

Variables de procesado en homogeneizador de alta presión, Microfluidizer[®], que influyen en la distribución de tamaños de gota y estabilidad física de emulsiones aceite esencial de tomillo/agua

M. J. Martín-Piñero, L. A. Trujillo, M^a C. García, J. Muñoz y M^a C. Alfaro*

^a Departamento de Ingeniería Química. Facultad de Química.
Universidad de Sevilla c/ P. García González, 1, E41012, Sevilla, Spain

Processing variables with high pressure homogenizer as Microfluidizer[®] influencing on droplet size distribution and physical stability of thyme essential oil/W emulsions

Variables de processament en homogeneïtzador d'alta pressió, Microfluidizer[®], que influeixen a la distribució de mides de gota i a la estabilitat física d'emulsions de oli essencial de farigola/aigua

RECEIVED: 26 JUNE 2018; RECEIVED: 30 JULY 2018; ACCEPTED: 5 SEPTEMBER 2018

SUMMARY

The aim of this work consisted of investigating the influence of the pressure applied with high pressure homogenizer with Microfluidizer[®] technology (2500, 5000, 7500, 10000, 12500 y 15000 psi) on the droplet size distribution and physical stability of O/W emulsions formulated with thyme essential oil and an alkyl poly pentoside as an emulsifier. In addition, the number of passes (1 or 2 cycles) through the homogenizer is also studied. In order to study the quality of emulsions, techniques such as laser diffraction and *multiple light scattering* have been used together. It has been shown that, in general, for thyme essential oil emulsions stored at 4°C, the lower the pressure applied and the number of passes through the homogenizer the better the physical stability being the main mechanisms of destabilization the creaming and the so-called *oiling off*. This work contributes to the development of ecological emulsions with the added value of that they have antimicrobial properties which is very interesting in industries such as food, cosmetics or agrochemical.

Keywords: Laser diffraction, Multiple light scattering, Green solvent, Emulsion, Surfactant.

RESUMEN

El objetivo de este trabajo ha consistido en investigar cómo influye la presión aplicada en homogeneizador de alta presión con tecnología Microfluidizer[®] (2500, 5000, 7500, 10000, 12500 y 15000 psi) sobre la distribución de tamaños de gota y estabilidad física de una emulsión O/W formulada con aceite esencial de tomillo y un alquil polipentósido como emulsionante. Adicionalmente se estudia la influencia del número de pasadas (1 y 2) a través del homogeneizador. Para estudiar la calidad de las emulsiones se han utilizado conjuntamente técnicas como la difracción láser y el *multiple light scattering*. Se ha demostrado que, en general, para las emulsiones de aceite esencial de tomillo almacenadas en frío, a una temperatura de 4°C, cuanto menor es la presión aplicada y el número de pasadas a través del homogeneizador mejor es la estabilidad física de las mismas siendo los principales mecanismos de desestabilización el cremado y el conocido como *oiling off*. Este trabajo contribuye al desarrollo de emulsiones ecológicas que tienen además el valor añadido de poseer propiedades antimicrobianas, propiedades de gran interés en industrias como la alimentaria, la cosmética o la agroquímica.

* Corresponding author: alfaro@us.es

Palabras clave: Difracción láser, Retrodispersión múltiple de luz, Disolvente verde, Emulsión, Tensioactivo.

RESUM

L'objectiu d'aquest treball ha consistit en investigar com influeix la pressió aplicada en homogeneïtzador d'alta pressió amb tecnologia Microfluidizer® (2500, 5000, 7500, 10000, 12500 i 15000 psi) sobre la distribució de mides de gota i estabilitat física d'una emulsió O/W formulada amb oli essencial de farigola i un alquil polipentòsit com emulsionant. A més a s'estudia la influència del nombre de passades (1 i 2) a través de l'homogeneïtzador. Per estudiar la qualitat de les emulsions s'han utilitzat conjuntament tècniques com la difracció làser i el *multiple light scattering*. S'ha demostrat que, en general, per a les emulsions d'oli essencial de farigola emmagatzemades en fred, a una temperatura de 4°C, com menor és la pressió aplicada i el nombre de passades a través de l'homogeneïtzador millor és l'estabilitat física de les mateixes sent els principals mecanismes de desestabilització el cremat i el conegut com *oiling off*. Aquest treball contribueix al desenvolupament d'emulsions ecològiques que tenen a més el valor afegit de posseir propietats antimicrobianes, propietats de gran interès en indústries com l'alimentària, la cosmètica o l'agroquímica.

Paraules clau: Difracció làser; retrodispersió múltiple de llum; dissolvent verd; emulsió; tensioactiu.

1. INTRODUCTION

El desarrollo sostenible aplicado a la industria química justifica hoy día el uso de disolventes verdes y tensioactivos ecológicos en el desarrollo de nuevas formulaciones.

Los aceites esenciales son compuestos aromáticos derivados de productos naturales que poseen actividad biológica de amplio espectro¹. Precisamente gracias a sus propiedades antioxidantes, antifúngicas y antivirales, tienen numerosas aplicaciones como ingredientes funcionales en alimentación, cosmética, farmacia o medicina²⁻⁴. Por ejemplo, se ha demostrado que el aceite esencial de tomillo es capaz de inhibir algunos tipos de bacterias y levaduras⁵. Estas propiedades se atribuyen a sus componentes fenólicos y la interacción que ejercen con las membranas de las células de los microorganismos. El aceite esencial de tomillo, como todos los aceites esenciales, es hidrófobo por lo que para mejorar su dispersabilidad se introduce en forma de emulsión. Ahora bien, para que una emulsión pueda formarse es necesaria la incorporación de agentes emulsionantes. En este trabajo se ha utilizado un alquil polipentósido obtenido a partir de una materia prima renovable (trigo) y con escasa o nula toxicidad, por lo que puede ser considerado un tensioactivo ecológico.

Numerosos son los factores que determinan las propiedades finales y estabilidad física de la emulsión. Entre ellos se encuentra el procesado. Este puede llevarse a cabo con equipos rotor-estator, membranas u homogeneizadores de alta presión (de válvulas o con tecnología Microfluidizer®).

El objetivo de este trabajo ha sido evaluar la influencia de la presión y del número de pasadas a través de un homogeneizador de alta presión con tecnología Microfluidizer® sobre la distribución de tamaños de gota, diámetros medios y estabilidad física de emulsiones O/W formuladas con aceite esencial de tomillo como fase dispersa y un tensioactivo ecológico derivado de trigo como emulsionante. Para conseguir este objetivo se han combinado técnicas como la difracció làser y *multiple light scattering*.

2. MATERIALES Y MÉTODOS

2.1 Materiales

La fase dispersa de las emulsiones constituida por el aceite esencial de tomillo (*Thymus Vulgaris*) (938g/L a 25°C) fue suministrada por Bordas Chinchurreta S.A. Como emulsionante se ha utilizado un alcohol C14/C18-poliglucósido (HLB de 9-9,5) proporcionado por Wheatoleo y conocido comercialmente como Appyclean 6548. Como fase continua se ha utilizado agua ultrapura de calidad Milli-Q®.

2.2 Métodos

2.2.1. Preparación de las emulsiones

Emulsiones concentradas con un 40% en peso de aceite de tomillo y 4% en peso de tensioactivo, han sido preparadas en un homogeneizador de alta presión con tecnología Microfluidizer® (Microfluidizer® M110P) que utiliza una cámara de cizalla en forma de Y, modelo F12Y. Este homogeneizador es alimentado con emulsiones groseras o pre-emulsiones obtenidas haciendo uso de un equipo rotor estator Silverson L5M con una malla de homogeneización. Destacar que el tensioactivo Appyclean 6548 es soluble en la fase oleosa y se presenta en forma sólida por lo que, antes de ser usado se calienta en estufa junto con el disolvente a una temperatura de 60°C durante 1 hora. A continuación se procede a preparar la pre-emulsión siguiendo dos etapas. Una primera etapa en semicontinuo, en la que la fase dispersa es añadida lentamente a la fase continua mientras se agita a 2000 rpm durante 180s. Una segunda etapa en discontinuo en la que se agita la mezcla a la misma velocidad hasta alcanzar los 210 s. Una vez preparada la emulsión grosera, se alimenta el homogeneizador M110P y se procesa utilizando como variables la presión: 2500 psi (17,2 MPa), 5000 psi (34,5 MPa), 7500 psi (51,7 MPa), 10000 psi (68,9 MPa), 12500 psi (82,7 MPa) y 15000 psi (103,5 MPa) y el número de pasadas (1 y 2 pasadas). Durante la preparación se utilizó un baño termostático para mantener la temperatura constante a 20°C. Posteriormente se almacenaron en frío a 4°C. Se prepararon dos lotes de cada una de las muestras.

2.2.2. Distribución de tamaños de gota

La distribución de tamaños de gota se determinó mediante difracción láser con un equipo Master-sizer X (Malvern). Las medidas se realizaron por duplicado a lo largo del tiempo de envejecimiento presentándose los resultados como la media de los mismos. A partir de la distribución de tamaños de gota (DTG) se han obtenido los diámetros medios (diámetro medio de Sauter, $D_{3,2}$ y diámetro medio volumétrico, $D_{4,3}$) así como el parámetro span el cual ha sido utilizado para evaluar la polidispersidad de los tamaños de gota. Estos parámetros se calculan mediante las ecuaciones que a continuación se indican:

$$D_{3,2} = \frac{\sum_{i=1}^N n_i d_i^3}{\sum_{i=1}^N n_i d_i^2} \quad (1)$$

$$D_{4,3} = \frac{\sum_{i=1}^N n_i d_i^4}{\sum_{i=1}^N n_i d_i^3} \quad (2)$$

donde d_i es el diámetro de la gota, N es el número total de gotas y n_i es el número de gotas que tienen el diámetro d_i .

$$span = \frac{D(v, 0.9) - D(v, 0.1)}{D(v, 0.5)} \quad (3)$$

donde $D(v, 0.9)$, $D(v, 0.5)$ y $D(v, 0.1)$ son los diámetros acumulativos al 90%, 50% y 10% respectivamente.

2.2.3. Estabilidad física

La estabilidad física de las muestras se ha monitorizado mediante el equipo Turbiscan Lab Expert (Formulation) el cual utiliza la técnica de retrodispersión múltiple de luz (*multiple light scattering*). Los resultados se presentan como porcentaje de variación de luz retrodispersada o modo referencia ($\Delta BS\%$), de tal forma que a cada barrido se le sustrae el resultado del primero. De esta forma se aprecian mejor los cambios que tienen lugar en los perfiles de luz retrodispersada. Para su análisis se ha utilizado el Índice de estabilidad de Turbiscan, aplicado a toda la altura de la muestra, de tal forma que tiene en cuenta todos los procesos de desestabilización que tienen lugar en ella⁶. Cuanto más elevado es su valor, menos estable es la muestra. Se obtiene mediante la ecuación:

$$TSI = \sum_j |scan_{ref}(h_j) - scan_i(h_j)| \quad (4)$$

3. RESULTADOS Y DISCUSIÓN

En la figura 1 se muestra, a modo de ejemplo, la distribución de tamaños de gota de la emulsión preparada a 10000 psi en función del número de pasadas a través del homogeneizador M110P, para un tiempo de envejecimiento de 24 h. Como puede observarse, las distribuciones son bimodales caracterizándose por presentar un primer máximo de población de

gotas por debajo de 1 micra y un segundo pico a valores de aproximadamente 2 ó 3 μm . La existencia de esta segunda población de gotas está causada por un fenómeno de re-coalescencia, inducido por un exceso de energía mecánica durante el proceso de emulsificación^{7,8}. En general, se encuentra que, a este tiempo de envejecimiento, al aumentar el número de pasadas la distribución se desplaza hacia tamaños menores de gota pero, al mismo tiempo, se produce un aumento del número de gotas de mayor tamaño, es decir, aumenta la recoalescencia de gotas.

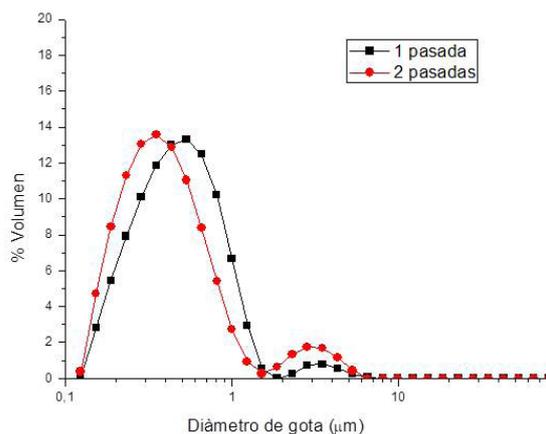


Figura 1. Distribución de tamaños de gota de la emulsión aceite esencial de tomillo/W procesada en homogeneizador de alta presión M110P a 10000 psi como una función del número de pasadas. Tiempo de envejecimiento: 24 h

El efecto de la presión sobre la distribución de tamaños de gota a las 24 horas de envejecimiento se ilustra en la figura 2, donde a modo de ejemplo se representan las distribuciones para 1 pasada a través del M110P. La presión influye de forma similar al número de pasadas, es decir, las distribuciones de tamaños de gota se desplazan ligeramente hacia la izquierda y al mismo tiempo el segundo máximo de población de gotas se incrementa.

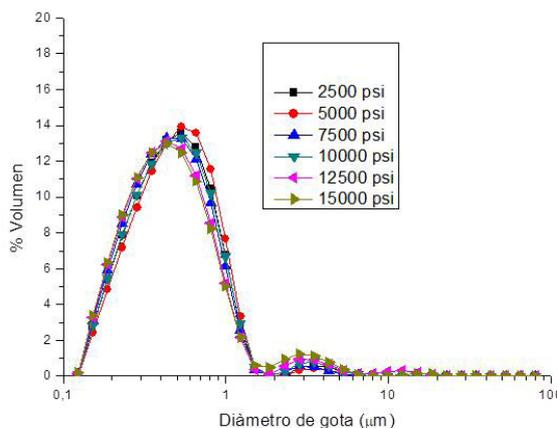


Figura 2. Distribución de tamaños de gota de emulsiones aceite esencial de tomillo/W procesadas en homogeneizador de alta presión M110P, 1 pasada, como una función de la presión aplicada. Tiempo de envejecimiento: 24 h

El tiempo de envejecimiento desplaza la distribución hacia mayores tamaños y provoca un aumento de la población de gotas correspondiente a tamaños del orden de 2-3 micras. Este comportamiento se ilustra en la figura 3 donde, a modo de ejemplo, se representa la DTG para emulsiones aceite esencial de tomillo/W procesadas en M110P, 1 pasada a 5000 psi.

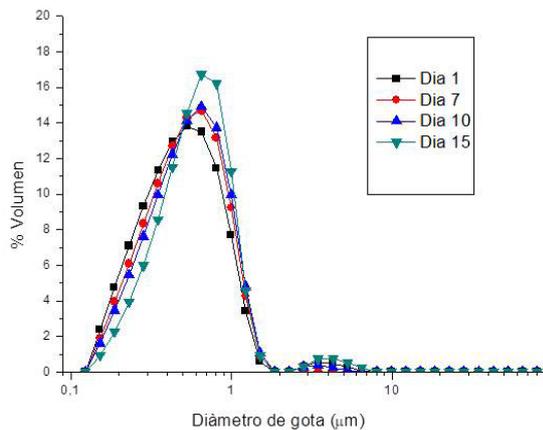


Figura 3. Distribución de tamaños de gota de la emulsión aceite esencial de tomillo/W procesada en homogeneizador de alta presión M110P, 1 pasada a 5000 psi como una función del tiempo de envejecimiento.

Los diámetros medios de Sauter y volumétricos así como el span en función de la presión ejercida en M110P y del número de pasadas están recogidos en la tabla 1. En primer lugar, destacar los bajos valores que presentan los diámetros medios; todas las emulsiones estudiadas presentan valores muy por debajo de la micra. Se puede hablar, pues, de emulsiones submicrónicas. Un análisis de dicha tabla revela que: a) en general $D_{3,2}$ no varía significativamente ni con el número de pasadas ni con el tiempo de envejecimiento aunque sí se observa que a altas presiones o mayor número de ciclos tiende a ser menor y b) a diferencia de lo que le ocurre al diámetro medio de Sauter, el diámetro medio volumétrico, más sensible a la agregación de gotas, sí muestra variaciones significativas tanto con el tiempo de envejecimiento como con el número de pasadas. Respecto a la presión, $D_{4,3}$ alcanza un valor máximo a 12500 psi. Con respecto al número de pasadas, $D_{4,3}$ se mantiene prácticamente invariable a presiones bajas, mientras que a partir de 10000 psi las diferencias de este parámetro entre una y dos pasadas son más significativas. El parámetro span, el cual determina la polidispersidad de la emulsión, también muestra, en general, un aumento de su valor tanto con el número de pasadas como con el tiempo de envejecimiento. Está claro que al aumentar la energía aplicada (mayor presión o mayor número de pasadas) el efecto de la recoalescencia de gotas se incrementa.

Tabla 1. Diámetro medio de Sauter, diámetro medio volumétrico y span en función de la presión, número de ciclos y tiempo de envejecimiento de emulsiones aceite esencial de tomillo/W procesadas en homogeneizador de alta presión M110P

Presión (psi)	Pasadas	Tempo	$D_{4,3}$ (μm)	$D_{3,2}$ (μm)	Span
		Envejecimiento (días)			
2500	1	1	0,52±0,03	0,36±0,01	1,58±0,06
		7	0,63±0,03	0,39±0,02	1,5±0,2
	2	1	0,51±0,03	0,31±0,01	1,707±0,09
		7	0,75±0,02	0,35±0,01	2,2±0,03
5000	1	1	0,52±0,05	0,37±0,01	1,475±0,07
		7	0,68±0,06	0,37±0,03	2,42±0,06
	2	1	0,51±0,03	0,38±0,01	1,676±0,07
		7	0,61±0,02	0,38±0,03	1,75±0,05
7500	1	1	0,50±0,01	0,35±0,01	1,565±0,02
		7	0,71±0,03	0,38±0,02	2,12±0,04
	2	1	1,40±0,06	0,37±0,01	1,75±0,02
		7	1,61±0,01	0,38±0,05	1,76±0,09
10000	1	1	0,54±0,03	0,36±0,03	1,59±0,06
		7	0,62±0,03	0,38±0,04	1,79±0,03
	2	1	0,55±0,03	0,31±0,01	1,98±0,02
		7	0,74±0,04	0,35±0,03	4,86±0,09
12500	1	1	0,58±0,01	0,33±0,01	1,899±0,02
		7	0,75±0,04	0,38±0,05	3,76±0,08
	2	1	0,65±0,03	0,35±0,01	1,727±0,1
		7	1,15±0,03	0,37±0,06	6,65±0,07
15000	1	1	0,52±0,05	0,32±0,01	1,765±0,7
		7	0,75±0,01	0,36±0,02	3,76±0,08
	2	1	0,60±0,02	0,32±0,01	1,923±0,3
		7	0,71±0,04	0,35±0,02	4,0±0,1

En la figura 4 se muestran los perfiles de luz retrodispersada frente a la altura de la célula de medida que contiene la muestra como una función del tiempo de envejecimiento para emulsiones procesadas a 5000 psi y 15000 psi a 1 pasada (figuras 4a y 4b, respectivamente) y procesada a 5000 psi 2 pasadas (figura 4c). En la figura 4a se observa un descenso del %*delta-backscattering* en la zona baja y alta del vial mientras que en la zona central del mismo los perfiles permanecen prácticamente constantes. De acuerdo con la teoría de *multiple light scattering* este comportamiento se asocia a un proceso de cremado de gotas como consecuencia de la diferencia de densidades entre las fases continua y dispersa. Además, las gotas al migrar hacia la parte superior de la célula de medida, chocan unas con otras, se fusionan y, finalmente provoca coalescencia de gotas en la fase cremada de ahí el descenso observado en la parte superior del vial. Este último proceso se conoce como *oiling off*. Si comparamos los resultados con los mostrados por la emulsión sometida a mayor presión (figura 4b), se encuentra que el proceso de desestabilización por cremado ha disminuido considerablemente mientras que el proceso de *oiling off* aumenta. Lo mismo ocurre con la emulsión sometida a dos pasadas, figura 4c, donde se observa una menor disminución del %*delta-backscattering* en la zona baja de la célula de medida y una mayor disminución

de éste en la zona alta de la célula de medida. Este resultado puede atribuirse al hecho de que a altas presiones o al aumentar el número de pasadas, como se ha comentado anteriormente, el tamaño medio de Sauter, aunque no de forma significativa, es ligeramente menor. Se sabe que cuando el tamaño es pequeño el proceso de cremado está más desfavorecido⁹⁻¹⁰. No obstante, sigue existiendo un ligero proceso de desestabilización por cremado. A este hecho se suma que bajo estas condiciones, más energía, el segundo pico de las distribuciones de tamaños de gota aumenta debido a un exceso de energía mecánica (recoalescencia) lo cual implica la existencia de gotas de mayor tamaño que, una vez en la fase cremada se fusionan provocando una mayor desestabilización por coalescencia.

Con el objetivo de cuantificar la cinética de desestabilización por expulsión de aceite, se determinó el % *oiling off* (Oil_{off}) en función del tiempo de envejeciendo haciendo uso de la siguiente ecuación:

$$\%Oil_{off} = \frac{H_{free}}{H_B} \times 100 \quad (5)$$

donde H_{free} es la altura del aceite libre y H_B es la altura total de la emulsión.

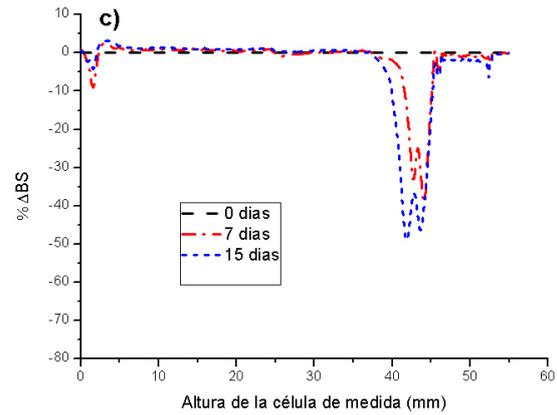
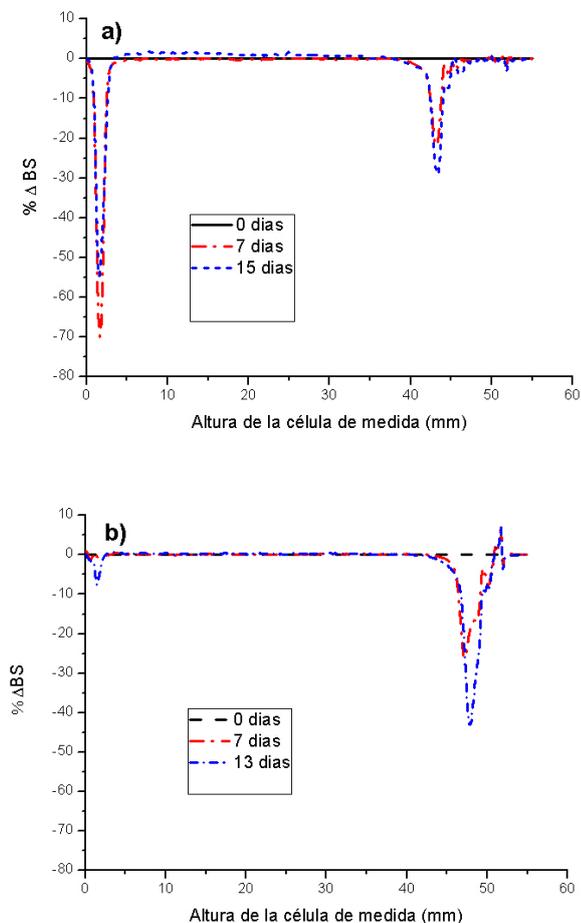


Figura 4. Delta-backscattering frente a la altura de la célula de medida que contiene a la muestra como una función del tiempo de envejecimiento de la emulsión aceite esencial de tomillo/W procesada en a) homogeneizador de alta presión M110P, 1 pasada a 5000 psi, b) homogeneizador de alta presión M110P, 1 pasada a 15000 psi y c) homogeneizador de alta presión M110P, 2 pasadas a 5000 psi.

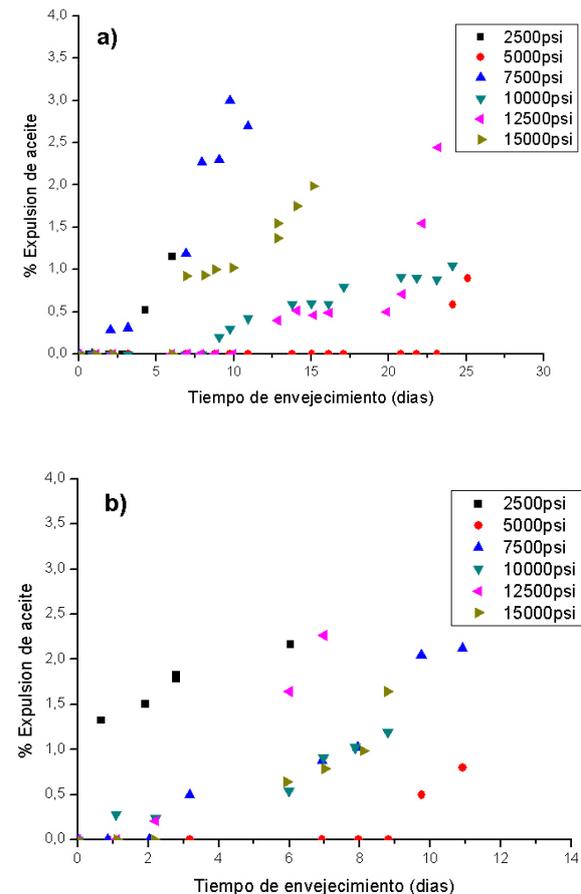
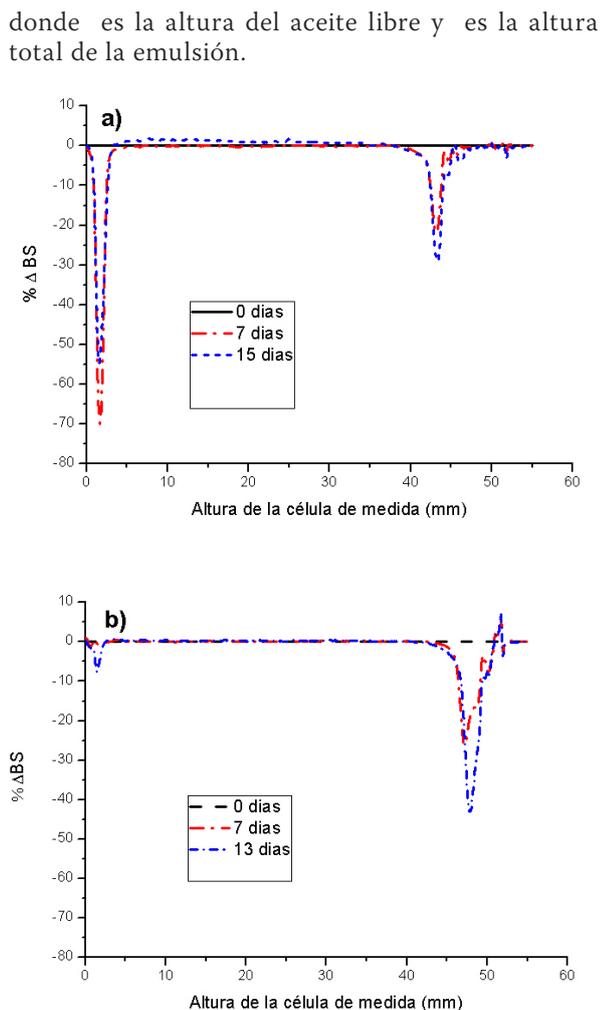


Figura 5. Porcentaje de expulsión de aceite frente al tiempo de envejecimiento en función de la presión aplicada a emulsiones aceite esencial de tomillo/W procesadas en homogeneizador de alta presión M110P a) 1 pasada y b) 2 pasadas.

En la figura 5 se representa el proceso de desestabilización que ocurre en la zona alta de la célula de medida, es decir, la expulsión de aceite debido a un proceso localizado de coalescencia¹¹. Hay una primera etapa de retraso en la expulsión de aceite que da paso a la misma y a la separación visual de fases. Independientemente del número de pasadas se ha de destacar que la emulsión que más tarde comienza a expulsar aceite es la procesada a 5000 psi. Del resto de emulsiones destacar que aquella procesada a 10000 psi es la que expulsa aceite a una velocidad menor.

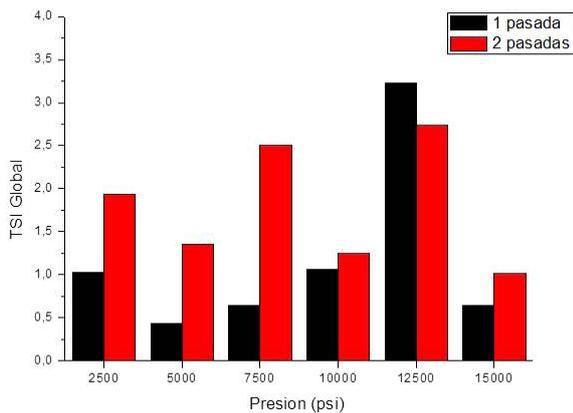


Figura 6. TSI global frente a la presión aplicada en homogeneizador de alta presión M110P a los 7 días de envejecimiento de emulsiones aceite esencial de tomillo/W como una función del número de pasadas.

Un análisis del parámetro TSI global a los 7 días de envejecimiento (figura 6) nos permite analizar la estabilidad de las diferentes emulsiones investigadas considerando todos los procesos de desestabilización que en ellas tienen lugar. Cuanto más elevado es el valor de este parámetro más inestable es la emulsión. De acuerdo con este criterio, se puede afirmar que, independientemente del número de pasadas, la emulsión menos estable es aquella procesada a 12500 psi. Este resultado es coherente con los obtenidos por difracción láser donde, debe recordarse, que eran estas emulsiones las que presentaban un diámetro medio volumétrico más elevado. Respecto al número de pasadas, en general 1 pasada produce emulsiones más estables que si el número de veces que la emulsión pasa a través del homogeneizador M110P se duplica. Analizando simultáneamente ambas variables se puede concluir que la emulsión más estable es aquella procesada a 5000 psi y 1 pasada.

CONCLUSIONES

En este estudio se han podido obtener emulsiones concentradas de aceite esencial de tomillo y agua empleando un homogeneizador de alta presión con tecnología Microfluidizer®. Estas emulsiones satisfacen la necesidad actual de desarrollar productos

sostenibles ya que están formuladas con productos verdes. Todas las emulsiones procesadas se desestabilizan por cremado y *oiling off* si bien al aumentar la energía aplicada durante su procesado la desestabilización por cremado disminuye mientras que la coalescencia en la fase cremada aumenta. La consideración de todos los procesos de desestabilización permite concluir que la emulsión aceite esencial de tomillo/W con mayor estabilidad física es la procesada a 5000 psi y 1 sola pasada.

AGRADECIMIENTOS

The financial support received (Project CTQ2015-70700) from the Spanish Ministerio de Economía y Competitividad and from the European Commission (FEDER Programme) is kindly acknowledged.

REFERENCIAS

- Asbahani, A.; Miladi, K.; Badri, W.; Sala, M.; Addi, E.H.A.; Casabianca, H.; El Mousadik, A.; Hartmann, D.; Jilale, A.; Renaud, F.N.R.; Elaisari, A. Essential oils: from extraction to encapsulation. *Int. J. Pharm.* **2015**, *483*, 220-243.
- Bakkali, F.; Averbeck, D.; Idaomar, M. Biological effects of essentials oil-a review. *Food Chem. Toxicol.*, **2008**, *46*, 446-475
- Dima, C.; Dima, S. (2015). Essential oils in foods: extraction, stabilization and toxicity. *Curr. Opin. Food Sci.*, **2015**, *5*, 29-35
- Seow, Y.X.; Yeo, C.R.; Chung, H.L.; Yuk, H.-G. Plant essential oils as active antimicrobial agents. *Crit. Rev. Food Sci. Nutr.*, **2014**, *54*, 625-644
- Gaysinsky, S.; Davidson, P.M.; McClements, D.J.; Weiss, J. Formulation and characterization of phytochemical-carrying antimicrobial microemulsions. *Food Biophys.*, **2008**, *3*, 54-65
- Lesaint, C.; Glomm, W. R.; Lundgaard, L. E. and Sjöblom, J. Dehydration efficiency of AC electrical fields on water-in-model-oil emulsions. *Colloids Surf., A* . **2009**. 352(1), 63-69.
- Lobo, L. and Svereika, A. Coalescence during emulsification – 2. Role of small molecule surfactants, *J. Colloid Interface Sci.*, **2006**, *261*, 498–507.
- Jafari, S.M.; Assadpoor, E.; Bhandari, B. Re-coalescence of emulsion droplets during high-energy emulsification, *Food Hydrocolloids*, **2008**, *22* , 1191–1202.
- Chanamai, R.; McClements, D. J. Dependence of Creaming and Rheology of Monodisperse Oil-in-Water Emulsions on Droplet Size and Concentration. *Colloids Surf., A* . **2000**, *172* (1–3), 79–86.
- Martin-Piñero, M.J.; Santos, J.; Trujillo-Cayado, L.A.; García, M.C.; Afaro, M.C. Influencia Del Tensoactivo En La Formación y Estabili-

dad Física de Emulsiones Ecológicas Concentradas, *Afinidad*, **2017**. 75(581).

11. Udomrati, S.; Khalid, N.; Gothani, S.; Nakajima, M.; Uemura, K.; Kobayashi, I. Formulation and characterization of esterified xylo-oligosaccharides-stabilized oil-in-water emulsions using microchannel emulsification. *Colloids Surf., B*, **2016**, *148*, 333-342.