromaterapia por medio de los aceites esenciales tiene enorme potencial para agregar a los materiales características ventajosas, resultando en productos de calidad superior [24,26].

Los procesos de encapsulación se han introducido en la industria textil para la aplicación de propiedades específicas a materiales textiles recubriéndolos con diversas sustancias activas [13] y la fabricación de microcápsulas de núcleo líquido es de considerable interés práctico para la industria, principalmente por la encapsulación de ingredientes activos que incluyen las fragancias [27]. En los aceites esenciales la microencapsulación permite obtener la forma en polvo sólida de los líquidos para una fácil deposición sobre las fibras textiles [28]. Por eso, para que los tejidos tengan propiedades de liberación de fragancia de larga duración se fabrican recubriendo fibras con microcápsulas cargadas con perfumes [12-16,28].

Debido a las restricciones técnicas, el desafío para el encapsulamiento de aceites aromáticos es mantenerlos dentro de las microcápsulas durante el almacenamiento, pues los perfumes son mezclas de bajo peso molecular y materias primas a menudo reactivas, por lo que pueden perturbar el proceso de formación de la microcápsula o pueden difundirse fácilmente a través de su envoltorio [29]. La facilidad de liberación del aroma presente en el núcleo de la microcápsula está directamente relacionada con el tamaño de la microcápsula, cuando mayor, más fácil es el rompimiento de la membrana [16].

Hasta 2011 existían pocos estudios que buscaban microencapsular aceites esenciales para disminuir su volatilidad, mejorar la estabilidad y proporcionar la liberación controlada de ingredientes, con propiedades perfumadas, dentro de este contexto, este trabajo viene para contribuir con esta área de estudio científico y tecnológico [30]. Por eso, los parámetros para un buen rendimiento de las microcápsulas deben ser optimizados, pues, factores como el tamaño y la distribución de las partículas, las relaciones de encapsulación y las relaciones núcleo/membrana, influyen directamente en el rendimiento de las microcápsulas preparadas [9,31]. Eso, conjuntamente con la estructura de la membrana de las microcápsulas, incluyendo el espesor, la densidad

y la estructura de la molécula, puede influir en la resistencia mecánica y la estabilidad térmica de las microcápsulas [31]. Por eso, un proceso preciso de microencapsulación controlable necesita de un guión de mecanismo preciso y detallado. Hasta ahora hay pocos informes rigurosos y elaborados sobre el proceso de microencapsulación y el mecanismo de microencapsulación con membrana de Melamina-Formaldehído (MF) [9].

De esta manera, para que las microcápsulas sean utilizadas efectivamente para el desarrollo de productos sensoriales para ser utilizados en aromaterapia necesita un método eficiente, pues los principales ingredientes de los perfumes son inestables y volátiles y los métodos disponibles para producción todavía pueden ser perfeccionados. Por eso, el desafío es aislar esa sustancia dentro de las microcápsulas que posibilitan un ambiente controlado y de entrega persistente de estos ingredientes activos y una adecuada aplicación puede ayudar a preservar esas propiedades.

1.1 Microcápsulas

La microencapsulación es una tecnología de protección para encapsular sustancias activas, funcionales, sensibles o volátiles [9]. Desde sus primeros usos, en los años 1930, la tecnología de las microcápsulas se utilizó principalmente para proteger y controlar los componentes sensibles del núcleo [32].

En la mayoría de los casos, las microcápsulas están diseñadas para proteger los activos de condiciones externas desfavorables y para controlar su posterior liberación [27]. Por eso, la microencapsulación del aceite lleva muchas ventajas, entre ellas: (1) Proporciona la forma de convertir los líquidos a sólidos; (2) Altera las propiedades coloidal y de las superficies; (3) Proporciona la protección del ambiente y; (4) Controla la liberación del aroma durante un largo tiempo [33].

Las microcápsulas tienen forma esférica o irregular y se dividen en dos partes: el núcleo (parte intrínseca) que contiene el ingrediente activo y la membrana (parte extrínseca) que protege el núcleo de manera permanente o temporal del ambiente externo [12,17,25,26].

La membrana está generalmente compuesta de matrices de polímeros sintéticos o naturales, utilizados por su capacidad para formar una película, es importante que estos materiales no reaccionen con los utilizados en el núcleo [11,18,34]. Los materiales de pared permiten la liberación de sustancias funcionales y sirven para proteger y aislar eficazmente el material del núcleo del ambiente externo para evitar su volatilización y deterioro [9,10,11]. Para evitar que la membrana se rompa durante el proceso de recubrimiento, en la industria textil, para el revestimiento de tejido se utilizan polímeros de alta resistencia [3].

Por lo tanto, las microcápsulas ejecutan una variedad de funciones, incluyendo la liberación de sustancias funcionales, a una velocidad controlada y la protección de materiales inestables dentro de un ambiente particular [11,28]. Por lo tanto, un gran número de técnicas de microencapsulación han sido desarrolladas para la liberación controlada de ingredientes activos [34,35].

1.1.1 Principios activos

Debido a la diversidad de principios activos, la tecnología de microencapsulación ha sido ampliamente explotada, en los últimos diez años, principalmente en las industrias agrícola, alimentaria, cosmética, textil, farmacéutica, química e impresión industrial [10,12,13,25,28,29].

Los aromas más frecuentemente utilizados son menta, limón, pino y naranja [14,16]. Este tipo de microcápsula es muy utilizado en la industria textil, pues por medio de la microencapsulación las fragancias son capaces de permanecer en una prenda durante una parte significativa de su vida, o sea, la vida útil de los compuestos puede ser extendida [14,15,16].

En particular, la protección de aceites aromáticos como material susceptible al ambiente exterior hecha por microencapsulación ha sido objeto de estudio, pues, puede aumentar la estabilidad del aceite [9,11], debido a su capacidad de liberar la sustancia activa por un mecanismo adecuado y poseer estabilidad y resistencia mecánica suficiente, otras ventajas incluyen su no toxicidad [9,10,11,18].

1.1.2 Membrana

Por lo tanto, se debe prestar especial atención a la membrana que rodea el núcleo de la microcápsula, pues es el material que es sucinto al exterior y puede aumentar su estabilidad. La membrana polimérica generalmente tiene una parte permeable con alta porosidad y una parte menos permeable con baja porosidad, esta porosidad de la pared es la que determina el comportamiento de liberación de los materiales del núcleo [18].

La resina de MF es uno de los materiales de recubrimiento preferidos para la fabricación de microcápsulas, debido a que cubre las funciones perfectamente, incluyendo dureza elevada y robustez mecánica, excelente resistencia térmica, resistencia al agua, resistencia a la intemperie y al aire libre Y aún existe la posibilidad ilimitada de coloración [9]. La preparación de microcápsulas de resina de MF para el material de la cáscara de aceites aromáticos aumenta la durabilidad del perfume [10,11], además,

la resina de MF curada no es tóxica y puede utilizarse tanto en un ambiente húmedo como seco [9].

1.1.3 Proceso de Encapsulación

Un proceso de microencapsulación controlado y preciso obtiene microcápsulas con tamaño de partícula y distribución deseable, pero, esto sólo es posible, si las variables del proceso son precisas y detalladas por su método de producción, esto se vuelve crucial para el desempeño de las microcápsulas preparadas [9]. Hasta ahora hay pocos estudios rigurosos y buenos informes elaborados sobre el proceso de microencapsulación con MF, generalmente la formación de microcápsulas de MF es identificada como un proceso de polimerización interfacial [9].

En esta técnica, se parte de una emulsión de un producto de base oleica sobre agua y la membrana se formará en o sobre la superficie de la gota o partícula por polimerización de los monómeros reactivos [3]. Permite la fabricación de microcápsulas por medio de dos líquidos inmiscibles (emulsión aceite/agua) por la formación de paredes gruesas de polímero en torno a gotas de líquido, la polimerización ocurre en la interfase [3,28]. Las sustancias utilizadas son monómeros multifuncionales. Los monómeros generalmente utilizados incluyen isocianatos multifuncionales y cloruros de ácido multifuncionales. Estos se utilizarán individualmente o en combinación. El monómero multifuncional disuelto en material de núcleo líquido y se dispersará en fase acuosa que contiene agente dispersante. Un co-reactivo. Se añade amina multifuncional a la mezcla. Esto genera en una polimerización rápida en la interfaz y ocurre la generación de la cápsula. Se puede utilizar para crear una envoltura polimérica alrededor de una gotita de emulsión dispersada en agua (el sistema inverso), hacer reaccionar monómeros en la fase oleosa con monómeros en la fase acuosa [27]. El método tiene varias ventajas, incluyendo encapsulación, rendimiento alto, bajo costo de preparación y facilidad de regulación del proceso de encapsulación, la utilización de resina de MF como material de membrana también contribuye a la durabilidad del aroma [11].

Finalmente indicar que, las características de las microcápsulas que contienen aceites aromáticos, tales como morfología y distribución de tamaño de partícula, dependen de las condiciones de preparación como el tipo de emulsionante utilizado y la viscosidad del material de núcleo [34].

1.2 Aromaterapia

Aromaterapia es el uso terapéutico de aceites esenciales volátiles aromáticos obtenidos a partir de plantas para la mejora del bienestar físico, emocional y espiritual [1,22,36-38]. El término aromaterapia es originario del francés "*aromathérapie*" y fue

utilizado por primera vez por René-Maurice Gattefosse, en 1928 [22,39]. La Organización Mundial de la Salud publicó un libro con el mismo nombre en 1937, por eso que el químico francés es considerado por muchos como el padre de la moderna aromaterapia [22,39].

En el mundo, la Aromaterapia se consolidó como ciencia en Inglaterra y en Francia [22]. Para los franceses es considerada una especialidad médica, ya los ingleses la entienden como Prácticas Integrativas y Complementarias (PIC) [22]. Es una práctica también utilizada en los Estados Unidos de América y en Australia como complementaria, y culturalmente empleada en países de Oriente como parte de la Medicina Tradicional [22]. Pruebas más recientes apoyan la aromaterapia en una variedad de pacientes para el alivio del dolor, de las náuseas, de la ansiedad, del estrés, de la depresión y la mejora de la calidad del sueño [8,40].

La acción de un aceite esencial en el organismo dependerá de la vía por la que se administran sus moléculas, pueden ser aplicados externamente en aromaterapia por vía terapéutica, mezclado con un aceite vegetal puro; a través de una compresa; como un vendaje para la herida tóxica, mezclado con un gel o pasta; como un *spray*; en un baño o por inhalación [22,39]. En este trabajo, el énfasis es en la sensación olfativa. El sentido del olfato desempeña un papel importante en la función fisiológica del individuo, cuando el contacto se da por la vía inhalatoria, las moléculas de los aceites esenciales estimulan los nervios olfativos que, a su vez, tienen una conexión directa con el Sistema Límbico, responsable de emociones, sentimientos e impulsos motivacionales [22].

Las moléculas de olores de los aceites esenciales se transmiten al cerebro por las neuronas sensoriales olfativas través de bulbo olfativo, que estimulan la memoria olfativa que influencia, pensamientos y emociones [1,41]. Estas señales hacen que el cerebro libere neuro mensajeros como la serotonina y endorfinas, para vincular nuestro sistema nervioso y otros sistemas del cuerpo asegurando un cambio deseado y proporcionar una sensación de alivio. La serotonina, la endorfina y la noradrenalina se liberan, para dar efecto esperado a la mente y al cuerpo los cuales producen una sensación de bienestar y relajación [1,22]. Incluso una pequeña cantidad de moléculas odoríferas tomadas por la respiración provoca un efecto físico indirecto, activando esa memoria olfativa [1, 41]. La "memoria olfativa" resulta de un proceso de identificación olfativa de un aroma específico asociándolo a algún recuerdo accionado por el Sistema Límbico [22]. Los efectos de la aromaterapia son el resultado de la unión de los componentes químicos presentes en el aceite esencial a los receptores en el bulbo olfativo, impactando en el centro emocional del cerebro, el sistema límbico.

Por eso, cuando una molécula de aceite esencial es inhalada, el desencadenamiento y la ejecución de las emociones en el cerebro se inician con la aparición en la mente del estímulo-emocional-competente, esa fase del proceso es llamada de presentación,

atraviesa las vías respiratorias superiores, llegando a las vías inferiores, donde es absorbida por los vasos sanguíneos pulmonares y distribuida en el organismo por medio de la circulación sanguínea hacia los órganos y tejidos [42]. Las señales relacionadas con la representación sensitiva del olfato se envían a diferentes lugares del cerebro, principalmente a los lugares que son capaces de desencadenar las emociones [42]. Estos estímulos en lugares específicos del cerebro que desencadenan la emoción, o sea, las alteraciones emocionales inducidas por medio de la estimulación olfativa ya han sido comprobadas incluso por estudios de neuroimagen [43].

Los estudios indican que la estimulación olfativa produce cambios inmediatos en parámetros fisiológicos, tales como presión arterial, pulsación, tensión muscular, dilatación de la pupila, temperatura corporal, flujo sanguíneo, actividades electrodérmicas, cerebrales [22], o sea, bienestar emocional, la calma, la relajación o el rejuvenecimiento del cuerpo humano [1]. La liberación del estrés se genera con aromas agradables que desbloquean recuerdos de olor [1,8].

En este sentido, los olores son capaces de alterar el estado emocional de los seres humanos, por eso que los efectos fisiológicos y psicológicos de los aceites esenciales se han reconocido en la medicina popular y la aromaterapia durante mucho tiempo [1,43]. Las fragancias cítricas se asocian al humor, característica que es reforzada por la aromaterapia [43]. En general, la literatura sugiere que el uso de aceites esenciales se trata de una práctica complementaria de bajo costo, no invasiva y segura, y puede ser usada como parte de un enfoque integrado y multidisciplinar [1,44,45].

De esta manera, se comprueba que los aromas de aceites esenciales, cuando se administran por inhalación, pueden ejercer un efecto sobre el cerebro, resultando en alteraciones de comportamiento en animales y seres humanos [46]. Ya existe también la comprobación de que el olfato puede alterar el ánimo: pruebas revelan una mejora del 40% en el ánimo de individuos expuestos a fragancias agradables, ese efecto es potenciado por un recuerdo alegre asociado al olor [47].

Por eso, la inhalación de un aceite esencial puede evocar memorias, sentimientos y recuerdo de agradables, pues el perfume se asocia a ellas y puede estar relacionado con conexiones emocionales positivas que conducen al relajamiento general y la reducción del estrés. Pueden haber efectos biológicos o energéticos sobre el sistema nervioso por la inhalación de aceites esenciales [44].

Por lo tanto, la aromaterapia ha sido ampliamente utilizada como apoyo para el bienestar general [36,44,48]. Una serie de estudios apunta a un uso prometedor de la aromaterapia clínica en diferentes tratamientos, como por ejemplo: uso terapéutico de control del dolor, incluyendo el dolor abdominal en niños con síndrome del intestino irritable; náuseas de postoperatorio; calmar a los pacientes psiquiátricos adolescentes; los síntomas relacionados con el tratamiento del cáncer como náuseas y depresión [44,49,50,51].

Además, hay muchos relatos de casos de aromaterapia en los que los aceites esenciales se utilizan en inhalación para una serie de condiciones, incluyendo la relajación, la depresión, la mejora de los signos vitales, la reducción de la ansiedad, el estrés, el alivio psicológico de la aflicción y el insomnio, y la prevención de infecciones [1,36,38,43,44,45,46,50,52,55,56].

Por lo tanto, los efectos terapéuticos de los aceites esenciales en los trastornos físicos y psicológicos son bien conocidos. Aromas también se han utilizado en el aumento de la productividad en la psicología y la educación, utilizada para el tratamiento de problemas emocionales, como apoyo a niños con dificultades de aprendizaje y aprendizaje en la enseñanza de lenguas extranjeras [41].

De hecho, estudios de aromaterapia han reportado las propiedades medicinales de aromas que han sido utilizados hace miles de años por los seres humanos para promover el bienestar y el tratamiento de varias enfermedades. En realidad, el efecto relajante de aceites esenciales ha estimulado el interés tanto de investigadores y de usuarios que tradicionalmente administran estos productos por inhalación con el objetivo de restaurar la salud. En el caso de las drogas sintéticas [46], los enfoques no farmacológicos, que se clasifican en la categoría de terapias complementarias, son más seguras que los enfoques farmacológicos y tienen menos efectos adversos [41,52]. Por lo tanto, el uso de la aromaterapia ha crecido sustancialmente en los últimos años en comparación con otros enfoques médicos [41,52]. La aromaterapia es una adición segura, efectiva y barata a un enfoque holístico centrado en el paciente para el manejo del dolor [40].

1.2.1 Aceites en aromaterapia

Los aceites esenciales normalmente utilizados en aromaterapia son: lavanda, mentapimienta, limón y naranja [20,44,68]. A continuación se presentarán algunas propiedades utilizadas en aromaterapia de los primeros tres aceites, el aceite esencial de naranja, va a ser más detallado a continuación, pues, se trata de objeto del estudio.

Aceite esencial de Lavanda (*Lavandula officinalis* Chaix)

Lavanda (*Lavandula officinalis* Chaix) es una planta aromática que pertenece a la familia Lamiaceae y presenta efectos antibacterianos, antifúngicos, anti-hinchazón, relajantes musculares y analgésicos [1]. Lavanda es el más utilizado y versátil de todos los aceites esenciales, es ampliamente utilizado en la aromaterapia, muy utilizado para los problemas del sistema nervioso, tiene efectos antiespasmódicos, sedantes y anestésicos, por lo que es conocido por su efecto relajante y sedante [1,20 44,68].

El acetato de linalilo y la esencia linalol de Lavanda que estimula el sistema parasimpático reduciendo la frecuencia cardiaca, la frecuencia respiratoria y la presión arterial y, consecuentemente, actúan como narcóticos y sedantes [1, 68]. Algunos estudios mostraron el efecto de la aromaterapia con lavanda en el alivio del dolor [68]. Se ha estudiado también para cambios de humor, inestabilidad emocional, histeria y depresión, para calmar los sentimientos de ansiedad, por lo que ha sido utilizado en el tratamiento del letargo que está asociado con la depresión, además de ayudar en la obtención de buenas noches de sueño [69].

Aceite esencial de Menta-Pimienta (*Mentha piperita*)

La menta-pimienta (*Mentha piperita*), pertenece a la familia de las Lamiaceae, obtenida a partir de la planta de menta fresca (hojas y ramas) [1,70,71]. La menta-pimienta es la más importante especie de menta utilizada [1,70,71]. Tiene olor fuerte de carácter dulce, sus constituyentes del aceite incluyen el carvacrol, el mentol, la carbón, el acetato de metilo, el limoneno y la mentona [1,70, 71].

La acción farmacológica es debido al mentol, un constituyente principal del aceite de menta [1,70]. El mentol es una sustancia cerosa, cristalina utilizada para diversos fines médicos, tales como dolores de garganta, fiebre, dolores musculares y congestión nasal mientras que en mentona se utiliza en perfumería y como agente de sabor [70,71]. El aceite de menta es estudiado y documentado en cuanto a sus efectos antiinflamatorios, analgésicos, anti-infecciosos, antimicrobianos, antisépticos, astringente, digestivo, carminativos, efectos fungicidas, estimulante, vasoconstrictor, descongestionante y propiedades estomacales [1, 72]. El aceite esencial de *Mentha piperita* es comúnmente utilizado en la medicina popular para las enfermedades respiratorias como expectorante y anti congestiva y como antiespasmódico en los sistemas digestivos y vasculares [72]. Posee acción contra dolor de cabeza, sinusitis y congestión pulmonar [1].

Aceite esencial de Limón (*citrus limon*)

El Limón (*citrus limon*) pertenece a la familia de Rutaceae, los componentes principales del aceite son abundantes los terpenos, d-limoneno y L-limoneno, formando cerca del 90 por ciento de la masa del aceite [1]. Estudios de aromaterapia presentan el aceite de limón como es refrescante y edificante para el espíritu [69]. Es uno de los aceites perfumados que presenta gran demanda para el uso en aromaterapia, sea puro, o mezclado, utilizado en el tratamiento de una variedad de condiciones [73]. Su uso popular es global, entre pacientes, especialmente en niños y pacientes geriátricos, contribuye significativamente al éxito de la terapia [73].

En comparación con otros aceites esenciales, sus constituyentes tienen propiedades antisépticas, astringentes, desintoxicante, analgésico, antidepresivo, afrodisíacos, antiespasmódico, desodorante, digestivo, expectorante, sedante y tónico [1,73]. Un estudio doble ciego, condujo recientemente, aleatorizado, controlado ensayo clínico en aceite cítrico aromaterapia sugirió que es bueno en el alivio del dolor [1]. Es eficaz en el control de náuseas y vómitos y posee propiedades de mejorar el humor [1]. También se ha encontrado un efecto sobre el refuerzo de los psicológicamente deprimidos o temerosos y también ha sido utilizado para estimular el sistema inmunológico y combatir la infección [69].

Aceite esencial de naranja (*citrus sinensis*)

El aceite esencial de naranja (*citrus sinensis*) es un aceite cítrico, y al igual que todos los demás de esta naturaleza, contiene una variedad extremadamente amplia de compuestos, pudiendo variar entre 20 y 60 [53,54]. Los componentes de los aromas volátiles de plantas cítricas se encuentran en las glándulas localizadas en la superficie de la cáscara de cítricos y representan el 85-99% de su composición [53,54].

Estos compuestos volátiles presentan una mezcla que contiene principalmente monoterpenos (limoneno: 32-98%), hidrocarburos de sesquiterpeno, derivados oxigenados de los mismos, así como aldehídos alifáticos, alcoholes y ésteres de ácido [53,54]. Los principales componentes son monoterpenos, combinaciones de dos moléculas de isoprenos (C₅H₈), que representan cerca del 97% del aceite esencial cítrico, las otras sustancias, alcoholes, aldehídos y ésteres, representan entre el 1,8-2,2% de los aceites esenciales Cítricos [54].

Las propiedades sensoriales de los aceites esenciales se han asociado con el control de la ansiedad y la relajación [1,36,38,43,55,56] Para aliviar náuseas o para alentar la relajación en pacientes en tratamiento de cáncer [49] y aliviar el dolor crónico [51].

Con respecto a la ansiedad y la relajación, estudios investigaron los efectos del aceite esencial de naranja en ratones machos, los animales fueron expuestos al aroma de naranja y los resultados demostraron actividad ansiolítica [36]. Los estudios con aceite de naranja también redujeron la ansiedad y mejoran el humor en pacientes a la espera de tratamiento odontológico [43,56]. Del mismo modo, la fragancia de naranja cuando se utiliza en consultorios odontológicos puede ser útil para la reducción de la ansiedad [55]. Existen también resultados de estudios que sugieren que la inhalación de fragancia de aceite de naranja tiene un efecto en el alivio del dolor, por lo que es posible que la aromaterapia tenga efecto paliativo, es decir, de ralentizar el dolor crónico. En resumen, inhalar fragancia puede aliviar el dolor de larga duración tales como postoperatoria o dolor crónico [51]. Aromaterapia y masaje con aplicación de aceite esencial

de naranja se han utilizado con éxito para producir una unión significativamente mayor en la reducción de la ansiedad prenatal [57].

La eficacia del aceite de naranja en disminuir la actividad de la corteza prefrontal, y dado que el aceite presenta efectos fisiológicos, puede derivar en que estos aceites serán usados con más frecuencia en el futuro sea en la vida diaria o en ambientes médicos para ayudar a inducir la relajación [38]. En este estudio, en consonancia, se propone desarrollar microcápsulas para posterior aplicación en textiles para aprovecharse de su efecto relajante, pues, la exposición a ambientes con olor de naranja tiene efecto relajante [43,56,55].

Se seleccionó el aceite esencial de naranja (*citrus sinensis*) para el principio activo de las microcápsulas, pues, se trata de un aceite que posee características funcionales y propiedades sensoriales. Como características funcionales, se destaca su función antimicrobiana [54], antifúngicas [53] e insecticidas [5] y propiedades sensoriales control de la ansiedad y relajación [1,36,38,43,55,56), alivia náuseas y relaja pacientes en tratamiento de cáncer [49], y aliviar el dolor crónico [51]. Además, España está entre los mayores exportadores mundiales de naranja (*citrus sinensis*) representando el 28,9% de toda la producción mundial [74] y la Comunidad Valenciana, una región compuesta por 23.255 km², representa el 60% de la cosecha total de naranjas De España [75].

2 OBJETIVOS

2.1 Objetivo general

Optimizar el proceso de obtención de microcápsulas de aceite esencial de naranja para el uso en aromaterapia.

2.2 Objetivos específicos

A. Seleccionar un aceite esencial con propiedades aromáticas y terapéuticas como material de núcleo de las microcápsulas;

B. Producir, caracterizar y sistematizar los procedimientos y las condiciones de formación y de fabricación de microcápsulas con los aceites esenciales seleccionados;

C. Validar la eficiencia de las microcápsulas obtenidas por medio de análisis en laboratorio;

D. Optimizar los procedimientos desarrollados en la investigación para la obtención de las microcápsulas;

3 EXPERIMENTAL

El experimental de este trabajo presenta los materiales y métodos utilizados para tomados en consideración los objetivos de la investigación, optimizar el proceso de obtención de microcápsulas de aceite esencial de naranja para el uso en aromaterapia, buscando utilizar el potencial antimicrobiano, aromaterápico y terapéutico de sus ingredientes activos de acuerdo con las propiedades relacionadas a la naturaleza del material.

3.1 Materiales empleados

En este trabajo se utilizaron los siguientes materiales: fragancia pure Joy adquirida de Disaromas; aceite esencial de naranja (*citrus sinensis*); tensioactivo polisorbato 20 (Tween 20), tensioactivo polisorbato 80 (Tween 80), bromuro de cetiltrimetilamonio (CTAB) y Melamina-Formaldehído (MF), adquiridos de Sigma-Aldrich®; y aceite triglicéridos del ácido cáprico y caprílico o Triglicéridos de Cadena Media (TCM) adquirido de Delaware®.

3.2 Métodos empleados

Se realizaron dos baterías de pruebas: la primera (pruebas de 1 a 6) se realizó utilizando aceite esencial de naranja mezclado con TCM en diferentes proporciones y aceite de naranja puro que fueron probados con dos tensioactivo diferentes Tween 20 y CTAB. La segunda (pruebas de 7 a 10) se realizaron pruebas de formulación en diferentes parámetros sin la utilización de ultrasonido en la preparación de la emulsión, fue utilizando un agitador mecánico y de material de núcleo fragancia pure Joy probado con tensioactivo Tween 80, para entender el comportamiento De los materiales utilizados durante el proceso de encapsulación.

A continuación se presentan los materiales y métodos utilizados para obtener y caracterizar las microcápsulas de aceites esenciales.

3.2.1 Síntesis de las microcápsulas de aceite esencial de naranja

En las síntesis de las microcápsulas se utilizaron como material de núcleo la combinación de dos aceites: aceite esencial de naranja (*citrus sinensis*) y TCM en diferentes proporciones. Las variaciones en las proporciones de aceite de naranja y TCM (1: 1, 1: 2, 2: 1) fueron utilizadas en un intento de mejorar la estabilidad y la volatilidad del aceite esencial de naranja, buscando encontrar mejor eficiencia en la encapsulación. También se probaron los tipos de tensioactivo Tween 20 y CTAB. Se realizó también

una preparación sin la utilización de TCM, sólo con el aceite esencial de naranja y con tensioactivo Tween 20. Se probaron las siguientes formulaciones, conforme Tabla 1:

Prueba	Aceite esencial de naranja	TCM	Proporción	Tensioactivo
1	3,5 mL	3,5 mL	1:1	Tween 20 - 2,5 g
2	2,4 mL	4,6 mL	1:2	Tween 20 - 2,5 g
3	4,6 mL	2,4 mL	2:1	Tween 20 - 2,5 g
4	7 mL	---	---	Tween 20 - 2 g
5	3,5 mL	3,5 mL	1:1	CTAB - 2 g
6	2,4 mL	4,6 mL	1:2	CTAB - 2 g

Tabla 1: Formulación de la síntesis de las microcápsulas de aceite esencial de naranja.

Se han sintetizado utilizando el método de polimerización interfacial, como se describe a continuación.

Para la preparación de la emulsión se colocó en becker encamisado de 600 mL, 200 mL de agua destilada con el tensioactivo. La mezcla fue agitada en un agitador mecánico (Fisatrón 713D), después de la agitación se añadió el aceite esencial (aceite esencial más TCM de acuerdo con las proporciones 1: 1, 1: 2, 2: 1) y llevado al ultrasonido (Cole Parmer Modelo CV33) con una amplitud de 60% a 15 min. Se realizó el ajuste del pH a 4,5 con una solución de ácido acético 90%, para la medición se utilizó una cinta de medición de pH, la emulsión fue reservada. El pre-polímero fue preparado en otro vaso de 50 mL conteniendo 7 mL de agua destilada y 6 mL de formaldehído, se utilizó un agitador magnético (TE-085) a una temperatura de 70 °C, manteniendo una agitación suave se añadió 2,5 g de melamina. Con una solución de trietanolamina 60% el pH se ajustó a 8,5 y se verificó con una cinta medidora de pH. El pre-polímero fue reservado.

Para la sintetización de las microcápsulas, en el becker encamisado que contenía la emulsión fue conectado a un baño termostático con una temperatura de 70 °C. La emulsión fue sometida a un agitador mecánico a 500 rpm. Durante la agitación, el pre polímero se añadió lentamente a la emulsión. Después de la adición del pre-polímero el temporizador del agitador mecánico fue ajustado a 1h y 30 min y su velocidad a 100 rpm, ajustando también el pH a 9,0 con una solución de trietanolamina 60%, para esa conferencia se utilizaron cintas medidoras PH. Se filtraron las microcápsulas en un papel filtro con la utilización de una bomba de vacío. Después de las microcápsulas fueron llevadas al desecador para el secado.

3.2.2 Síntese das microcápsulas de fragancia pure Joy

En las síntesis de las microcápsulas se utilizaron como material de núcleo la fragancia pure Joy. Se realizaron pruebas de formulación sin la utilización de ultrasonido en la preparación de la emulsión, fue utilizando un agitador mecánico y tensioactivo Tween 80. Las cantidades también fueron aumentadas, en el intento de obtener mayor cantidad de microcápsulas con apenas un preparado. Se probaron las siguientes formulaciones, según Tabla 2:

Prueba	Água	Fragancia pure Joy	Emulsión: tiempo y velocidad	Polimerización: tiempo, velocidad e temperatura 70 °C
7	1000 mL + 35 mL	50 mL	Aproximadamente 15 min a 1500 rpm	1,5 h a 1500 rpm
8	800 mL + 35 mL	100 mL	Aproximadamente 15 min a 4000 rpm	1,5 h a 500 rpm
9	800 mL + 35 mL	100 mL	Aproximadamente 20 min a 3000 rpm	1,5 h a 1000 rpm
10	1000 mL + 35 mL	100 mL	Aproximadamente 20 min a 2500 rpm	1,5 h a 1000 rpm

Tabla 2: Formulación de la síntesis de las microcápsulas de fragancia pure Joy.

Se han sintetizado utilizando el método de polimerización interfacial, como se describe a continuación.

Para la preparación de la emulsión se colocó en un becker encamisado de 3000 mL, agua destilada (cantidades descritas en la Tabla 2) con 5 g de tensioactivo Tween 80. La mezcla fue agitada en un agitador mecánico (Fisatron 713D), después de la agitación se añadió la fragancia pure Joy (cantidades descritas en la Tabla 2) y mantenido en el agitador mecánico para la preparación de la emulsión (tiempos y velocidades descritas en la Tabla 2). Se realizó el ajuste del pH a 4,5 con una solución de ácido acético 90%, para esa conferencia se utilizó una cinta de medición de pH, la emulsión fue reservada. El pre-polímero fue preparado en otro vaso de 100 mL conteniendo 35 mL de agua destilada y 30 mL de formaldehído, se utilizó un agitador magnético (TE-085) con una temperatura de 70 °C, manteniendo una agitación suave se añadió 12,5 g de melamina. Con una solución de trietanolamina 60% el pH se ajustó a 8,5 y se verificó con una cinta medidora de pH. El pre-polímero fue reservado.

Para la sintetización de las microcápsulas el becker encamisado de 3000 mL conteniendo la emulsión fue colocado en el agitador magnético con temperatura, de 70 °C. La emulsión fue sometida a un agitador mecánico (velocidades descritas en la Tabla 2). Durante la agitación, el prepolímero se añadió lentamente a la emulsión. Después de la adición del prepolímero se esperó 1h y 30 min (velocidades descritas en la Tabla 2), ajustando también el pH a 9,0 con una solución de trietanolamina 60%, para esa conferencia se utilizaron cintas medidoras de pH. Las microcápsulas fueron filtradas en un papel filtro y permaneció ahí por aproximadamente 24 horas para su secado.

3.3 Técnicas instrumentales empleadas

Se utilizó un conjunto de técnicas instrumentales para la caracterización de las microcápsulas sintetizadas en este trabajo, Microscopio Electrónico de Barrido (SEM, del inglés, Scanning Electron Microscopy), Microscopio Electrónico de Transmisión (TEM, del inglés Transmission Electron Microscopy) y Calorimetría Diferencial de Barrido (DSC, del inglés, Differential Scanning Calorimetry).

3.3.1 Microscopio Electrónico de Barrido

El SEM es un instrumento versátil para la observación y análisis de las características microestructurales de materiales sólidos, debido a la alta resolución que puede obtenerse cuando las muestras se observan [17,58]. Se utilizan electrones para solucionar el problema de resolución relacionado con la fuente de luz blanca [58]. Sus componentes básicos son: columna óptico-electrónico adaptada a una cámara con puerta de muestra con conexión a tierra, sistema electrónico, detectores y sistema de vacío [58].

Entre sus ventajas están: posibilidad de aumentos de 300.000 veces o más, para la mayoría de los materiales sólidos, conservando la profundidad de campo y compatible con la observación de superficies rugosas; proporcionar rápidamente información sobre la morfología e identificación de elementos químicos de una muestra sólida; y presenta la facilidad de elegir una determinada región de interés en la muestra y ubicarla en bajo aumento "[58, 59].

Este equipo tiene la capacidad de conferir una apariencia tridimensional y la posibilidad de obtener pequeños aumentos con gran profundidad de foco, lo que facilita la visualización e identificación de las microcápsulas [17]. De este modo, el SEM viene siendo utilizado para observar la distribución, la morfología de la superficie y el espesor de la membrana de microcápsulas [59,60,61].

El SEM, FEI modelo Phenom (Fei, Oregon, Estados Unidos) de la Universidad Politécnica de Valencia (UPV) fue utilizado para visualizar la morfología y la distribución de las microcápsulas sintetizadas.

La muestra de microcápsulas fue montada en un porta muestras específico para el SEM, colocadas sobre una cinta adhesiva conductora y revestida con una fina capa de paladio en su superficie para mejorar su conductividad y visualización.

Algunas de las formulaciones fueron seleccionadas para un intento de rompimiento de la membrana con el auxilio de un mortero, con el objetivo de observar por medio de las imágenes de SEM, el espesor de la membrana y si ocurrió el encapsulado del principio activo.

3.3.2 Calorimetría Diferencial de barrido.

La reacción de plegado/desdoblamiento de proteínas, como cualquier otra reacción química, es acompañada por efectos térmicos [62, 63]. El calor de desdoblamiento medido a una presión constante y representa la entalpía del proceso. El DSC mide la cantidad de calor emitida o absorbida durante el cambio de fase, en relación con una muestra de comportamiento conocido [64,65,66]. Las termo resistencias se alimentan con una corriente de excitación para la temperatura que varía de acuerdo de referencia para lograr una sensibilidad calorimétrica constante, independiente de la temperatura de funcionamiento [64].

El DSC permite determinaciones cuantitativas, estando el área de los picos/curvas relacionados con la energía involucrada en el proceso, siendo utilizados estándares para calibración del equipo [65]. Estos estándares presentan variación de entalpía conocida, normalmente como fusión, y el área del pico/curva de este proceso es comparada con el área del proceso presentado por la muestra [65].

Para la caracterización de las microcápsulas en este trabajo se utilizó el DSC Mettler Toledo, modelo DSC 1 Stare System con software Stare de la UPV para determinar la forma, la posición y el número de picos. Para las análisis de las propiedades termodinámicas de las microcápsulas, aceite esencial y de la membrana los materiales fueron pesados en una balanza de precisión, se utilizaron aproximadamente 2 mg de material y se colocaron en una cápsula de aluminio sellada con una tapa y fuga, otra cápsula vacía en las mismas condiciones fue utilizada como referencia. Las exploraciones se realizaron a una tasa de calentamiento de 10 °C/min.

3.3.3 Microscopio Electrónico de Transmisión

El TEM es un instrumento científico que puede ofrecer una amplia gama de técnicas de caracterización con una alta resolución espacial y analítica y sigue siendo mejorado a lo largo del tiempo [65]. Un TEM está constituido por un haz de electrones y un conjunto de lentes electromagnéticas, que tiene la función de controlar el haz dentro de una columna de vacío con una presión de aproximadamente 10⁻⁵ mm Hg [65,66]. Los últimos microscopios existentes tienen cinco o seis lentes magnéticas, además de varias bobinas electromagnéticas de deflexión y aberturas localizadas a lo largo del camino del haz electrónico [67]. Tres componentes del TEM son de gran importancia para los fenómenos de difracción electrónica: lente objetiva, apertura objetiva y apertura selectiva de difracción [67]. Las lentes proyectoras producen un haz paralelo y de suficiente intensidad incidente en la superficie de la muestra, los electrones salen de la muestra por la superficie inferior con una distribución de intensidad y dirección controladas principalmente por las leyes de difracción impuestas por el arreglo cristalino de los átomos en la muestra [67]. Después, la lente objetiva forma la primera imagen de esta distribución angular que los haces electrónicos difractados, después, las lentes restantes sirven apenas para aumentar la imagen o diagrama de difracción para futura observación en la pantalla o en la placa fotográfica [67].

Una desventaja del TEM es que presenta imágenes bidimensionales de cosas tridimensionales, otra limitación es que generalmente toda la información del TEM se calcula en base al grosor de la muestra, es decir, una sola imagen TEM no tiene sensibilidad de profundidad [65]. Pero, aun así, "imágenes, medición, modelado y manipulación de materia" pueden realizarse con la ayuda del TEM y muchas veces forman parte del campo emergente de la "nanocaracterización", por lo que se utiliza con frecuencia para la observación y análisis de Precipitados muy finos, de dimensiones nanométricas, dispersos en una matriz de otra fase [66].

Para las análisis de este trabajo se utilizó el TEM, JEM modelo 1010 - 100kV con cámara digital AMT RX80 (JEOL, Estados Unidos.) de la UV.

4. RESULTADOS Y DISCUSIÓN

4.1 Caracterización de los materiales por Calorimetría Diferencial de Barrido

Inicialmente se realiza un análisis térmico del aceite esencial y de los aceites empleados. Uno de los motivos por el que se valora el comportamiento térmico de las muestras es estudiar la estabilidad térmica del aceite durante el proceso de encapsulación, debido a que durante el proceso de microencapsulación se alcanzan los 70°C, siendo éstas condiciones necesarias para obtener la polimerización de la materia que conforma la membrana. En la Figura 1, se representa la curva obtenida por DSC del aceite esencial de naranja (*citrus sinensis*), muestra el pico endotérmico en torno a 185 °C atribuido a la temperatura de descomposición del aceite esencial, cabe destacar que según la ficha técnica del suministrador, el aceite empieza a evaporarse a los 54 °C, este efecto podría estar representado en la curva del DSC resultante por el comportamiento descendente de la curva entre 50 °C a los 170 °C.

Posiblemente sería necesario completar dicho estudio con la técnica termogravimétrica TGA, la cual no ofrece información sobre la pérdida al someter la muestra a distintas temperaturas.

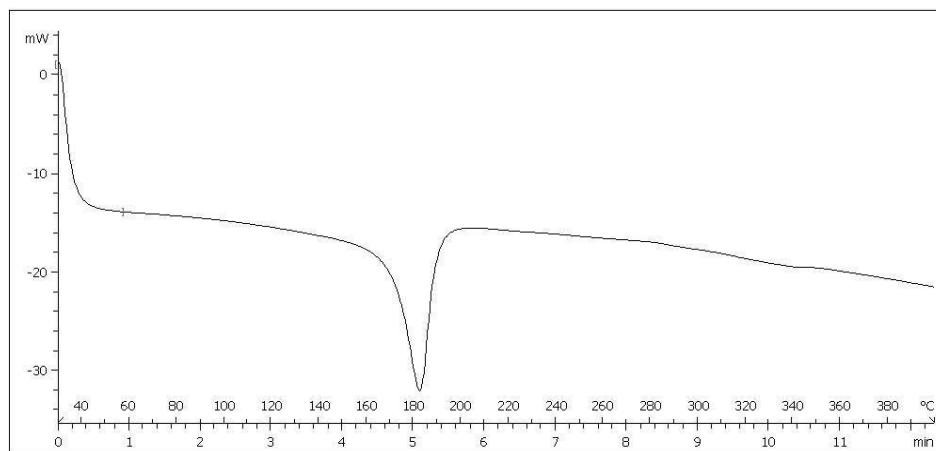


Figura 1: Calorimetría Diferencial de Barrido del aceite esencial de naranja (*citrus sinensis*).

En la Figura 2, se muestra la curva obtenida por DSC del aceite TCM. En la curva DSC se observan claramente dos zonas a estudiar alrededor de 240 °C podemos ver el punto de cristalización del TCM y su temperatura máxima de degradación en torno a los 390 °C. Mostrando un comportamiento totalmente distinto al aceite esencial de naranja.

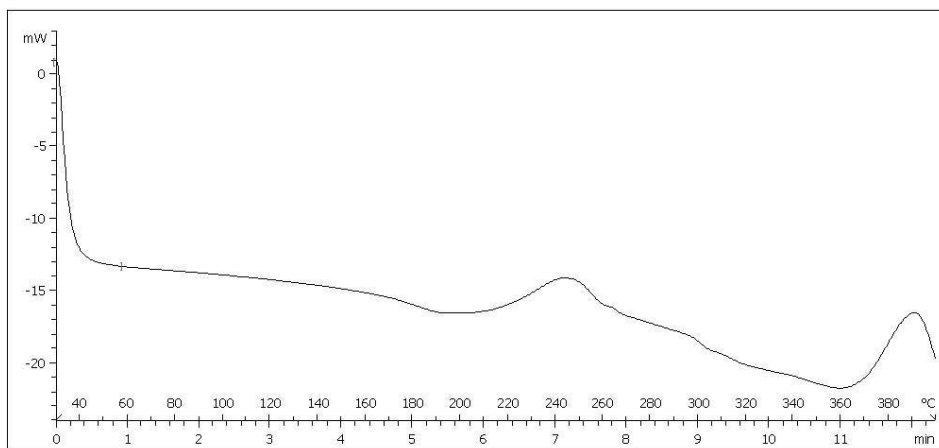


Figura 2: Calorimetría Diferencial de Barrido del aceite fijo Triglicéridos de Cadena Media.

Con tal de evitar la evaporación y con ello la estabilidad del aceite esencial de naranja durante el proceso de microencapsulación, se realizan distintas mezclas del aceite esencial objeto a encapsular y el TCM empleando distintas concentraciones.

En la Figura 3, la curva obtenida por DSC del aceite esencial de naranja y TCM en la proporción 1:1. Los resultados de la gráfica representada en la figura 3 muestran el cambio de comportamiento al comparar la curva DSC del aceite de naranja y el aceite esencial al emplear una mezcla junto el aceite de triglicéridos de cadena media, los resultados de la mezcla no muestran la curva endotérmica propia del aceite esencial de naranja.

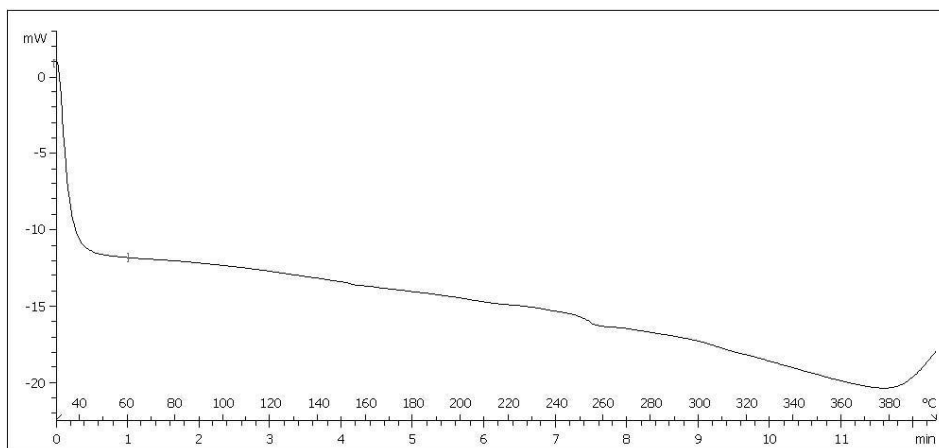


Figura 3: Calorimetría Diferencial de Barrido del aceite esencial de naranja (*citrus sinensis*) y aceite fijo Triglicéridos de Cadena Media en la proporción (1:1).

En la Figura 4, se muestra la curva obtenida por DSC del aceite esencial de naranja y TCM en la proporción 1:2, no observándose diferencias significativas al emplear mayor concentración de TCM en la mezcla.

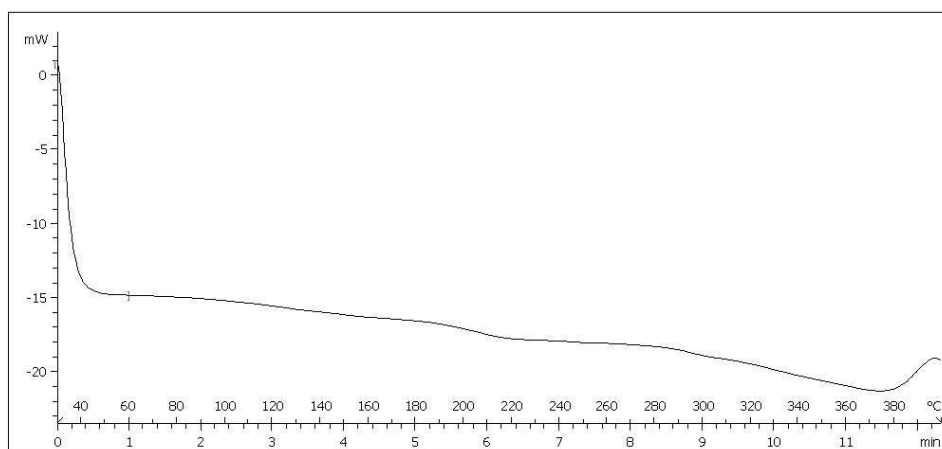


Figura 4: Calorimetría Diferencial de Barrido del aceite esencial de naranja (*citrus sinensis*) y aceite fijo Triglicéridos de Cadena Media en la proporción (1:2).

En la Figura 5, la curva obtenida por DSC del aceite esencial de naranja y TCM en la proporción 2:1. Contrariamente a los resultados de las mezclas de proporciones 1:1 y 1:2, en las que se utiliza mayor o igual concentración de TCM que de aceite esencial de naranja, al emplear mayor concentración de aceite esencial que de TCM, no se observa una modificación del comportamiento térmico.

La curva resultante es coincidente con el aceite de naranja, y no se aprecian tazas del aceite TCM por lo que esta proporción encubre el comportamiento térmico de dicho aceite.

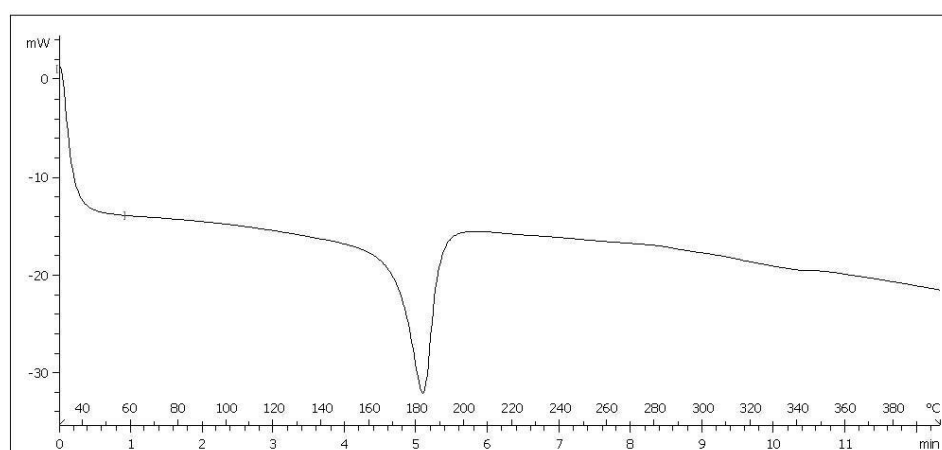


Figura 5: Calorimetría Diferencial de Barrido del aceite esencial de naranja (*citrus sinensis*) y aceite fijo Triglicéridos de Cadena Media en la proporción (2:1).

En la Figura 6, se muestra la curva obtenida por DSC sólo de la membrana MF sin aceite esencial. En la curva DSC de la membrana MF, podemos ver su temperatura máxima de degradación alrededor de 110 °C.

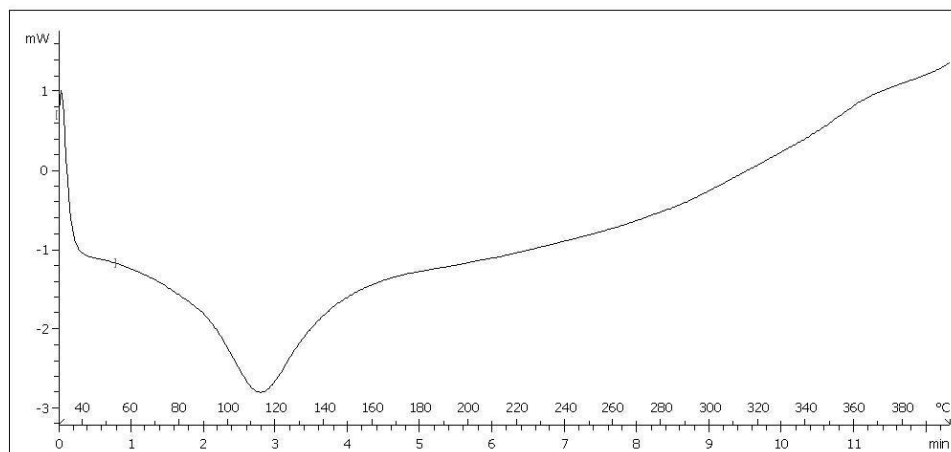


Figura 6: Calorimetría Diferencial de Barrido de la membrana de las microcápsulas, sin el material del núcleo.

4.2 Prueba 1 - aceite esencial de naranja : aceite Triglicéridos de Cadena Media (1:1), tensioactivo Tween 20

4.2.1 Microscopía electrónica de Barrido

En la Figura 7, las imágenes obtenidas por SEM de las microcápsulas de aceite esencial de naranja y TCM en la proporción 1:1.

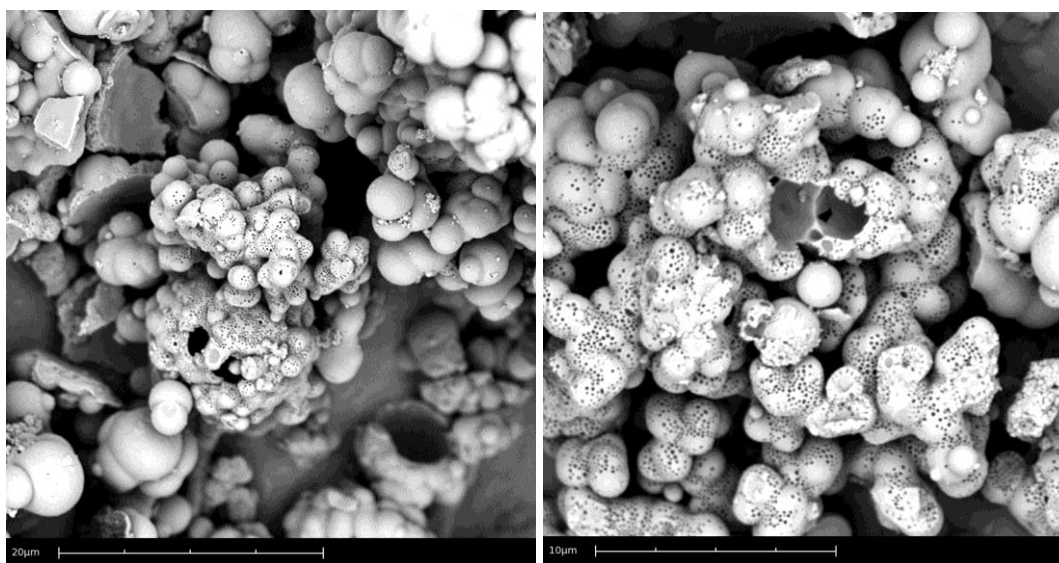


Figura 7: Imágenes obtenidas por Microscopio Electrónico de Barrido (ampliaciones de 6000x, a la izquierda, y de 11000x, a la derecha) de las microcápsulas de la Prueba 1.

Se observa por el análisis de la imagen al SEM (Figura 7) que hubo formación de microcápsulas, pero ocurrieron algunos aglomerados microcápsulas. También es posible observar que algunas membranas están abiertas y otras con pequeños agujeros, pudiendo haber ocurrido a causa de la formación de espuma (burbujas de aire) en la emulsión.

En la Figura 8, las imágenes de obtenidas por Microscopio Electrónico de Barrido se observa intento de rompimiento de la membrana de las microcápsulas la Prueba 1. Con el auxilio de un mortero se hizo un intento de rompimiento de las microcápsulas, como podemos observar en las imágenes las microcápsulas no se rompieron, sólo se deformaron como si fuera un material maleable, pudiendo ser que el polímero no sea lo suficientemente rígido o un indicativo de que tal vez las microcápsulas están macizas sin el principio activo en su interior.

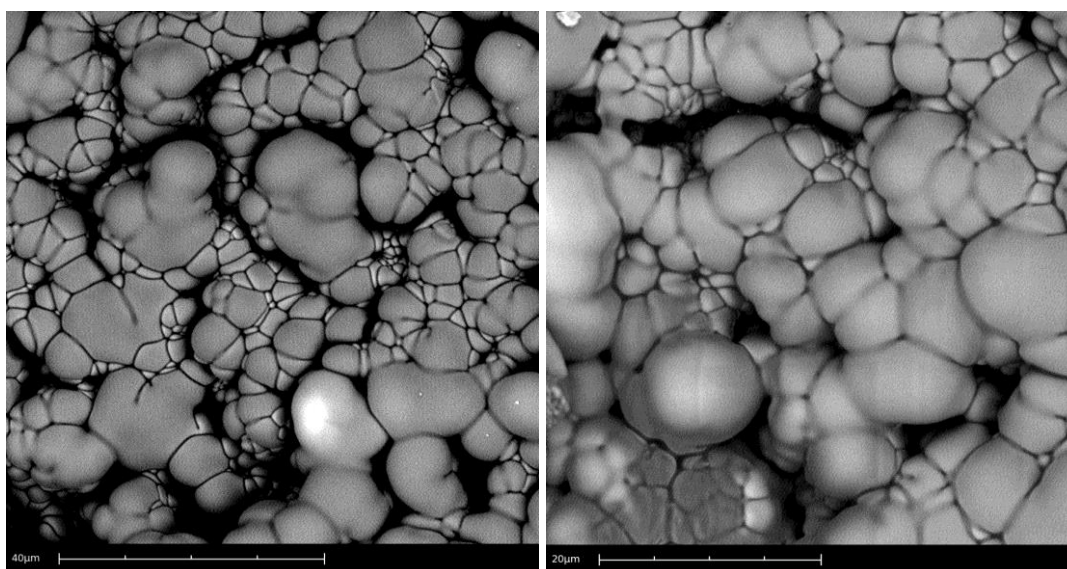


Figura 8: Imágenes de obtenidas por Microscopio Electrónico de Barrido (ampliaciones de 3000x, a la izquierda, y de 5000x, a la derecha) del intento de rompimiento de la membrana de las microcápsulas de la Prueba 1.

4.2.2 Microscopía Electrónica de Transmisión

En la Figura 9, las imágenes obtenidas por TEM de las microcápsulas de aceite esencial de naranja y TCM 1:1 de la Prueba 1. Podemos también observar, la formación de microcápsulas, pero, en las imágenes por TEM, por su carácter bidimensional, se puede observar mejor algunos puntos oscuros, lo que indica que las microcápsulas no se han generado sino que se ha obtenido un núcleo polimérico sólido y lo que aparentemente eran microcápsulas contiene un núcleo macizo. Así pues, se ha generado la formación de esferas de polímero, sin el principio activo contenido en ellas. Pero también se pueden observar algunos puntos más claros, lo que puede indicar la

presencia del principio activo (aceite de naranja) en la periferia de las microcápsulas, presentando el aceite esencial encapsulado. Estas encapsulaciones superficiales pueden ser las causantes de la deformación de las supuestas cápsulas cuando se han intentado romper con la ayuda de un mortero.

De este modo, las imágenes por TEM (Figura 9), pudieron complementar las imágenes obtenidas por SEM (Figura 8) en el análisis morfológico de las microcápsulas, principalmente con relación a la presencia del principio activo. El TEM ha permitido determinar que el proceso seguido no ha generado microcápsulas sino microesferas sólidas de polímero, con nanocápsulas adheridas a la superficie.

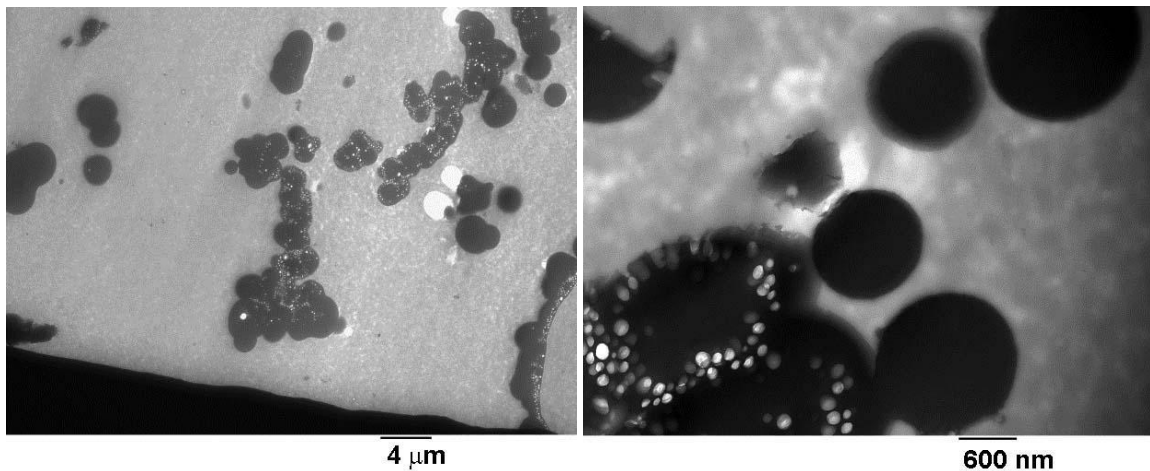


Figura 9: Imágenes obtenidas por Microscopía Electrónica de Transmisión (ampliaciones de 8000x, a la izquierda, y de 60000x, a la derecha) de las microcápsulas de la Prueba 1.

4.2.3 Calorimetría Diferencial de Barrido

En la Figura 10 se muestra la curva DSC de las microcápsulas de aceite esencial de naranja y TCM en la proporción de 1:1.

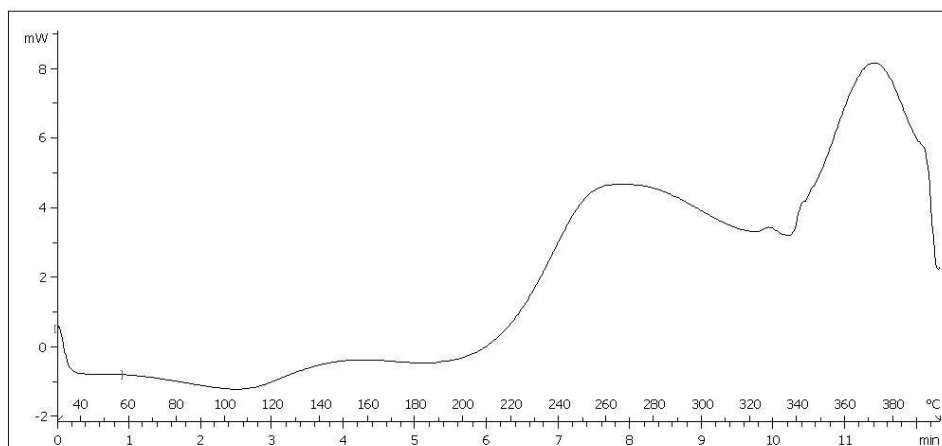


Figura 10: Calorimetría Diferencial de Barrido de las microcápsulas de la Prueba 1.

En la curva DSC (Figura 10) podemos observar un pico endotérmico propio de la membrana en torno a 110 °C, a temperaturas más altas se observan dos picos exotérmicos, 245 °C y 370 °C propios del TCM. Por lo contrario no se visualiza la curva característica del aceite esencial de naranja, alrededor de 180 °C. Cabe indicar que los resultados del DSC de la mezcla 1:1 tampoco mostraba este pico.

Podemos observar por medio de los análisis de las imágenes SEM, TEM y DSC, que la Prueba 1 formó microcápsulas aglomeradas con indicativo de encapsulación del aceite de naranja, pero todavía persisten algunas esferas macizas.

4.3 Prueba 2 - aceite esencial de naranja : aceite Triglicéridos de Cadena Media (1:2), tensioactivo Tween 20

4.3.1 Microscopía Electrónica de Barrido

En la Figura 11, las imágenes obtenidas por SEM de las microcápsulas de aceite esencial de naranja y TCM en la proporción de 1: 2, de la prueba 2. Se observa, por el análisis de las imágenes SEM, la formación de microcápsulas, pero, están muy aglomeradas. También es posible notar que algunas cápsulas están con pequeños agujeros, que puede haber ocurrido debido a la formación de espuma (burbujas de aire) en la emulsión.

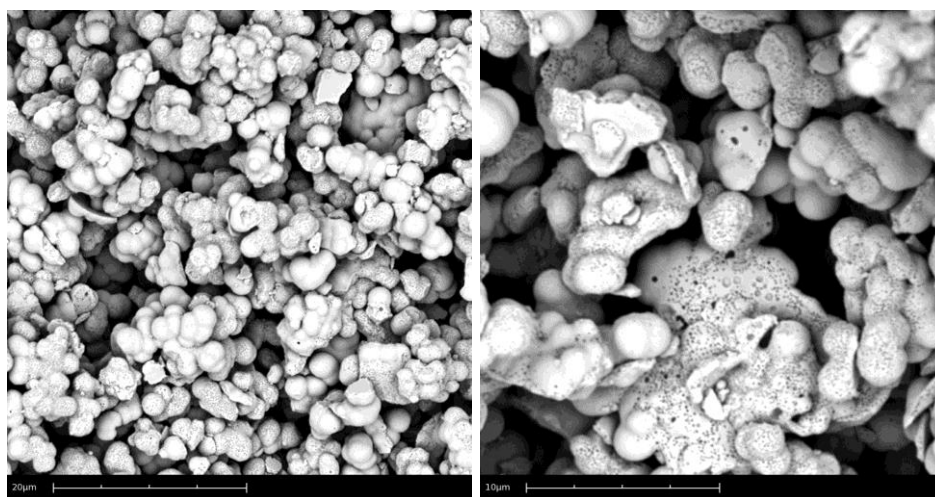


Figura 11: Imágenes obtenidas por Microscopio Electrónico de Barrido (ampliaciones de 5000x, a la izquierda, y de 10000x, a la derecha) de las microcápsulas de la Prueba 2.

4.3.2 Microscopía Electrónica de Transmisión

En la Figura 12, las imágenes obtenidas por TEM de las microcápsulas de aceite esencial de naranja y TCM 1:2 de la Prueba 2.

En la Figura 12, podemos observar la formación de microcápsulas, pero también, presenta algunos puntos oscuros, de la misma manera que en la Prueba 1 (Figura 7), lo que indica que las microcápsulas contienen un alto porcentaje de polímero, pero también se aprecia la formación de pequeñas circunferencias más claras que no contienen polímero y que han incluido el principio activo. Estos puntos más claros, están repartidos en todo el material polimérico, incrementando su densidad cuanto más próximos a la periferia se sitúan, lo que indica la presencia del principio activo (aceite de naranja) en su interior, lo que puede indicar el aceite esencial encapsulado.

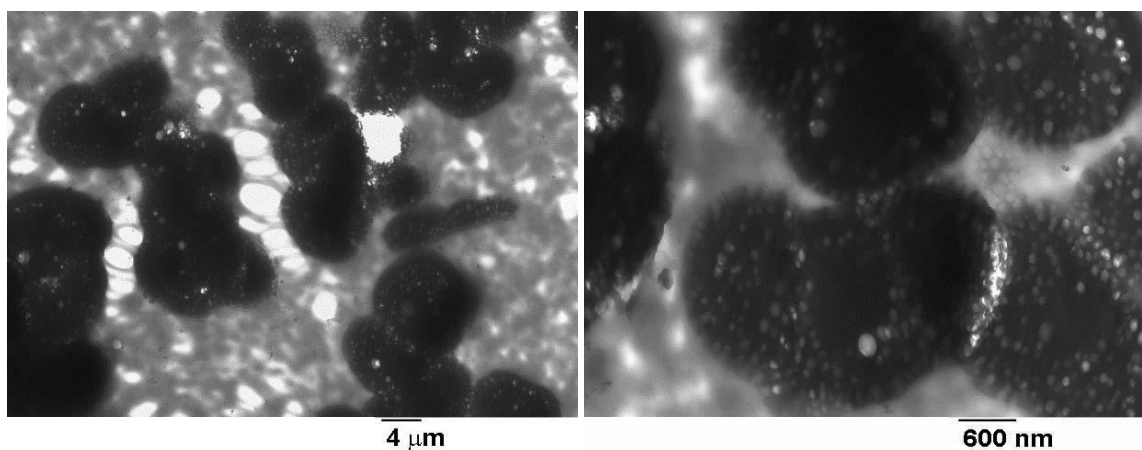


Figura 12: Imágenes obtenidas por Microscopía Electrónica de Transmisión (ampliaciones de 6000x, a la izquierda, y de 25000x, a la derecha) de las microcápsulas de la Prueba 2

Del mismo modo que en las análisis de la Puebla 1, las imágenes por TEM fueron complementarias a las por SEM para análisis de la presencia del principio activo.

4.3.3 Calorimetría Diferencial de Barrido

La Figura 13, muestra la curva DSC de las microcápsulas de aceite esencial de naranja y TCM en la proporción 1:2. En la curva, podemos observar la temperatura máxima de degradación de la membrana (MF) en torno a 120 °C y aproximadamente otro punto de inflexión a 390 °C, correspondiendo con el pico exotérmico del TCM. En este análisis, no fue posible identificar la presencia de aceite de naranja, ya que no presenta una curva significativa en torno a su pico de temperatura de degradación. No obstante, la mezcla de aceites en la proporción 1:2 tampoco permitía detectar el aceite esencia, tal y como se observó al estudiar mediante DSC únicamente la mezcla si ser encapsulada.

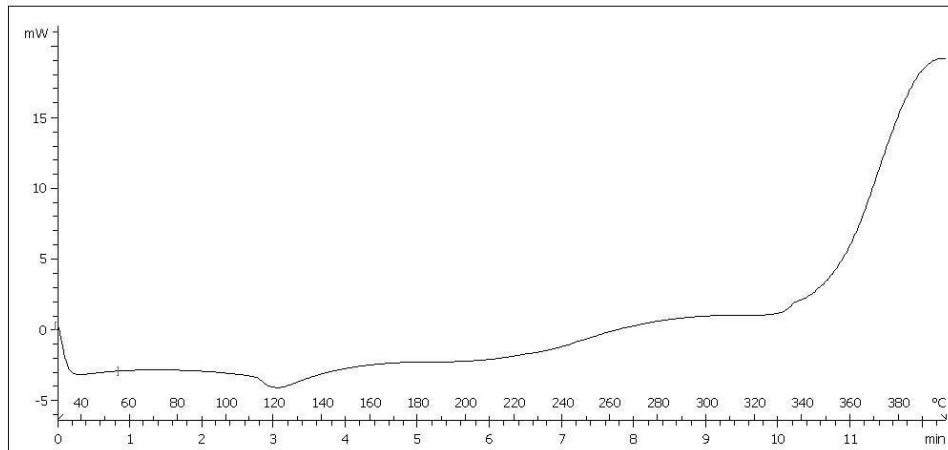


Figura 13: Calorimetría Diferencial de Barrido de las microcápsulas de la Prueba 2.

Podemos observar por medio de los análisis de las imágenes SEM, TEM y DSC, que la Prueba 2, así como las de la Prueba 1, formó microcápsulas aglomeradas, pero todavía persisten algunas esferas macizas. Pero, el DSC (Figura 13), no fue concluyente con indicativo de la presencia del aceite de naranja.

4.4 Prueba 3 - aceite esencial de naranja : aceite Triglicéridos de Cadena Media (2:1), tensioactivo Tween 20

4.4.1 Microscopía Electrónica de Barrido

En la Figura 14, las imágenes obtenidas por SEM de las microcápsulas de aceite esencial de naranja y TCM en la proporción de 2:1, de la Prueba 3. Podemos observar, por el análisis de las imágenes SEM (Figura 14), una buena formación de microcápsulas, las cuales a diferencia de las muestras analizadas previamente están un poco menos aglomeradas y, se aprecia una gran diversidad en el tamaño de las cápsulas. En algunas cápsulas es posible notar pequeños agujeros en su membrana, que también puede haber ocurrido debido a la formación de espuma (burbujas de aire) en la emulsión, del mismo modo que la Prueba anterior.

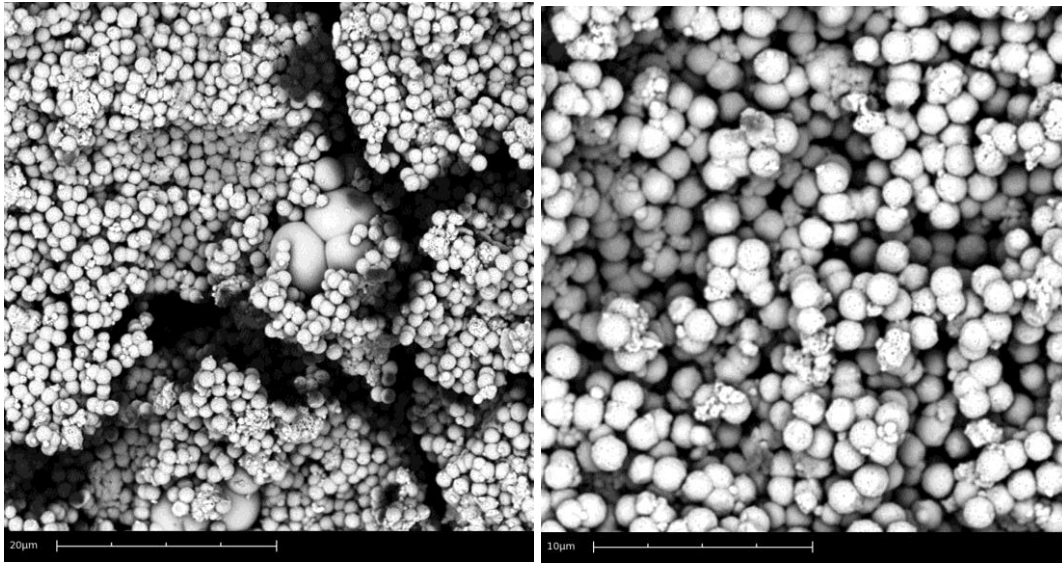


Figura 14: Imágenes obtenidas por Microscopio Electrónico de Barrido (ampliaciones de 5000x, a la izquierda, y de 10000x, a la derecha) de las microcápsulas de la Prueba 3.

4.4.2 Microscopía Electrónica de Transmisión

En la Figura 15, las imágenes obtenidas por TEM de las microcápsulas de aceite esencial de naranja y TCM 2:1 de la Prueba 3. También se observa formación de microcápsulas, pero también como las otras imágenes de las Pruebas 1 y 2, presenta la formación de algunos puntos oscuros, lo que indica que también las microcápsulas no se han formado sino que corresponde a microesferas solidas de polímero.

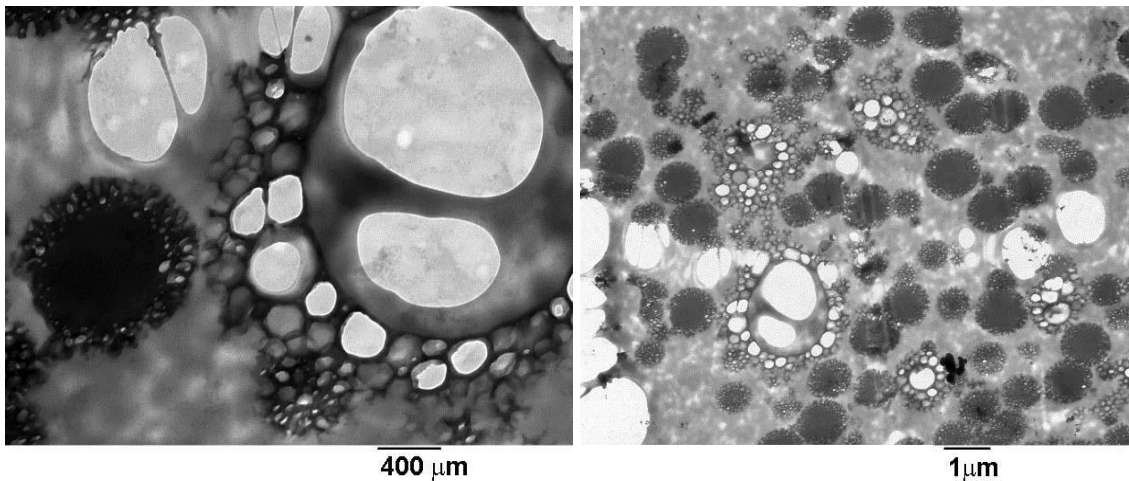


Figura 15 : Imágenes obtenidas por Microscopía Electrónica de Transmisión (ampliaciones de 30000x, a la izquierda, y de 100000x, a la derecha) de las microcápsulas de la Prueba 3.

En la Figura 15, se aprecia tanto la formación de esferas de polímero, sin el principio activo y nanoesferas en la periferia del polímero. Pero también se pueden observar

puntos más claros, lo que indica cierta presencia del principio activo (aceite de naranja o aceite de naranja + TCM) en el núcleo de las microcápsulas, lo que indica que mantuvo el aceite esencial encapsulado. No obstante, las cápsulas obtenidas en este caso se presentan aglomeradas.

4.4.3 Calorimetría Diferencial de Barrido

En la curva de la Figura 16, obtenida por DSC a partir de las microcápsulas de aceite esencial de naranja y TCM en la proporción de 2:1, podemos observar la curva endotérmica propia de la membrana en torno a 120 °C, aproximadamente a 190 °C, una curva que indica la presencia del aceite naranja, aunque cabe destacar que no está claramente definida a diferencia de la curva resultante del análisis de la mezcla 2:1 sin encapsular donde se podía apreciar muy claramente la curva endotérmica del aceite de naranja. Alrededor de 250 °C y 390 °C se aprecia las curvas exotérmicas de TCM. Las curvas indicativas de los tres principales compuestos que se utilizaron en la sintetización, lo que puede señalar la formación de microcápsulas en la Prueba 3.

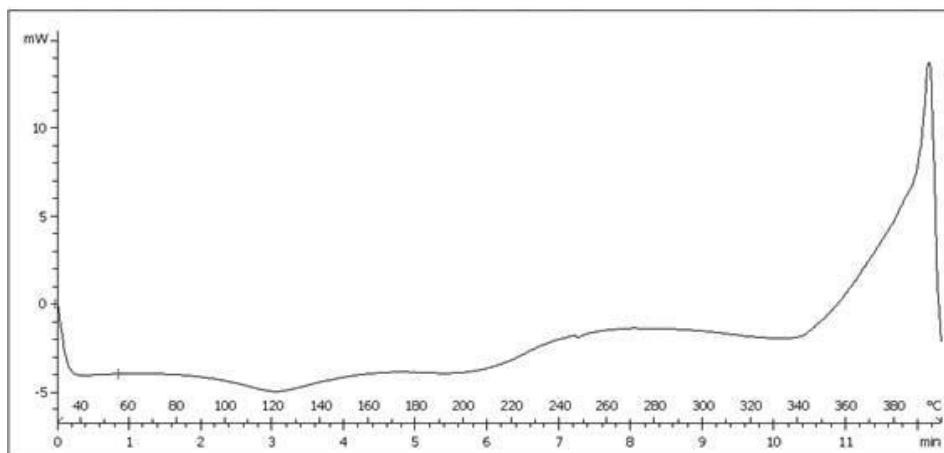


Figura 16: Calorimetría Diferencial de Barrido de las microcápsulas de la Prueba 3.

Podemos observar por medio de los análisis de las imágenes SEM, TEM y DSC, que la Prueba 3, permite intuir la formación de microcápsulas como tales, con pocos aglomerados, pero todavía persisten algunas esferas macizas y la combinación de las imágenes del TEM y DSC puede indicar la presencia del aceite de naranja y señalar el encapsulamiento.

4.5 Prueba 4 - aceite esencial de naranja y tensioactivo Tween 20

4.5.1 Microscopía Electrónica de Barrido

En la Figura 17, las imágenes obtenidas por SEM de las microcápsulas de aceite esencial de naranja sin la adición de TCM, de la prueba 4. Podemos observar, por el análisis de las imágenes SEM, que ocurrió la formación microcápsula pero están bastante aglomeradas, con variaciones en su tamaño. Al incrementar los aumentos (imagen de la derecha) se observa que no todas tienen forma esférica. Parecen deshinchadas.

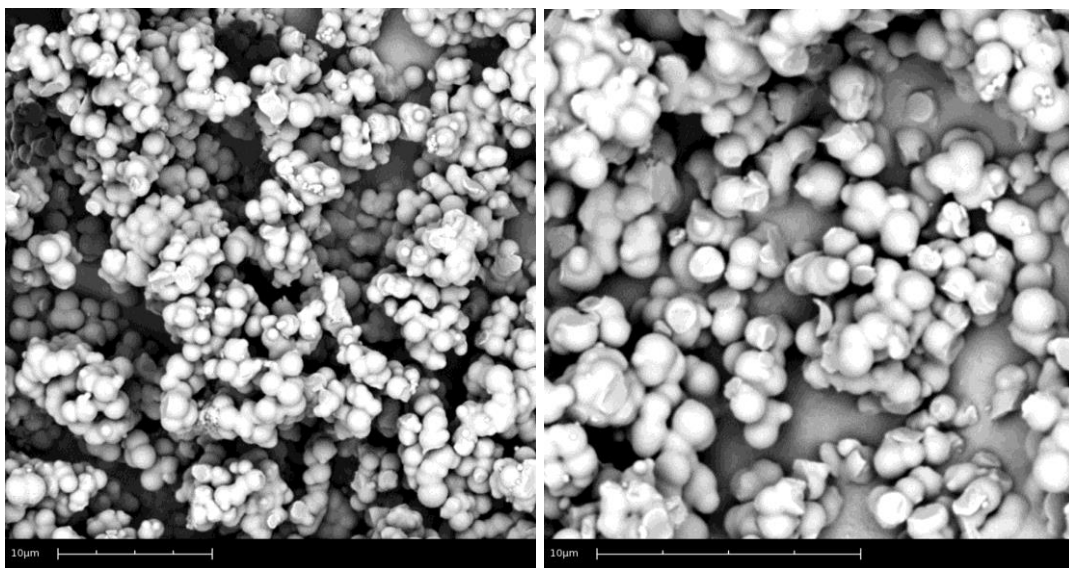


Figura 17: Imágenes obtenidas por Microscopio Electrónico de Barrido (ampliaciones de 7000x, a la izquierda, y de 12000x, a la derecha) de las microcápsulas de la Prueba 4.

4.5.2 Microscopía Electrónica de Transmisión

En la Figura 18, las imágenes obtenidas por TEM de las microcápsulas de aceite esencial de naranja sin la adición de TCM, de la Prueba 4. También podemos observar los puntos oscuros, lo que indica que las microcápsulas son macizas, obteniendo sólo la formación de pequeñas bolas de polímero, sin el principio activo en su núcleo, lo que indica que se consiguió el aceite esencial encapsulado.

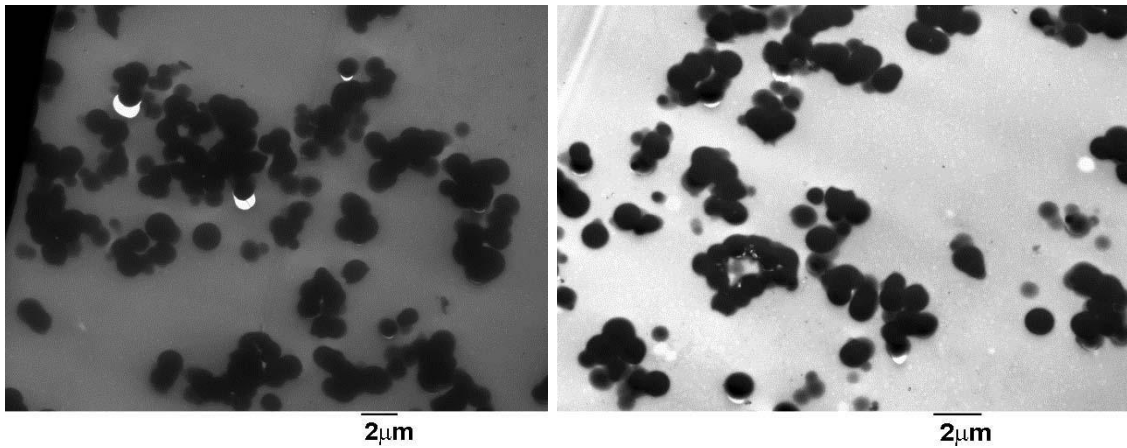


Figura 18: Imágenes obtenidas por Microscopía Electrónica de Transmisión (ampliaciones de 12000x, a la izquierda, y de 15000x, a la derecha) de las microcápsulas de la Prueba 4.

La presencia de esferas parcialmente deshinchadas se puede deber a que la polimerización no se ha generado en forma de esferas perfectas, pero el TEM evidencia que no se debe a que se ha perdido parte del principio activo encapsulado.

4.5.3 Calorimetría Diferencial de Barrido

En la Figura 19, la curva obtenida por DSC a partir de las microcápsulas de aceite esencial sin la adición de TCM, podemos observar la curva endotérmica de la membrana en torno a 120 °C, aproximadamente a 210 °C y una curva que indica la presencia del aceite naranja. Las curvas indicativas de los dos principales compuestos que se utilizaron en la sintetización, lo mismo que ocurrió en las Pruebas 1 y 3, puede también señalar la formación de microcápsulas en la Prueba 4.

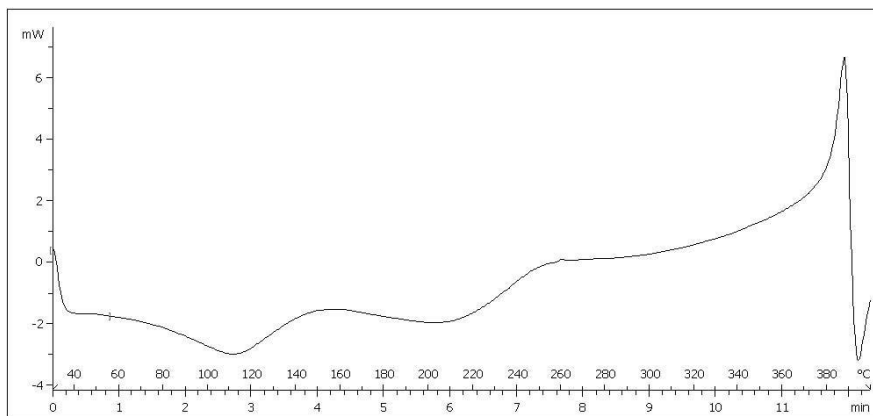


Figura 19: Calorimetría Diferencial de Barrido de las microcápsulas de la Prueba 4.

Podemos observar por medio de los análisis de las imágenes SEM, TEM y DSC, que la Prueba 4, así como las de la Prueba 1 y 3, la presencia de los tres compuestos, membrana aceite esencial y TCM pero no permite concluir con que se ha logrado la formación de microcápsulas, ya que persisten las esferas macizas y la combinación de las imágenes del TEM y DSC, puede indicar la presencia del aceite de naranja pero no su encapsulación.

4.6 Prueba 5 - aceite esencial de naranja : aceite Triglicéridos de Cadena Media (1:1), tensioactivo bromuro de cetiltrimetilamonio

4.6.1 Microscopía Electrónica de Barrido

En la Figura 20, las imágenes obtenidas por SEM de las microcápsulas de aceite esencial de naranja y TCM en la proporción de 1:1, de la Prueba 5. Podemos observar, por el análisis de las imágenes SEM, una buena formación microcápsula, pero con muchas variaciones en su tamaño.

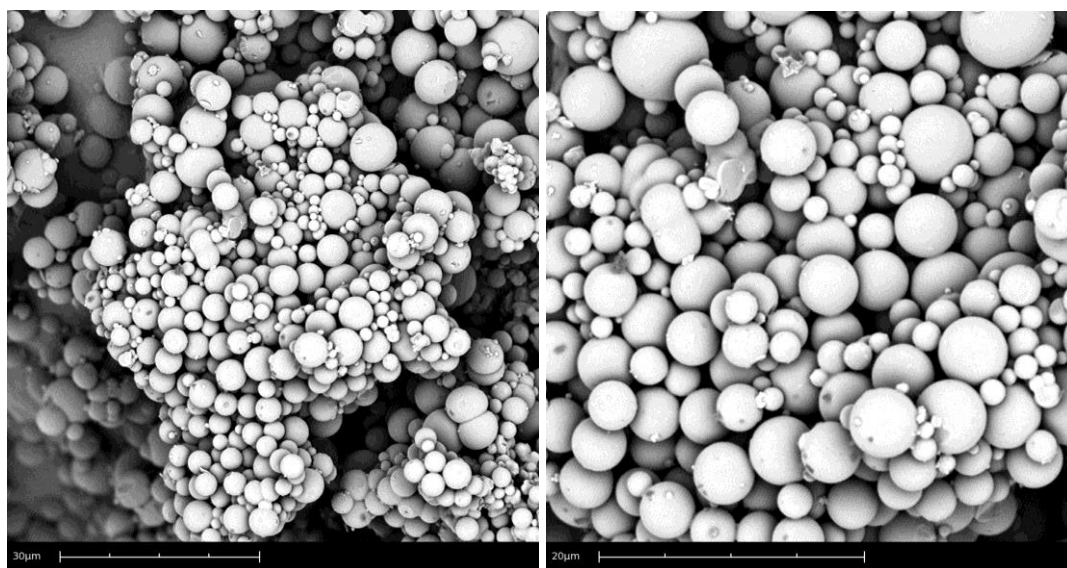


Figura 20: Imágenes obtenidas por Microscopio Electrónico de Barrido (ampliaciones de 3000x, a la izquierda, y de 6000x, a la derecha) de las microcápsulas de la Prueba 5.

En la Figura 21, las imágenes de obtenidas por SEM del intento de rompimiento de la membrana de las microcápsulas de aceite esencial de naranja y TCM (1:1) de la Prueba 5. También con el auxilio de un mortero se hizo un intento de rotura de las microcápsulas, como podemos observar en las imágenes las microcápsulas (Figura 21) no se rompieron, apenas se deformaron como si fuera un caucho maleable, esto puede ser debido al polímero no ser rígido suficiente para romper, sin embargo el TEM nos ha permitido concluir que las microcápsulas son macizas, y por tanto son microesferas de polímero sin el principio activo en su interior.

La Figura 21, también presenta algunas microcápsulas con aberturas, tal vez indicando que hay algo en su interior pero sin una confirmación precisa de que el principio activo ha sido encapsulado. También como en la Figura 7 esto puede haber ocurrido por algún problema en la polimerización o puede haber ocurrido debido a la formación de espuma (burbujas de aire) en la emulsión.

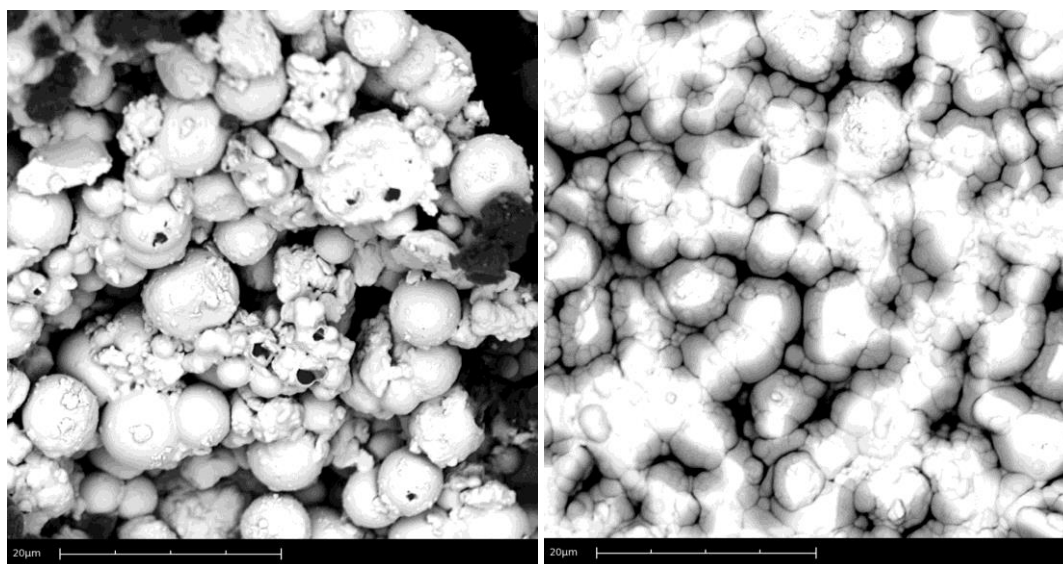


Figura 21: Imágenes de obtenidas por Microscopio Electrónico de Barrido (ampliaciones de 5000x a la izquierda y de 5000x a la derecha) del intento de rompimiento de la membrana de las microcápsulas de la Prueba 5.

4.6.2 Microscopía Electrónica de Transmisión

En la Figura 22, las imágenes obtenidas por TEM de las microcápsulas de aceite esencial de naranja y TCM en la proporción 1:1, de la Prueba 5.

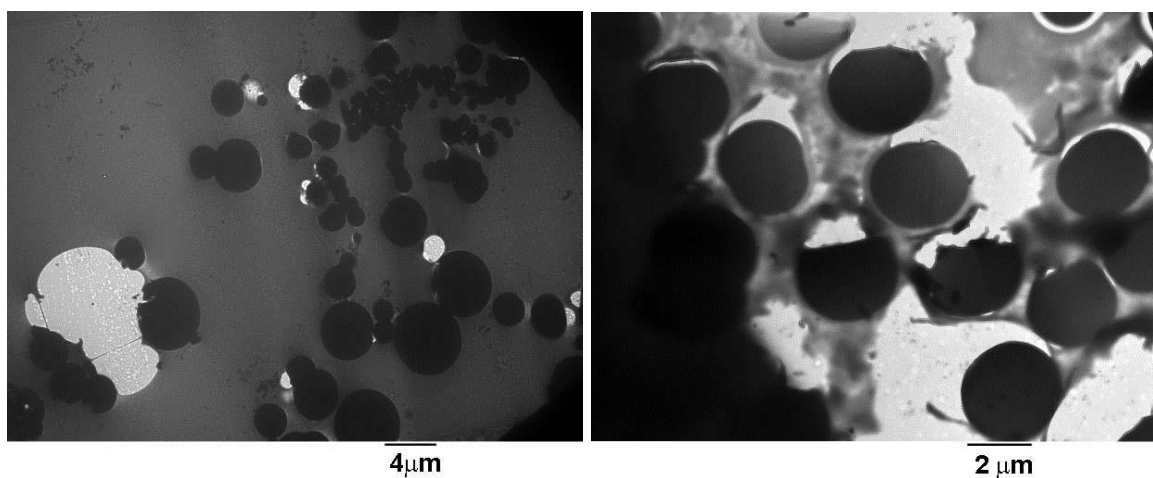


Figura 22: Imágenes obtenidas por Microscopía Electrónica de Transmisión (ampliaciones de 8000x, a la izquierda, y de 20000x, a la derecha) de las microcápsulas de la Prueba 5.

Podemos observar en las imágenes (Figura 22), puntos oscuros, lo que indica que las microcápsulas son sólidas, obteniendo sólo la formación de esferas de polímero, sin el principio activo contenido en su interior, lo que indica que no mantuvo el aceite esencial encapsulado.

4.6.3 Calorimetría Diferencial de Barrido

La Figura 23, muestra la curva DSC de las microcápsulas de aceite esencial de naranja y TCM en la proporción 1:1. En la curva, podemos observar la curva propia de la membrana en torno a 120 °C y a aproximadamente a 245 °C la curva que indica el punto de cristalización del TCM. En este análisis, no fue posible identificar la presencia de aceite de naranja, ya que no presenta una curva significativa en torno a su pico de temperatura de degradación.

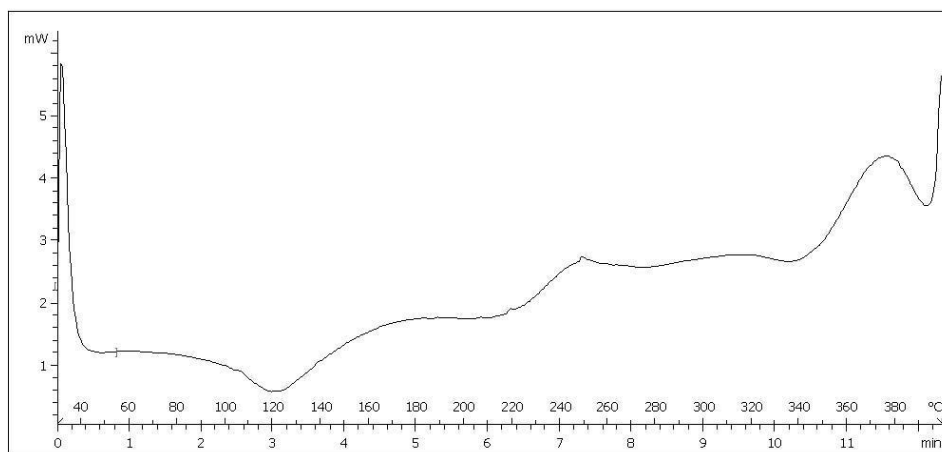


Figura 23: Calorimetría Diferencial de Barrido de las microcápsulas de la Prueba 5.

4.7 Prueba 6 - aceite esencial de naranja : aceite Triglicéridos de Cadena Media (1:2), tensioactivo bromuro de cetiltrimetilamonio

4.7.1 Microscopía Electrónica de Barrido

En la Figura 24, las imágenes obtenidas por SEM de las microcápsulas de aceite esencial de naranja y TCM en la proporción de 1:2, de la prueba 6. Podemos observar, por el análisis de las imágenes SEM, una buena formación de microcápsulas, con morfología regular y buena distribución.

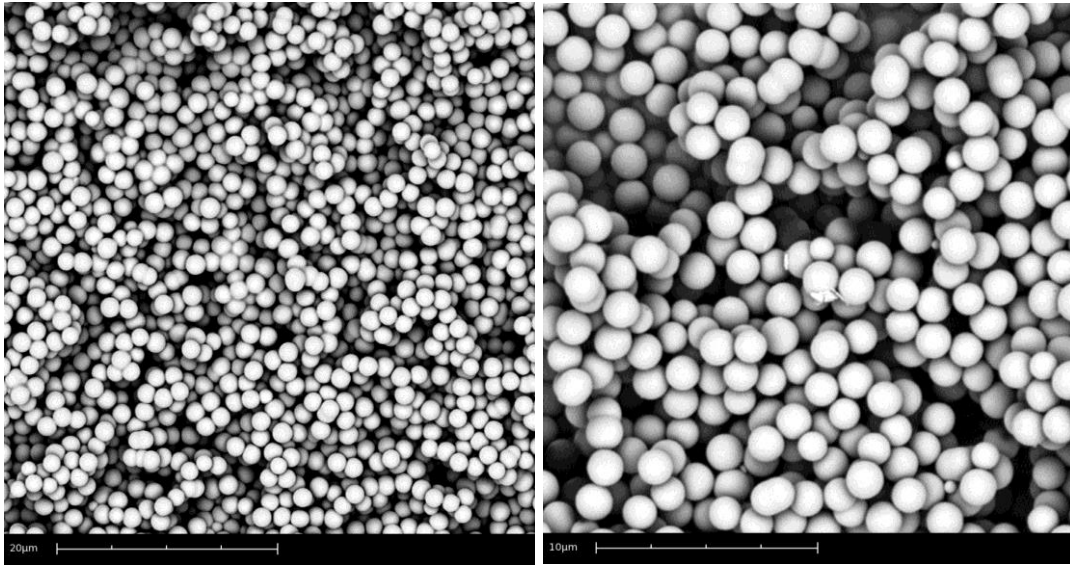


Figura 24: Imágenes obtenidas por Microscopio Electrónico de Barrido (ampliaciones de 5000x, a la izquierda, y de 10000x, a la derecha) de las microcápsulas de la Prueba 6.

En la Figura 25, las imágenes de obtenidas por Microscopio Electrónico de Barrido del intento de rompimiento de la membrana de las microcápsulas de aceite esencial de naranja y TCM en la proporción 1:2 de la Prueba 6. También con el auxilio de un mortero se hizo un intento de rompimiento de las microcápsulas. Como podemos observar en las imágenes (Figura 25), nuevamente, las microcápsulas no se rompieron, algunas apenas presentaron una pequeña deformación aparentando ser más rígidas que las anteriores. Una vez más, esto puede ser un indicativo que tal vez estén macizas sin el principio activo en su interior.

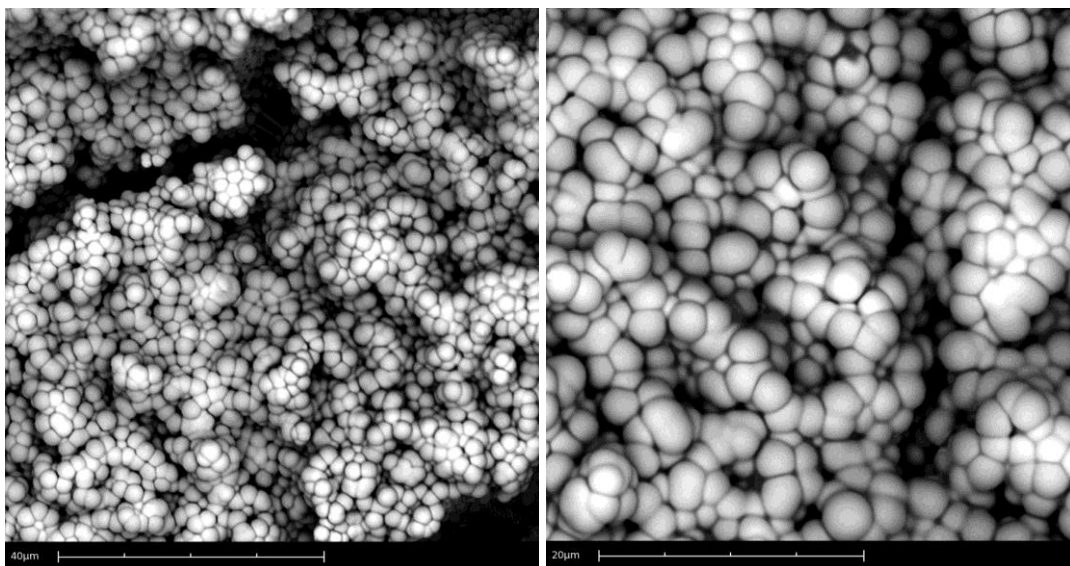


Figura 25: Imágenes de obtenidas por Microscopio Electrónico de Barrido del intento de rompimiento de la membrana de las microcápsulas de la Prueba 6.

4.7.2 Microscopía Electrónica de Transmisión

En la Figura 26, las imágenes obtenidas por TEM de las microcápsulas de aceite esencial de naranja y TCM, en la proporción 1: 2, de la Prueba 6. Podemos observar también, nuevamente, como en los análisis anteriores, los puntos oscuros en las imágenes, lo que indica que las microcápsulas están macizas, obteniendo sólo la formación de esferas de polímero, sin el principio activo en contenido su interior, lo que indica que no hubo el encapsulado del aceite esencial.

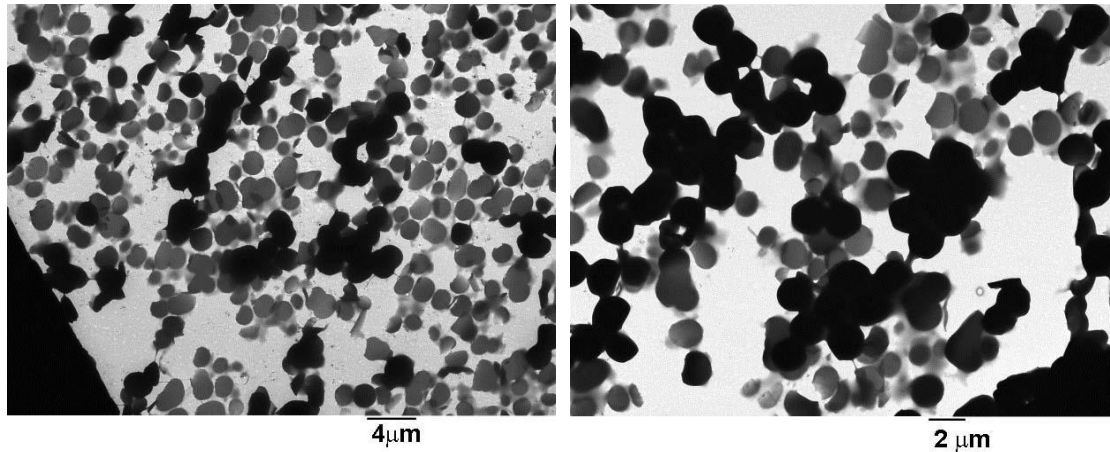


Figura 26: Imágenes obtenidas por Microscopía Electrónica de Transmisión (ampliaciones de 8000x, a la izquierda, y de 12000x, a la derecha) de las microcápsulas de la Prueba 6.

4.7.3 Calorimetría Diferencial de Barrido

En la Figura 27, la curva obtenida por DSC a partir de las microcápsulas de aceite esencial de naranja y TCM en la proporción 1:2, podemos observar la temperatura máxima de degradación de la membrana en torno a 130 °C, pero, presenta un poco de ruido, y alrededor de 350 °C curva que indica el punto de cristalización del TCM. No observando el pico propio del aceite de naranja, aunque cabe destacar que tal y como se ha comentado anteriormente al analizar la mezcla sin encapsular 1:2 el comportamiento térmico era distinto al del aceite de naranja, no apreciándose la curva a 180 °C.

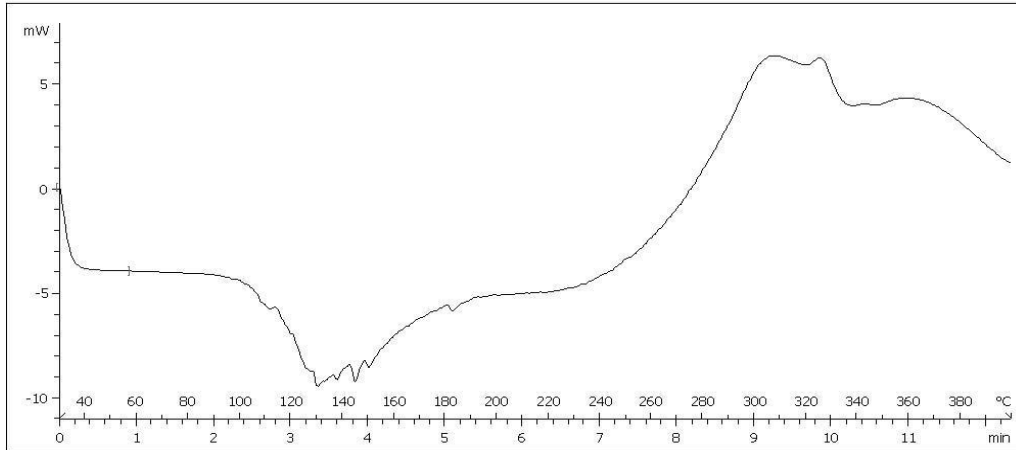


Figura 27: Calorimetría Diferencial de Barrido de las microcápsulas de la Prueba 6.

4.8 Prueba 7 - Fragancia pure Joy, tensioactivo Tween 80

4.8.1 Microscopía Electrónica de Barrido

En la Figura 28, las imágenes obtenidas por SEM de las microcápsulas de fragancia pure Joy de la Prueba 7. Se observa, en el análisis de las imágenes de SEM, la formación de microcápsulas, pero, ocurrieron muchos aglomerados de microcápsulas. También es posible notar que algunas cápsulas están abiertas y otras con pequeños agujeros, también puede haber ocurrido debido a la formación de espuma (burbujas de aire) en la emulsión.

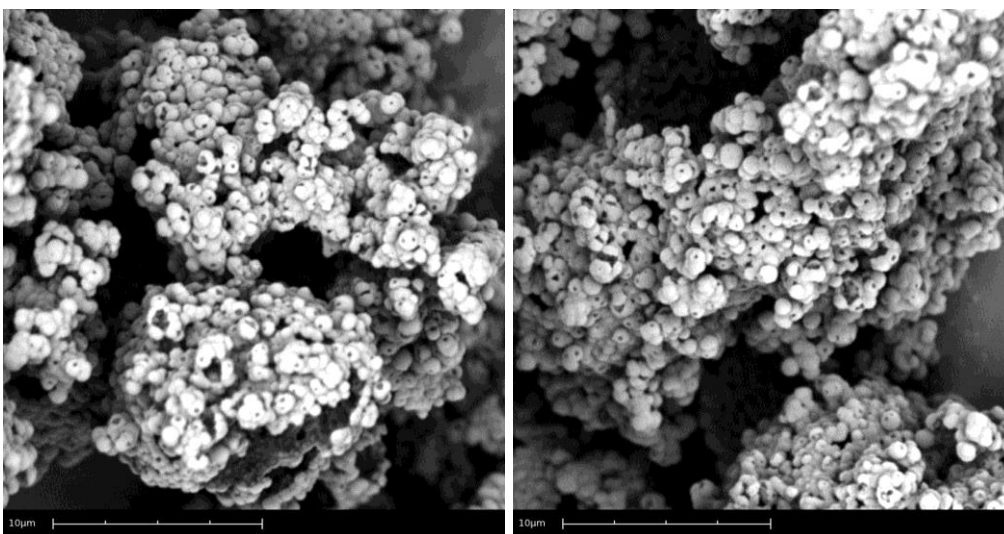


Figura 28: Imágenes de obtenidas por Microscopio Electrónico (ampliaciones de 10000x, a la izquierda, y de 10000x, a la derecha) de las microcápsulas de la Prueba 7.

4.9 Prueba 8 - Fragancia pure Joy, tensioactivo Tween 80

4.9.1 Microscopía Electrónica de Barrido

En la Figura 29, las imágenes obtenidas por SEM de las microcápsulas de fragancia pure Joy de la Prueba 8. Se observa, en el análisis de las imágenes de SEM, que ocurrió formación de microcápsulas, pero, su morfología presenta variaciones en tamaño y podemos ver también algunos aglomerados.

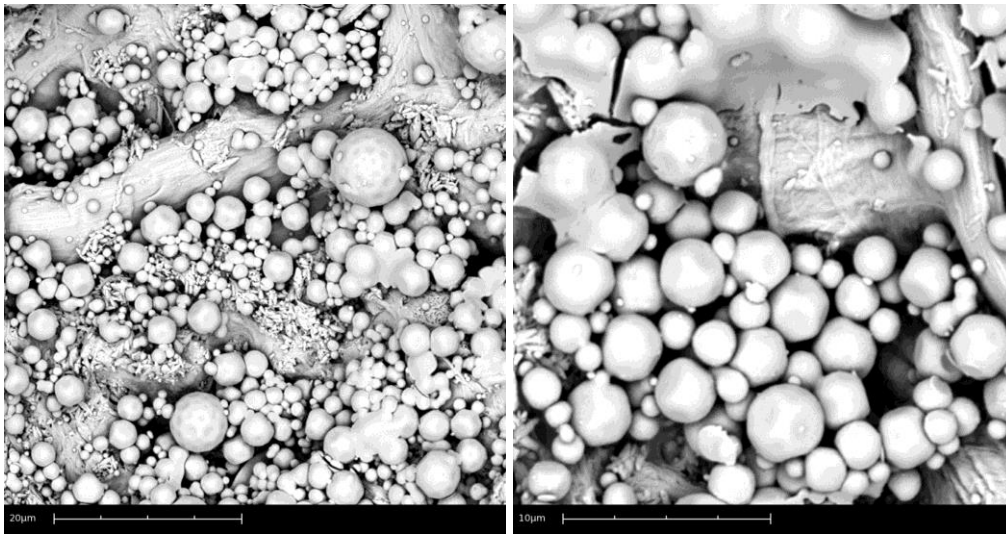


Figura 29: Imágenes de obtenidas por Microscopio Electrónico (ampliaciones de 4500x, a la izquierda, y de 10000x, a la derecha) de las microcápsulas de la Prueba 8.

4.10 Prueba 9 - Fragancia pure Joy, tensioactivo Tween 80

4.10.1 Microscopía Electrónica de Barrido

En la Figura 30, las imágenes obtenidas por SEM de las microcápsulas de fragancia pure Joy de la prueba 9.

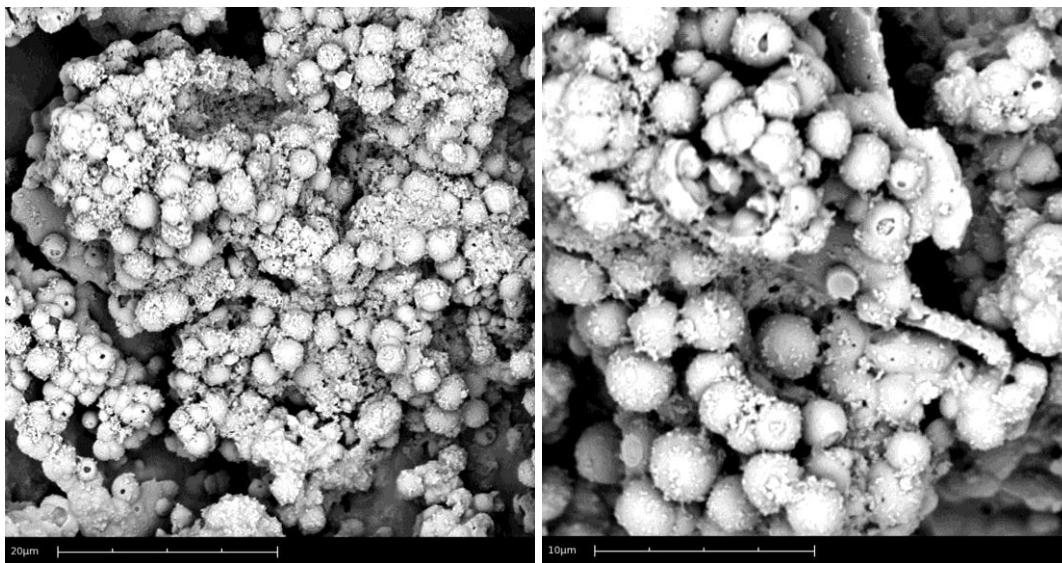


Figura 30: Imágenes de obtenidas por Microscopio Electrónico (ampliaciones de 5000x a la izquierda y de 10000x a la derecha) de las microcápsulas de la Prueba 9.

Se observa, en el análisis de las imágenes de SEM (Figura 30), la formación de microcápsulas, también ocurrió muchos aglomerados y una gran variación en su tamaño, pues, podemos ver microcápsulas grandes con muchas microcápsulas más pequeñas a su alrededor. También es posible observar que algunas en la Figura 30, cápsulas abiertas, otras con pequeños agujeros y otras no están bien formadas. Esto puede deberse a la formación de espuma (burbujas de aire) en la emulsión o en el proceso de polimerización.

4.11 Prueba 10 - Fragancia pure Joy, tensioactivo Tween 80

4.11.1 Microscopía Electrónica de Barrido

En la Figura 31, las imágenes obtenidas por SEM de las microcápsulas de fragancia pure Joy de la prueba 10. Se observa, en el análisis de las imágenes de SEM, del mismo modo que en la Prueba 9 (Figura 30), la formación de microcápsulas, pero también con algunos aglomerados y, variaciones en su tamaño. Podemos ver también que algunas microcápsulas están con pequeños agujeros, esto puede haber ocurrido debido a la formación de espuma (burbujas de aire) en la emulsión o en el proceso de polimerización.

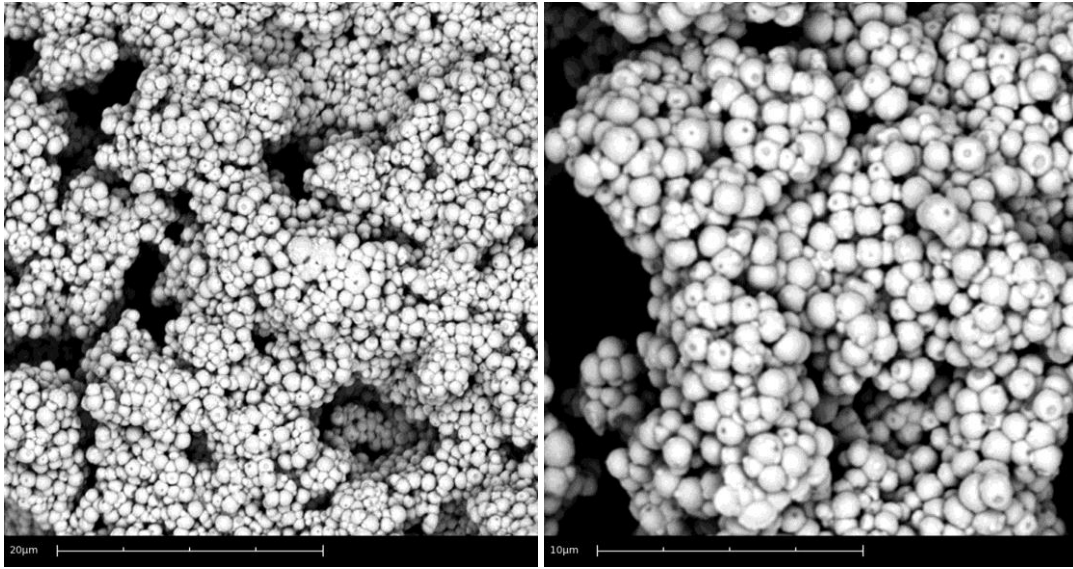


Figura 31: Imágenes de obtenidas por Microscopio Electrónico (ampliaciones de 6000x, a la izquierda, y de 12000x, a la derecha) de las microcápsulas de la Prueba 10.

5. CONCLUSIONES

Después de la batería de pruebas, todavía es necesario optimizar el proceso de obtención de microcápsulas de aceite esencial de naranja para el uso en aromaterapia, delimitando los siguientes aspectos para la sintetización de microcápsulas.

El aceite esencial de naranja (*citrus sinensis*) fue considerado como adecuado, pues, posee tanto características funcionales como propiedades sensoriales, teniendo un aroma característico ya relacionado con sensaciones agradables. Como características funcionales, se destaca su acción biocida, es decir, función antimicrobiana, anti fúngica e insecticida y propiedades sensoriales de control de ansiedad y relajación, alivio de náuseas y aliviar el dolor crónico.

Las microcápsulas de membrana polimérica de MF conteniendo aceite esencial de naranja (*citrus sinensis*) + TCM, esencial de naranja (*citrus sinensis*) puro y fragancia pure Joy fueron sintetizadas por medio de polimerización interfacial en la emulsión aceite-en-agua. Se utilizó un conjunto de métodos de caracterización de las microcápsulas sintetizadas para confirmar su composición y su morfología: SEM, TEM y DSC.

Con respecto específico a la optimización de la sintetización de las microcápsulas, por medio de la realización de las pruebas, se logró observar por medio de las combinaciones de los análisis de imágenes de SEM y de TEM, la morfología de las microcápsulas. De este modo, por los procesos utilizados para la síntesis se logró obtener cierta formación de nanocápsulas o alguna microcápsula . Estas pruebas, además de la buena formación de microcápsulas por su morfología, por medio de los análisis de las curvas de DSC, también fue posible identificar la indicación de la presencia del aceite esencial de naranja. Pero aún es necesario optimizar estos procesos de formación para evitar que las microcápsulas formen aglomerados.

Las Pruebas 2 y 5 no se consideraron satisfactorias, pues en las imágenes de SEM, se observaron aglomerados de microcápsulas (Prueba 2) y microcápsulas de tamaños irregulares (Prueba 5). Además, las imágenes de DSC, no pudieron detectar las curvas características del aceite esencial de naranja. Por lo tanto, las formulaciones utilizadas todavía necesitan ser estudiadas y mejoradas, es decir, hay que revisar los parámetros de obtención para mejorar su encapsulación y rehacer las caracterizaciones para confirmar el principio activo en su interior.

Las pruebas 7 a 10 se realizaron con la fragancia pure Joy para verificar la posibilidad de aumentar la cantidad de microcápsulas obtenidas, aumentando su proporción a 1L en la obtención. En las pruebas 7, 9, y 10 ocurrió la formación, pero con algunas fallas en su morfología, como indicaron los análisis de las imágenes SEM, indicando que es necesario verificar el proceso de polimerización para obtener una buena formación de microcápsulas y verificar el caso de aglomeración. En la prueba 8 se observó que hubo una buena formación de microcápsulas con muy pocos aglomerados.

6. LÍNEAS FUTURAS

En el estudio de síntesis y caracterización de microcápsulas de aceite esencial de naranja para el uso en aromaterapia, se pueden añadir más estudios para seguir contribuyendo en la optimización del proceso de obtención de microcápsulas, como los citados a continuación:

- Profundizar los estudios de compatibilidad del aceite esencial con el tensioactivo, para ello son necesarias nuevas pruebas utilizando otros tensioactivos.
- Verificar el motivo por el cual está ocurriendo la formación de microcápsulas masivas.
- Completar el estudio de análisis de comportamiento térmico con la técnica del análisis termogravimétrico (TGA).
- Se necesitan más estudios con el aceite esencial para resolver el problema de la volatilidad, por ejemplo: comparación de DSC a 40 °C y otro a 70 °C por 1h y 30 min. Tiempo aproximado de la polimerización.
- Realizar pruebas en las mismas condiciones de temperatura haciendo el uso de la placa de calentamiento que se utiliza para la sintetización de las microcápsulas.
- Probar la polimerización con temperaturas más bajas.
- Hacer pruebas usando un anti-espumante y un dispersante para mejorar los aglomerados y los agujeros que ocurrieron en las microcápsulas.
- Realizar pruebas de estabilidad con la emulsión, probar nuevos parámetros de sintetización, nuevos métodos de caracterización, nuevas caracterizaciones con las microcápsulas y con los materiales utilizados para sintetizarlos,
- Profundizar y mantener actualizado el referencial teórico sobre el tema.

7. LISTADO DE TABLAS E FIGURAS

7.1 LISTADO DE TABLAS

Tabla 1: Formulación de la síntesis de las microcápsulas de aceite esencial de naranja.21

Tabla 2: Formulación de la síntesis de las microcápsulas de fragancia pure Joy.22

7.2 LISTADO DE FIGURAS

Figura 1: Calorimetría Diferencial de Barrido del aceite esencial de naranja (*citrus sinensis*)..... 26

Figura 2: Calorimetría Diferencial de Barrido del aceite fijo Triglicéridos de Cadena Media. 27

Figura 3: Calorimetría Diferencial de Barrido del aceite esencial de naranja (*citrus sinensis*) y aceite fijo Triglicéridos de Cadena Media en la proporción (1:1).....27

Figura 4: Calorimetría Diferencial de Barrido del aceite esencial de naranja (*citrus sinensis*) y aceite fijo Triglicéridos de Cadena Media en la proporción (1:2).....28

Figura 5: Calorimetría Diferencial de Barrido del aceite esencial de naranja (*citrus sinensis*) y aceite fijo Triglicéridos de Cadena Media en la proporción (2:1).....28

Figura 6: Calorimetría Diferencial de Barrido de la membrana de las microcápsulas, sin el material del núcleo.29

Figura 7: Imágenes obtenidas por Microscopio Electrónico de Barrido (ampliaciones de 6000x, a la izquierda, y de 11000x, a la derecha) de las microcápsulas de la Prueba 1.....29

Figura 8: Imágenes de obtenidas por Microscopio Electrónico de Barrido (ampliaciones de 3000x, a la izquierda, y de 5000x, a la derecha) del intento de rompimiento de la membrana de las microcápsulas de la Prueba 1.30

Figura 9: Imágenes obtenidas por Microscopía Electrónica de Transmisión (ampliaciones de 8000x, a la izquierda, y de 60000x, a la derecha) de las microcápsulas de la Prueba 1.....31

Figura 10: Calorimetría Diferencial de Barrido de las microcápsulas de la Prueba 1.....31

Figura 11: Imágenes obtenidas por Microscopio Electrónico de Barrido (ampliaciones de 5000x, a la izquierda, y de 10000x, a la derecha) de las microcápsulas de la Prueba 2.....32

Figura 12: Imágenes obtenidas por Microscopía Electrónica de Transmisión (ampliaciones de 6000x, a la izquierda, y de 25000x, a la derecha) de las microcápsulas de la Prueba 2..33

Figura 13: Calorimetría Diferencial de Barrido de las microcápsulas de la Prueba 2.34

Figura 14: Imágenes obtenidas por Microscopio Electrónico de Barrido (ampliaciones de 5000x, a la izquierda, y de 10000x, a la derecha) de las microcápsulas de la Prueba 3.....35

Figura 15 : Imágenes obtenidas por Microscopía Electrónica de Transmisión (ampliaciones de 30000x, a la izquierda, y de 100000x, a la derecha) de las microcápsulas de la Prueba 3.35

Figura 16: Calorimetría Diferencial de Barrido de las microcápsulas de la Prueba 3.36

Figura 17: Imágenes obtenidas por Microscopio Electrónico de Barrido (ampliaciones de 7000x, a la izquierda, y de 12000x, a la derecha) de las microcápsulas de la Prueba 4.	37
Figura 18: Imágenes obtenidas por Microscopía Electrónica de Transmisión (ampliaciones de 12000x, a la izquierda, y de 15000x, a la derecha) de las microcápsulas de la Prueba 4.	38
Figura 19: Calorimetría Diferencial de Barrido de las microcápsulas de la Prueba 4.	38
Figura 20: Imágenes obtenidas por Microscopio Electrónico de Barrido (ampliaciones de 3000x, a la izquierda, y de 6000x, a la derecha) de las microcápsulas de la Prueba 5.	39
Figura 21: Imágenes de obtenidas por Microscopio Electrónico de Barrido (ampliaciones de 5000x a la izquierda y de 5000x a la derecha) del intento de rompimiento de la membrana de las microcápsulas de la Prueba 5.	40
Figura 22: Imágenes obtenidas por Microscopía Electrónica de Transmisión (ampliaciones de 8000x, a la izquierda, y de 20000x, a la derecha) de las microcápsulas de la Prueba 5.	40
Figura 23: Calorimetría Diferencial de Barrido de las microcápsulas de la Prueba 5.	41
Figura 24: Imágenes obtenidas por Microscopio Electrónico de Barrido (ampliaciones de 5000x, a la izquierda, y de 10000x, a la derecha) de las microcápsulas de la Prueba 6.	42
Figura 25: Imágenes de obtenidas por Microscopio Electrónico de Barrido del intento de rompimiento de la membrana de las microcápsulas de la Prueba 6.	42
Figura 26: Imágenes obtenidas por Microscopía Electrónica de Transmisión (ampliaciones de 8000x, a la izquierda, y de 12000x, a la derecha) de las microcápsulas de la Prueba 6.	43
Figura 27: Calorimetría Diferencial de Barrido de las microcápsulas de la Prueba 6.	44
Figura 28: Imágenes de obtenidas por Microscopio Electrónico (ampliaciones de 10000x, a la izquierda, y de 10000x, a la derecha) de las microcápsulas de la Prueba 7.	44
Figura 29: Imágenes de obtenidas por Microscopio Electrónico (ampliaciones de 4500x, a la izquierda, y de 10000x, a la derecha) de las microcápsulas de la Prueba 8.	45
Figura 30: Imágenes de obtenidas por Microscopio Electrónico (ampliaciones de 5000x a la izquierda y de 10000x a la derecha) de las microcápsulas de la Prueba 9.	46
Figura 31: Imágenes de obtenidas por Microscopio Electrónico (ampliaciones de 6000x, a la izquierda, y de 12000x, a la derecha) de las microcápsulas de la Prueba 10.	47

8 REFERENCIAS

- [1] Ali, B., Al-Wabel, N. A., Shams, S., Ahamad, A., Khan, S. A., & Anwar, F. (2015). Essential oils used in aromatherapy: A systemic review. *Asian Pacific Journal of Tropical Biomedicine*, 5(8), 601-611.
- [2] Campolo O., Romeo F. V., Malacrinò A., Laudani F., Carpinteri G., Fabroni S., Rapisarda P., & Palmeri V. (2014) Effects of inert dusts applied alone and in combination with sweet orange essential oil against (Coleoptera: Bostrichidae) and wheat microbial population, *Industrial Crops and Products*, 61, 361-369.
- [3] Teeka P., Chaiyasat A., & Chaiyasat P. (2014). Preparation of Poly (methyl methacrylate) Microcapsule with Encapsulated Jasmine Oil, *Energy Procedia*, 56, 181-186.
- [4] Badawy M. E., & Abdelgaleil S. A. (2014). Composition and antimicrobial activity of essential oils isolated from Egyptian plants against plant pathogenic bacteria and fungi. *Industrial crops and products*, 52, 776-782.
- [5] Prakash B., Kedia A., Mishra P. K., Dubey N. K. (2015). Plant essential oils as food preservatives to control moulds, mycotoxin contamination and oxidative deterioration of agri-food commodities, *Food Control*, 47, 381-391.
- [6] Yeh, K. W., Chang, C. P., Yamamoto, T., Dobashi, T. (2011) Release model of alginate microcapsules containing volatile tea-tree oil. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 380(1), 152-155.
- [7] Do T. K. T., Hadji-Minaglou, F., Antoniotti, & S., Fernandez, X. (2015). Authenticity of essential oils. *TrAC Trends in Analytical Chemistry*, 66, 146-157.
- [8] Lee, M. K., Lim, S., Song, J. A., Kim, M. E., & Hur, M. H. (2017). The effects of aromatherapy essential oil inhalation on stress, sleep quality and immunity in healthy adults: Randomized controlled trial. *European Journal of Integrative Medicine*, 12, 79-86.
- [9] Fei, X., Zhao, H., Zhang, B., Cao, L., Yu, M., Zhou, J., & Yu, L. (2015). Microencapsulation mechanism and size control of fragrance microcapsules with melamine resin shell. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 469, 300-306.
- [10] Hong, K., & Park, S. (1999). Melamine resin microcapsules containing fragrant oil: synthesis and characterization. *Materials Chemistry and Physics*, 58(2), 128-131.
- [11] Hwang, J. S., Kim, J. N., Wee, Y. J., Yun, J. S., Jang, H. G., Kim, S. H., & Ryu, H. W. (2006). Preparation and characterization of melamine-formaldehyde resin microcapsules containing fragrant oil. *Biotechnology and bioprocess engineering*, 11(4), 332-336.
- [12] Madene, A., Jacquot, M., Scher, J., & Desobry, S. (2006). Flavour encapsulation and controlled release—a review. *International journal of food science & technology*, 41(1), 1-21.

- [13] Monllor, P., Bonet, M. A., & Cases, F. (2007). Characterization of the behaviour of flavour microcapsules in cotton fabrics. *European Polymer Journal*, 43(6), 2481-2490.
- [14] Nelson, G. (2002). Application of microencapsulation in textiles. *International journal of pharmaceutics*, 242(1), 55-62.
- [15] Pena, B., Panisello, C., Aresté, G., Garcia-Valls, R., & Gumí, T. (2012). Preparation and characterization of polysulfone microcapsules for perfume release. *Chemical Engineering Journal*, 179, 394-403.
- [16] Rodrigues, S.N., Martins, I.M., Fernandes, I.P., Gomes, P.B., Mata, V.G., Barreiro, M.F., & Rodrigues, A.E. (2009). Scentfashion: Microencapsulated perfumes for textile application, *Chemical Engineering Journal*, 149(1), 463-472.
- [17] Rossi, W. S., & Roldo, L. (2014). *Microcápsulas: Aplicações e testes de durabilidade em tecidos*. Saarbrücken, Alemanha: Novas Edições Acadêmicas, 2014.
- [18] Park, S. J., Shin, Y. S., & Lee, J. R. (2001). Preparation and characterization of microcapsules containing lemon oil. *Journal of Colloid and Interface Science*, 241(2), 502-508.
- [19] Sansukcharearnpon, A., Wanichwecharungruang, S., Leepipatpaiboon, N., Kerdcharoen, T., & Arayachukeat, S. (2010). High loading fragrance encapsulation based on a polymer-blend: preparation and release behavior. *International journal of pharmaceutics*, 391(1), 267-273.
- [20] Wang, C. X., & Chen, S. L. (2005). Aromachology and its application in the textile field. *Fibres & Textiles in Eastern Europe*, 13(6), 41-44.
- [21] Yuen, C. W. M., Yip, J., Liu, L., Cheuk, K., Kan, C. W., Cheung, H. C., & Cheng, S. Y. (2012). Chitosan microcapsules loaded with either miconazole nitrate or clotrimazole, prepared via emulsion technique. *Carbohydrate polymers*, 89(3), 795-801.
- [22] Gnatta, J. R., Kurebayashi, L. F. S., Turrini, R. N. T., & Silva, M. J. P. D. (2016). Aromatherapy and nursing: historical and theoretical conception. *Revista da Escola de Enfermagem da USP*, 50(1), 127-133.
- [23] Löbach, B. (2001). *Design industrial: bases para a configuração dos produtos industriais*. Edgard Blücher.
- [24] Holme, I. (2007). Innovative technologies for high performance textiles. *Coloration Technology*, 123(2), 59-73.
- [25] Ghosh, S. K. (Ed.). (2006). *Functional coatings: by polymer microencapsulation*. John Wiley & Sons.
- [26] Dubey, R. (2009). Microencapsulation technology and applications. *Defence Science Journal*, 59(1), 82.

- [27] Tasker, A. L., Hitchcock, J. P., He, L., Baxter, E. A., Biggs, S., & Cayre, O. J. (2016). The effect of surfactant chain length on the morphology of poly (methyl methacrylate) microcapsules for fragrance oil encapsulation. *Journal of colloid and interface science*, 484, 10-16.
- [28] Azizi, N., Chevalier, Y., & Majdoub, M. (2014). Isosorbide-based microcapsules for cosmeo-textiles. *Industrial Crops and Products*, 52, 150-157.
- [29] Bône, S., Vautrin, C., Barbesant, V., Truchon, S., Harrison, I., & Geffroy, C. (2011). Microencapsulated fragrances in melamine formaldehyde resins. *CHIMIA International Journal for Chemistry*, 65(3), 177-181.
- [30] Jing, H. U., Zuobing, X. I. A. O., Rujun, Z. H. O. U., Shuangshuang, M. A., Mingxi, W. A. N. G., & Zhen, L. I. (2011). Properties of aroma sustained-release cotton fabric with rose fragrance nanocapsule. *Chinese Journal of Chemical Engineering*, 19(3), 523-528.
- [31] Li, R., Zhou, T., & Pei, J. (2015). Design, preparation and properties of microcapsules containing rejuvenator for asphalt. *Construction and Building Materials*, 99, 143-149.
- [32] Xue, B., Wang, H., Pei, J., Li, R., Zhang, J., & Fan, Z. (2017). Study on self-healing microcapsule containing rejuvenator for asphalt. *Construction and Building Materials*, 135, 641-649.
- [33] Yang, Z., Peng, Z., Li, J., Li, S., Kong, L., Li, P., & Wang, Q. (2014). Development and evaluation of novel flavour microcapsules containing vanilla oil using complex coacervation approach. *Food chemistry*, 145, 272-277.
- [34] Hwang, J. S., Kim, J. N., Wee, Y. J., Jang, H. G., Kim, S. H., & Ryu, H. W. (2006). Factors affecting the characteristics of melamine resin microcapsules containing fragrant oils. *Biotechnology and Bioprocess Engineering*, 11(5), 391-395.
- [35] Teixeira, C. S. N. R., Martins, I. M. D., Mata, V. L. G., Filipe Barreiro, M. F., & Rodrigues, A. E. (2012). Characterization and evaluation of commercial fragrance microcapsules for textile application. *Journal of the Textile Institute*, 103(3), 269-282.
- [36] Faturi, C. B., Leite, J. R., Alves, P. B., Canton, A. C., & Teixeira-Silva, F. (2010). Anxiolytic-like effect of sweet orange aroma in Wistar rats. *Progress in Neuro-Psychopharmacology and Biological Psychiatry*, 34(4), 605-609.
- [37] Hur, M. H., Song, J. A., Lee, J., & Lee, M. S. (2014). Aromatherapy for stress reduction in healthy adults: a systematic review and meta-analysis of randomized clinical trials. *Maturitas*, 79(4), 362-369.
- [38] Igarashi, M., Ikei, H., Song, C., & Miyazaki, Y. (2014). Effects of olfactory stimulation with rose and orange oil on prefrontal cortex activity. *Complementary therapies in medicine*, 22(6), 1027-1031.
- [39] Stevensen, C. J. (1998). Aromatherapy in dermatology. *Clinics in dermatology*, 16(6), 689-694.

- [40] Boyce, V. J., & Natschke, M. (2016). A Non-pharmacologic Approach to Pain Management Using Aromatherapy: A Train-the-Trainer Approach. *Pain Management Nursing*, 17(2), 98-99.
- [41] Kutlu, A. K., Yılmaz, E., & Çeçen, D. (2008). Effects of aroma inhalation on examination anxiety. *Teaching and Learning in Nursing*, 3(4), 125-130.
- [42] Damasio, A. R. (2004). *Em busca de Espinosa: prazer e dor na ciência dos sentimentos*. Editora Companhia das Letras.
- [43] Lehrner, J., Marwinski, G., Lehr, S., Johren, P., & Deecke, L. (2005). Ambient odors of orange and lavender reduce anxiety and improve mood in a dental office. *Physiology & Behavior*, 86(1), 92-95.
- [44] Fitzgerald, M., Culbert, T., Finkelstein, M., Green, M., Johnson, A., & Chen, S. (2007). The effect of gender and ethnicity on children's attitudes and preferences for essential oils: a pilot study. *Explore: The Journal of Science and Healing*, 3(4), 378-385.
- [45] Ueki, S., Niinomi, K., Takashima, Y., Kimura, R., Komai, K., Murakami, K., & Fujiwara, C. (2014). Effectiveness of aromatherapy in decreasing maternal anxiety for a sick child undergoing infusion in a paediatric clinic. *Complementary therapies in medicine*, 22(6), 1019-1026.
- [46] Lima, N. G., De Sousa, D. P., Pimenta, F. C. F., Alves, M. F., De Souza, F. S., Macedo, R. O., & de Almeida, R. N. (2013). Anxiolytic-like activity and GC-MS analysis of (R)-(+)-limonene fragrance, a natural compound found in foods and plants. *Pharmacology Biochemistry and Behavior*, 103(3), 450-454.
- [47] Lindstrom, M. (2012). *Brand Sense: segredos sensoriais por trás das coisas que compramos*. Porto Alegre: Bookman.
- [48] Sites, D. S., Johnson, N. T., Miller, J. A., Torbush, P. H., Hardin, J. S., Knowles, S. S., ... & Tart, R. C. (2014). Controlled breathing with or without peppermint aromatherapy for postoperative nausea and/or vomiting symptom relief: a randomized controlled trial. *Journal of PeriAnesthesia Nursing*, 29(1), 12-19.
- [49] Dyer, J., Cleary, L., Ragsdale-Lowe, M., McNeill, S., & Osland, C. (2014). The use of aromasticks at a cancer centre: A retrospective audit. *Complementary therapies in clinical practice*, 20(4), 203-206.
- [50] Wu, J. J., Cui, Y., Yang, Y. S., Kang, M. S., Jung, S. C., Park, H. K., ... & Eun, S. Y. (2014). Modulatory effects of aromatherapy massage intervention on electroencephalogram, psychological assessments, salivary cortisol and plasma brain-derived neurotrophic factor. *Complementary therapies in medicine*, 22(3), 456-462.
- [51] Saeki, Y., & Tanaka, Y. L. (2005). Effect of inhaling fragrances on relieving pricking pain. *International Journal of Aromatherapy*, 15(2), 74-80.
- [52] Bikmoradi, A., Seifi, Z., Poorolajal, J., Araghchian, M., Safiaryan, R., & Oshvandi, K. (2015). Effect of inhalation aromatherapy with lavender essential oil on stress and

vital signs in patients undergoing coronary artery bypass surgery: A single-blinded randomized clinical trial. *Complementary therapies in medicine*, 23(3), 331-338.

[53] Aloui, H., Khwaldia, K., Licciardello, F., Mazzaglia, A., Muratore, G., Hamdi, M., & Restuccia, C. (2014). Efficacy of the combined application of chitosan and Locust Bean Gum with different citrus essential oils to control postharvest spoilage caused by *Aspergillus flavus* in dates. *International journal of food microbiology*, 170, 21-28.

[54] Ruiz, B., & Flotats, X. (2014). Citrus essential oils and their influence on the anaerobic digestion process: an overview. *Waste management*, 34(11), 2063-2079.

[55] Hasheminia, D., Motamedi, M. R. K., Ahmadabadi, F. K., Hashemzahi, H., & Haghghat, A. (2014). Can ambient orange fragrance reduce patient anxiety during surgical removal of impacted mandibular third molars?. *Journal of Oral and Maxillofacial Surgery*, 72(9), 1671-1676.

[56] Lehrner, J., Eckersberger, C., Walla, P., Pötsch, G., & Deecke, L. (2000). Ambient odor of orange in a dental office reduces anxiety and improves mood in female patients. *Physiology & behavior*, 71(1), 83-86.

[57] Bastard, J., & Tiran, D. (2009). Reprint of: Aromatherapy and massage for antenatal anxiety: Its effect on the fetus. *Complementary therapies in clinical practice*, 15(4), 230-233.

[58] Dedavid, B. A.; Gomes, C. I; Machado, G. (2007). *Microscopia eletrônica de varredura: aplicações e preparação de amostras: materiais poliméricos, metálicos e semicondutores*. Porto Alegre: EDIPUCRS.

[59] Kestenbach, H. J., Nocite, N. C., Gregório F, R., Loos, J., & Petermann, J. (1997). Lamellar resolution in a new scanning electron microscope. *Polímeros*, 7(1), 58-66.

[60] Lang, S., & Zhou, Q. (2017). Synthesis and characterization of poly (urea-formaldehyde) microcapsules containing linseed oil for self-healing coating development. *Progress in Organic Coatings*, 105, 99-110.

[61] Dang, X., Yang, M., Shan, Z., Mansouri, S., May, B. K., Chen, X., ... & Woo, M. W. (2017). On spray drying of oxidized corn starch cross-linked gelatin microcapsules for drug release. *Materials Science and Engineering: C*, 74, 493-500.

[62] Freire, E. (1995). Differential scanning calorimetry. *Protein Stability and Folding: Theory and Practice*, 191-218.

[63] Makhatadze, G. I. (1998). Measuring protein thermostability by differential scanning calorimetry. *Current protocols in protein science*, 7-9.

[64] Danley, R. L., Reader Jr, J. R., & Schaefer, J. W. (1998). *U.S. Patent No. 5,842,788*. Washington, DC: U.S. Patent and Trademark Office.

[65] Bernal, C., Couto, A. B., Breviglieri, S. T., & Cavalheiro, É. T. G. (2002). Influence of some experimental parameters on the results of differential scanning calorimetry-DSC. *Química Nova*, 25(5), 849-855.

- [66] Williams, D. B., & Carter, C. B. (2009). The transmission electron microscope. *Transmission electron microscopy*, 3-22.
- [67] Padilha, A. F. (2013). Microscopia eletrônica de transmissão. *Departamento de engenharia metalúrgica e de materiais da EPUSP*.
- [68] Bikmoadi, A., Khaleghverdi, M., Seddighi, I., Moradkhani, S., Soltanian, A., & Cheraghi, F. (2017). Effect of inhalation aromatherapy with lavender essence on pain associated with intravenous catheter insertion in preschool children: A quasi-experimental study. *Complementary Therapies in Clinical Practice*.
- [69] Lemon, K. (2004). An assessment of treating depression and anxiety with aromatherapy. *International journal of aromatherapy*, 14(2), 63-69.
- [70] Kumar, P., Mishra, S., Malik, A., & Satya, S. (2011). Insecticidal properties of Mentha species: a review. *Industrial Crops and Products*, 34(1), 802-817.
- [71] Gilligan, N. P. (2005). The palliation of nausea in hospice and palliative care patients with essential oils of Pimpinella anisum (aniseed), Foeniculum vulgare var. dulce (sweet fennel), Anthemis nobilis (Roman chamomile) and Mentha x piperita (peppermint). *International Journal of Aromatherapy*, 15(4), 163-167.
- [72] de Sousa, A. A. S., Soares, P. M. G., de Almeida, A. N. S., Maia, A. R., de Souza, E. P., & Assreuy, A. M. S. (2010). Antispasmodic effect of Mentha piperita essential oil on tracheal smooth muscle of rats. *Journal of ethnopharmacology*, 130(2), 433-436.
- [73] Svoboda, K. P., & Greenaway, R. I. (2003). Lemon scented plants. *International Journal of Aromatherapy*, 13(1), 23-32.
- [74] Subbiah, D. K., Nesakumar, N., Kulandaisamy, A. J., & Rayappan, J. B. B. (2017). Ferricyanide/reduced graphene oxide as electron mediator for the electrochemical detection of methanol in canned citrus sinensis and citrus limetta. *Sensors and Actuators B: Chemical*, 248, 708-717.
- [75] Moral, A., Aguado, R., Mutjé, P., & Tijero, A. (2016). Papermaking potential of Citrus sinensis trimmings using organosolv pulping, chlorine-free bleaching and refining. *Journal of Cleaner Production*, 112, 980-986.

9 ANEXOS

9.1 Publicaciones

Una parte de este trabajo ha sido expuesta en la conferencia “17th World Textile Conference AUTEX 2017” celebrada en Mayo de 2017 en Piraeus University of Applied Sciences, bajo el título “Characterization of orange oil microcapsules for application in textiles” y estará publicado en “The proceedings of the conference AUTEX 2017”.

Y otra parte del trabajo ha sido expuesta en el congreso internacional “Innovative Solutions for Sustainable Development of Textiles and Leather Industry” celebrado en Mayo de 2017 en la Universidad de Oradea, bajo el título “Production of Essential Orange Oil Microcapsules: Comparison of The Use of Surfactants Cetiltrimetilamonous Bromide And Polysorbate 20 By Electronic Scan Microscopy” y está publicado en “Annals of the University of Oradea. Fascicle of textiles, Leatherwork”.

Characterization of orange oil microcapsules for application in textiles

W. Rossi¹, M. Bonet-Aracil², E. Bou-Belda², J. Gisbert-Payá², K. Wilson¹ and L. Roldo¹

¹ Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Escola de Engenharia, Departamento de Materiais (DEMAT), Av. Ovalado Aranha, 99 - sala 604, Porto Alegre, RS. CEP 90035-190, Brasil

² Universitat Politècnica de València, Departamento de Ingeniería Textil y Papelera, Pl. Ferrnández y Carbonell s/n, 03801, Alcoy, Spain

Introduction

There are significant scientific advances in the field of microencapsulation has been used to the development of innovative textile products, as in the case of the use of fabrics containing long lasting fragrances [1-7], biocide agents [8-11] and insecticide [12-13]. Thus, to better exploit the properties of the orange essential oil applied to textile products this study presents a characterization of microcapsules of MF obtained by the interfacial polymerization method with variations of proportions of orange oil volatile fixed with non-volatile oil medium-chain triglycerides (MCT) to assist in the stability of the orange essential oil. Scanning electron microscope (SEM) was used as visualizing tool to characterize microcapsules and surface morphology. Thermal characteristics of microcapsules were premeditated by mean Differential scanning [1-7]calorimetry (DSC).

Materials and methods

Materials: Essential orange oil and surfactant polyoxyethylene 20 (Tween 20) both were purchased from Sigma-Aldrich®. MF, fixed oil medium-chain triglycerides (MCT) was purchased from DilaWare®. Preparation of microcapsules: Microcapsules containing essential orange oil combined in different proportions with a fixed oil medium-chain triglycerides (MCT) (1:1, 1:2, 2:1) and surfactant Tween 20 with melamine-formaldehyde (MF) resin as shell material were synthesized by interfacial polymerization technology. To characterization of microcapsules: SEM model TM 3000, brand Hitachi®. The DSC test was performed on a Mettler Toledo DSC 1 Stare System with Stare software

Results and discussion

The variations in the proportions of orange oil and MCT (1: 1, 1: 2 and 2: 1) were made to improve the stabilization of volatility, finding better efficiency in microencapsulation. In all formulations, after SEM analysis, the morphology of the microcapsules can be observed. In DSC the thermal characteristics of microcapsules.

Scanning electron microscope

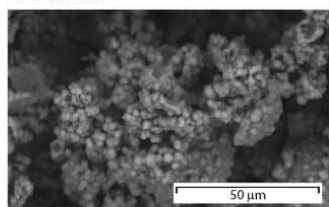


Figure 1. Image obtained by Scanning electron microscope (SEM) of the microcapsules of orange essential oil and MCT in a ratio of 1:1.

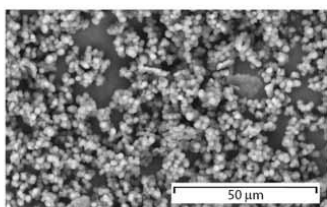


Figure 2. Image obtained by Scanning electron microscope (SEM) of the microcapsules of orange essential oil and MCT in a ratio of 1:2.

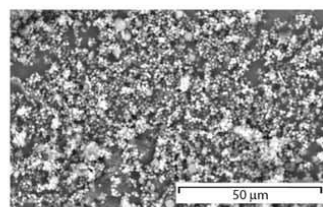


Figure 3. Image obtained by Scanning electron microscope (SEM) of the microcapsules of orange essential oil and MCT in a ratio of 2:1.

Differential scanning calorimetry

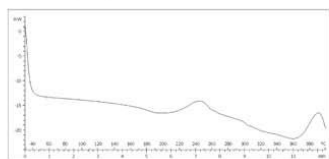


Figure 4. Differential scanning calorimetry of the MCT.

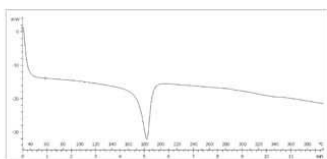


Figure 5. Differential scanning calorimetry of the orange oil.

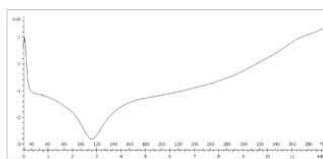


Figure 6. Differential scanning calorimetry of the shell MF.

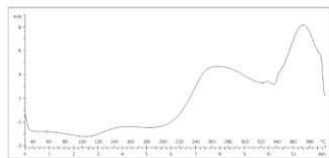


Figure 7. Differential scanning calorimetry of the microcapsules of orange essential oil and MCT in a ratio of 1:1.

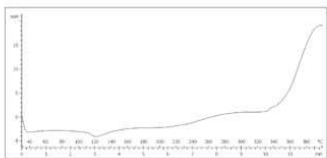


Figure 8. Differential scanning calorimetry of the microcapsules of orange essential oil and MCT in a ratio of 1:2.

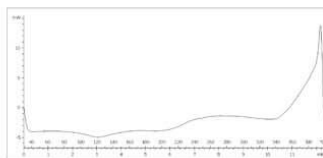


Figure 9. Differential scanning calorimetry of the microcapsules of orange essential oil and MCT in a ratio of 2:1.

Conclusion

In all experiments the addition of MCT in the microcapsule formulation ensure microcapsules as well as improved the capsules stability.

In the ratio 1: 1 the formation of microcapsules occurred, although they formed agglomerates, as observed by the SEM images. In the ratio 1: 2 the formation of microcapsules occurred, although they still present agglomerates, as observed by the SEM images. When 2: 1 ratio is used, the formation of microcapsules with little formation of agglomerates occurred, as observed by the SEM images.

About, the DSC, regardless the ratio of MCT employed all the curves showed the MCT degradation, however, due to the overlaying of the curves from the different components which comprise the microcapsules. It is not possible to observe the orange oil degradation. Consequently, the DSC technique allow to evidence the presence of MCT but not the orange oil although we can confirm its presence due to the fragrance which is smelled when rubbing the microcapsules. Thus, further testing is required to objectively confirm the effectiveness in the encapsulation of the oil.

References

- [1] Fei X et al. 2015 Microencapsulation mechanism and size control of fragrance microcapsules with melamine resin shell. *Colloids And Surfaces A* vol. 469 pp 300-306.
- [2] Hwang X et al. 2016 Preparation and characterization of MF resin microcapsules containing fragrant oil. *Biotechnology And Bioprocess Engineering* vol. 11 pp 332-336.
- [3] Montier P Bonet M A and Cases F 2007 Characterization of the behaviour of flavour microcapsules in cotton fabrics *European Polymer Journal* vol. 43 pp 2481-2490.
- [4] Peña B et al 2012 Preparation and characterization of polyurethane microcapsules for perfume release *Chemical Engineering Journal* 179 pp 394-403.
- [5] Rodrigues S N et al 2009 Scentfashion®: Microencapsulated perfumes for textile application *Chemical Engineering Journal* 149 pp 463-472.
- [6] Rossi W S Roldo L 2014 Microcapsulas: Aplicações e testes de durabilidade em tecidos. (Saarbrücken - Alemanha: Novas Edições Acadêmicas).
- [7] Sanukichareempon A et al 2010 High loading fragrance encapsulation based on a polymer-blend: preparation and release behavior *Int J Pharm* vol. 391 pp 267-273.
- [8] Prata A S Grasso C F 2015 Production of microparticles with gelatin and chitosan. *Carbohydrate Polymers* vol. 116 pp 292-299.
- [9] Saraswathi R Krishnan P N Dilip C 2010 Antimicrobial activity of cotton and silk fabric with herbal extract by micro encapsulation *Asian Pacific Journal of Tropical Medicine* vol. 3 n. 2 pp 128-132.
- [10] Teixeira C S N R et al. 2012 Characterization and evaluation of commercial fragrance microcapsules for textile application *Journal of the Textile Institute* vol. 103 n. 3 pp 269-282.
- [11] Wlaltenowska J Foksowicz-Flaczyk J 2013 Thyme essential oil for antimicrobial protection of natural textiles. *International Biodeterioration & Biodegradation* vol 84 pp 407-411.
- [12] Van Langenstove L Paal R 2014 Insect repellent finishes for textiles. In: PAUL, R. (Ed) *Functional Finishes for Textiles: Improving Comfort, Performance and Protection*. UK: Elsevier (Woodhead Publishing) pp 333-360.
- [13] Kim S Lee D 2014 Toxicity of basil and orange essential oils and their components against two coleopteran stored products insect pests *Journal of Asia-Pacific Entomology* vol. 17 p. 13-17.



Production of Essential Orange Oil Microcapsules comparison of the use of surfactants Cetiltrimetilamonous Bromide and Polysorbate 20 by Electronic Scan Microscopy

ROSSI SOARES Wagner¹, BONET-ARACIL Maria Angeles², BOU-BELDA Eva², KINDLEIN JÚNIOR Wilson¹, ROLDO Liane¹

¹ Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Escola de Engenharia, Departamento de Materiais (DEMAT), Av. Itália km 8, 91201-900 - sala 504, Porto Alegre, RS, CEP 91201-900, Brazil,
² Universitat Politècnica de València, Departamento de Ingeniería Textil y Papelera, P. Ferrándiz y Carbonell s/n, 46100, Alcoy, Spain.

Introduction

In the textile industry, commercial applications of microcapsules began to appear in the 1990s, more specifically in 1999, with the launch of the first fabric with microcapsules applied onto textile fibers [1]. This has contributed to a significant increase in investment in research to develop functional fabrics, developing textile materials with specific properties, adding value to the products by coating them with active substances, resulting in innovative and fashionable products [1] [2] [3] [4]. Also worth mentioning are studies on the controlled release of fragrances for the development of textile products with long lasting fragrances, which is seen as a challenge for industries that use perfumes in their products, due to the great attraction of consumers [4] [5] [6] [7] [8]. Through microencapsulation it is possible to encapsulate a wide range of substances that impart different properties related to the nature of the product [4] [7], thus being able to combine core and shell materials, also giving visual, tactile and olfactory characteristics, but specifically in the sector of textile finishes with fragrances has been an important commercial target and a challenge [3]. Therefore, the use of microcapsules has been presented as an alternative to achieve satisfactory results with regard to encapsulation of fragrances and active substances such as bioactive agents [2] [3] [9] [10] [11] [12].

Thus, for the microcapsules to be effectively used for the development of innovative, functional and sensory products in the textile industry, studies in its formulation and characterization are necessary, so this article proposes to compare the use of cetyltrimethylammonium bromide surfactants (CTAB) and polysorbate 20 (Tween 20) by means of its morphology, performed by scanning electron microscopy (SEM) analysis in the formulation of melamine formaldehyde (MF) shell microcapsules with orange essential oil nucleus (*Citrus sinensis*) combined with a fixed oil medium-chain triglycerides (MCT) produced by interfacial polymerization method.

Materials and Methods

Materials: Essential orange oil (*Citrus sinensis*), surfactants CTAB and Tween 20, all was purchased from Sigma-Aldrich®. MCT was purchased from Delaware®. Preparation of microcapsules: Microcapsules containing essential orange oil combined with a MCT (1:1) and surfactants Tween 20 and CTAB with MF resin as shell material were synthesized by interfacial polymerization technology. To characterization of microcapsules: SEM FEI model Phenom (Fai, Oregon, USA). The obtained method was tested with different surfactants, CTAB and Tween 20 in proportion (1:1) with essential oil. At the end of the production, the microcapsules were analyzed by microscopies and the differences in microcapsule morphologies were observed according to the kind of surfactant used.

Results and Discussion

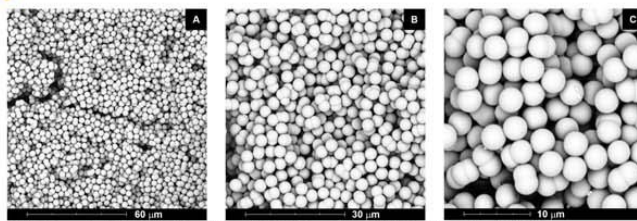


Fig. 1: SEM of microcapsules with surfactant CTAB, (A) images with magnification 2000x, (B) images with magnification 4000x and (C) images with magnification 8000x.

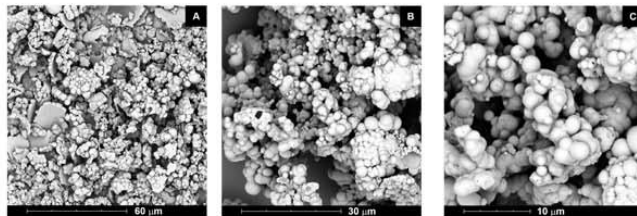


Fig. 2: SEM of microcapsules with surfactant Tween 20, (A) images with magnification 2000x, (B) images with magnification 4000x and (C) images with magnification 8000x.

Conclusion

At the end of the work by comparing the images obtained by SEM with different magnifications, it was possible to observe the differences in the morphologies of the microcapsules according to the type of surfactant used.

The use of SEM allowed us to understand the influence that the use of different surfactants produced on the morphological characteristics of the analyzed microcapsules, emphasizing the importance of the analysis of microcapsule morphologies.

By means of SEM, it is possible to obtain magnifications of 2000 times, 4000 times and 8000 times, conserving the depth of field of the samples and providing information on their morphology in different regions of interest, both in larger planes (2000 times) and in more detail (8000 times), with three-dimensional appearance and great depth of focus, which facilitated the morphological analysis of the microcapsules.

Through the analyzes the morphological differences of the microcapsules related to the surfactant were realized. The CTAB, according to the images obtained by the SEM, interacted well with the core material (orange essential oil), forming microcapsules of regular morphology and evenly distributed in the sample, indicating a satisfactory formation. After modification of the surfactant type for Tween 20, it was observed that the surfactant Tween 20, unlike CTAB, did not interact well with the orange essential oil, irregularly forming microcapsules, in addition to the formation of pores, were not uniformly distributed in the sample, forming agglomerates of microcapsules, indicating an unsatisfactory formation.

References

- [1] S. Bine et al., "Microencapsulated Fragrances in Melamine Formaldehyde Resins" in *Chimia International Journal for Chemistry*, v. 65, n. 3, 30 mar. 2011, pp. 177-181. [Online]. Available: (<http://go.gli.beuca/>).
- [2] A. S. Prata and C. R. F. Grossi, "Production of microcapsules with gelatin and chitosan", in *Carbohydrate Polymers*, v. 116, feb. 2015, pp. 292-299.
- [3] C. S. N. R. Teixeira et al., "Characterization and evolution of commercial fragrance microcapsules for textile application", in *Journal of the Textile Institute*, v. 103, n. 3, 2012, pp. 269-282.
- [4] M. Merlot, M. A. Bonet and F. Cases, "Characterization of the behaviour of flower microcapsules in cotton fabric", in *European Polymer Journal*, v. 43, 2007, pp. 2481-2490.
- [5] B. Peña, C. Panisello, G. Aréstiz, R. García-Valls and T. Gumí, "Preparation and characterization of polysulfone microcapsules for perfume release", in *Chemical Engineering Journal*, n. 179, 2012, pp. 394-403. [Online]. Available: (www.elsevier.com/locate/ceje).
- [6] K. Fai et al., "Microencapsulation mechanism and size control of fragrance microcapsules with melamine resin shell", in *Colloids And Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, v. 449, mar. 2015, pp.300-306.
- [7] J. N. Rodrigues, I. M. Martins, I. P. Fernandes, F. B. Gomes, C. V. G. Mata, M. F. Barreiros and A. E. Rodrigues, "Scentfashion®: Microencapsulated perfumes for textile application", in *Chemical Engineering Journal*, n. 149, 2009, pp.463-472.
- [8] J. Hwang, et al., "Factors affecting the characteristics of melamine resin microcapsules containing fragrant oils", in *Biotechnology And Bioprocess Engineering*, v. 11, n. 3, out. 2008, pp.391-395.
- [9] J. Liu et al., "Study on the grafting of chitosan-gelatin microcapsules onto cotton fabrics and its antibacterial effect", in *Colloids and Surfaces B: Biointerfaces*, v. 109, sep. 2013, p. 103-108.
- [10] J. Walentowicz and J. Fokowicz-Flaczyk, "Thyme essential oil for antimicrobial protection of natural textiles", in *International Biodeterioration & Biodegradation*, v. 84, oct. 2013, p. 407-411.
- [11] M. M. Sánchez-Navarro et al., "Microencapsulation of Melaleuca alternifolia (The Tree) Oil as Biocide for Footwear Applications", in *Journal of Dispersion Science and Technology*, v. 32, 2011.
- [12] R. Saraswathi, R. N. Krishnan and C. Dilip, "Antimicrobial activity of cotton and silk fabric with herbal extract by micro encapsulation", in *Asian Pacific Journal of Tropical Medicine*, v. 3, n. 2, 2010, pp. 128-132.



**ANNALS
OF THE
UNIVERSITY OF ORADEA**

FASCICLE OF TEXTILES, LEATHERWORK

VOLUME XVIII, 2017



No. 1

ISSN 1843 – 813X



ANNALS OF THE UNIVERSITY OF ORADEA

FASCICLE OF TEXTILES, LEATHERWORK

VOLUME XVIII, 2017



No. 1

**This volume includes papers presented at International Scientific Conference
"Innovative solutions for sustainable development of textiles and leather industry",
26th-27th of May 2017, Oradea, Romania**

EDITOR IN CHIEF
Indrie Liliana, University of Oradea, Romania

BOARD OF EDITORS
Sabina GHERGHEL- University of Oradea, Romania
Simona TRIPA- University of Oradea, Romania

SCIENTIFIC REFEREES

Feliu Marsal AMENOS - SPAIN	Zlatina KAZLACHEVA- BULGARY
Ionel BARBU - ROMANIA	Reyhan KESKİN - TURKEY
Nuno BELINO - PORTUGAL	Vladimir MĂRĂSCU KLEIN - ROMANIA
Maria Angeles BONET - SPAIN	Mehmet Mete MUTLU - TURKEY
Lăcrămioara Demetra BORDEIANU - ROMANIA	Ioan NEAGU - ROMANIA
Raluca BRAD - ROMANIA	Roberto PAIANO - ITALY
Serge CARRIER - CANADA	Daniel PALET - SPAIN
Paolo CHIABERT - ITALY	Anca PURCĂREA - ROMANIA
Viorica DESELCU - ROMANIA	Jaume ROSELL PEREA - SPAIN
Oscar FIGUEROLA - SPAIN	Daniel ROIG BARDINA - SPAIN
Pablo DIAZ GARCIA - SPAIN	Rita SALVADO - PORTUGAL
Carmen GHIȚULEASA - ROMANIA	Emilia VISILEANU - ROMANIA
Cornelia IONESCU- LUCA - ROMANIA	Sayeed SADULLA - INDIA
Alina IOVAN-DRAGOMIR- ROMANIA	Miguel SOLER - SPAIN
Süleyman YALDIZ- TURKEY	Snežana UROŠEVIĆ - SERBIA
Muge YUKSELOGLU - TURKEY	Gökhan ZENGİN - TURKEY

Contact and Editors' Address:
Liliana INDRIE,
UNIVERSITATEA DIN ORADEA,
FACULTATEA DE INGINERIE ENERGETICĂ ȘI MANAGEMENT INDUSTRIAL
DEPARTAMENTUL: TEXTILE- PIELĂRIE ȘI MANAGEMENT INDUSTRIAL
Str. B.St.Delavrancea nr. 4,
Oradea, 410058, Romania,
Tel.: 00-40-259-408448
E-mail : lindrie@uoradea.ro

Published by
Editura Universității din Oradea
Universitatea din Oradea, Str. Universității Nr. 1, 410087, Oradea, Bihor, Romania
P- ISSN 1843 – 813X
E - ISSN 2457-4880
CD- ISSN 2068 – 1070

Indexed in:
Index Copernicus
EBSCO-Textile Technology Complete
Ulrich's Update - Periodicals Directory
Directory of Open Access Journals (DOAJ)
Directory of Research Journals Indexing (DRJI)
InnoSpace - SJIF Scientific Journal Impact Factor
International Impact Factor Services
SCIPIO

CNCSIS ACCREDITATION since 2007 "Clasa B"



CONTENTS

No	Paper title	Authors	Institution	Page
1	SYSTEMIC ANALYZE BY LIFE CYCLE INVENTORY OF THE HYDROPHOBIZATION UNIT PROCESSES FOR TEXTILES	AILENI Raluca Maria¹, RADULESCU Razvan², CHIRIAC Laura³, SUBTIRICA Adriana⁴, SURDU Lilioara⁵	^{1, 2, 3, 4, 5} National Research & Development Institute for Textiles and Leather, Department of Advanced Material Investigation, 030508, Bucharest, Romania	11
2	STIFFNESS MODIFICATION OF COTTON IN CHITOSAN TREATMENT	CAMPOS Juan, DÍAZ-GARCÍA Pablo, MONTAVA Ignacio, BONET-ARACIL Marilés, BOU-BELDA Eva	Universitat Politècnica de València, Departamento de Ingeniería Textil y Papelera, Pl. Ferrándiz y Carbonell s/n, 03801, Alcoy, Spain	17
3	STUDY OF CHITOSAN MICROCAPSULES DEGRADATION WITH APPLICATION IN THE DEVELOPMENT OF NEW MEDICAL TEXTILES	CAPABLANCA Lucia¹, FERRÁNDIZ Marcela¹	¹ Biotechnology Research Group, Textile Research Institute (AITE), 03801 Alcoy, Spain	21
4	STUDY ON THE INFLUENCE OF ULTRASOUND IN BIOSCOURING TREATMENT OF 50 % OF FLAX + 50 % OF COTTON FABRICS	DOCHIA Mihaela¹, PUSTIANU Monica^{1, 2}, GAVRILAŞ Simona^{1, 3}, TOMESCU Daniel¹, COPOLOVICI Dana Maria³	¹ "Aurel Vlaicu" University of Arad, Research Development Innovation in Technical and Natural Science Institute, Postal address, 310330, 2-4 Elena Dragoi Street, Arad, Romania, ² "Aurel Vlaicu" University of Arad, Faculty of Engineering, Department of Automation, Industrial, Textile and Transportation Engineering, Postal address, 310330, 2-4 Elena Dragoi Street, Arad, Romania ³ "Aurel Vlaicu" University of Arad, Faculty of Food Engineering, Department of Technical and Natural Sciences, Postal address, 310330, 2-4 Elena Dragoi Street, Arad, Romania,	27
5	THE APPLICATION AND CHARACTERIZATION OF	DUMITRESCU Iuliana¹, MITRAN Elena-	¹ The National R&D Institute for Textiles and Leather	33



**ANNALS OF THE UNIVERSITY OF ORADEA
FASCICLE OF TEXTILES, LEATHERWORK**

	GRAPHENE DECORATED WITH TiO₂ -Fe (1%)-N ON COTTON FABRICS	Cornelia¹, DINCA Laurentiu Christian¹, IORDACHE George- Ovidiu¹, VARZARU Elena¹	Bucharest (INCDTP), Materials and Research Investigation, 16 Lucretiu Patrascanu, 030508, Bucharest, Romania,	
6	REORGANIZATION OF THE TECHNOLOGICAL FLOW AT CLOTHING COMPANY THROUGH THE PRODUCTION SCHEDULE	GHELBET Angela¹, NICOLAESCU Constantin², BERNAZ Luminița³, MALCOCI Marina⁴	^{1, 2, 3, 4} University Technical of Moldova, Faculty of Textile and Printing, Postal address MD 2045, S. Rădăușan str., 4, degree block number 11, Chisinau, Republic of Moldova	39
7	ASSEMBLY LINE BALANCING IN A CLOTHING COMPANY	HASNALCACI Kubra¹, TURKSOY Huseyin Gazi¹, KARABAY Gulseren²	¹ Erciyes University, Engineering Faculty, Textile Engineering Department, Kayseri, Turkey ² Dokuz Eylul University, Engineering Faculty, Textile Engineering Department, Izmir, Turkey	43
8	THE STUDY OF THE CHARACTERIZATION INDICES OF FABRICS BY PRINCIPAL COMPONENT ANALYSIS METHOD	HRISTIAN Liliana¹, OSTAFE Maria Magdalena¹, BORDEIANU Demetra Lacramioara¹ APOSTOL Laura Liliana¹	¹ "Gheorghe Asachi" Technical University of Iasi, Faculty of Textile, Leather & Industrial Management, Department of Engineering and Design of Textile Products, Blvd. Mangeron, No.28, Iasi, Romania	49
9	BENDING BEHAVIOUR OF MAGNETIC COTTON YARNS	LUPU Iuliana G.¹, GROSU Marian C.^{2,3}, CRAMARIUC Bogdan² CRAMARIUC Oana^{2,4}	¹ "Gheorghe Asachi" Technical University from Iasi, Faculty of Textile- Leather Engineering and Industrial Management, Dimitrie Mangeron no.27, 700050, Iasi, Romania, ² IT Center for Science and Technology, Bucharest, Romania ³ The National Research and Development Institute for Textiles-Leather, 16 th Lucrețiu Pătrășcanu ⁴ Department of Physics, Tampere University of Technology, Tampere, Finland	55



**ANNALS OF THE UNIVERSITY OF ORADEA
FASCICLE OF TEXTILES, LEATHERWORK**

10	NATURAL COTTON PRINTING WITH RED MACROALGAE BIOMASS OF <i>GRACILARIA GRACILIS</i> AND <i>GRACILARIA CORNEA</i>	MOLDOVAN Simona¹, FERRANDIZ Marcela¹, BONET M^a Angeles²	¹ Textile Technological Institute (AITECH), Biotechnology Department, Plaza Emilio Sala, 1, 03801, Alcoy, Alicante, Spain, ² Universitat Politècnica de València, Escuela Politécnica Superior de Alcoy, Textile and papermaking department, Plaza de Ferrándiz y Carbonell, 03801, Alcoy, Alicante, Spain,	61
11	DEVELOPING THE ORGANIZATIONAL CONTROL STRUCTURE BY MONITORING THE TECHNOLOGICAL PROCESSES IN THE TEXTILE GARMENT INDUSTRY	OANA Ioan Pavel¹, OANA Dorina¹, SIMON Andreea Anca¹	¹ University of Oradea, Faculty of Energy Engineering and Industrial Management, Department of Textile -Leather and Industrial Management, B. Ștefănescu Delavrancea street, no. 4410058, Oradea, Romania	67
12	ENCAPSULATION OF <i>HYPERICUM PERFORATUM</i> L., JOJOBA OIL AND JASMINE OIL BY SPRAY DRYING AND THEIR APPLICATIONS IN TEXTILES	OGE Arzu¹, ERKAN Gokhan², SARIISIK A. Merih³, ESER Burcin⁴	^{1,2,3} Dokuz Eylul University, Engineering Faculty, Textile Engineering Department, 35397, Izmir, Turkey ⁴ Uniteks Tekstil Gıda Motorlu Araclar San. ve Tic. A.Ş., 35620, Izmir, Turkey,,	73
13	PHOTOCATALYTIC EFFECT OBTAINED ON TEXTILE BY FINISHING TECHNIQUES	POPESCU Alina¹, CHIRILA Laura¹, RASCOV Marian¹	¹ The National Research & Development Institute for Textile and Leather, Textile Chemistry and Environment Protection Research Department, 030508, Bucharest, Romania	79
14	MATHEMATICAL MODELLING OF THE SHIELDING EFFECTIVENESS FOR PES/STAINLESS STEEL FABRICS	RADULESCU Ion Razvan¹, SURDU Lilioara¹, BADIC Mihai², MORARI Cristian²	¹ INCDTP, Str. L. Patrascanu 16, 030508, Bucharest, Romania, ² ICPE-CA, Splaiul Unirii 313, 030138, Bucharest, Romania	85
15	PRODUCTION OF ESSENTIAL ORANGE OIL MICROCAPSULES: COMPARISON OF THE USE OF SURFACTANTS CETILTRIMETILAMONOU	ROSSI SOARES Wagner^{1,2}, BONET-ARACIL Maria Angeles², BOU-BELDA Eva², KINDLEIN JÚNIOR	¹ Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Escola de Engenharia, Departamento de Materiais, Av. Osvaldo Aranha, 99 - 604, Porto Alegre, RS. CEP 90035-190,	91



**ANNALS OF THE UNIVERSITY OF ORADEA
FASCICLE OF TEXTILES, LEATHERWORK**

	S BROMIDE AND POLYSORBATE 20 BY ELECTRONIC SCAN MICROSCOPY	Wilson¹, ROLDÓ Liane¹	Brasil ² Universitat Politècnica de València, Departamento de Ingeniería Textil y Papelera, Pl. Ferrándiz y Carbonell s/n, 03801, Alcoy, Spain	
16	PREDICTING DEMAND FOR COTTON YARNS	SALAS-MOLINA Francisco¹, DÍAZ-GARCÍA Pablo²	¹ Hilaturas Ferre, S.A., Les Molines, 2, 03450 Banyeres de Mariola, Spain ² Universidad Politècnica de Valencia, Ferrándiz y Carbonell, s/n, 03801 Alcoy, Spain	97
17	A REVIEW ON TEXTILES IN SPACE PROTECTION EQUIPMENTS	SUNTER EROGLU Nilsen¹, YUKSELOGLU S.Muge², CANOGLU Suat³	¹ Marmara University, Institute of Pure and Applied Science, Goztepe, Istanbul, Turkey ² Marmara University, Faculty of Technology, Department of Textile Engineering, Goztepe, Istanbul, Turkey ³ Marmara University, Faculty of Technology, Department of Textile Engineering, Goztepe, Istanbul, Turkey	103
18	ROMANIAN TRADITIONAL MOTIF ELEMENT OF MODERNITY IN CLOTHING	ŞUTEU Marius Darius¹, DOBLE Liliana¹, ALBU Adina¹, TOTH (Kiss) Edit²	¹ University of Oradea, Faculty of Energy Engineering and Industrial Management, Department Textiles, Leather and Industrial Management, 410058, Oradea, România ² University of Oradea, Faculty of Managerial and Technological Engineering, Department Industrial Engineering, 410087, Oradea, România	109
19	EFFECTS OF THE FATIGUE PROCESS UPON THE STRUCTURE OF A BICONSTITUENT FIBER	TARABOANTA Irina	Technical University "Gh. Asachi", Faculty of Textile, Leather and Industrial Management, Iași, Department of Chemical	113



**ANNALS OF THE UNIVERSITY OF ORADEA
FASCICLE OF TEXTILES, LEATHERWORK**

			Engineering, D.Mangeron street, no.28, 700050, Iasi, Romania,	
20	THE “TREE OF LIFE” SYMBOL IN JEWELLERY	TEODOR-STANCIU Silviu¹, PRALEA Jeni²	¹ George Enescu” National University of Arts, Iași, Faculty of Visual Arts and Design, Design Department, 189 Sărărie Street, 700451 Iași, Romania, ² George Enescu” National University of Arts, Iași, Faculty of Visual Arts and Design, Design Department, 189 Sărărie Street, 700451 Iași, Romania	119
21	INVESTIGATION OF DIFFERENT REDUCING AGENTS OF AZO DYES FROM TEXTILE MATERIALS	VARZARU Elena¹, DUMITRESCU Iuliana², MITRAN Cornelia- Elena¹, IORDACHE Ovidiu- George¹	¹ National R&D Institute for Textiles and Leather Bucharest (INCDTP) 16 Lucretiu Patrascanu, 030508, Bucharest, Romania	125
22	AN INVESTIGATITON ON PROPERTIESS OF SIRO- SPUN YARNS	YILDIZ Begüm Selen¹, KILIC Musa¹	¹ Dokuz Eylül University, Faculty of Engineering, Department of Textile Engineering, 35397, İzmir, Turkey	131
23	NATURAL FIBRE COMPOSITES: A REVIEW ON FLAX FIBRES	YUKSELOGLU S.Muge¹, CANOGLU Suat²	¹ Marmara University, Faculty of Technology, Department of Textile Engineering, Goztepe, 34722 Istanbul, Turkey ² Marmara University, Faculty of Technology, Department of Textile Engineering, Goztepe, 34722 Istanbul, Turkey	137
24	EFFECT OF REACTION CONDITIONS ON THE HYDROLYSIS OF WOOL KERATINS	BĂLĂU MÎNDRU Tudorel¹, BĂLĂU MÎNDRU Iulia¹	¹ Technical University “Gheorghe Asachi of Iași, România, Department of Chemical Engineering in Textile – Leather, Faculty of Textile Leather and Industrial Management, B-dul Dimitrie Mangeron, no. 53, postal code 700500, Iași, România	143



**ANNALS OF THE UNIVERSITY OF ORADEA
FASCICLE OF TEXTILES, LEATHERWORK**

25	ECOLABELS FOR LEATHER AND LEATHER PRODUCTS	BUCIȘCANU Ingrid – Ioana	“Gheorghe Asachi” Technical University of Iași, Faculty of Textiles, Leather and Industrial Management, Str. Prof. Dr. Doc. Dimitrie Mangeron, No. 29, 700500 Iași, Romania	149
26	DIVERSIFICATION OF A SAFETY FOOTWEAR PRODUCT	HARNAGEA Marta Cătălina¹, SECAN Cristina²	¹ WIZWEDGE, 114 Boulevard Camille Flammarion, 13004, Marseille, France ² University of Oradea, Faculty of Energy Engineering and Industrial Management, Department of Textiles-Leather and Industrial Management, B.St.Delavrancea str., No. 4, 410087, Oradea, Romania	155
27	THE USE OF VEGETABLE FILLERS AS REINFORCEMENT MATERIAL IN SBR BASED BIO-COMPOSITES	KARAVANA Hüseyin Ata¹, ADIGUZEL ZENGİN Arife Candas¹, BAKILER Gökçe², AKPOLAT Fatma¹, ERDOĞAN Fatma¹, YILMAZ Onur¹, SEYDIBEYOĞLU Mehmet Ozgur²	¹ Ege University, Engineering Faculty, Leather Engineering Department, 35100, Bornova, Izmir, TURKEY ² Katip Celebi University, Engineering Faculty, Material Science and Engineering Department, 35620, Cigli, Izmir, TURKEY	161
28	THE INFLUENCE OF FATLIQOURING PROCESS ON PROTECTIVE CHARACTERISTICS OF LEATHER GLOVES	KILIÇ Eylem¹, ADIGUZEL ZENGİN Arife Candas², AYDIN Sinan, ORK Nilay², ZENGİN Gökhan²	¹ Usak University Faculty of Engineering, Material Science and Nanotechnology Engineering Department, 64100 Usak, Turkey ² Ege University, Engineering Faculty, Leather Engineering Department, 35100, Bornova Izmir, Turkey	167
29	SUSTAINABLE ENVIRONMENTAL TECHNOLOGIES INCLUDING WATER RECOVERY FOR REUSE FROM TANNERY AND INDUSTRIAL WASTEWATER – INDIAN AND ASIAN SCENARIO	Dr. S. RAJAMANI	Chairman-Asian International Union of Environment (Ajue) Comission, Old No. 18, New No. 45, First Street, South Beach Avenue, MRC Nagar, Chennai-600028, India	173



**ANNALS OF THE UNIVERSITY OF ORADEA
FASCICLE OF TEXTILES, LEATHERWORK**

30	ON THE THERMAL BEHAVIOR OF DIFFERENT TANNED BOVINE LEATHERS	VARGANICI Cristian- Dragoș¹, ROȘU Liliana¹, CRUDU Andra- Manuela², ROȘU Dan¹	¹ Advanced Research Centre for Bionanoconjugates and Biopolymers “Petru Poni” Institute of Macromolecular Chemistry Gr. Ghica Voda Alley 41A, 700487, Iasi, România, ² National Research & Development Institute for Textiles and Leather Division: Leather and Footwear Research Institute, Bucharest, Romania	179
31	COMMON APPROACH ON WASTE MANAGEMENT	ANDREESCU Nicoleta Alina¹, KISS Edit²	¹ University of Oradea, Romania, , Faculty of Energy Engineering and Industrial Management, Department Textiles- Leatherwork and Industrial Management Str. B. Șt Delavrancea nr.4, 410085, Oradea, Romania ² University of Oradea, Romania, Faculty of Engineering and Technology Management, Doctoral School, Engineering Science, Engineering and Management Str. Universității nr.1, 410333, Oradea, Romania	183
32	CAN 'UPCYCLING' GIVE ROMANIAN'S FASHION INDUSTRY AN IMPULSE?	CUC Sunhilde¹, TRIPA Simona¹	¹ University of Oradea, Faculty of Energy Engineering and Industrial Management, Department of Textile -Leather and Industrial Management, B. Ștefănescu Delavrancea street, no. 4410058, Oradea, Romania	187
33	APPLICATION OF FUZZY LOGIC BASED APPAREL SIZE FINDER IN ONLINE MARKETING	DEMIR Murat¹, OKUR Burak², NASIBOV Efendi²,	¹ Dokuz Eylul University, Faculty of Engineering, Department of Textile Engineering, 35390, Izmir, Turkey ² Dokuz Eylul University, Faculty of Science,	193



**ANNALS OF THE UNIVERSITY OF ORADEA
FASCICLE OF TEXTILES, LEATHERWORK**

			Department of Computer Science, 35390, Izmir, Turkey	
34	THE ANALYSIS OF THE USE OF TIME BY THE STUDENTS OF THE FACULTY OF TEXTILE AND PRINTING	GHELBET Angela¹, CAPROȘ Felicia², MALCOCI Marina³, BERNAZ Luminița⁴	^{1, 2, 3, 4} University Technical of Moldova, Faculty of Textile and Printing, Postal address MD 2045, S. Rădăușan str., 4, degree block number 11, Chisinau, Republic of Moldova	199
35	INCREASING THE COMPETITIVENESS OF COMPANIES IN THE TEXTILE AND CLOTHING DOMAIN AND INTEGRATION IN INNOVATIVE CLUSTERS	OLARU Sabina¹, BUCUR Daniela¹, POPESCU Georgeta¹, RADULESCU Razvan¹	¹ National R&D Institute for Textiles and Leather, Lucretiu Patrascanu Street, no. 16, domain 3, Postal code 030508, Bucharest, ROMANIA	205
36	IMPROVING THE TEXTILE'S ENTERPRISES KNOWLEDGE MATRIX	RADULESCU Ion Razvan¹, GHITULEASA Carmen¹, VISILEANU Emilia¹, SURDU Lilioara¹, DIAS Ana², GHEZZO Paulo³, RUDOLF Andreja⁴, BLAGA Mirela⁵	¹ INCDTP, Str. L. Patrascanu 16, 030508, Bucharest, Romania, c ² TECMINHO, Campus Azurem, 4800-058 Guimaraes, Portugal, ³ CENTROCOT, Pza S. Anna 2, 21052 Busto de Arsizio, Italy, ⁴ University of Maribor, Faculty of Mechanical Engineering, Department of Textile Materials and Design – Smetanova ulica 17,2000 Maribor, Slovenia, ⁵ Technical University “Gh Asachi” – Iasi, Faculty TPMI, Department Knitting and Clothing Engineering, Str. D, Mangeron 28, 70050, Iasi, Romania	211
37	THE CURRENT STATE OF CLOTHING TRADE IN THE BALKAN COUNTRIES	TRIPA Simona¹, CUC Sunhilde², YALDIZ Suleyman³	^{1, 2} University of Oradea, Faculty of Energy Engineering and Industrial Management, Department of Textile -Leather and Industrial Management, B. Ștefănescu Delavrancea street, no. 410058, Oradea,	215



**ANNALS OF THE UNIVERSITY OF ORADEA
FASCICLE OF TEXTILES, LEATHERWORK**

			Romania, ³ Selcuk University, Konya, Turkey, Faculty of Technology, Mechanical Education Department, Konya, Turkey	
38	ABC ANALYSIS IN A CLOTHING COMPANY	TUNCA Burcu, KARABAY Gulseren¹, KURUMER Gulseren¹	¹ Dokuz Eylul University, Engineering Faculty, Textile Engineering Department, Izmir, Turkey	221



PRODUCTION OF ESSENTIAL ORANGE OIL MICROCAPSULES: COMPARISON OF THE USE OF SURFACTANTS CETILTRIMETILAMONOUS BROMIDE AND POLYSORBATE 20 BY ELECTRONIC SCAN MICROSCOPY

ROSSI SOARES Wagner^{1,2}, BONET-ARACIL María Angeles², BOU-BELDA Eva²,
KINDLEIN JÚNIOR Wilson¹, ROLDO Liane¹

¹ Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Escola de Engenharia, Departamento de Materiais (DEMAT), Av. Osvaldo Aranha, 99 - sala 604, Porto Alegre, RS. CEP 90035-190, Brasil, E-Mail: wsrossi@gmail.com

² Universitat Politècnica de València, Departamento de Ingeniería Textil y Papelera, Pl. Ferrándiz y Carbonell s/n, 03801, Alcoy, Spain. , E-mail: maboar@txp.upv.es

Corresponding author: Bonet-Aracil María Angeles, E-mail: maboar@txp.upv.es

Abstract: Commercial applications of microcapsules began to appear in the textile industry in the late 1990s increasing investments in research to develop functional tissues, with a special focus on value aggregation, coating them with various active substances for the development of innovative products and according to fashion. Microcapsules have been presented as an alternative with regard to the encapsulation of essential oils since it is one of the most effective methods to achieve the goal of controlled release. The orange essential oil has biocidal properties and has been used microencapsulated as an ecological botanical insecticide. The characteristics of microcapsules containing aromatic oils, such as morphology and particle size distribution, depend on the preparation conditions such as the type of emulsifier used and the viscosity of the core material. Thus, for the microcapsules to be effectively used for the development of innovative products in the textile industry, studies on their formulation and characterization are necessary. This article proposes to compare the use of cetyltrimethylammonium bromide and polysorbate surfactants by means of their morphology, by scanning electron microscopy analysis on the formulation of microcapsules whit melamine formaldehyde shell with core of orange essential oil (*citrus sinensis*) combined with a non-volatile oil Medium Chain Triglycerides produced by interfacial polymerization method. At the end, the microcapsules were analyzed by microscopies and the differences in microcapsule morphologies were observed according to the kind of surfactant used.

Key words: Microcapsules. Essential Orange Oil. Electronic Scan Microscopy. Textile.

1. INTRODUCTION

In the textile industry, commercial applications of microcapsules began to appear in the 1990s, more specifically in 1999, with the launch of the first fabric with microcapsules applied onto textile fibers [1]. This has contributed to a significant increase in investment in research to develop functional fabrics, developing textile materials with specific properties, adding value to the products by coating them with active substances, resulting in innovative and fashionable products [1] [2] [3] [4]. Also, worth mentioning are studies on the controlled release of fragrances for the development



of textile products with long lasting fragrances, which is seen as a challenge for industries that use perfumes in their products, due to the great attraction of consumers [4] [5] [6] [7] [8]. Through microencapsulation it is possible to encapsulate a wide range of substances that impart different properties related to the nature of the product [4] [7], thus being able to combine core and shell materials, also giving visual, tactile and olfactory characteristics, but specifically in the sector Of textile finishes with fragrances has been an important commercial target and a challenge [3]. Therefore, the use of microcapsules has been presented as an alternative to achieve satisfactory results with regard to encapsulation of fragrances and active substances such as biocidal agents [2] [3] [9] [10] [11] [11] 12].

Orange essential oils have been used for medicinal purposes since the fourth century [13] [14]. The biocidal properties of citrus essential oils are well known and historically [11] [13] [14], as for example, antifungal [15] [16] and insecticides [16]. The orange essential oil (*Citrus sinensis*) is a citric oil, and like all others of this nature, contains an extremely wide variety of compounds, being able to vary between 20 and 60, composed mainly of monoterpenes (limonene: 32-98%), , Sesquiterpene hydrocarbons, oxygen derivatives thereof, as well as aliphatic aldehydes, alcohols and esters [14] [18]. The antifungal capacity has been attributed mainly to the presence of limonene, linalool or citral [18]. As for insecticide properties, studies have shown that orange essential oil has its proven and proven insecticidal activities and is recognized as safe by the United States Food and Drug Administration (FDA) [17]. The orange essential oil also has strong activity against some insects and its components may be potential candidates for new botanic insecticides [17], because the oil, when microencapsulated can aid in the application, being an economically feasible, fast and effective method, besides leaving minimal residues [19]. Another advantage of the use of orange oil is that the crop of the genus *Citrus*, of which orange is a part, is the largest in the world (100 million cubic tons per year), oranges account for 60% of the total product volume [15]. After processing the oranges, approximately 45% are available as a sub-product and can create environmental problems, especially water pollution due to the presence of biomaterials such as essential oil, pectin and sugars [15]. In this case the use of the essential oil represents a decrease in the disposal of this material.

The use of microcapsules has been presented as an alternative with respect to the encapsulation of essential oils and other active substances. Using this microencapsulation technology, it is one of the most effective methods to achieve the goal of controlled release [5] [20]. To solve restrictions on the material to be encapsulated, the microencapsulation of aromatic oils plays important roles, for example: it captures the fragrance in its original form with minimal alteration and maximum retention; protects the fragrance from interaction with an uncontrolled environment and from premature release during storage; and completely releases the fragrance, when desired [1].

Therefore, special attention should be paid to the shell that involve the core material, as this is the material that is susceptible to the outside and may increase the stability of the microcapsule. Preparing microcapsules of melamine formaldehyde (MF) resin for the aromatic oil shell material increases the durability of the perfume [8], in addition, the cured MF resin is non-toxic and can be used in both wet and dry environments [6]. Thus, MF resin has been extensively studied and applied in the elaboration of functional products, such as microcapsules containing essential oils, and due to its excellent performance, its fields of application are being expanded [6].

For the microemcapsulation of aromatic oils are used the chemical methods, among them, the interfacial polymerization [1] [6] [8] [21]. In interfacial polymerization many types of polymerization reactions can be induced to occur in interfaces resulting in microcapsules [8]. It is a widely used method that allows the manufacture of microcapsules from two immiscible liquids (oil / water emulsion) by forming thick polymer walls around liquid droplets [21].



The preparation conditions such as the type of emulsifier used and the viscosity of the core material directly influence the characteristics of the microcapsules containing aromatic oils such as morphology and particle size distribution [22], therefore, it is important to analyze the morphologies of the microcapsules. In this case, we can use the Scanning Electron Microscope (SEM), one of the most versatile instruments available for the observation and analysis of the microstructural characteristics of solid materials [23]. Among the main advantages of the SEM are to allow increases of 300.000 times or more, keeping the depth of field compatible with the observation of rough surface and provide information quickly on morphology [23]. Another advantage is the ease with which a particular region of interest in the sample can be chosen and located at low magnification [24]. Therefore, SEM is one of the most versatile instruments available for the observation and analysis of micro-structural characteristics of solid objects, this is mainly due to the high resolution that can be obtained when the samples are observed [23]. One of the most important characteristics of the SEM is the three-dimensional appearance given to the images of the samples, only possible because of their large depth of field, and the possibility of doing the small exam with a great depth of focus [23]. This ability to confer a three-dimensional appearance and the possibility of obtaining small increases with great depth of focus, which facilitates the morphological analysis of the microcapsules.

Thus, for the microcapsules to be effectively used for the development of innovative, functional and sensorial products in the textile industry, studies on its formulation and characterization are necessary, so this article proposes to compare the use of cetyltrimethylammonium bromide surfactants (CTAB) and polysorbate 20 (Tween 20) by means of its morphology, performed by scanning electron microscopy (SEM) analysis in the formulation of melamine formaldehyde (MF) shell microcapsules with orange essential oil nucleus (*citrus sinensis*) combined with a fixed oil medium-chain triglycerides (MCT) produced by interfacial polymerization method.

2. MATERIALS AND METHODS

Materials: Essential orange oil (*citrus sinensis*), surfactants CTAB and Tween 20, all was purchased from Sigma-Aldrich®; MF; MCT was purchased from Delaware®. Preparation of microcapsules: Microcapsules containing essential orange oil combined with a MCT (1:1) and surfactants Tween 20 and CTAB with MF resin as shell material were synthesized by interfacial polymerization technology. To characterization of microcapsules: SEM FEI model Phenom (Fei, Oregon, USA).

The microcapsules were obtained by the interfacial polymerization method. To prepare the emulsion was placed in a beaker, deionized water with surfactant. The mixture was stirred on a mechanical stirrer (Fisatron 713D), after stirring the essential oil was added and brought to the ultrasound (Cole Parmer model CV33). The pH was adjusted to 4.5 using a solution of acetic acid. The emulsion was reserved. The prepolymer was prepared in another beaker containing deionized water and formaldehyde, after using a magnetic stirrer (TE-085) at a temperature of 70 ° C, while maintaining gentle agitation was added the melamine. The pH was adjusted to 8.5. The prepolymer was reserved.

For the preparation of the microcapsules the jacketed beaker containing the emulsion was connected to the thermostatic bath with a temperature of 70 ° C. This emulsion was subjected to a mechanical stirrer. During this stirring the prepolymer was slowly added to the emulsion. After addition of the prepolymer the mechanical stirrer timer was adjusted, also adjusting the pH to 9.0. After of shaking, the solution was placed in a centrifuge (Quimis, Tubes Centrifuge) at its maximum speed for phase separation. The microcapsules were filtered and washed with deionized water. After the microcapsules were taken to the desiccator (ARSEC). The obtained method was tested with

different surfactants, CTAB and Tween 20 in proportion (1:1) with essential oil. At the end of the production, the microcapsules were analyzed by microscopies and the differences in microcapsule morphologies were observed according to the kind of surfactant used.

3. RESULTS AND DISCUSSION

The conditions of preparation of the microcapsules, more specifically, the use of the two surfactants (CTAB and Tween 20) directly influenced the characteristics, according to the images obtained by SEM. In Figure 1, SEM images of the orange essential oil microcapsules with CTAB surfactant are observed. It is observed that the CTAB surfactant interacted well with the core material (orange essential oil), forming microcapsules of regular morphology, according to Figure 1(C), that is, the formation of regular capsules, in addition, are evenly distributed in the sample, according to Figures 1(A) and 1 (B), indicating a satisfactory formation. In Figure 2, in SEM images of the orange essential oil microcapsules with the change of surfactant to Tween 20 and the same formulation of the previous production, it is observed that the surfactant Tween 20, unlike CTAB, did not interact well with the orange essential oil, forming irregular microcapsules, according to Figure 2(B), in addition, the microcapsules formed, according to Figure 2(C), present some pores, according to Figure 2(C), that can come from formation of foam in the emulsion. Unlike the previous sample, Figure 1, the microcapsules produced with Tween 20 surfactant, as in Figure 2(A), are not uniformly distributed in the sample, in addition to the formation of agglomerates of microcapsules, indicating an unsatisfactory formation.

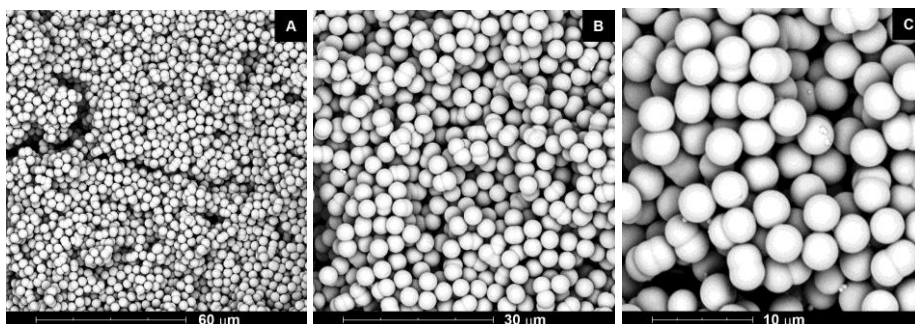


Fig. 1: SEM of microcapsules with surfactant CTAB, (A) images with magnification 2000x, (B) images with magnification 4000x and (C) images with magnification 8000x.

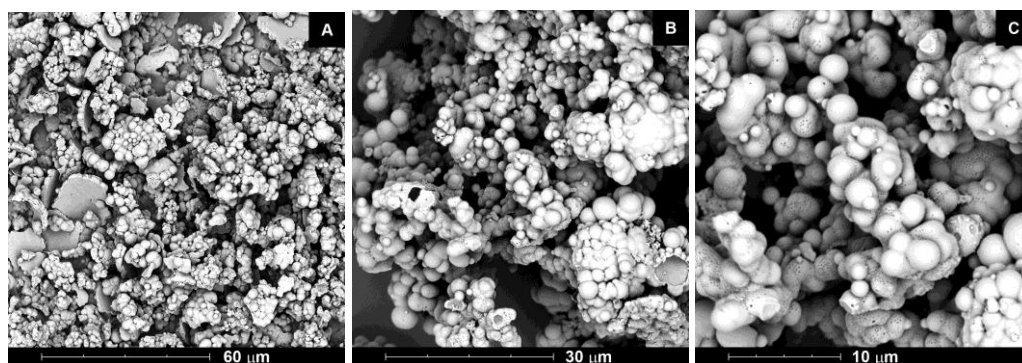


Fig. 2: SEM of microcapsules with surfactant Tween 20, (A) images with magnification 2000x, (B) images with magnification 4000x and (C) images with magnification 8000x.



3. CONCLUSIONS

At the end of the work by comparing the images obtained by SEM with different magnifications, it was possible to observe the differences in the morphologies of the microcapsules according to the type of surfactant used.

The use of SEM allowed us to understand the influence that the use of different surfactants produced on the morphological characteristics of the analyzed microcapsules, emphasizing the importance of the analysis of microcapsule morphologies.

By means of SEM, it is possible to obtain magnifications of 2000 times, 4000 times and 8000 times, conserving the depth of field of the samples and providing information on their morphology in different regions of interest, both in larger planes (2000 times) and in more detail (8000 times), with three-dimensional appearance and great depth of focus, which facilitated the morphological analysis of the microcapsules.

Through the analyzes the morphological differences of the microcapsules related to the surfactant were realized. The CTAB, according to the images obtained by the SEM, interacted well with the core material (orange essential oil), forming microcapsules of regular morphology and evenly distributed in the sample, indicating a satisfactory formation. After modification of the surfactant type for Tween 20, it was observed that the surfactant Tween 20, unlike CTAB, did not interact well with the orange essential oil, irregularly forming microcapsules, in addition to the formation of pores, were not uniformly distributed in the sample, forming agglomerates of microcapsules, indicating an unsatisfactory formation.

REFERENCES

- [1] S. Bône et al., “*Microencapsulated Fragrances in Melamine Formaldehyde Resins*“ in *Chimia International Journal For Chemistry*, v. 65, n. 3, 30 mar. 2011, pp. 177-181 . [Online]. Available: <<http://goo.gl/berceP>>.
- [2] A. S. Prata and C. R. F. Grosso, “*Production of microparticles with gelatin and chitosan*”, in *Carbohydrate Polymers*, v. 116, feb. 2015, pp. 292-299.
- [3] C. S. N. R. Teixeira et al, “*Characterization and evaluation of commercial fragrance microcapsules for textile application*”, in *Journal of the Textile Institute*, v. 103, n. 3, 2012, pp. 269-282.
- [4] P. Monllor, M. A. Bonet and F. Cases, “*Characterization of the behaviour of flavour microcapsules in cotton fabrics*”, in *European Polymer Journal*, v. 43, 2007, pp. 2481–2490.
- [5] B. Peña, C. Panisello, G. Aresté, R. Garcia-Valls and T. Gumí, “*Preparation and characterization of polysulfone microcapsules for perfume release*”, in *Chemical Engineering Journal*, n. 179, 2012, pp. 394-403. [Online]. Available: <www.elsevier.com/locate/cej>.
- [6] X. Fei et al, “*Microencapsulation mechanism and size control of fragrance microcapsules with melamine resin shell*”, in *Colloids And Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, v. 469, mar. 2015, pp.300-306.
- [7] S. N. Rodrigues, I. M. Martins, I. P. Fernandes, P. B. Gomes, C. V. G. Mata, M. F. Barreiro and A. E. Rodrigues, “*Scenfashion®: Microencapsulated perfumes for textile application*”, in *Chemical Engineering Journal*, n. 149, 2009, pp.463-472.
- [8] J. Hwang, et al. “*Factors affecting the characteristics of melamine resin microcapsules containing fragrant oils*”, in *Biotechnology And Bioprocess Engineering*, v. 11, n. 5, out. 2006, pp.391-395.



- [9] J. Liu et al, “*Study on the grafting of chitosan–gelatin microcapsules onto cotton fabrics and its antibacterial effect*”, in *Colloids and Surfaces B: Biointerfaces*, v. 109, sep. 2013, p. 103-108.
- [10] J. Walentowska and J. Foksowicz-Flaczyk, “*Thyme essential oil for antimicrobial protection of natural textiles*”, in *International Biodeterioration & Biodegradation*, v. 84, oct. 2013, p. 407-411.
- [11] M. M. Sánchez-Navarro et al. “*Microencapsulation of Melaleuca alternifolia (Tea Tree) Oil as Biocide for Footwear Applications*”, in *Journal of Dispersion Science and Technology*, v. 32, 2011.
- [12] R. Saraswathi, P. N. Krishnan and C. Dilip, “*Antimicrobial activity of cotton and silk fabric with herbal extract by micro encapsulation*”, in *Asian Pacific Journal of Tropical Medicine*, v. 3, n. 2, 2010, pp. 128-132.
- [13] J. R. Calo et al, “*Essential Oils as Antimicrobials in Food Systems– A Review*”, in *Food Control*, aug. 2015, v. 54, pp. 111-119. [Online]. Available: <goo.gl/n1ngd5>.
- [14] B. Ruiz and X. Flotats, “*Citrus essential oils and their influence on the anaerobic digestion process: An overview*”, in *Waste Management*, v. 34, n. 11, nov. 2014, pp. 2063-2079. [Online]. Available: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0956053X14002827>.
- [15] M. J. Velázquez-Nuñez et al. “*Antifungal activity of orange (Citrus sinensis var. Valencia) peel essential oil applied by direct addition or vapor contact*”, in *Food Control*, v. 31, is. 1, may 2013. pp. 1-4.
- [16] T. Nengguo, L. Jia and H. Zhou, “*Anti-fungal activity of Citrus reticulata Blanco essential oil against Penicillium italicum and Penicillium digitatum*”, in *Food Chemistry*, v. 153, 15 jun. 2014, pp. 265-271.
- [17] S. Kim and D. Lee, “*Toxicity of basil and orange essential oils and their components against two coleopteran stored products insect pests*”, in *Journal of Asia-Pacific Entomology*, v. 17, n. 1, March 2014, pp. 13-17.
- [18] H. Aloui et al, “*Efficacy of the combined application of chitosan and Locust Bean Gum with different citrus essential oils to control postharvest spoilage caused by Aspergillus flavus in dates*”, in *International Journal of Food Microbiology*, v. 170, 17, jan. 2014, p. 21-28.
- [19] B. Prakash et al. “*Plant essential oils as food preservatives to control moulds, mycotoxin contamination and oxidative deterioration of agri-food commodities – Potentials and challenges*”, in *Food Control*, jan. 2015. v. 47, pp. 381-391.
- [20] B. Solomon et al., “*Microencapsulation of citronella oil for mosquito-repellent application: Formulation and in vitro permeation studies*”, in *European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics*, v. 80, jan. 2012, pp. 61–66, 2012.
- [21] N. Azizi, Y. Chevalier and M. Majdoub, “*Isosorbide-based microcapsules for cosmeo-textiles*”, in *Industrial Crops and Products*, v. 52, p. 150-157, Jan. 2014.
- [22] J. Hwang et al., “*Factors affecting the characteristics of melamine resin microcapsules containing fragrant oils*”, in *Biotechnology And Bioprocess Engineering*, v. 11, n. 5, out. 2006, pp.391-395. [Online]. Available: <http://link.springer.com/article/10.1007/BF02932304>.
- [23] B. A. Dedavid, C. I. Gomes and G. Machado, G. “*Microscopia eletrônica de varredura: aplicações e preparação de amostras: materiais poliméricos, metálicos e semicondutores*”, Porto Alegre, EDIPUCRS, 2007.
- [24] H. Kestenbach, H. et. al., “*Resolução Lamelar num Novo Microscópio Eletrônico de Varredura*”, in *Polímeros: Ciência e Tecnologia*, pp. 58-66. Jan/Mar. 1997.