



UNIVERSIDAD DE BURGOS

Facultad de Ciencias

**Departamento de Biotecnología y Ciencia de los
Alimentos**

**OBTENCIÓN DE MIEL EN POLVO E
INVESTIGACIÓN DE SUS
PROPIEDADES FÍSICO-QUÍMICAS
Y BIOLÓGICAS**

TESIS DOCTORAL

LEIRE CANTERO PUENTE

Burgos, 2024



UNIVERSIDAD DE BURGOS

DEPARTAMENTO DE BIOTECNOLOGÍA Y CIENCIA DE LOS ALIMENTOS

Dra. Sandra M^a Osés Gómez, Titular de Universidad del Área de Nutrición y Bromatología de la Universidad de Burgos

Dra. M^a Teresa Sancho Ortiz, Catedrática de Universidad del Área de Nutrición y Bromatología de la Universidad de Burgos

CERTIFICAN QUE:

Dña. Leire Cantero Puente ha realizado bajo su dirección el trabajo titulado “Obtención de miel en polvo e investigación de sus propiedades físico-químicas y biológicas”.

Considerando que dicho trabajo reúne los requisitos exigidos para su defensa como Tesis Doctoral por compendio de artículos/publicaciones, expresan su conformidad con dicha presentación.

Y para que así conste, firman el presente certificado en Burgos a 19 de diciembre de dos mil veinticuatro.

Burgos, 19 de diciembre de 2024

Fdo. Sandra M^a Osés Gómez

Fdo. M^a Teresa Sancho Ortiz

La autora de esta Memoria ha sido beneficiaria de una ayuda destinada a la contratación de personal técnico de apoyo a la investigación por las Universidades Públicas de Castilla y León, para jóvenes incluidos en el Sistema Nacional de Garantía Juvenil cofinanciadas por el Fondo Social Europeo y la Iniciativa de Empleo Juvenil convocada por Orden de 30 de noviembre de 2018, de la Consejería de Educación.

El trabajo de investigación que ha dado lugar a esta Tesis Doctoral ha sido desarrollado en la Universidad de Burgos y ha sido financiado a través del proyecto BU041G18 de la Consejería de Educación de la Junta de Castilla y León.

*«Cuando llora el sol por segunda vez, y deja caer el agua de sus ojos, las
abejas cambian de tarea, trabajan en las flores de cada especie, y en lugar
de agua elaboran miel y cera»*

(S. Birch, *Egyptian Magical Text*, in S. Birch ed., *Salt 825 Records of the
Past*, Vol.6, 1876)

AGRADECIMIENTOS

Al llegar a la culminación de esta tesis, no puedo evitar recordar y agradecer a todas las personas que me han acompañado y guiado en este largo camino. Este logro no solo es mío, sino también de aquellos que, con su amor, paciencia y ejemplo, hicieron posible que llegara hasta aquí.

A mis directoras de tesis, la Dra. Sandra María Osés Gómez y la Dra. María Tesesa Sancho Ortiz, mi profundo agradecimiento por su sabiduría y generosidad al compartir su conocimiento. Gracias por haber creído en mí y por su constante apoyo y orientación en cada paso de este proceso.

A todos los integrantes del Área de Nutrición y Bromatología, especialmente al Dr. Miguel Ángel Fernández Muiño, quien ha sido un padre en mi etapa de investigación, junto con mis directoras de tesis, quienes se han convertido en una parte fundamental de mi familia científica. Gracias a los tres por haberme permitido formar parte del grupo de investigación Miel. También quisiera dar las gracias a la Dra. Sara Raquel Alonso de la Torre y a la Dra. M^a Mar Cavia Camarero, junto con el técnico y compañero de laboratorio Gonzalo Moreno Sancho, quienes me brindaron su apoyo en muchos de los momentos críticos de trabajo en el laboratorio. Cuánto extraño nuestras pausas para tomar café. No puedo olvidar a la Dra. Celia Carrillo Pérez, con quien compartí innumerables momentos de investigación dedicados a las betalainas de las remolachas, ni a la Dra. Lourdes Aldea Segura, quien me alegró pequeños momentos con su simpatía y calidez. En todos vosotros he encontrado un refugio de cariño que hace que forméis parte de mi familia.

A la Dra. Marta Alevia Antón y a la Dra. Ana Pascual Maté, grandes compañeras y amigas, gracias por vuestra ayuda.

Agradezco también al departamento de Tecnología de los Alimentos, especialmente a la técnica Esther Zarzosa González, por toda la ayuda y el aprendizaje en la utilización de los equipos de transformación de alimentos. Asimismo, aprovecho para dar las gracias al técnico Cipriano Ramos Rodríguez, cuya ayuda fue fundamental para lograr el correcto funcionamiento del atomizador de partículas.

A mis padres, quienes me enseñaron a preservar y siempre me recordaron la importancia del esfuerzo y la humildad. Aunque algunos de mis seres

queridos ya no están físicamente para celebrar conmigo este momento, su memoria y enseñanzas han sido mi inspiración constante. A ellos, mi más profundo y eterno agradecimiento, sé que de alguna manera están aquí, compartiendo conmigo la culminación de este sueño.

A mi hermana y mi cuñado, por su cariño y compañía incondicional, y a mis tios Isabel y Fernando, quienes comprendieron mis ausencias y me sostuvieron cuando más lo necesitaba. Ellos han sido mi refugio y apoyo en los momentos más desafiantes.

Dedico también estas líneas a mi sobrina Vega, para que cuando algún día lea esto que sepa que el conocimiento no tiene límites y que ella también tiene la capacidad de transformar el mundo. Querida Vega, nunca dejes de ser curiosa y de buscar respuestas, porque el camino de la ciencia está abierto para soñadoras como tú.

A todos los que me han acompañado, guiado y alentado en esta travesía, mi más sinceros y profundos agradecimientos.

¡Esta meta es de todos nosotros!

La presente tesis doctoral, que lleva por título «**Obtención de miel en polvo e investigación de sus propiedades físico-químicas y biológicas**» se presenta como un compendio de artículos, estando formada por las siguientes publicaciones científicas en revistas indexadas en el Journal Citation Reports (JCR) dentro del primer cuartil (Q1) del ámbito “Ciencia y Tecnología de Alimentos” (*Food Science and Technology*):

Osés, S. M., Cantero, L., Crespo, M., Puertas, G., González-Ceballos, L., Vallejos, S., Fernández-Muiño, M. A & Sancho, M. T. (2021). *Attributes of ling-heather honey powder obtained by different methods with several carriers*. LWT-Food Science and Technology, 150, 112063.

Osés, S. M., Cantero, L., Puertas, G., Fernández-Muiño, M. A & Sancho, M. T. (2022). *Antioxidant, antimicrobial and anti-inflammatory activities of ling-heather honey powder obtained by different methods with several carriers*. LWT-Food Science and Technology, 159, 113235.

Cantero, L., González-Ceballos, L., Vallejo, S., Puertas, G., Fernández-Muiño, M. A., Sancho, M. T & Osés, S. M. (2023). *Impact of the drying procedure and botanical origin on the physico-chemical and potentially bioactive properties of honey powders*. Foods, 12, 3990.

Además, la realización de esta tesis ha permitido la presentación de diversos pósteres y comunicaciones en congresos relevantes en la temática:

- Póster – Cantero, L; Osés, S, M; Sancho, M. T; Fernández-Muiño, M. A; Vallejos, S; Guirado-Moreno, J. C.; González-Ceballos, L. «Perfil descriptivo y aceptación sensorial de la miel en polvo». XI-Congreso Nacional CyTA-CESIA. 2022. Zaragoza. CyTA-CESIA.
- Póster – Cantero, L; Osés, S, M; Sancho, M. T; Fernández-Muiño, M. A; González-Ceballos, L; Vallejos, S; Guirado-Moreno, J. C. «Importancia de la temperatura de transición vítrea en la miel en polvo». XI-Congreso Nacional CyTA-CESIA. 2022. Zaragoza. CyTA-CESIA.
- Comunicación Oral – Cantero, L; Osés, S. M; Fernández Muiño, M. A; Sancho, M. T. «Rendimiento del proceso de obtención de miel en polvo». X-Congreso Nacional de Apicultura. 2022. Córdoba. Asociación para el fomento de congresos apícolas (AFCA).
- Comunicación Oral - Cantero, L; Osés, S. M; Puertas, G; Fernández Muiño, M. A; Sancho, M. T. «Actividades antirradicales libres de las

mieles de brecina (*Calluna vulgaris* (L.) Hull) en polvo». XI-Congreso Nacional de Apicultura. 2023. Málaga. Asociación Malagueña de Apicultores.

- Conferencia – Sancho, M. T; Cantero, L; Fernández Muiño, M. A; Osés, S. M. «The challenge of making a healthy and tasty honey powder with a clean label». I MEDIFIT Conference: An interlinked digital platform for food integrity and traceability of relevant Mediterranean supply chains. 2023. Córdoba. I MEDIFIT Conference.
- Comunicación Oral – Sancho, M. T; Cantero, L; González-Ceballos, L; Vallejos, S; Puertas, G; Fernández-Muiño, M. A; Osés, S. M. «Liophilised and Vacuum dried honeys». International Symposium on Bee Products 6th Edition & Annual Meeting of the International Honey Commission. 2024. Rumania. International Honey Commission & University of Cluj-Napoca.
- Póster – Osés, S. M; Cantero, L; Fernández Muiño, M. A; Sancho, M. T. «Antimicrobial activity of honey and honey powder». 28th International ICFMH Conference (FoodMicro 2024). 2024. Burgos. Universidad de Burgos.

Por otro lado, ha dado lugar a numerosos reconocimientos en el ámbito científico, que se detallan a continuación:

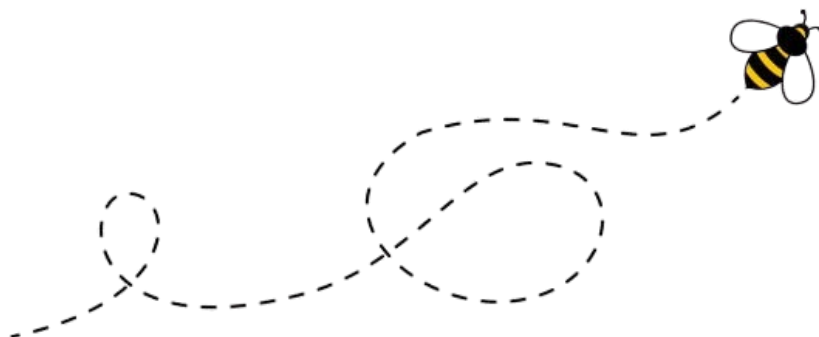
- Tercer premio en la Convocatoria Itinerario para la Transferencia de Resultados (ITR) 2021, por el proyecto «*Elaboración de mieles en polvo*», en el marco del programa TCUE 2018-2020 (prórroga), cofinanciado por el Fondo Europeo de Desarrollo Regional (FEDER) y la Junta de Castilla y León.
- Tercer premio en la Convocatoria Prototipos Orientados al Mercado. Curso 2021-2022, por el proyecto «P22.8. *Potencial de la desecación a vacío y liofilización para la obtención de mieles en polvo de distintos orígenes florales. Acrónimo: MIELPOLVO*», en el marco del programa TCUE 2021-2023, cofinanciado por el Fondo Europeo de Desarrollo Regional (FEDER) y la Junta de Castilla y León. Este reconocimiento permitió la creación de un [video](#) prototipo que ilustra la tecnología utilizada para la obtención de mieles en polvo.

- Primer premio (Medalla de Oro) para la innovación con el proyecto «*Honey Powder Preparation Method*», en INEX. India International Innovation and Invention Expo 2022, cofinanciado por Innovative Business Solutions (IBS Global).
- Primer premio en la Iniciativa Campus Emprendedor, categoría Proyecto Empresarial edición 2022, con el proyecto «*Healthy & Tasty. Diseño de procesos tecnológicos de desecación de alimentos para reformular alimentos basándose en la incorporación de aditivos de origen alimentario*».
- Primer premio a la Investigación, en la modalidad Personal docente e Investigador con el proyecto «*Obtención de miel en polvo y evaluación sensorial y de sus propiedades físico-químicas y biológicas*», en XII Premios Consejo Social de la Universidad de Burgos (convocatoria 2023).

Asimismo, esta tesis ha permitido la solicitud de varias patentes (propiedad industrial e intelectual), que se indican a continuación:

- Método de preparación de miel en polvo por desecación al vacío.
Inventores: Sandra María Osés Gómez, María Teresa Sancho, Miguel Ángel Fernández-Muiño y Leire Cantero Puente.
Entidad titular de derecho: Universidad de Burgos.
Nº de solicitud: [P202130604](#)
País de inscripción: Castilla y León, España.
Fecha de registro: 25/06/2021
Fecha de concesión: 12/06/2023
- Método de preparación de miel en polvo por liofilización.
Inventores: Sandra María Osés Gómez, María Teresa Sancho, Miguel Ángel Fernández-Muiño y Leire Cantero Puente.
Entidad titular de derecho: Universidad de Burgos.
Nº de solicitud: [P202130603](#)
País de inscripción: Castilla y León, España.
Fecha de registro: 25/06/2021
Fecha de concesión: 12/06/2023

Índice



Summary/Resumen 1

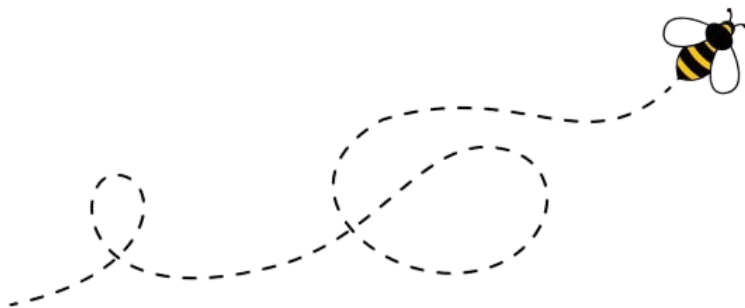
Introducción	11
1. La miel	13
1.1. Definición de miel y tipos	13
1.2. Producción de la miel	13
1.3. Obtención de la miel	15
1.4. Situación económica de la cabaña apícola	16
2. Principales componentes de la miel	20
2.1. Carbohidratos	21
2.2. Proteínas	21
2.3. Lípidos	22
2.4. Ácidos orgánicos	22
2.5. Minerales y oligoelementos	22
2.6. Vitaminas.....	23
2.7. Pigmentos	23
2.8. Compuestos volátiles.....	23
2.9. Compuestos fenólicos.....	23
3. Propiedades físico-químicas de la miel.....	25
3.1. Densidad.....	25
3.2. Viscosidad	25
3.3. Cristalización	26
3.4. Temperatura de transición vítrea (T_g)	26
3.5. Color.....	27
3.6. Humedad.....	28
3.7. A_w	29
4. Potenciales propiedades biológicas de la miel.....	29
4.1. Actividad antioxidante	30
4.2. Actividad antibacteriana	32
4.3. Actividad anti-inflamatoria	33

5. Usos de la miel en alimentos y sus inconvenientes.....	34
6. Obtención de miel en polvo.....	39
6.1. Procesos de obtención.....	40
6.2. Problema asociado con el secado de productos ricos en azúcar.....	47
6.3. Coadyuvantes de secado.....	48
6.4. Propiedades de la miel en polvo.....	52
7. Usos de la miel en polvo en la industria.....	57
8. Impacto social y económico de la miel en polvo.....	57
Referencias bibliográficas.....	59
Justificación y objetivos.....	77
Capítulo 1.....	81
1. Introducción.....	84
2. Materiales y métodos.....	86
2.1. Muestras de miel.....	86
2.2. Coadyuvantes.....	86
2.3. Métodos de secado.....	87
2.4. Recuperación del polvo.....	88
2.5. Parámetros de calidad y propiedades físicas.....	88
2.6. Análisis sensorial.....	90
2.7. Análisis estadístico.....	91
3. Resultados y discusión.....	92
3.1. Muestras de miel.....	92
3.2. Mieles en polvo.....	92
4. Conclusión.....	112
Capítulo 2.....	125
1. Introducción.....	128
2. Materiales y métodos.....	130
2.1. Patrones, reactivos y equipos.....	130

2.2. Muestras	131
2.3. Análisis de propiedades biológicas	132
2.4. Análisis estadístico.....	135
3. Resultados y discusión	136
3.1. Fenoles, flavonoides y propiedades biológicas de las mieles de brezo.....	136
3.2. Mieles en polvo.....	137
4. Análisis estadístico.....	146
5. Conclusiones	149
Capítulo 3.....	157
1. Introducción.....	160
2. Materiales y métodos.....	162
2.1. Materiales	162
2.2. Muestras de miel y procedimientos de secado	163
2.3. Mieles en polvo.....	164
2.4. Parámetros de calidad y propiedades físicas de la miel y las mieles en polvo	165
2.5. Análisis de propiedades potencialmente bioactivas de la miel y la miel en polvo	165
2.6. Análisis estadístico.....	166
3. Resultados y discusión	166
3.1. Recuperación de polvo	166
3.2. Propiedades fisicoquímicas	168
3.3. Propiedades potencialmente bioactivas de las mieles en polvo...	176
3.4. Análisis estadístico.....	183
4. Conclusiones	185
Conclusiones	195
Anexos	201
Acrónimos.....	271

Summary

Resumen



Honey is a natural sweet substance of complex composition produced by bees (*Apis mellifera* L. and other species) from the nectar of flowers or plant honeydews. It has energetic properties and attractive sensory characteristics.

Nowadays, the retail market offers a variety of industrialised foods that are appealing, easy to prepare and widely accepted by consumers. Ultra-processed foods are more likely to promote unbalanced diets than raw or minimally processed foods with a rich and complex chemical composition. Among raw foods, honey occupies a special place. However, its high viscosity and stickiness are important drawbacks for its handling.

In order to make honey easier to use, raw honey can be dehydrated and powdered using drying technologies, such as spray drying, vacuum drying, and freeze drying, with the aid of food-grade carriers, preferably of natural origin. Powdered honey, as a dehydrated product, is easier to handle, package (it can be sold in lighter packaging than natural honey), and has a longer shelf life. It can be added to other foods, offering a wide variety of aromas, flavours, and textures. It provides the food industry with an interesting natural ingredient for its use in production lines. Moreover, it allows consumers to enjoy natural honey avoiding the unappealing features of its raw form, such as viscosity and stickiness. Furthermore, it enables the beekeeping sector to enhance its exploitation and business opportunities, while promoting rural areas, natural ecosystems, and biodiversity.

This Doctoral Thesis, entitled «**Production of powdered honey and investigation of its physicochemical and biological properties**», is aimed to research the production of powdered honey by choosing the most suitable technological process and carrier, as well as evaluating the impact of the drying technique on the physicochemical, functional, and microbiological properties of the final product, comparing them with those of natural raw honey.

For this study, nine honeys from Castilla y León, were dehydrated and powdered. Botanical origins were the following: Three samples were ling-heather (*Calluna vulgaris*, (L.) Hull) honeys. Two samples were thyme (*Thymus* spp.) honeys. Three samples were lavender (*Lavandula* spp.) honeys. One sample was vetch (Leguminosae type *Vicia* spp.) honey and three samples were multifloral honeys.

Firstly, an optimization of the different drying processes – spray drying, vacuum drying, and freeze drying – was carried out, using three carriers (whey protein, Arabic gum, and potato maltodextrin) for each process. Various honey to carrier concentration ratios were also evaluated in order to achieve the highest possible honey concentration in the powder corresponding to each drying technique.

Once the technologies were optimized, the chosen drying processes were applied to the three ling-heather honey samples, resulting in 27 powdered honey samples. Physicochemical properties, such as glass transition temperature, moisture, water activity, hygroscopicity, colour, bulk density, solubility, proline and sugar content were then assessed in those samples. A descriptive sensory analysis was also carried out. Additionally, the concentrations of various phenolic compounds (total phenols, flavanols, flavones, and flavonols) were analysed, as well as antioxidant capacity against four free radicals (ABTS[•], ROO[•], •OH and O₂[•]), antimicrobial, and anti-inflammatory activities.

The results showed that both vacuum drying and freeze drying yielded the highest recoveries (76% - 98%) and the highest final honey concentration in the powders (56% - 73%), regardless of the carrier used. Maltodextrin proved to be the most suitable carrier. Using maltodextrin, the powders achieved lower moisture (1.90% - 4.2%), higher solubility (21 s – 123 s), and lower hygroscopicity (6.32% - 13.68%). Powdered honey obtained with maltodextrin through vacuum drying and freeze drying exhibited the highest recoveries (88% - 98%) and the best sensory characteristics, including stronger floral aromas and flavours, greater sweetness, lower viscosity, and reduced waxy perceptions than those obtained using other procedures and carriers.

On the other hand, all drying methods and carriers retained the phenolic compounds of honey within the honey powder. The antioxidant activities of powdered honey against different free radicals (ABTS[•], ROO[•], •OH and O₂[•]) were higher than those of raw honey, while the anti-inflammatory and antimicrobial activities against several microorganisms (*Staphylococcus aureus*, *Listeria monocytogenes*, and *Escherichia coli*) were lower. The honey concentration in the powder and the type of carrier used for dehydration did not significantly affect the potentially biological studied parameters and properties.

After having characterized the ling-heather powdered honey, the last step of the study was focused on evaluating the impact of the drying method and botanical origin on the physicochemical and biological properties of powdered honeys from different botanical sources. In this case, the rest of honeys samples (thyme, lavender, vetch and multifloral) were dehydrated using vacuum drying and freeze drying with maltodextrin as the carrier, yielding a total of 18 powdered honeys that were analysed in the same way as the ling-heather samples.

The results showed that freeze drying provided the best recovery. Powdered honeys obtained by freeze drying exhibited higher moisture and solubility, as well as lower glass transition temperature, density, and hygroscopicity compared to those obtained by vacuum drying. Hygroscopicity, glass transition temperature, and antimicrobial activity against *S. aureus* depended on the drying method and honey concentration. Colour, antioxidant activity against the $O_2^{\bullet-}$ radical, and antimicrobial activity against *L. monocytogenes* depended on the botanical origin of the raw honey. Moisture, solubility, density, total phenol content, antioxidant activities against the ABTS $^{\bullet-}$ and ROO $^{\bullet}$ radicals, as well as anti-inflammatory and antimicrobial activities against *E. coli*, depended on both the drying method and honey concentration, as well as the botanical origin.

In conclusion, powdered honey demonstrated to be a feasible and promising alternative to raw honey for food, cosmetic and pharmaceutical sectors.

La miel es la sustancia natural dulce de composición compleja producida por las abejas (*Apis mellifera* L. y otras especies), a partir del néctar de las flores o de los mielatos de las plantas, con propiedades energéticas y características sensoriales atractivas.

En la actualidad existen en el mercado infinidad de alimentos industrializados que son atractivos, fáciles de preparar y poseen una gran aceptación por parte de los consumidores. En el extremo opuesto se encuentran los alimentos primarios, con una rica y variada composición química y con la invaluable cualidad de ser naturales. En este campo de los alimentos posee un lugar privilegiado la miel. Sin embargo, su alta viscosidad y pegajosidad crean múltiples problemas en su utilización y manejo.

Una alternativa a este problema es la transformación de miel cruda en miel en polvo a través de diversas tecnologías de secado entre las que se encuentran la atomización, la desecación a vacío y la liofilización, ayudadas por el uso de coadyuvantes alimentarios preferiblemente de origen natural. La miel en polvo, al tratarse de un producto deshidratado, permite obtener un alimento de fácil manejo, envasado (puede comercializarse en recipientes más ligeros y manejables que los de la miel natural) y de larga vida útil. Puede incorporarse a otros alimentos ofreciendo una enorme variedad de aromas, sabores y texturas. Permite a la industria alimentaria la utilización de un ingrediente natural muy práctico para su uso en las líneas de producción. También permite brindarle al consumidor la posibilidad de ingerir una miel natural sin las particularidades que en su forma cruda la hacen poco atractiva por su viscosidad y pegajosidad. Por último, permite al sector apícola potenciar sus oportunidades de explotación y negocio, sosteniendo el medio rural, manteniendo los ecosistemas naturales y promocionando la biodiversidad.

La presente Tesis Doctoral titulada «Obtención de miel en polvo e investigación de sus propiedades físico-químicas y biológicas», tiene como objetivo general la obtención de miel en polvo seleccionando el procedimiento tecnológico y el coadyuvante más adecuado, así como evaluar el impacto de los procesos de desecación sobre las propiedades físico-químicas, funcionales y microbiológicas del producto final, comparándolo con los valores de las mismas mieles naturales.

Para el desarrollo de este trabajo se utilizaron nueve muestras de mieles castellano-leonesas de diferentes orígenes botánicos: 3 mieles de brecina (*Calluna vulgaris*, (L.) Hull), 2 mieles de tomillo (*Thymus* sp.), 3 mieles de lavanda (*Lavandula* sp.), 1 miel de veza (Leguminosae tipo *Vicia* sp.) y tres mieles de milflores.

En una primera fase se llevó a cabo la optimización de los distintos procedimientos de secado, atomización, vacío y liofilización, usando para cada procedimiento tres coadyuvantes tecnológicos (proteína de lactosuero, goma arábica y maltodextrina de patata) y también evaluando distintas combinaciones de concentración de miel: coadyuvante con el objetivo de conseguir para cada una de las técnicas de secado, la miel en polvo con la mayor concentración de miel.

Una vez optimizadas las diferentes tecnologías, se pusieron a punto los procedimientos de secado con las condiciones elegidas de las tres mieles de brecina. Se obtuvieron veintisiete muestras de miel en polvo en las que se evaluaron distintas propiedades físico-químicas: temperatura de transición vítrea, contenido en agua, actividad de agua, higroscopicidad, color, densidad compacta, solubilidad y contenido de prolina y azúcares. Además, se realizó un análisis sensorial descriptivo. A su vez, en estas mismas muestras se evaluó la concentración de distintos compuestos fenólicos (contenido de fenoles totales, flavanoles, flavonas y flavonoles), la actividad antioxidante frente a cuatro radicales (ABTS•⁺, ROO•, •OH y O₂•⁻) y otras propiedades biológicas como la antimicrobiana y la antiinflamatoria.

Los resultados mostraron que tanto el secado a vacío como la liofilización fueron los procedimientos que proporcionaron mayores recuperaciones (76% – 98%) y mayores concentraciones finales de miel en los polvos (56% – 73%), independientemente del coadyuvante. La maltodextrina resultó ser el coadyuvante más adecuado porque con ella se logró un menor contenido en agua (1,90% – 4,20%), una mayor solubilidad (21 s – 123 s) y una menor higroscopicidad (6,32% – 13,68%). Las mieles en polvo obtenidas con maltodextrina mediante secado a vacío y liofilización mostraron mayores recuperaciones (88% – 98%) y las mejores características sensoriales, con olores y sabores florales más fuertes, mayor dulzura, menor viscosidad y menores percepciones cerosas.

Por otro lado, se verificó que todos los procedimientos de secado y coadyuvantes retuvieron los fenoles de la miel en las mieles en polvo. Las

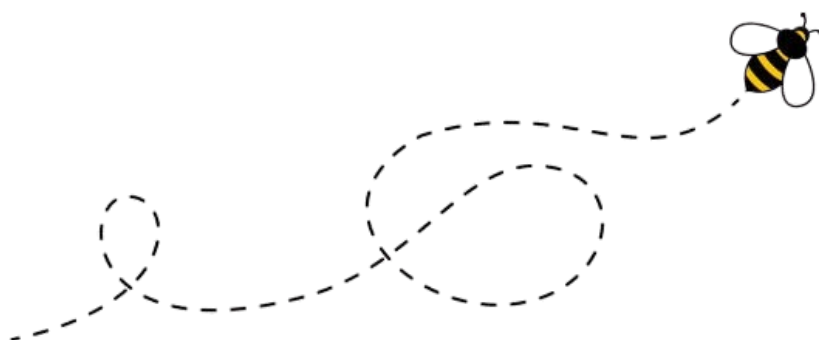
actividades antioxidantes de los polvos de miel frente a diferentes radicales libres ($\text{ABTS}^{\bullet+}$, $\text{ROO}^{\bullet}$, $\cdot\text{OH}$ y $\text{O}_2^{\bullet-}$) fueron mayores que las de las mieles crudas, mientras que las actividades anti-inflamatorias y antimicrobianas frente a varios microorganismos (*Staphylococcus aureus*, *Listeria monocytogenes* y *Escherichia coli*) de las mieles en polvo fueron menores. La concentración de miel en el polvo y el tipo de coadyuvante utilizado para la deshidratación fueron los factores clave para la calidad de las mieles en polvo. Sin embargo, el procedimiento de secado no influyó significativamente en los parámetros y propiedades estudiados.

Una vez caracterizadas las mieles en polvo de brecina, la última fase del estudio consistió en evaluar el impacto del procedimiento de secado y el origen botánico en las propiedades físico-químicas y biológicas de las mieles en polvo. En este caso, las restantes muestra de miel de distintos orígenes botánicos (tomillo, lavanda, veza y multifloral), se deshidrataron mediante secado a vacío y liofilización empleando como coadyuvante la maltodextrina, obteniéndose un total de dieciocho muestras de miel en polvo. Y se analizaron los mismos parámetros que en la primera fase del estudio.

Los resultados obtenidos mostraron que la liofilización proporcionó las mejores recuperaciones. Las mieles en polvo obtenidas mediante liofilización mostraron mayor contenido en agua y solubilidad, así como menor temperatura de transición vítrea, densidad e higroscopicidad en comparación con los obtenidos mediante secado a vacío. La higroscopicidad, la temperatura de transición vítrea y la actividad antimicrobiana frente a *S. aureus* dependieron del procedimiento de secado-concentración de miel. El color, la actividad antioxidante frente al radical $\text{O}_2^{\bullet-}$ y la actividad antimicrobiana frente a *L. monocytogenes* dependieron del origen botánico de la miel. El contenido en agua, la solubilidad, la densidad, el contenido de fenoles totales, las actividades antioxidantes frente al radical anti- $\text{ABTS}^{\bullet+}$ y anti- $\text{ROO}^{\bullet}$, así como la actividad antiinflamatoria y antimicrobiana frente a *E. coli*, dependieron tanto del procedimiento de secado-concentración de miel como del origen botánico.

Por lo tanto, se concluye que la miel en polvo ha demostrado ser una alternativa factible y prometedora del uso de la miel en la industria alimentaria, cosmética y farmacéutica.

Introducción



1. La miel

1.1. Definición de miel y tipos

La legislación define la miel como «la sustancia natural dulce producida por la abeja *Apis mellifera* a partir del néctar de plantas o de secreciones de partes vivas de plantas, o de excreciones de insectos chupadores presentes en las partes vivas de plantas, que las abejas recolectan, transforman combinándolas con sustancias específicas propias, depositan, deshidratan, almacenan y dejan en colmenas para que madure» (DOCE, 2002).

Considerando su origen, la miel puede clasificarse en dos tipos (DOCE, 2002):

- **Miel de flores o miel de néctar:** si procede del néctar de las plantas.
- **Miel de mielada:** si procede en su mayor parte de secreciones de las partes vivas de las plantas o de excreciones de insectos chupadores presentes en las partes vivas de las plantas.

1.2. Producción de la miel

El proceso de elaboración de la miel comienza con la recolección de néctar y mielato (mielada). El néctar es una solución acuosa azucarada elaborada por unas glándulas de las plantas, nectarios, cuya misión es atraer a los polinizadores. Y los mielatos son un conjunto de secreciones de partes vivas de las plantas o excreciones azucaradas producidas mayoritariamente por un gran número de especies de insectos pertenecientes a la familia *Aphididae* del orden Hemíptera (principalmente psílidos como pulgones, cochinillas y otros) que se alimentan de la savia.

La elaboración de la miel por parte de la abeja se realiza en cuatro etapas consecutivas: recolección de la materia prima por parte de las abejas pecoreadoras, aireación del contenido del buche melario, almacenamiento de la miel y operculado de la miel madura.

Cuando una abeja se posa en una flor, utiliza su lengua tubular y flexible, para extraer todo el néctar posible de los nectarios. Por otra parte, recogen las gotas de mielato depositadas sobre las hojas o ramas de las plantas que las contienen. La abeja a su vez segrega una pequeña cantidad de enzimas, como la invertasa, sobre el néctar o mielatos, que ayudan a descomponer los azúcares complejos, evitando su cristalización y facilitando su digestión. Este

proceso, llamado inversión, es clave en la elaboración de la miel (Combarros-Fuertes, 2018).

Una vez que la abeja ha recogido una cantidad suficiente de néctar o mielato, lo almacena en el buche melario, situado cerca de su estómago. Cuando ha recogido suficiente néctar o mielatos, iniciará el viaje de vuelta a la colmena. Durante este transporte de la materia prima a la colmena se inicia el proceso de hidrólisis de la sacarosa en sus dos componentes simples, la fructosa y la glucosa.

El néctar y el mielato están constituidos principalmente por agua y sólo contienen un 20% de azúcar. Para que estos se transformen en miel, el contenido de agua debe reducirse a un 18% o menos.

Al llegar a la colmena, la abeja pecoreadora transfiere el néctar libado o mielato a las abejas almacenadoras, que lo depositarán en los panales o celdas, en función del número de abejas en la colmena y la intensidad de la recolección (Combarros-Fuertes, 2018). Si se produce la transferencia entre abejas tiene lugar el llamado fenómeno de trofalaxis (Figura 1). La primera fase de deshidratación ocurre durante la transferencia de buche a buche, y supone una nueva adición de secreciones glandulares enzimáticas (que permite proseguir con la hidrólisis de la sacarosa) y comienza a concentrarse el néctar o mielato.



Figura 1. Intercambio de alimento entre dos abejas (trofalaxis) para un almacenamiento del néctar o mielato transformado. Fuente: Ivars, (s.f.).

A continuación, el néctar se deja madurar y se somete al proceso de abanico y evaporación (segunda fase de deshidratación), que lo convierte en miel.

El flujo constante de aire sobre el panal ayuda a evaporar el exceso de agua, haciendo que la solución azucarada se espese y se vuelva más viscosa. A

medida que el agua se evapora, el contenido de azúcar del néctar o mielato aumenta, dando lugar a una miel dulce y sabrosa.

Una vez que la miel ha alcanzado una humedad igual o inferior a 18%, y la consistencia y el contenido de azúcar es el deseado, las abejas cereras sellan el panal con una capa de cera (Pascual-Maté, 2016) para evitar una mayor evaporación y preservar la miel.

1.3. Obtención de la miel

La miel es un producto alimentario y como tal, el proceso de obtención requiere de unas prácticas de higiene muy cuidadosas. La miel tiende a absorber la humedad, olores, polvo y otros materiales del ambiente con el que está en contacto (Díaz-Moreno, 2009). Por esta razón el lugar destinado a la extracción de miel sólo debe utilizarse para esta operación y estar libre de todo lo que sea extraño al proceso. El cumplimiento de Buenas Prácticas de Manufactura en todas y cada una de las etapas permite la obtención de un producto natural de calidad.

Las actividades que se realizan en el proceso de obtención de la miel son las siguientes (Figura 2): selección de los cuadros con la miel adecuadamente operculada, desoperculado, extracción, filtración o depuración, maduración, envasado y almacenamiento. Algunas mieles pueden sufrir un proceso de pasteurización.



Figura 2. Etapas del proceso de obtención industrial de miel. Fuente: Elaboración propia.

1.4. Situación económica de la cabaña apícola

1.4.1. En Europa

La apicultura representa un papel importante en el desarrollo y promoción del mundo rural y en la polinización de la agricultura. La Unión Europea (UE) tiene como objeto mejorar las condiciones de producción y comercialización de los productos apícolas para mitigar los inconvenientes a la hora de mantener las colmenas y de producir la miel. Es importante tener en cuenta el aumento de costes, la alta competencia debido a la importación de mieles más baratas, la pérdida de colonias, las enfermedades y otros factores (Sobrino, 2020).

La apicultura se practica en todos los países de la UE tratándose del segundo mayor productor mundial de miel (286.000 t miel/año) después de China (Figura 3), pero a su vez también se trata de una potencia importadora de miel procedente de terceros países (principalmente de China, Ucrania y Argentina) debido a que encabeza la lista de consumidores de este producto. Los países de la UE con mayor actividad productiva de miel se localizan mayoritariamente en el centro y sur de Europa (Alemania, Francia, Rumania, España, Hungría, Italia, Polonia y Grecia) donde las condiciones meteorológicas favorecen el desarrollo de esta actividad (Figura 4) (European Commission, 2024).

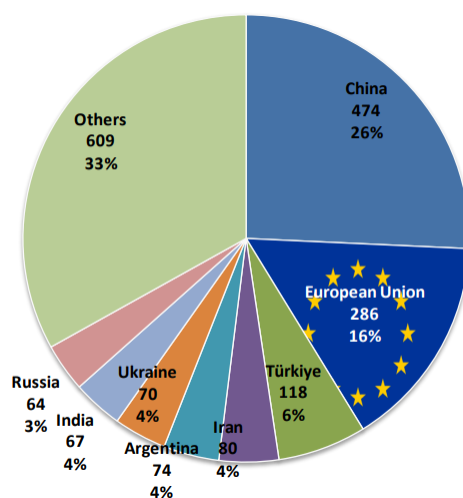


Figura 3. Representación gráfica de la producción mundial de miel por países (2022) Fuente: European Commission, 2024.

En la UE están registrados alrededor de 710.918 apicultores (datos de 2023) y 20 millones de colmenas (datos de 2022). A pesar de que el número de apicultores de la UE ha aumentado en los últimos años, tan solo el 5,2% de los apicultores tienen más de 150 colmenas y pueden ser clasificados como apicultores profesionales frente al 94,8% restante.

En virtud de los altos costes de producción, los apicultores de la UE no pueden competir con la miel importada. El precio medio de un kilo de miel

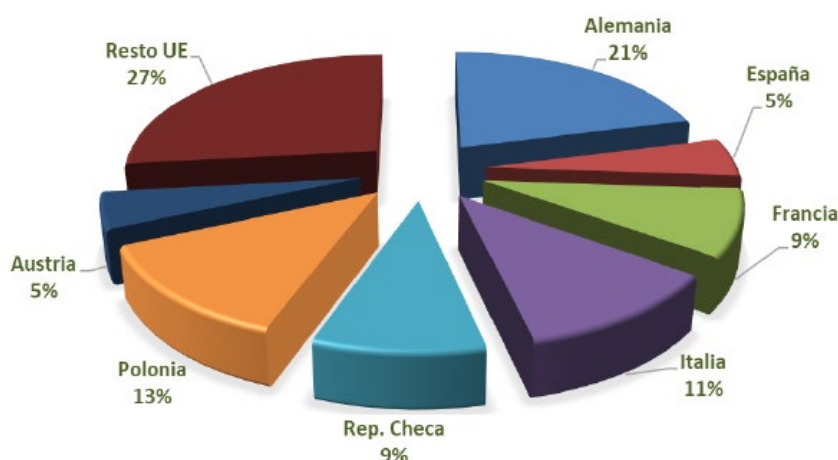


Figura 4. Número total de apicultores. Censo apícola de la UE 2022-2023. Fuente: MAPA, 2023.

importada en la UE en 2024 era 1,89 € en tanto que esta misma cantidad de miel exportada a terceros países costaba 5,74 €. Además, las exportaciones de la UE (24.879 t) son despreciables comparadas con las importaciones (163.707 t) (European Commission, 2024).

1.4.2. En España

España posee una larga tradición en el sector apícola, debido a su excelente clima y variada flora; a su vez se trata de uno de los países productores comunitarios más apreciados de miel cuya valorización económica anual se estima en 62 millones de euros (miel, cera y polen). Sin embargo, la importancia económica de este sector sobre el valor de facturación es de un 0,44% sobre la Producción Final Ganadera y un 0,17% de la Producción Final Agraria, siendo muy inferior a la de otros sectores (MAPA, 2023).

A nivel nacional, el sector ha ido aumentando el censo de colmenas progresivamente desde 1996 con 1.884.342 colmenas hasta marzo de 2024

con 2.803.668, lo que supone un descenso del 9,5% respecto al 2022. Por consiguiente, España es el país comunitario más importante relativo a la producción apícola, con un 14,14% del censo total, por delante de Rumania (11,6%), Grecia (11,1%) y Polonia (10,8%) (Figura 5) (European Commission, 2024). Por otro lado, hay que indicar que el sector refleja una gran profesionalización, sobre todo en las zonas que concentran el censo (22% Extremadura, 20% Andalucía y 14% Castilla y León), siendo el 73,8% de las colmenas de apicultores profesionales.

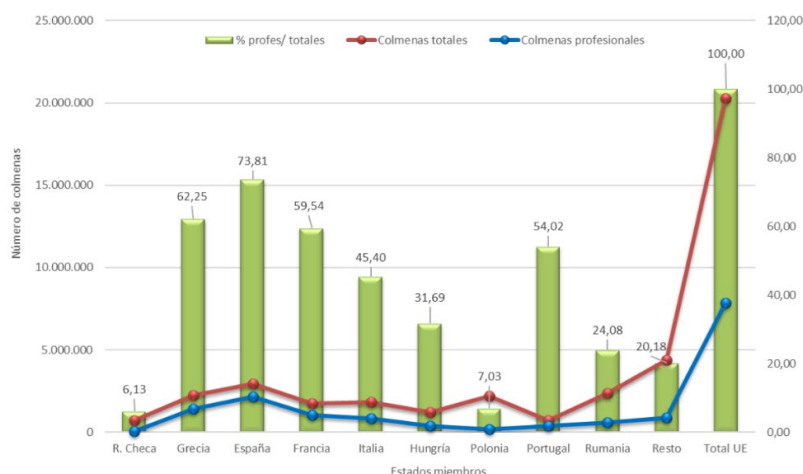


Figura 5. Censo apícola en la Unión Europea 2022. Distribución según el tipo de colmenas. Fuente: MAPA, 2023.

El número de apicultores en España entre 2020-2022 aumentó un 1,2% respecto al período de 2017-2019, siendo 36.494 los apicultores censados. Aproximadamente el 12,87% son profesionales, lo que supone uno de los niveles más altos de profesionalización de la UE, junto a Bulgaria y Grecia.

El número de explotaciones apícolas en España han aumentado en torno al 55% en el período comprendido entre el 2010 y el 2024, sin embargo, no aumentó el porcentaje de profesionalización (aquellas con más de 150 colmenas) manteniéndose estable durante estos últimos años (17% explotaciones profesionales). La apicultura española profesional se caracteriza por ser fundamentalmente trashumante, de manera que los apicultores trasladan sus colmenas a los lugares donde se produce la floración, mientras que los apicultores no profesionales utilizan los sistemas estantes cuyo consumo va destinado fundamentalmente al hogar y se localizan principalmente en la zona norte del país.

La producción de miel en España se sitúa en torno a las 27.423 t (año 2023) (Figura 6), la cual ha sufrido un descenso respecto a años anteriores (35.279 t en 2003, 34.624 t en 2011, 36.394 t en 2018 y 33.376 t en 2019), producido por unas condiciones climáticas desfavorables.



Figura 6. Evolución histórica de la producción de miel y cera en España (toneladas). Fuente: MAPA, 2023.

La mayor producción de miel, que concentra el 60% del total de la producción en España (Figura 7), se sitúa en cuatro Comunidades Autónomas (CCAA): Comunidad Valenciana (16,6%), Castilla y León (16%), Andalucía (14,4%) y Extremadura (13%), coincidiendo con las CCAA con mayor censo de colmenas.

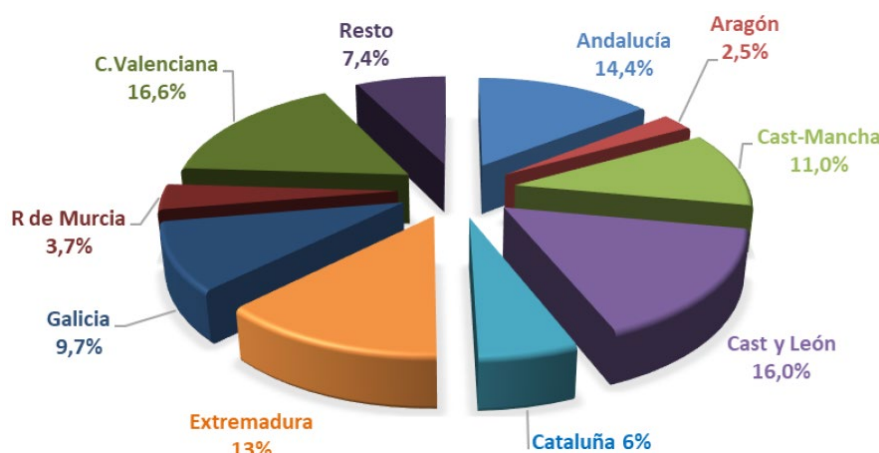


Figura 7. Producción de miel en España distribuida por Comunidades Autónomas en el año 2023 (toneladas). Fuente: MAPA, 2023.

Durante 2023, las importaciones de miel por parte de España fueron de 31.380 t (6.265 t menos que en 2022), cantidad superior a la producida en el propio país el pasado año. De esa cantidad, 16.313 t sería miel extracomunitaria y 15.067 t miel de la UE. Un 43,1% de las importaciones españolas de miel llegaron desde China, con 8.124 t; otro 19,7% (3.715 t) procedieron de Argentina (3.715 t); y un 12,1% de Ucrania con 2.157 t.

Por el contrario, las exportaciones de miel fueron de 27.762 t (397 t menos respecto a 2022), unas 20.681 t se dirigieron a otros países de la UE y 7.080 t a destinos extracomunitarios. En 2015 se llevó a cabo el mayor volumen de miel exportada con 30.028 t. Un 32,8% (6.788 t) de las exportaciones españolas de miel hacia la UE se dirigieron a Francia; otro 24% (4.961 t) a Alemania; y un 14,2% (2.944 t) a Portugal.

2. Principales componentes de la miel

La miel se ha empleado desde tiempos muy remotos como edulcorante y en preparados medicinales. Se trata de un alimento muy complejo, cuya composición varía debido a dos factores elementales (Mato, 2004):

- Composición del néctar o mielato del que procede.
- Especie/Raza de abeja.
- Factores externos como las condiciones climáticas, la zona geográfica, la maduración, paso del tiempo, estado de la colmena, así como operaciones llevadas a cabo por los apicultores como la extracción de la miel, los cuales afectan en un menor grado a la composición.

Desde el punto de vista químico, la miel se podría definir como un alimento natural principalmente compuesto de azúcares y agua. También están presentes compuestos como enzimas, vitaminas, ácidos orgánicos, proteínas, minerales, aminoácidos, compuestos fenólicos, sustancias aromáticas, pigmentos, ceras, granos de polen, en proporciones inferiores al 1% y no por ello menos importantes ya que van a ser determinantes en características que diferencian a las mieles como el color, el aroma y el sabor (Alvarez-Suarez, 2017; Belitz et al., 2009; Sáenz & Gómez, 2000; Mato, 2004).

La cantidad de agua en la miel varía entre el 16 y 18% e influye claramente en fenómenos como la fermentación y la granulación, y en otras propiedades como la viscosidad, densidad y características organolépticas (Mato, 2004).

2.1. Carbohidratos

La mezcla de azúcares más representativa de la miel es la formada por los monosacáridos fructosa (F) y glucosa (G), pero también contiene algunas cantidades de otros azúcares complejos. Esta solución sobresaturada de azúcares solo es posible producirla a temperatura de la colmena (30 °C) y con la acción de la enzima invertasa, secretada por las glándulas hipofaríngeas de las abejas, que invierten la sacarosa, del néctar o mielato, en glucosa y fructosa (Alvarez-Suarez, 2017). La composición de azúcares depende principalmente del origen botánico de la miel, origen geográfico, climatología, procesamiento y el almacenamiento (da Silva et al., 2016). Estos carbohidratos principalmente son los responsables de ciertas propiedades físicoquímicas y sensoriales de la miel como el sabor, la viscosidad, la granulación y la higroscopicidad (Cavia et al., 2007; Juan-Borrás et al., 2014).

Los monosacáridos representan alrededor del 75% de los azúcares que se encuentran en la miel, junto con un 10 - 15% de disacáridos y pequeñas cantidades de otros azúcares (da Silva et al., 2016).

Durante el almacenamiento, la composición de azúcares de la miel continúa cambiando debido a la acción de las enzimas y la temperatura. Cuando el almacenamiento de la miel se realiza a temperaturas inferiores a las de la colmena, algunos de los azúcares, especialmente glucosa y fructosa, pueden cristalizar. En general, la cristalización lenta de la miel ocurre cuando la relación glucosa/contenido de agua es inferior a 1,7, mientras que cuando esta relación es mayor a 2,0 el proceso es rápido y tiene lugar por completo (Dobre et al., 2012).

2.2. Proteínas

El contenido proteico de la miel es muy bajo, aproximadamente de 0,5%, y procede del néctar o del mielato (enzimas y aminoácidos libres), del polen de las flores y de las propias abejas (Bogdanov et al., 2008; da Silva et al., 2016; León-Ruiz, 2013). Entre las proteínas destacan las albúminas, globulinas, proteasas y los nucleoproteídos (Cavia, 2002).

La presencia de enzimas en la miel permite diferenciar la miel de otros edulcorantes (Juan-Borrás, 2016). Las diastasas o amilasas son las enzimas más importantes ya que hidrolizan el almidón en glucosa. Otras enzimas a destacar son: las invertasas o sacarasas (conversión de azúcares) (Juan-

Borrás, 2016; Sobrino, 2020), la glucosa oxidasa (contribuye a la acidez y actividad antibacteriana de la miel) (Alvarez-Suarez, 2017; Sobrino 2020), la catalasa (eliminación del peróxido de hidrogeno) y la fosfatasa ácida (formación de fosfatos e indicador de los procesos de fermentación) (Alonso-Torre et al., 2006).

Los aminoácidos libres representan aproximadamente el 1% (p/p) de los constituyentes de la miel, provenientes principalmente del néctar, polen y de las propias abejas (Alvarez-Suarez, 2017; da Silva et al., 2016). El aminoácido más abundante en la miel es la prolina y representa entre 50 - 85% de la fracción de estos compuestos, seguido de la fenilalanina (Belitz, 2009; Iglesias et al., 2006; Sobrino, 2020; Truzzi et al., 2014).

2.3. Lípidos

Los lípidos están presentes en la miel aproximadamente en un 0,04% y provienen principalmente del polen y de posibles restos de cera (Díaz-Moreno, 2009; Sobrino, 2020).

2.4. Ácidos orgánicos

Los ácidos orgánicos están presentes en la miel en cantidades alrededor de 0,5 - 0,6%, favoreciendo la protección de la miel frente a la acción microbiana e influyen en las propiedades organolépticas (color y sabor) y físicoquímicas (acidez, pH y conductividad eléctrica) (Cavia, 2002; Díaz-Moreno, 2009; Mato et al., 2006). Los valores de pH oscilan entre 3,4 y 6,4 aproximadamente (Díaz-Moreno, 2009). El ácido orgánico predominante es el ácido glucónico que se forma por oxidación enzimática de la glucosa (Sáenz & Gómez, 2000).

2.5. Minerales y oligoelementos

El contenido de minerales en la miel oscila entre 0,04% en mieles claras y 0,2% en mieles oscuras (Alqarni et al., 2014). Este parámetro varía en función del origen botánico, las condiciones edáfico-climáticas y las técnicas de extracción (De Lorenzo, 2002; Díaz-Moreno, 2009).

El elemento mayoritario es el potasio (80%) seguido del cloro, azufre, sodio, calcio, fósforo, magnesio, manganeso, silicio, hierro y cobre (Díaz-Moreno, 2009; Sobrino, 2020).

2.6. Vitaminas

Las vitaminas de la miel proceden del néctar y del polen de las plantas y están presentes en cantidades muy pequeñas por lo que no contribuyen al valor nutricional (Díaz-Moreno, 2009; Sobrino, 2020).

La vitamina C (ácido ascórbico) es la predominante en las mieles y se ha evaluado principalmente por su efecto antioxidante, siendo su contenido medio de alrededor de 2 mg/100 g (Alvarez-Suarez, 2010; da Silva et al., 2016).

2.7. Pigmentos

Los pigmentos en la miel son escasos pero interesantes, ya que determinan significativamente su color, una de las características comerciales más importantes debido a su relación con el origen botánico (Visquert, 2015). Existen dos tipos de pigmentos, hidrosolubles (polifenoles y antocianinas) y liposolubles (β -caroteno y xantofilas) (Combarros-Fuertes, 2018). Las mieles claras contienen principalmente pigmentos liposolubles, mientras que las mieles oscuras contienen en su mayoría pigmentos hidrosolubles (Díaz-Moreno, 2009).

2.8. Compuestos volátiles

Los compuestos orgánicos volátiles, se encuentran presentes en la miel en concentraciones muy bajas como una mezcla compleja que incluye hidrocarburos, aldehídos, cetonas, ácidos y ésteres, derivados del benceno, furanos y piranos, terpenos y sus derivados, así como otros compuestos heterocíclicos (Fratianni et al., 2024; Khalil et al., 2023).

Los compuestos orgánicos volátiles, que contribuyen al aroma de la miel, varían en calidad y cantidad debido a varios factores, como las especies de plantas que proporcionan el néctar, la acción de las abejas, el área geográfica, el entorno, las condiciones de procesamiento y almacenamiento, la tecnología de cosecha y la acción de los microorganismos.

2.9. Compuestos fenólicos

Los compuestos fenólicos son uno de los grupos más numerosos de metabolitos secundarios de las plantas, biosintetizados principalmente para la protección contra el estrés biótico y abiótico y daño oxidativo (eliminando los radicales libres e inhibiendo la oxidación de lípidos), y son transferidos a

través del néctar a la miel (Alvarez-Suarez, 2017). Según su estructura química se dividen en dos grupos: no flavonoides (ácidos fenólicos) (Figura 8) y flavonoides (flavonas, flavonoles, flavanonas, flavanoles, antocianidinas, isoflavonas y chalconas) (Figura 9) (Andersen & Markham, 2006; Juan, 2001). Los flavonoides influyen en las cualidades organolépticas de la miel y han sido considerados como indicadores del origen floral y geográfico de la miel (Fennema, 2000; Juan, 2001).

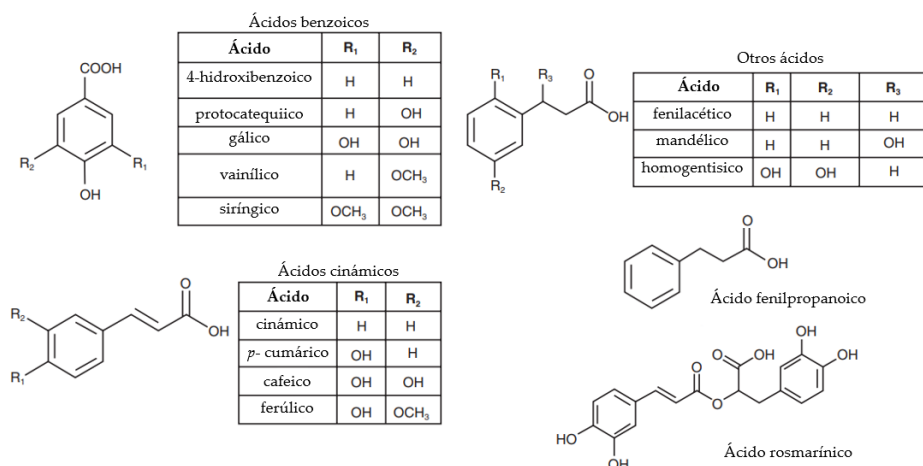


Figura 8. Estructura de los principales ácidos fenólicos descritos en la miel. Fuente: Adaptado de Alvarez-Suarez, 2017.

El origen botánico determina el perfil de flavonoides y compuestos fenólicos y permite la diferenciación en base al predominio de algunos componentes o grupo de compuestos en la miel (marcador químico) (Alvarez-Suarez, 2017).

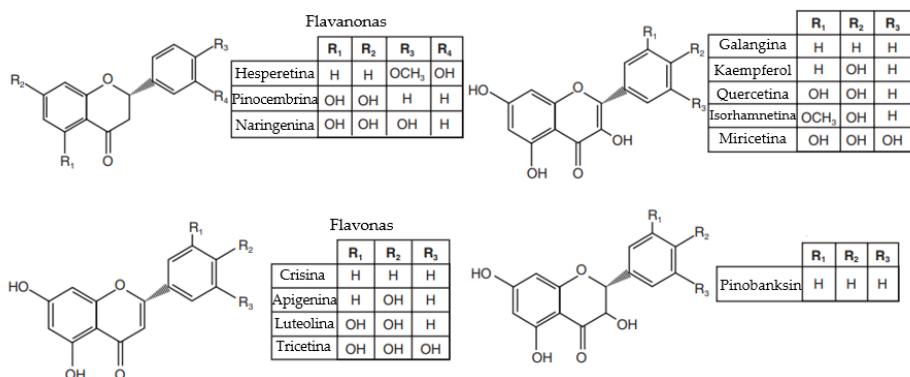


Figura 9. Estructura de los principales flavonoides descritos en la miel. Fuente: Adaptado de Alvarez-Suarez, 2017.

3. Propiedades físico-químicas de la miel

La miel, al igual que el resto de los alimentos, presenta propiedades físicas cuyo conjunto determina su calidad, y que son responsables de la aceptación por parte del consumidor. También posee propiedades químicas susceptibles a la variabilidad dependientes de muchos factores como: origen botánico, naturaleza del suelo, tipo de abejas, fortaleza de la colmena y las condiciones de conservación de la miel. Los distintos componentes de la miel en su conjunto le confieren propiedades químicas específicas para cada tipo de miel.

Alguna de las propiedades importantes son la conductividad eléctrica, el índice de refracción, la densidad, la viscosidad, la cristalización, el color, el pH, la acidez libre, láctónica y total, la humedad, la actividad de agua (A_w). A continuación, se describen algunas de ellas.

3.1. Densidad

La densidad de una sustancia es la relación entre su masa y su unidad de volumen para una temperatura constante (Baglio, 2018). Debe tenerse presente que el valor de la densidad depende del contenido de agua de la muestra y de la temperatura a la cual se lleva a cabo la medición. Ésta varía entre 1,30 y 1,44 g/l a 20 °C dependiendo del tipo de miel (Crane, 1975; Dadant, 1975; Sáenz et al., 2000; Sepúlveda, 1986).

3.2. Viscosidad

La viscosidad se define como la resistencia interna de los fluidos frente a una fuerza externa (Baglio, 2018). Esta propiedad varía según el origen floral y es altamente dependiente de la temperatura, disminuyendo su valor al aumentar esta última (Fattori, 2004). Además, el calentamiento durante el procesamiento de la miel disuelve los cristales, concentra el producto y garantiza la estabilidad microbiológica y física (Singh & Bath, 1997). Por otro lado, influye en el porcentaje de agua y la relación fructosa/glucosa, de manera que a mayor cantidad de fructosa las mieles son menos viscosas y a mayor cantidad de azúcares superiores mayor es la viscosidad (Díaz-Moreno, 2009).

Con arreglo a la viscosidad, la gran mayoría de las mieles se pueden definir como fluidos newtonianos. No obstante, ciertos tipos de mieles presentan un

comportamiento no newtoniano, debido a la presencia de compuestos de alto peso molecular (dextranos), como por ejemplo la de eucalipto (Díaz-Moreno, 2009; Talenque, 2019). Otras mieles presentan flujos pseudoplásticos y tixotrópicos, al ser agitadas su viscosidad disminuye, esto es debido a su alto contenido de proteínas cuya presencia depende del origen floral de la misma (Stelmakienè et al., 2012; Witczak et al., 2011). La miel de brechina (*Calluna spp.*) presenta este fenómeno (Fattori, 2004). La tixotropía confiere a las mieles una estructura similar a un gel, lo que dificulta su extracción de los panales y su manipulación.

Por lo tanto, es una propiedad importante para el manejo y procesado ya que afecta a las propiedades tecnológicas, ya que cuanto más viscosa es más difícil es su homogeneización (Talenque, 2019). Además, influye en la aceptación de los consumidores, al contribuir en su percepción organoléptica (Escriche et al., 2017).

3.3. Cristalización

La cristalización de las mieles es un fenómeno físico complejo. La miel es una solución sobresaturada de azúcares que alcanza el equilibrio con la cristalización y se refleja a través de su tendencia a granular en la mayoría de los casos (Crane, 1975). Esta característica es debida a la precipitación de los cristales de glucosa cuyo crecimiento provoca la separación de la miel en dos fases, una fase sólida constituida por cristales de glucosa y otra fase superior líquida con un mayor contenido en agua, lo cual favorece el crecimiento microbiano y las fermentaciones (Graça, 1987) y a su vez condiciona la aceptación por parte de los consumidores (Sancho et al., 1991).

La cristalización varía en función de varios factores como el contenido en agua, composición en azúcares (principalmente glucosa y fructosa) y temperatura de conservación. Esta afecta en gran medida al color y la textura de la miel, dejando inalterado el resto de las propiedades de la miel líquida (Talenque, 2019).

3.4. Temperatura de transición vítrea (T_g)

Una propiedad importante para el manejo de la miel y relacionada con la viscosidad y cristalización es la temperatura de transición vítrea. La miel en estado líquido, actúa como un vidrio viscoso donde los azúcares están en una forma amorfa. Al bajar la temperatura, su viscosidad aumenta. Si se

enfria rápidamente, alcanza una viscosidad de aproximadamente 10^{12} Pa·s, comportándose como un sólido y ralentizando las reacciones químicas. Al calentarla lentamente, la miel empieza a fluir nuevamente a una viscosidad de alrededor de 10^7 Pa·s, lo que permite la movilidad molecular y acelera las reacciones. Esta temperatura se denomina temperatura de transición vítrea (T_g) y para la miel se sitúa entre - 40 y - 50 °C. Conocer la T_g es importante para el procesamiento y almacenamiento de la miel, ya que por debajo de esta temperatura la cristalización se detiene debido a la falta de movilidad molecular (Bhandari et al., 1999). Al tener una baja T_g , la miel a temperatura ambiente es pegajosa y muy difícil de trabajar con ella. Esa baja T_g en las mieles es debida a la baja T_g de los monosacaridos (31 °C para glucosa y 5 °C para fructosa). Además, la T_g se ve muy influenciada por el contenido de humedad de la miel, ya que el agua actúa como plastificante, disminuyendo aún más su valor. Por lo tanto, la T_g es la temperatura a la cual una sustancia cambia de un estado sólido-vítreo (10^{12} Pa·s) a un estado líquido gomoso (10^6 - 10^7 Pa·s) (Samborska, 2019).

3.5. Color

El color es una propiedad óptica de la miel, resultado de los distintos grados de absorción de luz a diferentes longitudes de onda por parte de los componentes de este alimento (FAO, 1990).

El color de la miel varía mucho desde blanco (algunas son incoloras) a pardo oscuro casi negro, pasando por tonalidades de amarillo (miel de girasol), ámbar, rojizo (miel de brezo), verdoso (miel de tomillo) y marrón (Talenque, 2019).

La variabilidad de colores puede ser debida a la presencia de pigmentos como carotenos, xantofilas y a compuestos fenólicos, como flavonoides, que se encuentran en el néctar de las flores (Huidobro & Simal., 1984), de ahí que el color se relacione con el origen botánico de la miel e incluso con su composición.

Así mismo, este parámetro depende de otros muchos factores como son las características climatológicas y ambientales, el estado de maduración, la presencia de impurezas, contenido de cenizas, la temperatura en la colmena, el tiempo de almacenamiento (Gámbaro et al., 2007; Silva et al., 2016) y el estado de cristalización (León-Ruiz, 2013).

La determinación del color resulta una herramienta útil para la clasificación de las mieles y a su vez resulta importante para el consumidor a la hora de su adquisición (Zandamela, 2008).

La Comisión Internacional de Color (CIE) a través del sistema CIELab, posiciona el color en el espacio que se define por una combinación de las coordenadas cilíndricas y cartesianas donde un punto se asocia a un solo color. Las coordenadas del sistema CIELab son: claridad o luminosidad (L^*), cromaticidad rojo/verde (a^*), cromaticidad amarillo/azul (b^*), croma o intensidad (C^*) y el ángulo de tono (h^*). Cuando el valor de a^* (eje de abscisas) es positivo mostrará la desviación en el sentido de la tonalidad roja y cuando el valor es negativo mostrará la desviación en el sentido del verde. En el caso de b^* (eje de ordenadas) cuando el valor es negativo mostrará la desviación en el sentido de la tonalidad amarilla, y cuando es positivo mostrará la desviación en el sentido de la tonalidad azul. La coordenada L^* (eje Z) va de 0 (negro) a 100 (blanco).

3.6. Humedad

El contenido en agua de la miel es un factor determinante en su calidad, no solo porque influye en sus características organolépticas (viscosidad, condiciones de palatabilidad y sabor), sino, además por condicionar su vida útil (Bogdanov et al., 2002; Bogdanov et al., 2004; Sáenz & Gómez, 2000). La miel absorbe humedad del ambiente, al ser higroscópica, por lo que las condiciones de almacenamiento y las operaciones de procesamiento deben ser adecuadas para evitar este problema (Karabagias et al., 2014).

El valor máximo de humedad en la miel no debe exceder de 20 g/100 g (Codex Alimentarius, 2001). Si se superan estos valores es susceptible de fermentación, lo que daría lugar a una variación de las propiedades organolépticas, peso específico, viscosidad y, en consecuencia, disminución de su valor económico en el mercado (De Lorenzo, 2002). Las mieles con un contenido alto de humedad (20-23%) favorecen el crecimiento de levaduras osmófilas, mientras que las mieles con un porcentaje de humedad inferior al 14% son excesivamente viscosas y difíciles de extraer y manipular (Estupiñán et al., 1998; Visquert, 2015).

3.7. A_w

La actividad de agua (a_w) permite reflejar de manera más exacta la disponibilidad potencial del agua en el alimento para los microorganismos, que la expresión del contenido total de humedad del producto (Zandamela, 2008).

Es un parámetro útil para prever el estado y la estabilidad de un alimento en relación con sus propiedades físicas, la velocidad de las reacciones de alteración, la actividad enzimática y el crecimiento y desarrollo de los microorganismos (Labuza et al., 1976).

La miel generalmente tiene una a_w entre 0,500 y 0,650, valores por encima de 0,600 representan un umbral crítico para la estabilidad microbiana (Acquarone, 2004).

4. Potenciales propiedades biológicas de la miel

La miel ha sido utilizada por los humanos desde hace más de 5000 años, con fines nutricionales y medicinales (Samarghandian et al., 2017). Este producto tiene una amplia gama de propiedades y aplicaciones (Kurek-Górecka et al., 2020), al tratarse de una mezcla compleja, que se origina a partir del néctar de las plantas, el polen y las propias abejas (Brudzynski et al., 2017). Varios estudios han revelado que la miel tiene numerosas propiedades biológicas como cicatrizante de heridas (Couquet et al., 2013), antioxidante, antimicrobiano, nematocida, antimutagénico y anti-inflamatorio (Rafael et al., 2021). De hecho, actualmente este producto natural representa una rama de la medicina alternativa, llamada apiterapia (Bourlioux 2013; Mandal & Mandal 2011).

Por sus propiedades cicatrizante y antimicrobiana, la miel se utiliza desde hace mucho tiempo para el tratamiento de infecciones de la piel (Moody et al., 2011), habiéndose empleado en heridas infectadas (Hegazi et al., 2017) y heridas crónicas (Eteraf-Oskouei & Najafi 2013), quemaduras infectadas (Hananeh et al., 2015), heridas posquirúrgicas infectadas, escaras (Ahmed et al., 2003) e infecciones del tracto respiratorio infantil (Oluwapelumi et al., 2017).

4.1. Actividad antioxidante

El estrés oxidativo se caracteriza por un desequilibrio a favor de los agentes oxidantes sobre los antioxidantes. Causa daño oxidativo, que puede afectar a una variedad de actividades fisiológicas, siendo a su vez la base del daño estructural y funcional de las principales biomoléculas como ácidos nucleicos, lípidos y proteínas. Este tipo de lesiones conducen al desarrollo de varias enfermedades, como el cáncer, los trastornos metabólicos y las disfunciones cardiovasculares.

Los oxidantes primarios en los sistemas biológicos son los radicales libres, las especies reactivas de oxígeno (ROS) tales como el anión superóxido (O_2^-), el radical hidroxilo ($\cdot OH$) o el radical peróxilo ($ROO\cdot$), las especies reactivas del nitrógeno (RNS) tales como el anión peroxinitrilo ($ONOO^-$), el monóxido de nitrógeno ($\cdot NO$) y el dióxido de nitrógeno ($\cdot NO_2$) y las especies reactivas de azufre (RSS) tales como el radical tiilo ($RS\cdot$), los ácidos sulfénicos ($RSOH$) y los óxidos de disulfuro ($RS(O_2)SR$) (Becerril-Sánchez et al., 2021; León-Ruiz, 2013). Estos se forman fisiológicamente en varios procesos bioquímicos celulares que tienen lugar en el organismo, como la síntesis aeróbica de oxígeno en las mitocondrias, el metabolismo de ácidos grasos, la metabolización de medicamentos y la actividad inmunitaria de sistemas (Banerjee et al., 2016; Hussain et al., 2016; Yang et al., 2013); también pueden ser creados por fuentes externas como la contaminación, un inadecuado estilo de vida, rayos UV, radiaciones ionizantes y efectos psicofísicos del estrés por un ejercicio físico extenuante (Pham-Huy et al., 2008).

Los antioxidantes son compuestos que pueden transferir hidrógeno o un electrón a los radicales libres, neutralizando, reduciendo o eliminando su capacidad para dañar células y macromoléculas clave, incluidos ácidos nucleicos, proteínas y lípidos (Lobo et al., 2010) (Figura 10). De manera que, los compuestos antioxidantes cuando se encuentran con un radical libre y ceden un electrón, permiten que el radical libre se estabilice y se detenga la reacción en cadena, dejando así de generar radicales libres. Por otro lado, el antioxidante se oxida y se convierte en una sustancia inocua (León-Ruiz, 2013).

Para reducir los efectos negativos del estrés oxidativo, el sistema de defensa endógeno del cuerpo humano produce enzimas antioxidantes y compuestos no enzimáticos, como glutatión, vitaminas, coenzima Q, entre otros. Sin embargo, requiere de ayuda externa para modular estos efectos negativos

con mayor eficacia. Los compuestos antioxidantes de la dieta se consideran ayudas externas, ya que se obtienen durante la ingestión de alimentos, la mayoría de ellos están presentes en alimentos hortofructícolas y otras fuentes del reino vegetal y animal (Palma & Seiquer, 2020).

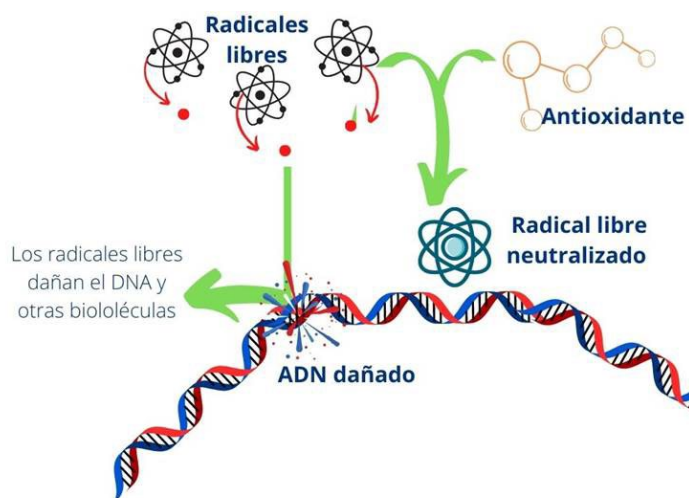


Figura 10. Mecanismos de acción de antioxidantes. Fuente: Abril-Ibarra, 2022.

Se ha demostrado en estudios recientes que la miel posee un gran potencial como antioxidante natural (Hegde et al., 2023; Lakhmili et al., 2024; Zapata-Vahos et al., 2023; Zhang et al., 2024) debido a los altos niveles de componentes anti-radical que presentan ciertos tipos de mieles. Los compuestos fenólicos contribuyen significativamente al poder de esta actividad, pero a pesar de ello, parece que la actividad antioxidante es el resultado de la actividad combinada de los compuesto fenólicos de la miel (flavonoles, flavonas y flavonones), ácidos fenólicos (ácido benzoico y ácido cinámico) y otros ácidos orgánicos (ácido oxálico, glucónico, málico y cítrico), algunas enzimas (glucosa oxidasa, catalasa, peroxidasa, entre otras), ácido ascórbico, carotenoides, productos de la reacción de Maillard, péptidos y proteínas (Kristbergsson & Ötles, 2016; León-Ruiz, 2013). Además, alguno de estos compuestos ha demostrado tener actividad antioxidante tanto *in vitro* como *in vivo* (Alevia et al., 2021; Zammit & Blundell, 2023). La composición de la miel varía significativamente en función del origen botánico del que provenga, lo que influye en la cantidad y tipo de sustancias antioxidantes presentes y, por ende, en la capacidad de su actividad antioxidante. De forma general, las mieles más oscuras y turbias contienen

más compuestos fenólicos y como consecuencia su actividad antioxidante es mayor en comparación con las de color más claro y transparente (Combarros-Fuertes, 2018; Zammit & Blundell, 2023).

También se ha observado que factores como los cambios ambientales o estacionales, las condiciones de procesamiento y almacenamiento o el material de envasado pueden afectar a la capacidad antioxidante de la miel (Gheldof & Engeseth, 2002; Manickavasagam et al., 2024).

4.2. Actividad antibacteriana

Desde el descubrimiento de la penicilina en los años 40, la síntesis y utilización de diversos antibióticos han tenido un impacto muy positivo en la salud y el bienestar humanos (Lobanovska & Pilla, 2017). Sin embargo, el alarmante aumento en la aparición de cepas bacterianas resistentes a estos medicamentos ha complicado el tratamiento de las infecciones bacterianas con los antibióticos disponibles, lo que ha resultado en un incremento de la morbilidad y la mortalidad. Las bacterias han desarrollado varios métodos para adquirir genes de resistencia o modificar sus genes existentes con el fin de resistir a ciertos antibióticos. Estos mecanismos han mejorado la supervivencia y adaptabilidad tanto de microorganismos patógenos como no patógenos (Khataybeh et al., 2023).

Algunas sustancias naturales son reconocidas por sus propiedades antibacterianas, aunque solo unas pocas han demostrado ser realmente efectivas. La miel, sin embargo, ha continuado demostrando su notable eficacia antibacteriana (Abuelgasim et al., 2021; Holubová et al., 2021) contra bacterias Gram-positivas (*Streptococcus pyogenes*, *Mycobacterium tuberculosis*, *Staphylococcus aureus* resistente a la meticilina, *Streptococcus pneumoniae*, *Streptococcus agalactiae*) y Gram-negativas (*Escherichia coli*, *Pseudomonas aeruginosa*, *Salmonella typhi*, *Salmonella paratyphi*, *Salmonella enterocolitis*, *Shigella dysenteriae*, *Shigella flexneri*) (Al-Kafaween et al., 2023).

La mayor parte de la actividad antibacteriana y de las propiedades potencialmente medicinales de la miel contra un amplio espectro de bacterias se han atribuido tanto a sus características físicas (alta osmolaridad y acidez) como a sus componentes químicos, principalmente peróxido de hidrógeno (formado por oxidación de la glucosa a ácido glucónico por la enzima glucosa oxidasa) y otros compuestos denominados no-peróxido (compuestos fenólicos, metilglioxal, péptidos antimicrobianos) (Figura 11)

(Almasaudi, 2021; Nolan et al., 2019). Todos estos componentes y propiedades están presentes en diferentes tipos de miel en diversos grados, dependiendo de los diferentes orígenes botánicos, orígenes geográficos, fuentes entomológicas, condiciones climáticas y tiempos de almacenamiento de la miel (Khataybeh et al., 2023). Además, la naturaleza higroscópica de la miel y la alta interacción con moléculas de azúcar deja muy pocas moléculas de agua disponibles para los microorganismos, y complementa su acción antibacteriana (Khataybeh et al., 2023; Olaitan et al., 2007).

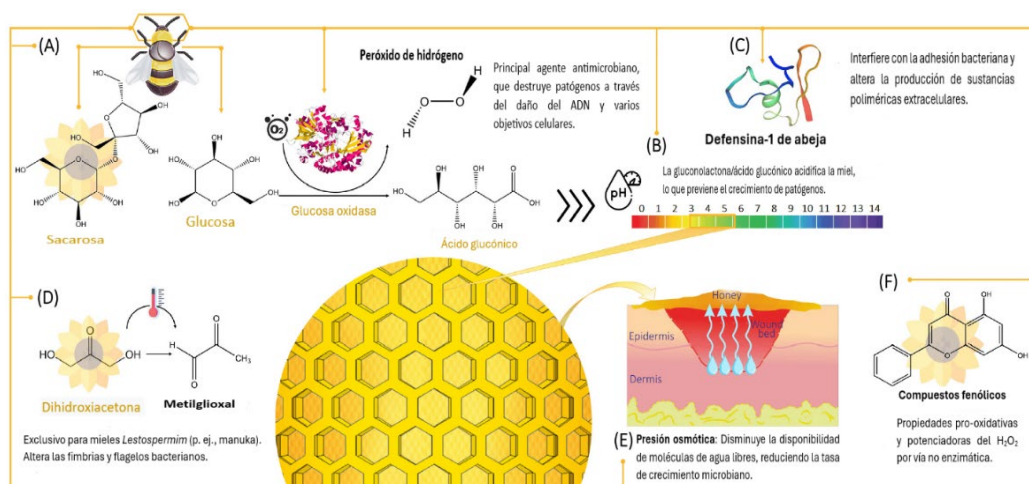


Figura 11. Componentes antimicrobianos clave de la miel. (A) Peróxido de hidrógeno, (B) Acidez, (C) Defensina-1, (D) Metilglioxal, (E) Osmolaridad y (F) Compuestos fenólicos. Fuente: Adaptado de Yupanqui-Mieles et al., 2022.

4.3. Actividad anti-inflamatoria

La inflamación es una respuesta protectora del sistema inmunológico que puede ser desencadenada por estímulos patógenos y no patógenos, como bacterias, hongos, parásitos, sustancias tóxicas y lesiones tisulares. Sin embargo, la aparición de una inflamación descontrolada junto con la presencia de estrés oxidativo podría conducir al desarrollo de afecciones inflamatorias crónicas (Ranneh et al., 2021).

La actividad anti-inflamatoria se lleva a cabo mediante varios mecanismos moleculares, principalmente a través de la inhibición de la activación del complemento, la infiltración de células inflamatorias, la producción de citocinas, la fagocitosis de macrófagos y la producción de óxido nítrico (Poulsen-Silva et al., 2023).

La miel debido a sus propiedades inmunomoduladora, antioxidante y antimicrobiana puede utilizarse como tratamiento alternativo en una amplia gama de trastornos inflamatorios agudos o crónicos humanos, incluyendo cicatrización de heridas, asma, diabetes tipo 2, enfermedades cardiovasculares y gastrointestinales (El-Seedi et al., 2022).

Las propiedades anti-inflamatorias de la miel pueden atribuirse a los compuestos fenólicos y flavonoides, a su bajo pH y alto contenido en azúcares (Poulsen-Silva et al., 2023).

Además, la capacidad de la miel para eliminar los radicales libres debido a sus componentes antioxidantes ayuda a mitigar el estrés oxidativo, un factor clave de la inflamación (Oryan et al., 2016).

5. Usos de la miel en alimentos y sus inconvenientes

En la industria alimentaria, existe un interés en los productos de las abejas, como la cera, los propóleos, la miel y el polen, debido a su composición única y propiedades bioactivas. Estos productos ofrecen un gran potencial para sustituir edulcorantes, conservantes, recubrimientos y grasas de origen químico, contribuyendo así a mejorar la calidad, seguridad y funcionalidad de los alimentos de manera sostenible e innovadora (Maicelo-Quintana et al., 2024).

La miel se utiliza ampliamente tanto a pequeña escala como a nivel industrial en panadería, confitería, cereales de desayuno, productos lácteos, aderezos y salsas, carnes y pescados, barritas de snack dulces, helados, bebidas no alcohólicas, y frutas y verduras (Tabla 1).

La industria panadera es, indudablemente, la principal usuaria de miel. La miel tiene un papel importante en el procesamiento de productos horneados, como panes, pasteles, galletas o magdalenas (entre otros), proporcionando ventajas en cuanto a sabor, calidad de conservación y textura (Conforti & Lupano, 2004; Hercegová et al., 2019; Kazanci et al., 2024; Rana, 2014; Vaclavik & Christian, 2014;). En la producción de caramelos, la miel se utiliza solo en pequeñas cantidades, ya que su higroscopicidad presenta una desventaja importante, debido a que reduce el tiempo de conservación y humedece la superficie, lo que hace que se peguen entre sí (Seth & Mishra, 2011). Varios productos de cereales para el desayuno utilizan mieles en sus

Tabla 1. Usos de la miel en diferentes productos alimenticios

Producto	Cantidad de miel	Objetivo	Referencia
Productos de panadería			
Pasteles y galletas (Cookies)	60, 80 y 100%	Sustituir los azúcares refinados	Kazanci et al., 2024
Pan	10 – 50%	Edulcorante alternativo	Vaclavik & Christian, 2014
Galletas (Biscuits)	6,7 - 9,6%	Aumentar la vida útil y la estabilidad oxidativa	Hercegová et al., 2019
	50 – 55%	Edulcorante alternativo	Rana, 2014
	1:1 (miel:H ₂ O)	Ingrediente funcional de parámetros reológicos de las masas y aportar sabor	Conforti & Lupano, 2004
Magdalenas	25%	Edulcorante alternativo	Conforti & Strait, 1999
Touloupaki (Dulce griego)	Miel + atmósfera rica en CO ₂ (60:40 (CO ₂ :N ₂))	Aumentar la vida útil	Arvanitoyannis et al., 2011
Relleno de galletas	0 - 46%	Sustituir los azúcares refinados. Ingrediente funcional de parámetros estructurales del relleno. Aumentar el contenido de antioxidantes y la vida útil.	Patrignani, Battaiotto & Conforti, 2022
Productos alimenticios complementarios			
Barrita de cereales sin gluten	50%	Edulcorante y aglutinante	Kaur et al., 2018
Barrita nutritiva de lentejas	3 - 5%	Edulcorante y aglutinante	Ryland et al., 2010
Bebidas			
Bebidas funcionales a base de yuca	6 – 8%	Favorecer el crecimiento de BAL a temperaturas de congelación	Sari et al., 2020
Vino	100%	Edulcorante	Jangra et al., 2018
Cereales y productos a base de cereales			
Mijo fermentado	5%	Edulcorante	Di-Stefano et al., 2017
Tahin tradicional y tahin Bozkir	9%	Edulcorante	Akbulut et al., 2012
Leche y productos lácteos			
Helado de kéfir	16%	Edulcorante	Januário et al., 2018
Helado de leche de camello	6%	Sustituir los azúcares refinados	Ahmed & El-Zubeir, 2015

(Continúa)

Producto	Cantidad de miel	Objetivo	Referencia
Helados con probióticos	15%	Edulcorante	Greenbaum & Aryana, 2013
Helado	50% de reemplazo	Sustituir los azúcares refinados	Moriano & Alamprese, 2017
	13,5%	Sustituir los azúcares refinados y disminuir el punto de congelación	Khaliduzzaman et al., 2012
	16%	Edulcorante y mejora de la viscosidad	Ozdemir et al., 2008
Yogur Bio	6%	Edulcorante e ingrediente prebiótico	Ammar et al., 2015
Leche líquida	100 µl (solución de miel de 500 mg/ml) por 500 ml de leche	Conservante natural (antibacteriano)	Krushna et al., 2007
Salsas y aderezos			
Aderezo para ensalada	-	Estabilidad oxidativa	Rasmussen et al., 2008
Productos de confitería			
Malvaviscos (caramelos)	50 – 75%	Aumentar la actividad antioxidante y el contenido de compuestos fenólicos	Colmenares-Cuevas et al., 2024
Caramelo de leche de soja y miel	20 – 30%	Coagular proteínas	Arii & Nishizawa, 2022
Caramelo de gelatina de miel y zumo de frutas	15, 20 y 25%	Sustituir los azúcares refinados	Mutlu et al., 2018
Caramelos de miel	10 – 50%	Aumentar la humedad, disminuir de la dureza y aumentar el color	Seth & Mishra, 2011
Pescados			
Pescado fresco (<i>Silurus glanis</i>)	Miel + Tratamiento térmico sous vide	Marinado con efecto antimicrobiano	Lovászová et al., 2024
Pescado (<i>Chanos chanos</i>)	20, 25 y 30%	Actividad antimicrobiana	Hakim, Tjahjaningsih & Sudarno, 2019
Carnes			
Salchichas de cerdo cocidas y crudas	5 – 10%	Estabilidad oxidativa y actividad antimicrobiana	Castillo-Zamudio et al., 2024
Embutidos fermentados (Salchichones)	2% mezclas apícolas (90% miel+ 10% propóleo/ 80% miel + 10% propóleo + 10% jalea real) + pequeña cantidad de NO ₃ /NO ₂ ⁻	Estabilidad oxidativa	Hospital et al., 2024

(Continúa)

Producto	Cantidad de miel	Objetivo	Referencia
Jamón y tocino	Miel + salmuera	Enmascarar la alta salinidad	Ramírez-Miranda et al., 2023
Carne de vacuno	Miel (10, 20, 30 y 100%)	Marinado con estabilidad oxidativa y actividad microbiana	Ayoob et al., 2023
Carne de vacuno	5%	Aportar actividad antioxidante al recubrimiento comestible de K-carragenano	Velásquez et al., 2022
Salchichas de cerdo y ternera	0,57 -1,15% miel+ Catuaba + Galanga+ Raíz de rosa + Raíz de maca + Guaraná	Aumentar la actividad antioxidante, el contenido de compuestos fenólicos y la actividad anti-inflamatoria	Poltorak et al., 2019
Salchichas de cerdo y ternera	0,57 – 1,15% Miel + Catuaba + Galanga+ Raíz de rosa + Raíz de maca + Guaraná	Estabilidad oxidativa, actividad anti-inflamatoria y antimicrobiana	Poltorak et al., 2018
Pollo a la parrilla	14, 7 g miel/100 g pollo	Reducir de formación HAA y sus efectos mutagénicos	Hasnol et al., 2014
Salchichas de vacuno	2,5 – 7,5%	Estabilidad oxidativa	Mohammed et al., 2013
Filetes de ternera y pechugas de pollo fritas	30%	Inhibir de formación de HAA y sus efectos mutagénicos	Shin & Ustunol, 2006
Carne fresca de vaca, cerdo, pollo y filetes de pescado (<i>Trachurus japonicus</i>)	5%	Estabilidad oxidativa y actividad antimicrobiana	Nagai et al., 2006
Hamburguesa de carne	5 – 15%	Estabilidad oxidativa	Johnston et al., 2005
Hamburguesa de pavo	5%	Estabilidad oxidativa	McKibben & Engeseth, 2002
Pechuga de pavo	0 – 20%	Estabilidad oxidativa	Antony, Rieck & Dawson, 2000
Frutas y verduras			
Hamburguesa de proteína de guisante texturizada	5,98 g/ 100 g hamburguesa	Ingrediente funcional de propiedades estructurales, aportar compuestos fenólicos y actividad antioxidante.	Kołodziejczak et al., 2024
Zumos de manzanas	50 – 90%	Actividad antioxidante, inhibir el pardeamiento enzimático y actividad antimicrobiana	Gacche et al., 2009
Manzanas cortadas	10% + impregnación a vacío	Actividad antioxidante e inhibir el pardeamiento enzimático	Jeon & Zhao, 2005

(Continúa)

Producto	Cantidad de miel	Objetivo	Referencia
Manzanas, melón, mango y piña	Miel (10%) + pectina (2%)	Recubrimiento bioactivo deshidratante para fruta cortada (aumento de la actividad antioxidante y actividad antimicrobiana)	Santagata et al., 2018
Frutas y verduras	-	Inhibir el pardeamiento enzimático	Chen et al., 2000

Fuente: Elaboración propia.

formulaciones para mejorar el sabor y aumentar el atractivo hacia el consumidor. Se puede mezclar con copos de cereal y frutas secas, o utilizarse como un componente en la película endulzante y saborizante que cubre los copos (Akbulut et al., 2012; Di-Stefano et al., 2017). La industria de bebidas no alcohólicas también utiliza la miel debido a la creciente demanda de bebidas funcionales orientadas a la salud y el fortalecimiento (Jangra et al., 2018; Sari et al., 2020).

El efecto antimicrobiano de la miel contrarresta el deterioro microbiano de los alimentos cárnicos (Ayoob et al., 2023; Castillo-Zamudio et al., 2024; Nagai et al., 2006) y productos de la pesca (Hakim et al., 2019; Lovászová et al., 2024), mientras que la miel mejora el crecimiento de cultivos iniciadores lácticos en leche y productos derivados (Krushna et al., 2007). Además, la miel puede usarse como aditivo prebiótico en productos lácteos probióticos (Ammar et al., 2015). Por otra parte, debido a sus propiedades antioxidantes, la miel previene la oxidación de lípidos en la carne (Castillo-Zamudio et al., 2024; Hospital et al., 2024; Velásquez et al., 2022). La adición de miel en carnes picadas (hamburguesas) y carnes cocinadas a altas temperaturas, previene la formación de aminas aromáticas heterocíclicas (HAA) y sus efectos mutagénicos (Hasnol et al., 2014; Shin & Ustunol, 2006). También se han señalado efectos de la miel contra el pardeamiento enzimático de frutas y verduras y bebidas refrescantes (Chen et al., 2000; Gacche et al., 2009; Jeon & Zhao, 2005).

A pesar de ser muy versátil en la industria alimentaria, la miel tiene algunas limitaciones significativas. Estas incluyen problemas como la adherencia a los equipos industriales debido a su alta viscosidad y pegosidad, dificultades en la manipulación, almacenamiento, transporte, dosificación y su combinación con productos pulverulentos (Jedlińska et al., 2021).

6. Obtención de miel en polvo

El crecimiento de la población, la consecuente demanda de alimentos y, sobre todo, un notable aumento de las enfermedades relacionadas con la dieta, han impulsado el desarrollo de alimentos más saludables y nutritivos. Además, el desperdicio de alimentos está en aumento, lo que hace fundamental encontrar métodos para prolongar su vida útil (Ueda et al., 2023). Esto ha propiciado importantes avances en la ingeniería de alimentos, particularmente en la exploración de alternativas para la conservación, como

el uso de aditivos naturales o sintéticos, tratamientos térmicos y de refrigeración, recubrimientos protectores y la producción de alimentos en polvo (Cuq et al., 2011; Sridhar et al., 2021). A su vez, los alimentos en polvo han despertado un gran interés en la industria alimentaria, ya que pueden emplearse tanto como materia prima para la elaboración de nuevos productos, como también ser el producto final en muchos casos (Oyinloye & Yoon, 2020).

Los productos en polvo se definen como sustancias particuladas sólidas con un tamaño que oscila entre 50 y 100 μm , que se pueden clasificar en función de sus características primarias (propiedades individuales o inherentes) o secundarias (propiedades de masa o de conjunto). Las propiedades primarias incluyen la densidad de partículas, la porosidad, la forma, el diámetro, la dureza y la pegajosidad, mientras que las propiedades secundarias están relacionadas con la densidad y la porosidad en masa, la distribución del tamaño de partícula y el contenido de humedad. Además, los productos en polvo también se pueden clasificar en función de sus características físicas (tamaño, forma, densidad y porosidad) o químicas (composición, interacciones con otras sustancias y propiedades instantáneas) (Ueda et al., 2023).

El secado es una operación unitaria mediante la cual se reduce significativamente el agua libre de los alimentos, permitiendo la concentración de materia seca sin comprometer el tejido, la integridad o la apariencia física del producto (Oyinloye & Yoon, 2020). Aunque los métodos de secado pueden variar entre los procesadores de alimentos, todos comparten el objetivo de aumentar la durabilidad al reducir la actividad del agua en los productos, lo que ayuda a ralentizar el deterioro y preservar la calidad. Además, el secado de alimentos ofrece ventajas al facilitar el manejo, minimizar los costes de envasado, almacenamiento y transporte.

6.1. Procesos de obtención

En muchos países en vías de desarrollo, el secado todavía se realiza de la forma tradicional al sol. En los países desarrollados se emplean tecnologías más avanzadas, como el secado por atomización (spray drying), el secado con aire caliente, el secado a vacío y la liofilización.

6.1.1. Secado por atomización o pulverización (spray drying)

Consiste en una operación de transferencia simultánea de calor y masa, que implica la transformación de un alimento desde un estado líquido a un estado seco en forma de partículas rociando el alimento en un medio de secado caliente (Keshani et al., 2015).

Un secador por atomización opera mediante convección, eliminando la humedad del producto de alimentación mediante la aplicación de calor y el control de la humedad del medio de secado. Atomizar el alimento en una atmósfera calentada acelera la evaporación y mejora la velocidad de secado. Para comprender este proceso, es útil dividirlo en sus operaciones unitarias (Figura 12) (Anandharamakrishnan & Padma-Ishwarya, 2015; Santos et al., 2017).

- ***Atomización de la solución de alimentación***

Es la etapa clave en este tipo de secado, donde la solución de alimentación se dispersa en pequeñas gotas. Esto aumenta el área superficial y reduce las resistencias internas, facilitando la transferencia de humedad hacia el medio circundante.

La atomización es de gran importancia en este tipo de secado, ya que influye en la forma, estructura, velocidad y distribución del tamaño de las gotas, lo que a su vez determina el tamaño de partículas y la naturaleza del producto final.

- ***Contacto del líquido pulverizado (spray) con el gas caliente***

Esta etapa, junto con las posteriores, constituyen la fase de formación de partículas. Las gotas atomizadas entran en contacto con el gas caliente, lo que permite una evaporación rápida y uniforme de la humedad.

El flujo de gas puede ser a favor de corriente, donde el aire caliente y las gotas atomizadas se mueven en la misma dirección dentro de la cámara de secado, lo que mantiene una baja temperatura y minimiza la degradación térmica. Por otro lado, puede ser a contracorriente, donde el aire y las gotas atomizadas se desplazan en direcciones opuestas, lo que provoca una mayor temperatura dentro de la cámara de secado, siendo esta opción solo adecuada para productos resistentes al calor.

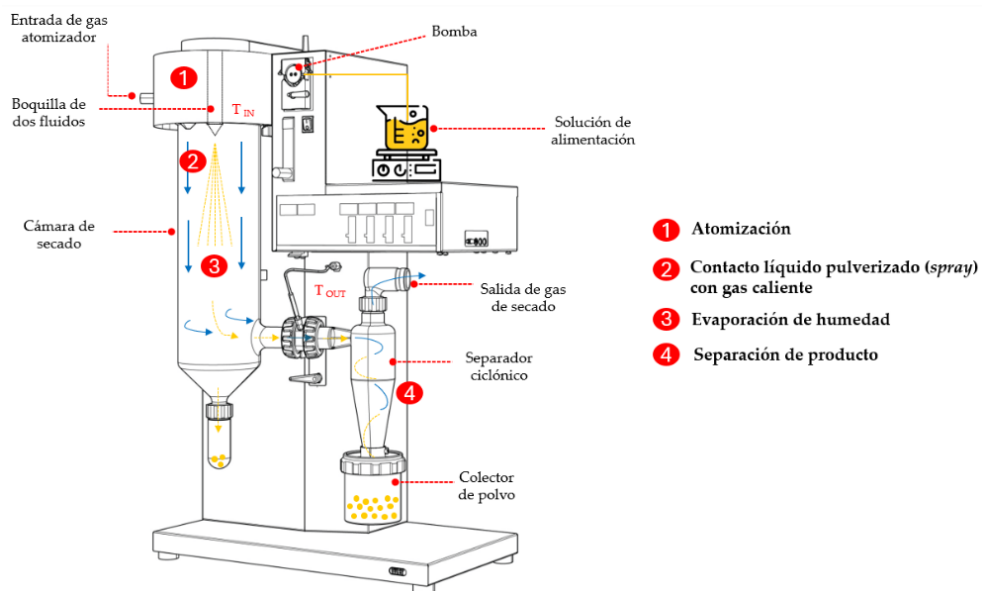


Figura 12. Representación esquemática de un atomizador de partículas (spray drying) y de las etapas del proceso de secado. Fuente: Elaborado a partir de Buchi B-290.

▪ *Evaporación de la humedad*

Esta es la etapa más crítica en la formación de partículas y afecta directamente a la morfología del producto final.

Las gotas alcanzan una temperatura constante mientras eliminan humedad, formando una capa superficial llamada «costra». A partir de ahí, la evaporación se controla por difusión, dependiendo de la velocidad a la que el vapor atraviesa esta capa seca. Aunque las partículas se calientan, permanecen en la zona más fría de la cámara, manteniéndose por debajo de la temperatura de salida. En esta fase, puede tener lugar la «formación de burbujas», lo que genera partículas de forma irregular.

▪ *Separación de partículas*

Para separar el producto del medio de secado se utilizan dos sistemas: la separación primaria, donde el polvo seco se acumula en la base de la cámara de secado, y la secundaria, donde se extrae mediante un sistema de tornillo o neumático equipado con separador ciclónico.

Así como los atomizadores se clasifican según la dirección de la corriente del medio de calentamiento, también pueden clasificarse en función de si el

medio de calentamiento se recicla o no, en ciclo abierto, cerrado o semicerrado.

6.1.2. Secado a vacío

El secado a vacío es una técnica en la que los alimentos se deshidratan a baja presión, lo que reduce el punto de ebullición del agua, permitiendo su evaporación a temperaturas más bajas (generalmente por debajo de 75 °C), en un entorno casi libre de oxígeno y con una mayor velocidad de secado (Menon et al., 2020). El calor, aplicado mediante conducción (Figura 13), facilita que las moléculas de agua migren y se evaporen dentro de la cámara de vacío (Karam et al., 2016). Esta técnica, ideal para alimentos sensibles al calor y la oxidación, mejora la calidad del producto al evitar cambios de color, apariencia, pérdida de nutrientes y contenido vitamínico, siendo especialmente útil para alimentos que contienen compuestos bioactivos.

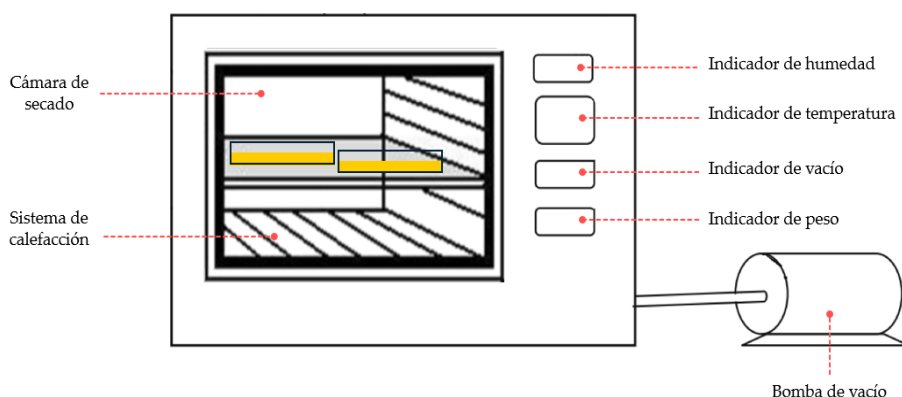


Figura 13. Representación esquemática de un sistema de secado a vacío. Fuente: Adaptado de Amiripour et al., 2015.

6.1.3. Liofilización o secado por congelación

Consiste en un proceso de secado en el cual el solvente (generalmente agua) y/o el medio de suspensión se cristaliza a baja temperatura y posteriormente se sublima directamente del estado sólido a la fase de vapor (Liu et al., 2008).

El proceso de liofilización se puede dividir en tres etapas: congelación, sublimación o secado primario y desorción o secado secundario. Las etapas de secado se realizan en un equipo de liofilización, cuyo circuito se ilustra en la Figura 14.

▪ Congelación

Es el primer paso esencial en el proceso de liofilización, ya que define la estructura del producto, al someterse a baja temperatura produciéndose un cambio de fase parcial del agua contenida de estado líquido a sólido. Para evitar la presencia de agua sin congelar, la temperatura debe estar por debajo del punto eutéctico (corresponde con el valor más bajo resultante de la combinación de composición y temperatura en el que el producto solidifica) o de la T_g del producto, entre $-20\text{ }^{\circ}\text{C}$ o $-80\text{ }^{\circ}\text{C}$ (Balaji et al., 2024; Ge et al., 2024). La eliminación del agua del producto congelado deberá realizarse mediante sublimación del hielo formado (que representa entre el 70% y el 90% del agua del producto) y por evaporación del agua líquida no congelada (agua en estado ligado) (Balaji et al., 2024).

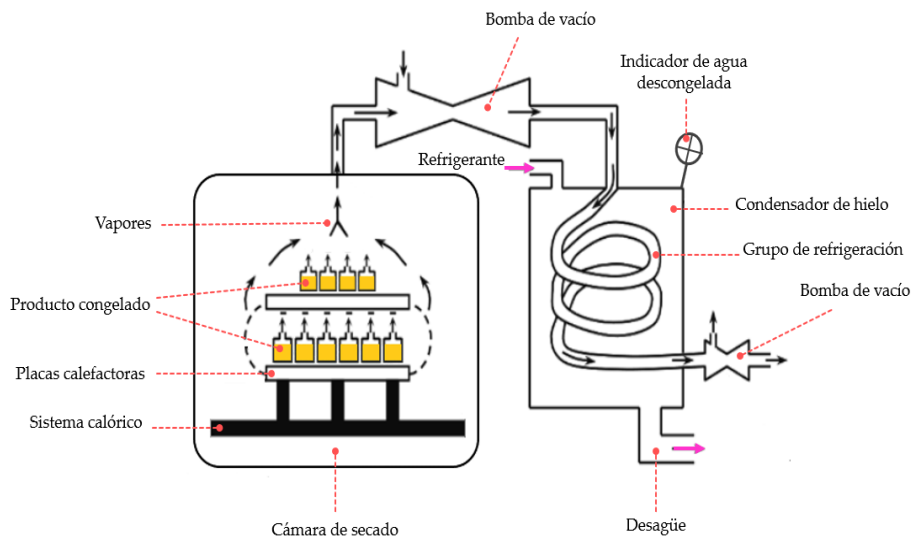


Figura 14. Esquema general de un equipo de liofilización. Fuente: Adaptado de Electrical Workbook, 2022.

El grado de cristalización del agua, determinado por la velocidad de enfriamiento, es un factor clave en el proceso de congelación. La selección óptima de esta velocidad es compleja y depende de la composición del producto y su uso final. Una velocidad de congelación rápida produce cristales de hielo pequeños, que dificultan la sublimación, mientras que una congelación más lenta genera cristales más grandes, que facilitan este proceso, pero pueden dañar las células microbianas. Además, el tamaño de

los cristales influye en la porosidad, el área de superficie y la capacidad de rehidratación del producto liofilizado final (Ge et al., 2024).

- ***Sublimación o secado primario***

Inicia en la superficie del hielo y progresa a través de la interfaz entre la materia congelada y la seca, dependiendo de la combinación de temperatura

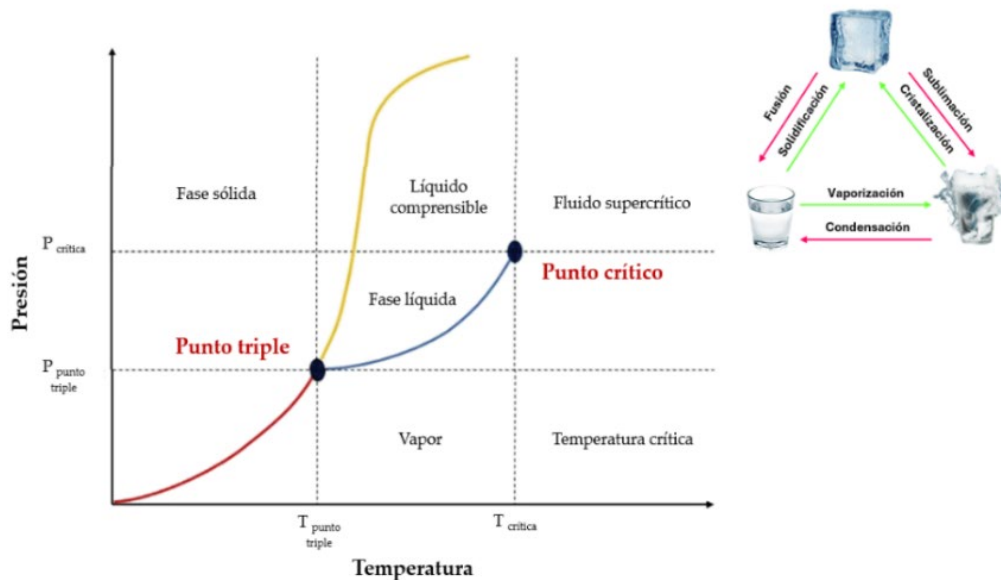


Figura 15. Representación gráfica del triple punto del agua. Fuente: Adaptado de Prakash & Kuila, 2024.

y presión (Ge et al., 2024). Para que el hielo pase directamente a vapor, la temperatura y la presión parcial del vapor deben estar por debajo del punto triple del agua (6,104 mbar y 0,0099 °C) (Figura 15). En estas condiciones, el hielo sublima absorbiendo el calor latente de aproximadamente 680 kcal/kg de hielo, que debe ser controlado para evitar la fusión parcial del alimento congelado. Simultáneamente, el vapor de agua generado debe ser eliminado para mantener la baja presión, tarea que realiza el condensador del liofilizador al convertir el vapor en hielo.

- ***Desorción o secado secundario***

Tiene como objetivo eliminar el agua no sublimada durante el secado primario, iniciándose esta etapa cuando el producto contiene menos del 3% de humedad inicial, (Huachuilla, 2017). Es fundamental mantener el vacío establecido al comienzo del proceso y controlar la temperatura del

producto, evitando que supere la temperatura de colpaso (Oyinloye & yoon, 2020), que marca el cambio de la matriz amorfa de fase vítrea a gomosa al alcanzar su T_g (Egas, 2019).

El final del proceso de liofilización es difícil de identificar debido a la dificultad para controlar la humedad durante el proceso, que no es uniforme, siendo las zonas superficiales menos húmedas que las partes internas.

La evolución de la temperatura del producto durante las diferentes etapas del proceso se muestra en la Figura 16.

Los productos liofilizados presentan un bajo contenido de humedad residual, lo que reduce el riesgo de deterioro químico, bioquímico y microbiológico. Además, el proceso a bajas temperaturas ayuda a conservar los compuestos termolábiles y el uso de vacío minimiza el riesgo de oxidación. La sublimación del hielo genera un producto poroso que facilita una rehidratación rápida y eficiente, lo que, junto con su presentación innovadora, favorece su uso industrial (Egas, 2019). Sin embargo, el alto costo de producción es una desventaja significativa.

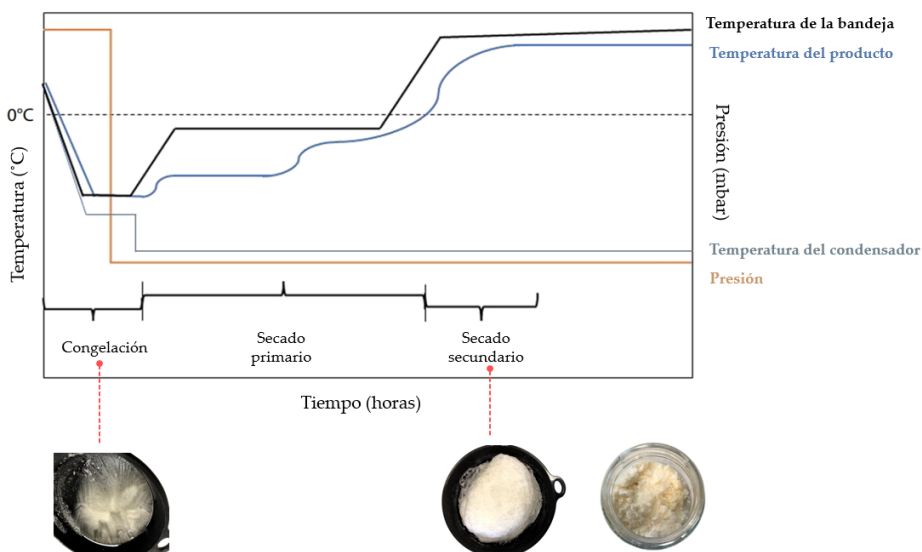


Figura 16. Evolución de la temperatura del producto y etapas del proceso secado por liofilización.
Fuente: Adaptado de Prakash & Kuila, 2024.

Existen numerosas investigaciones sobre las técnicas para obtener miel en polvo (Anexo I), y además de las mencionadas, se han desarrollado otros métodos, como el secado a vacío mediante microondas (microwave vacuum

drying), el secado mediante esponjado a vacío (vacuum puffing drying) y el secado por espuma a vacío (vacuum foam drying).

Es importante señalar que, a pesar de la extensa bibliografía sobre metodologías para transformar la miel natural en un producto en polvo, no existen estudios comparativos que evalúen diferentes métodos de obtención de miel en polvo, diversos agentes de secado, distintos orígenes botánicos de las mieles, ni que incluyan análisis sensorial descriptivo cuantitativo. Únicamente Nurhadi et al., (2012) y Suhag et al., (2021) llevaron a cabo una evaluación sensorial hedónica de las mieles en polvo obtenidas.

6.2. Problema asociado con el secado de productos ricos en azúcar

La producción de miel en polvo sigue presentando un desafío significativo tanto para la industria alimentaria como para la investigación científica. Las dificultades en el proceso de secado de la miel están estrechamente vinculadas a su composición química única, caracterizada principalmente por un alto contenido de azúcares y ácidos orgánicos.

El problema conocido como «pegajosidad» está directamente relacionado con la baja T_g de los azúcares (T_g glucosa anhidra = 31 °C y T_g fructosa anhidra = 5 °C) (Bhandari & Howes, 1999) y ácidos orgánicos de bajo peso molecular (cítrico, málico, tartárico, etc.). Debido a la composición química de este producto (presencia de fructosa y glucosa) y su elevado contenido de agua, la baja T_g de los productos ricos en azúcar hace que la eliminación de agua durante el secado sea complicada, dificultando la realización exitosa del secado y la obtención de polvos (Samborska et al., 2024). Como resultado, el producto no puede alcanzar un estado vítreo, y aunque se reduzca el contenido de agua, el producto se mantiene con una estructura pegajosa, similar a una goma, donde las partículas tienden a adherirse entre sí y a las paredes de los recipientes que los contiene, lo que reduce drásticamente el rendimiento del proceso (Samborska, 2019).

La diferencia entre la temperatura de secado y la T_g proporciona información sobre los posibles problemas que pueden surgir durante el proceso de secado, permitiendo evaluar la eficacia general. Cuando la temperatura de secado (T) supera la T_g , el producto tiende a mostrarse en un estado gomoso en lugar de en polvo. No obstante, se ha identificado una zona segura por encima de la T_g , en la que, si la T se eleva aproximadamente 20 °C de la T_g ,

las partículas no presentan el comportamiento pegajoso (Ozmen & Langrish, 2002; Roos, 2010).

Una solución común para evitar la pegajosidad es incrementar la T_g del producto seco mediante la adición de coadyuvantes de secado de alto peso molecular. Esta adición eleva la T_g a un valor (T_{g1}) superior a la temperatura de secado, lo que facilita la obtención del producto en forma de polvo (estado vítreo) (Figura 17). La elección y cantidad de coadyuvantes depende de las propiedades específicas de la materia prima y de los parámetros de secado aplicados.

Otra estrategia para mitigar el problema de la pegajosidad durante el secado de productos ricos en azúcar es utilizar una temperatura de secado baja (T_1), idealmente por debajo de la T_g o, si se considera la zona de seguridad, por debajo de $T_g + 20^\circ\text{C}$ (Roos & Karel, 1993).

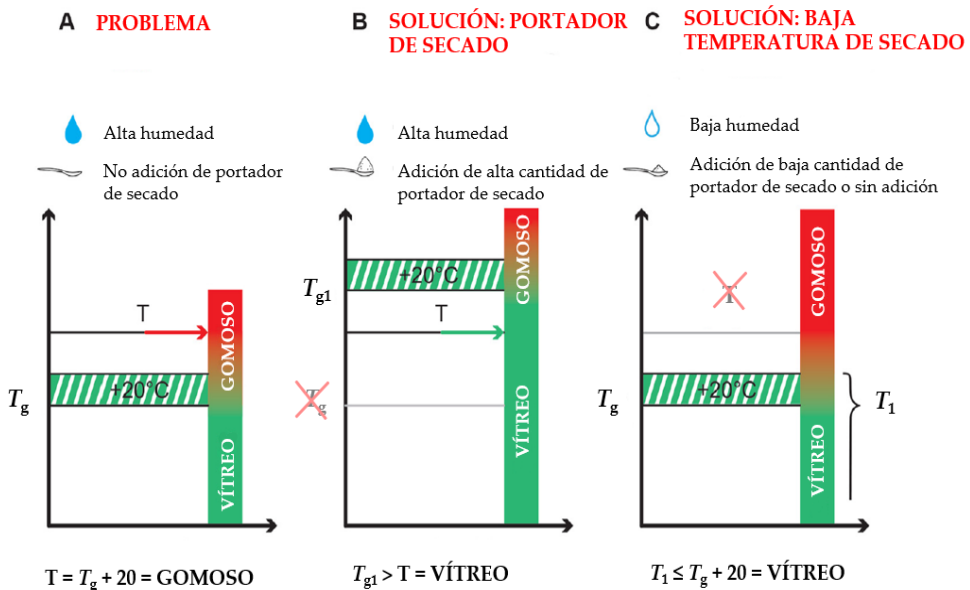


Figura 17. Problema de pegajosidad durante el secado de productos ricos en azúcar (A) y soluciones para reducir el problema: (B) Adicionar coadyuvantes de secado; (C) Bajar la temperatura y humedad del aire de secado. Fuente: Adaptado de Samborska et al., 2024.

6.3. Coadyuvantes de secado

Los coadyuvantes de secado más utilizados incluyen polímeros basados en carbohidratos, como el almidón y sus derivados, la celulosa y sus derivados, las pectinas y los quitosanos. También se emplean gomas y polímeros

proteicos, tanto de origen animal como vegetal, como leche desnatada en polvo, suero y proteínas de guisante, trigo, arroz y avena (Coimbra et al., 2021; Samborska et al., 2021).

En términos generales, estos auxiliares deben ser certificados como seguros para su uso alimentario por la EFSA (Autoridad Europea de Seguridad Alimentaria) y ser biodegradables. Además, deben presentar alta solubilidad, una capacidad adecuada para formar películas y producir soluciones de baja viscosidad incluso a concentraciones elevadas. Es crucial que tengan un alto peso molecular y una alta T_g , y que puedan proteger compuestos sensibles de factores ambientales como la humedad, el oxígeno, el calor, la luz y los radicales libres durante el procesamiento y almacenamiento (Desai & Jin Park, 2005). Otra característica fundamental, es que no deben presentar reactividad química con sustancias biológicamente activas durante el secado (Ray et al., 2016).

6.3.1. Almidón y sus derivados

El almidón, uno de los polisacáridos más abundante derivado de la glucosa, se produce en las plantas como carbohidrato de reserva. Es una molécula de bajo coste, no tóxica/inmunogénica, biocompatible (alta solubilidad en agua, baja viscosidad, sabor suave e incoloro cuando se encuentra disuelto) y biodegradable, además de ofrecer protección contra la oxidación y ser fácilmente extraíble en forma pura. Estas características lo convierten en un material de secado ampliamente utilizado en productos bioactivos, ya sea en su forma no modificada o tras la hidrólisis, donde su capacidad de retención está estrechamente vinculada al valor de glucosa (Samborska et al., 2021).

Sin embargo, ciertas limitaciones como su baja capacidad emulsionante, escasa resistencia mecánica y alta sensibilidad al agua pueden restringir el uso de almidón nativo. Para superar estos obstáculos, se diseñan almidones modificados mediante la alteración bioquímica, enzimática y/o física de sus macromoléculas.

La maltodextrina (MD), un derivado del almidón hidrolizado, está compuesta principalmente por unidades de α -D-glucosa unidas por enlaces glicosídicos α -(1-4) y es uno de los más utilizados en procesos de secado. Se caracteriza por sus diferentes valores de equivalente de dextrosa (DE), su alta solubilidad en agua (aproximadamente 70%), su baja viscosidad a altas concentraciones y buena protección contra la oxidación, lo que la convierte

en un agente eficaz para reducir problemas de adherencia y aglomeración en productos alimenticios (Churio & Valenzuela, 2018; Samborska, 2019). Por otro lado, su coste es relativamente bajo y su aroma y sabor son neutros. Sin embargo, la mayor limitación de este coadyuvante es su baja capacidad emulsionante.

6.3.2. Gomas naturales

Las gomas naturales tienen un amplio rango de aplicaciones en la industria alimentaria y farmacéutica, gracias a sus excepcionales propiedades como la biocompatibilidad, no toxicidad, biodegradabilidad y su capacidad para aumentar la viscosidad.

Las gomas de origen vegetal se dividen en cuatro categorías principales según su fuente de obtención: gomas de exudados vegetales, como la goma arábica; gomas derivadas de semillas, como la goma guar; gomas de exudado microbiano, como la goma xantana; y gomas extraídas de algas marinas, como la carragenina.

La goma arábica es un biopolímero compuesto por ácido d-glucurónico, l-ramnosa, d-galactosa y l-arabinosa, con un contenido proteico de aproximadamente el 2% (Coimbra et al., 2021). Sus características, como su alta solubilidad en agua, baja viscosidad, excelente capacidad para estabilizar emulsiones, notable retención de compuestos volátiles y elevada T_g , la hacen ideal para aplicaciones de secado de alimentos. Sin embargo, su uso está limitado por su elevado coste y disponibilidad restringida.

6.3.3. Proteínas

Las matrices proteicas convencionales, compuestas por una o más cadenas largas de aminoácidos, son grandes moléculas biológicas que destacan por su movilidad y elasticidad, lo que les otorga un notable potencial para proteger ingredientes bioactivos sensibles. Además de su papel esencial en la nutrición humana, estas proteínas exhiben una variedad de funciones, como la capacidad de emulsificar, formar películas y geles (Samborska et al., 2021).

La proteína de suero lácteo, una mezcla de proteínas globulares con diversas propiedades moleculares, se obtiene como subproducto de la industria del queso con un coste relativamente bajo y ha sido utilizada como coadyuvante de secado. El alto rendimiento de secado logrado por estas proteínas puede

atribuirse a la actividad superficial de las proteínas que se transfieren rápidamente a la interfaz del alimento y forman una película durante el secado, superando así la aglomeración de gotitas y la adherencia entre las gotitas y la pared de la cámara de secado (Du et al., 2014). A diferencia de los coadyuvantes mencionados anteriormente, este es eficaz incluso en pequeñas cantidades (Samborska, 2019).

Por otro lado, el uso de proteínas vegetales y su aplicación comercial han captado un gran interés en la industria alimentaria, en gran parte debido a sus propiedades, como su menor alergenicidad en comparación con las proteínas del suero. Entre las proteínas vegetales, la proteína de soja destaca por su alto valor biológico y nutricional. Esta proteína posee excelentes propiedades funcionales, como su capacidad emulsionante, su habilidad para absorber y retener agua y aceite, y su eficacia en la preservación de compuestos bioactivos tanto hidrofóbicos como hidrofílicos (Shishir et al., 2018). Gracias a su capacidad para formar películas y su actividad en superficies, la eficiencia de la proteína de soja en la estabilización de compuestos bioactivos se ha visto mejorada cuando se combina con polisacáridos (Pereira-Souza et al., 2017).

6.3.4. Nuevas tendencias de coadyuvantes de secado

Actualmente, con la creciente conciencia de los consumidores sobre la importancia de un estilo de vida saludable, se ha vuelto esencial utilizar coadyuvantes que, además de facilitar el proceso de secado, ofrezcan beneficios adicionales para la salud (Samborska et al., 2021). Siguiendo las tendencias actuales, la búsqueda de nuevas fuentes de agentes de secado con propiedades funcionales cobra especial relevancia (Ye et al., 2018). Estos coadyuvantes no solo optimizan el proceso de secado al preservar compuestos químicos sensibles al calor, sino que también mejoran las propiedades funcionales de los polvos, lo que puede incrementar su atractivo, particularmente en productos procesados de alta calidad. Una característica de estos nuevos coadyuvantes es su enfoque sostenible, debido a su producción a partir de residuos y subproductos alimentarios y agrícolas (Samborska et al., 2021). Dentro del ámbito de los coadyuvantes de carbohidratos, un grupo significativo se compone de aquellos con propiedades prebióticas, como las fibras dietéticas prebióticas (inulina, fructooligosacáridos, oligofructosa, dextrinas resistentes). Los prebióticos, cuando se emplean como coadyuvantes, no solo pueden sustituir a los

carbohidratos convencionales, sino que también enriquecen el producto final con un valor nutricional adicional. Además, su aplicación en el proceso de secado ha demostrado ofrecer ventajas como un mayor rendimiento del producto, mejor retención de compuestos sensibles en comparación con las maltodextrinas convencionales, y una mayor humectabilidad y solubilidad del polvo (Sobulska & Zbicinski, 2020).

Algunos investigadores, como Toniazzi et al., (2023b), han explorado el uso de fuentes de proteínas alternativas y sostenibles como coadyuvantes de secado, tales como la proteína aislada de arroz, de bajo coste debido a que es uno de los cereales más cultivados en el mundo, y la proteína aislada de guisante micronizada, la cual se caracteriza por la reducción del tamaño de partícula a nivel micrométrico, lo que resulta en la mejora de propiedades como la capacidad de retención de agua, la capacidad de hinchamiento y la solubilidad. También han evaluado una combinación de ambas proteínas en el proceso de secado por atomización de miel de Etiopía. Estas proteínas ya han demostrado poseer propiedades para actuar como coadyuvantes de secado, al ofrecer estabilidad de la espuma y capacidad emulsionante (Nesterenko et al., 2013). También, Toniazzi et al., (2023b) han empleado una proteína aislada derivada del salvado de arroz en el secado por atomización de miel de eucalipto.

6.4. Propiedades de la miel en polvo

Existe una amplia diversidad de productos alimentarios producidos industrialmente en forma de polvo, lo que genera la necesidad de conocer información sobre sus características de manejo y procesamiento. Es importante determinar sus propiedades de flujo, ya que estas afectan directamente a su comportamiento durante el almacenamiento, la manipulación y el procesamiento (Fitzpatrick et al., 2004).

Las propiedades de los productos en polvo se ven afectadas tanto por las técnicas de secado utilizadas y las condiciones empleadas en cada una de ellas, como por los coadyuvantes que se suelen utilizar para la obtención de estos productos. Las propiedades del polvo (Figura 18), como densidad, porosidad, higroscopicidad, humedad, capacidad de absorción de agua, capacidad de solubilidad, entre otras, determinan el uso de los alimentos en polvo.

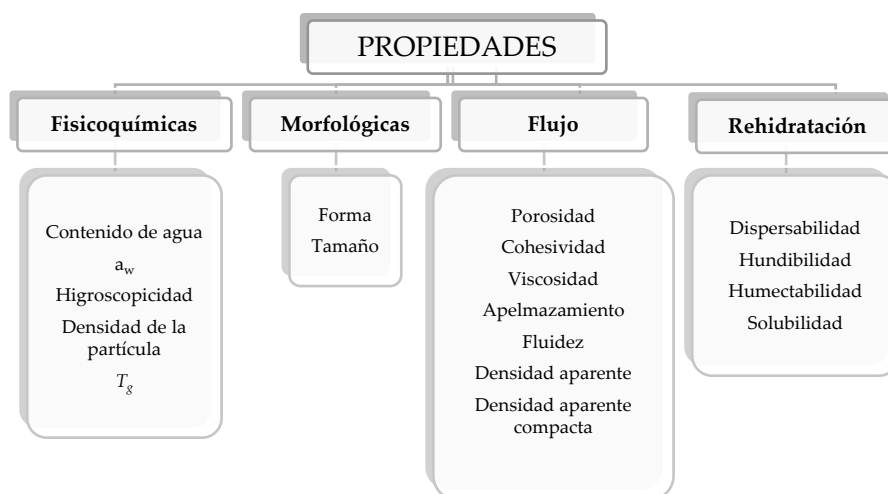


Figura 18. Propiedades secundarias de los productos en polvo. Fuente: Elaboración propia.

6.4.1. Contenido de agua

Indica la cantidad de agua contenida en un polvo, pero no ofrece detalles sobre cómo se distribuyen las moléculas de agua dentro de la estructura del polvo. Sin embargo, pequeñas variaciones en el contenido de agua pueden influir en la fluidez de los polvos, lo que tiene un impacto considerable en su almacenamiento y transporte (Suhag et al., 2024).

6.4.2. Actividad de agua (a_w)

Representa la cantidad de agua libre disponible en un sistema alimentario, la cual influye en el crecimiento microbiano y en las reacciones bioquímicas. Valores de $a_w < 0,6$ se consideran seguros frente al deterioro microbiano, mientras que valores de $a_w < 0,25$ minimizan el pardeamiento no enzimático, la oxidación de lípidos, la actividad enzimática y las reacciones hidrolíticas durante el almacenamiento (Chen et al., 2021). En contraste, con el contenido de humedad, la a_w describe cómo se une el agua dentro de la estructura del polvo (Suhag et al., 2024).

6.4.3. Higroscopicidad

Representa la capacidad de los polvos para absorber la humedad del ambiente y es un parámetro clave para evaluar la fluidez. Un alto valor de este parámetro indica que los polvos secados son más propensos a volverse

pegajosos y a compactarse durante el almacenamiento, afectando a su vida útil (Chen et al., 2021).

6.4.4. Densidad de partícula

Permite determinar tanto el tamaño de las partículas como la estructura del polvo a granel. Esta medida se refiere a la densidad del material sólido que constituye el alimento, excluyendo los poros abiertos y cerrados, sin tener en cuenta el nivel de compactación ni el tamaño de las partículas (Barbosa-Cánovas, 2005).

6.4.5. Densidad aparente (ρ_R)

Se define como la relación entre la masa de las partículas y el volumen total que ocupan, incluidos los poros abiertos y cerrados. Esta propiedad es fundamental para optimizar las condiciones de almacenamiento, procesamiento, envasado y distribución, y es comúnmente utilizada en productos que han sido sometidos a molienda o secado (Barbosa-Cánovas, 2005). Está estrechamente relacionada con la porosidad del alimento en polvo, ya que, al ejercer presión sobre este, el volumen de los poros disminuye, lo que incrementa la densidad aparente al reducirse el volumen total. Esto provoca una mayor compactación del polvo y una mayor capacidad de retención de agua debido a la disminución de los espacios ocupados por aire.

6.4.6. Densidad aparente compacta (ρ_T)

Se obtiene tras golpear mecánicamente un recipiente de medición graduado que contiene la misma muestra de polvo empleada en la prueba de densidad aparente. Este valor es mayor que el de la densidad aparente inicial debido a la reducción del volumen causado por la compactación (Barbosa-Cánovas, 2005).

6.4.7. Fluidéz

Se refiere a la capacidad de superar la resistencia de flujo (movimiento) y permitir que las partículas se deslicen entre sí. Este proceso implica superar las fuerzas de interacción superficial, como la fricción interna y cohesión, presentes entre las partículas en contacto (Barbosa-Cánovas, 2005). La comprensibilidad o propiedad de flujo libre se expresa a través del índice de Carr (C) calculado a partir de las mediciones de densidad aparente y densidad aparente compacta (Gorle & Chopade, 2020).

$$C = \frac{\rho_T - \rho_B}{\rho_T} \cdot 100$$

6.4.8. Cohesividad

Se refiere a la fuerza de atracción entre partículas adyacentes dentro de un mismo tipo. En general, las partículas pequeñas con una alta relación superficie-volumen tienden a ser más cohesivas y tener menor fluidez (Barbosa-Cánovas, 2021). La cohesividad de un polvo se define mediante el índice de Hausner (HR) (Gorle & Chopade, 2020).

$$HR = \frac{\rho_T}{\rho_B}$$

Ambos índices permiten estimar la fluidez de un producto en polvo (Tabla 2).

Tabla 2. Relación del índice de Carr y el índice de Hausner con la fluidez de los polvos. Fuente: adaptado de Gorle & Chopade, 2020.

Índice de Carr	Propiedad de flujo	Índice de Hausner
≤10	Excelente	1,00 - 1,11
11 - 15	Buena	1,12 - 1,18
16 - 20	Justa	1,19 - 1,25
21 - 25	Pasable	1,26 - 1,34
26 - 31	Pobre	1,35 - 1,45
32 - 37	Muy pobre	1,46 - 1,59
> 38	Extremadamente pobre	>1,60

6.4.9. Porosidad

Describe la estructura interna abierta de un material y se define como la proporción de volumen ocupado por vacíos o huecos. Generalmente, se calcula a partir de la relación entre la densidad aparente y la densidad real del material (Boukouvalas et al., 2007).

6.4.10. Apelmazamiento

Ocurre cuando el contenido de agua se redistribuye o es absorbido por los polvos durante el procesamiento y almacenamiento. Este fenómeno provoca que los polvos adquieran una textura pegajosa, ya que el agua moviliza sus superficies, lo que resulta en la adhesión entre partículas, la formación de grumos y la fusión de partículas, conduciéndose así al apelmazamiento

(Ruan et al., 2007). Como consecuencia, la solubilidad de los productos en polvo puede verse afectada, incrementándose la oxidación de los lípidos y la actividad enzimática, lo que puede deteriorar características sensoriales como el sabor y la textura. Además, el apelmazamiento puede favorecer el crecimiento microbiano.

6.4.11. Dispersabilidad:

Se refiere a la capacidad de un polvo para dispersarse en agua, este comienza a humedecerse y hundirse separándose rápidamente y comenzándose a disolver (Barbosa-Cánovas, 2021). Este proceso resulta menos eficiente cuando se forman aglomerados, ya que estos reducen la eficiencia al requerir la descomposición de las partículas para maximizar el área de contacto entre el polvo y el líquido (Ueda et al., 2023).

6.4.12. Humectabilidad:

Mide la capacidad de un polvo para absorber líquido bajo fuerzas capilares, y está influenciada por factores como el tamaño de partícula, densidad, porosidad, tensión y área superficial y la presencia de sustancias hidrofóbicas o higroscópicas. Se evalúa según el ángulo entre la superficie del polvo y el agua. Las superficies con materiales hidrofóbicos tienen ángulos amplios, mientras que las superficies higroscópicas facilitan el mojado al presentar menores ángulos. Para mejorar la humectabilidad, el tamaño de partícula debe ser mayor a 100 μm , permitiendo que el agua penetre por los poros y disuelva el polvo de manera eficiente (Barbosa-Cánovas, 2021).

6.4.13. Solubilidad:

Se refiere a la capacidad de las partículas para disolverse por completo en un líquido. Esta propiedad depende principalmente de la composición química del polvo y de su estado físico (Ueda et al., 2023). Como etapa final del proceso de reconstrucción, la solubilidad es un indicador crucial para evaluar el comportamiento del polvo en la fase líquida.

7. Usos de la miel en polvo en la industria

Unos pocos autores han explorado el uso de la miel en polvo como ingrediente en la creación de nuevos productos alimentarios o mejora de los ya existentes.

Tong et al. (2010) y Sathivel et al. (2013) utilizaron miel en polvo en panificación para mejorar la reología de las masas, las propiedades sensoriales y de textura del pan, así como la calidad de horneado, demostrando su potencial en esta industria; Kiliç & Demir (2017) también hallaron la posibilidad de sustituir azúcar por miel en polvo, mejorando las características nutricionales y sensoriales de galletas. Por otro lado, Antony et al. (2000) emplearon miel en polvo sobre carne de pavo, logrando aceptables resultados en cuanto a su efecto antioxidante. López-Patiño et al. (2023) utilizaron miel en polvo sobre carne picada de ternera logrando una reducción en el crecimiento de enterobacterias y aerobios mesófilos totales. Este efecto fue más pronunciado a medida que aumentaba la concentración de miel liofilizada. Se ha visto que el uso de la miel en polvo en los pocos estudios realizados ha sido positivo, por lo que es necesario una optimización de la obtención de miel en polvo para poder hacer un uso más adecuado y frecuente de este producto en la industria alimentaria.

8. Impacto social y económico de la miel en polvo

España posee el mayor número de colmenas de la Unión Europea, siendo Castilla y León la región que cuenta con más explotaciones apícolas de todo el país. El potencial apícola castellano-leonés es cada vez más importante, porque contribuye decisivamente a la sostenibilidad del medio rural, mantenimiento de ecosistemas naturales, la polinización de los cultivos y promoción de la biodiversidad. Sin embargo, en los últimos años la apicultura de esta zona ha tenido que hacer frente a problemas que han repercutido muy negativamente en la economía del sector, entre los que destacan la mortandad de colmenas, las malas condiciones climatológicas y la extensión de especies invasoras que destruyen la cabaña apícola. En este contexto, el avance en cualquier aspecto de la apicultura es fundamental para promover su fomento y desarrollo, el sostenimiento de empleo verde, al desarrollo de las áreas rurales evitando la despoblación en las mismas, y el

incremento y optimización de las cosechas agrícolas. La comercialización de mieles en polvo se ha incrementado en los últimos años por la facilidad de manejo y envasado de este producto, así como por el alargamiento de su vida útil. El tamaño de mercado global para la miel en polvo se estimó en 1,18 billones de dólares (USD) en 2018 y se espera que se expanda en los próximos años con una tasa de crecimiento anual de entre un 4,1% y un 5,18% (Grand View Research, 2022).

Por otra parte, los consumidores muestran una creciente valoración positiva de los productos funcionales y demandan continuamente alimentos de larga duración, con ingredientes naturales y saludables. En este contexto, el conocimiento de los posibles beneficios para la salud de las mieles en polvo puede contribuir a enriquecer nuestra dieta mediterránea, reconocida como saludable por las distintas instituciones sanitarias.

Además, la miel en polvo puede incorporarse a otros alimentos, ofreciendo una enorme variedad de aromas, sabores y texturas. Su investigación y desarrollo pueden ser un elemento clave para las industrias alimentarias, que buscan continuamente la comercialización de nuevos alimentos con ventajas sobre los que ya se encuentran en los mercados, permitiendo aumentar la competitividad de las empresas y ampliar su gama de productos, generando empleo en los ámbitos gastronómico y hostelero.

Referencias bibliográficas

(Introducción y Anexo)

- Abril-Ibarra, Z. (2022). Antioxidantes producidos por microorganismos acuáticos y terrestres con uso potencial en cosméticos. *Actualidades Biológicas*, 44 (116), 1-19. <https://doi.org/10.17533/udea.acbi.v44n116a02>
- Abuelgasim, H., Albury, C & Lee, J. (2021). Effectiveness of honey for symptomatic relief in upper respiratory tract infections: A systematic review and meta-analysis. *BMJ Evidence- Based Medicine*, 26 (2): 57-64. <https://doi.org/10.1136/bmjebm-2020-111336>
- Acquarone, C. A. (2004). Parámetros físicoquímicos de mieles, relación entre los mismos y su aplicación para la determinación del origen botánico y/o geográfico de mieles argentinas. Doctoral dissertation. Universidad de Belgrano.
- Ahmed, A. K., Hoekstra, M. J., Hage, J & Karim, R. B. (2003). Honey-medicated dressing: Transformation o fan ancient remedy into modern therapy. *Annals of Plastic Surgery*, 50 (2), 143-148. <https://doi.org/10.1097/01.sap.0000032306.44107.c1>
- Ahmed, A. S. M & El-Zubier, I. E. M. (2015). Processing properties and chemical composition of low fat ice cream made from camel milk using natural additives. *International Journal of Dairy Science*, 10 (6), 297-305. <http://dx.doi.org/10.3923/ijds.2015.297.305>
- Akbulut, M., Sariçoba, C & Ozcan, M. M. (2012). Determination of rheological behavior, emulsion stability, color, and sensory of sesame pastes (tahin) blended with pine honey. *Food and Bioprocess Technology*, 5 (5), 1832-1839. <http://dx.doi.org/10.1007/s11947-011-0668-6>
- Alevia, M., Rasines, S., Cantero, L., Sancho, M. T., Fernández-Muiño, M. A & Osés, S. M. (2021). Chemical extraction and gastrointestinal of honey: Influence on its antioxidant, antimicrobial and anti-inflammatory activities. *Foods*, 10 (6), 1412. <https://doi.org/10.3390/foods10061412>
- Al-Kafaween, M. A., Alwahsh, M., Hilmi, A. B. M & Abulebdah, D. H. (2023). Physicochemical characteristics and bioactive Compounds of different types of honey and their biological and therapeutic properties: A comprehensive review. *Antibiotics*, 12 (2), 337. <https://doi.org/10.3390/antibiotics12020337>
- Almasaudi, S. (2021). The antibacterial activities of honey. *Saudi Journal Biological Sciences*, 28 (4): 2188-2196. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1016/j.sjbs.2020.10.017>
- Alonso-Torre, S. R., Cavia, M. M., Fernández-Muiño, M. A., Moreno, G., Huidobro, J. F & Sancho, M. T. (2006). Evolution of acid phosphatase activity of honeys from different climates. *Food Chemistry*, 97 (6), 750-755. <https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2005.06.010>
- Alqarni, A. S., Owayss, A. A., Mahmoud, A. A & Hannan, M. A. (2014). Mineral content and physical properties of local and imported honeys in Saudi Arabia. *Journal of Saudi Chemical Society*, 18 (5), 618-625. <https://doi.org/10.1016/j.jscs.2012.11.009>
- Alvarez-Suarez, J. M. (2017). Bee products-chemical and biological properties. In Springer International Publishing (1 Ed), *Chemical composition of honey* (chapter 3). Retrieved from: <https://link-springer-com.ubu-es.idm.oclc.org/book/10.1007/978-3-319-59689-1>
- Alvarez-Suarez, J. M., González-Paramás, A. M., Santos-Buelga, C., Battino, M. (2010). Antioxidant characterization of native monofloral Cuban honeys. *Journal Agriculture Food Chemistry*, 58 (17), 9817-9824. <https://doi.org/10.1021/jf1018164>

- Amiripour, M., Habibi-Najafi, M. B., Mohebbi, M & Emadi, B. (2015). Optimization of osmo-vacuum drying of pear (*Pyrus communis* L.) using response surface methodology. Food Measure, 9, 269-280. <https://doi.org/10.1007/s11694-015-9232-9>
- Ammar, E. M. A., Ismail, M., Khalil, A & Eid, M. (2015). Impact of fortification with honey on some properties of bio-yoghurt. The Journal of Microbiology, Biotechnology and Food Sciences, 4 (6), 503-508. <https://doi.org/10.15414/jmbfs.2015.4.6.503-508>
- Anandharamakrishnan, C & Padma Ishwarya, S. (2015). Spray drying techniques for food ingredient encapsulation. In John Wiley & Sons (1 Ed). Introduction to spray drying (chapter 1). Retrieved from: <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/epdf/10.1002/9781118863985>
- Andersen, Ø. M & Markham, K. R. (2006). Flavonoids chemistry, biochemistry and applications. In Taylor & Francis (1 Ed). Separation and quantification of flavonoids (chapter 1). Retrieved from: <https://www.taylorfrancis.com/books/mono/10.1201/9781420039443/flavonoids-kenneth-markham-oyvind-andersen>
- Antony, S., Rieck, J. R & Dawson, P. L. (2000). Effect of dry honey on oxidation in turkey breast meat. Poultry Science, 79 (12), 1846-1850. <https://doi.org/10.1093/ps/79.12.1846>
- Arii, Y & Nishizawa, K. (2022). Development of tofun: A new sweet confection made from soymilk and honey. Heliyon, 8 (9), e10454. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1016/j.heliyon.2022.e10454>
- Arvanitoyannis, I. S., Bosinas, K. P., Bouletis, A. D., Gkagtzis, D. C., Hadjichristodoulou, C & Papaloucas, C. (2011). Study of the effect of atmosphere modification in conjunction with honey on the extent of shelf life of Greek bakery delicacy "touloupaki". Anaerobe, 17 (6), 300-302. <http://dx.doi.org/10.1016/j.anaerobe.2011.04.009>
- Ayoob, M., Shah, A. H., Nizamani, Z. A., Ayoob, M. F., Bhuptani, D. K & Baloch, A. S. (2023). Antimicrobial and antioxidative effects of honey marination on beef meat. Pakistan Journal of Zoology, 5 (3), 1409-1416. <https://dx.doi.org/10.17582/journal.pjz/20211203051239>
- Baglio, E. (2018). Chemistry and Technology of honey production. In Springer International Publishing (1 Ed), The industry of honey. An Introduction (chapter 1). Retrieved from: <https://link.springer.com/book/10.1007/978-3-319-65751-6>
- Balaji Waghmare, R., Kumar, M & Singh Panesar, P (2024). Freeze Drying of Food Products: Fundamentals, Processes and Applications. In John Wiley & Sons Ltd (1 Ed), Freeze-Drying: Basic Principles and Processes (chapter 1). Retrieved from: <https://onlinelibrary-wiley-com.ubu-es.idm.oclc.org/doi/pdf/10.1002/9781119982098> (Accessed 13 August 2024).
- Banerjee, S., Ghosh, J & Sil, P. (2016). Drug metabolism and oxidative stress: cellular mechanism and new therapeutic insights. Analytical Biochemistry, 5 (1), 1000255. <http://dx.doi.org/10.4172/2161-1009.1000255>
- Bansal, V., Premi, M., Sharma, H. K & Nanda, V. (2017). Compositional, physical, functional attributes and flow characterization of spray-dried skim milk powder enriched with honey. Journal of Food Measurement and Characterization, 11, 1474-1485. <https://link.springer.com/article/10.1007/s11694-017-9526-1>
- Bansal, V., Sharma, H. K & Nanda, V. (2014). Optimisation of spray drying process parameters for low-fat honey-based milk powder with antioxidant activity. Food Science & Technology, 49, 1196-1202. <http://dx.doi.org/10.1111/jifs.12416>
- Barańska, A., Jedlińska, A & Samborska, K. (2021). Dehumidified air assisted spray drying of buckwheat honey with maltodextrin and skim milk powder as carriers. Applied Sciences, 11, 3150. <https://doi.org/10.3390/app11073150>

- Barbosa-Cánovas, G. V. (2021). Food powders properties and characterization. In Springer Nature Switzerland (1 Ed), Food powders particle properties (chapter 2). Retrieved from: https://openaccess.izu.edu.tr/xmlui/bitstream/handle/20.500.12436/2738/Ertan_ermis_kitap_bolumu_say_falar.pdf?sequence=1&isAllowed=y
- Barbosa-Cánovas, G. V., Ortega-Rivas, E., Juliano, P & Yan, H. (2005). Food powders: Physical properties, processing, and functionality. In Spring Street (1 Ed). Bulk properties (chapter 3). Retrieved from: <https://link.springer.com/book/10.1007/0-387-27613-0>
- Becerril-Sánchez, A. L., Quintero-Salazar, B., Dublán-García, O & Escalona-Buendía, H. B. (2021). Phenolic compounds in honey and their relationship with antioxidant activity, botanical origin, and color. *Antioxidants*, 10 (11), 1700. <https://doi.org/10.3390/antiox10111700>
- Belitz, H., Grosch, W & Schieberle, P. (2009). Food chemistry. In Springer-Verlag (4 Ed). Amino acids, peptides, proteins (chapter 1). Retrieved from: <https://tech.chemistrydocs.com/Books/Food%20Chemistry/Food-Chemistry-by-H.D.Belitz-W.Grosch-&-P.Schieberle-4th-revised-and-extended-ed..pdf>
- Bhandari, B. R & Howes, T. (1999). Implication of glass transition for the drying and stability of dried foods. *Journal of Food Engineering*, 1 (2), 71-79. [https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1016/S0260-8774\(99\)00039-4](https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1016/S0260-8774(99)00039-4)
- Bhandari, B., D'Arcy, B & Kelly, C. (1999). Rheology and crystallization kinetics of honey: Present status. *International Journal of Food Properties*, 2 (3), 217-226. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1080/10942919909524606>
- Bogdanov, S., Jurendic, T., Sieber, R & Gallmann, P. (2008). Honey for nutrition and health: A review. *Journal of the American College of Nutrition*, 27 (6), 677-689. <https://doi.org/10.1080/07315724.2008.10719745>
- Bogdanov, S., Martin, P & Lullmann, C. (2002). Harmonised methods of the international honey commission. Swiss Bee Research Centre, FAM, Liebefeld.
- Bogdanov, S., Ruoff, K & Oddo, L. P. (2004). Physico-chemical methods for characterisation of unifloral honeys: A review. *Apidologie*, 35 (Suppl. 1), S4-S17. <https://doi.org/10.1051/apido:2004047>
- Boukouvalas, C. J., Krokida, M. K., Maroulis, Z. B & Marinou-Kouris, D. (2007). Density and porosity: Literature data compilation for foodstuffs. *Internal Journal of Food Properties*, 9 (4), 715-746. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1080/10942910600575690>
- Bourlioux, P. (2013). Which alternatives are at our disposal in the anti-infectious therapeutics face to multi-drug resistant bacteria? (De quelles alternatives notre arsenal thérapeutique anti-infectieux dispose-t-il face aux bactéries muti-résistantes?). *Annales Pharmaceutiques Françaises*, 71 (3), 150-158. <https://doi.org/10.1016/j.pharma.2013.02.005>
- Bringas-Lantigua, M., Pino, J. A & Aragüez-Fortes, Y. (2016). Influence of process conditions on the physicochemical properties of honey powder produced by spray drying. *Revista CENIC Ciencias Químicas*, 47, 64-69. <https://revista.cnic.cu/index.php/RevQuim/article/view/114>
- Brudzynski, K., Miotto, D., Kim, L., Sjaarda, C., Maldonado-Alvarez, L *et al.* (2017). Active macromolecules of honey form colloidal particles essential for honey antibacterial activity and hydrogen peroxide production. *Scientific Reports*, 7, 7637. <http://dx.doi.org/10.1038/s41598-017-08072-0>
- Buchi. B-290 Mini Spray Dryer Operation Manual [Internet]. Switzerland: Buchi; 2018 [consulted 1 august 2024]. Retrieved from https://www.scientificlabs.co.uk/handlers/libraryFiles.ashx?filename=Manuals_E_EVA4514_B.pdf

- Castillo-Zamudio, R. I., Soto-Reyes, N., Vargas-Sánchez, R. D., Torres-Martínez, B. M., Torrescano-Urrutia, G. R & Sánchez-Escalante, A. (2024). Antioxidant and antibacterial effect of mesquite honey on pork sausages during storage. *Agrociencia*, 58-4. <https://agrociencia-colpos.org/index.php/agrociencia/article/view/3029>
- Cavia, M. M. (2002). Estudio del envejecimiento de mieles de Burgos y Galicia: Influencia de la granulación inducida. Tesis doctoral. Universidad de Burgos.
- Cavia, M. M., Fernández-Muiño, M. A., Alonso-Torre, S. R. Huidobro, J. F & Sancho, M. T. (2007). Evolution of acidity of honeys from continental climates: Influence of induced granulation. *Food Chemistry*, 100 (4), 1728-1733. <http://dx.doi.org/10.1016/j.foodchem.2005.10.019>
- Chen, L., Mehta, A., Bernbaum, M., Zangerl, A. R & Engeseth, N. J. (2000). Honeys from different floural sources as inhibitors of enzymatic browning in fruit and vegetable homogenates. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 48 (10), 4997-5000. <https://doi.org/10.1021/jf000373j>
- Chen, X., Ting, J. L. H., Peng, Y., Tangjaidee, P., Zhu, Y., Li, Q *et al.* (2021). Comparing three types of mandarin powders prepared via microfluidic-jet spray drying: Physical properties, phenolic retention and volatile profiling. *Foods*, 10 (1), 123. <https://doi.org/10.3390/foods10010123>
- Churio, O & Valenzuela, C. (2018). Development and characterization of maltodextrin microparticles to encapsulate heme and non-heme iron. *LWT- Food Science and Technology*, 96, 568-575. <https://doi.org/10.1016/j.lwt.2018.05.072>
- Codex Alimentarius. (2001). Revised Codex Standard for Honey. Codex Stant12- 1981.
- Coimbra, P. P. S., Cardoso, F. S. N & Gonçalves, E. B. A. (2021). Spray drying wall materials: relationship with bioactive compounds. *Critical Reviews in Food Science and Nutrition*, 61 (17), 2809-2826. <https://doi.org/10.1080/10408398.2020.1786354>
- Colmenares-Cuevas, S. I., Contreras-Oliva, A., Salinas-Ruiz, J., Hidalgo-Contreras, J. V., Flores-Andrade, E & García-Ramírez, E. J. (2024). Development and study of the funtional properties of marshmallow enriched with bee (*Apis mellifera*) honey and encapsulated probiotics (*Lactobacillus rhamnosus*). *Frontiers in Nutrition*, 11, 1353530. <https://doi.org/10.3389/fnut.2024.1353530>
- Combarros-Fuertes, P. (2018). Caracterización y estudio de compuestos bioactivos, propiedades antioxidantes y mecanismos de acción antibacteriana de diferentes variedades de miel española. Tesis doctoral. Universidad de León.
- Conforti, F. D & Strait, M. J. (1999). The effects of liquid honey as a partial substitute for sugar on the physical and sensory qualities of a fat-reduced muffin. *Journal Consumer Studies & Home Economics*, 23 (4), 231-237. <https://onlinelibrary-wiley-com.ubu-es.idm.oclc.org/doi/pdf/10.1046/j.1365-2737.1999.00113.x>
- Conforti, P. A & Lupano, C. E. (2004). Functional properties of biscuits with whey protein concentrate and honey. *International Journal of Food Science & Technology*, 39 (7), 745-753. <http://dx.doi.org/10.1111/j.1365-2621.2004.00838.x>
- Couquet, Y., Alexis, D & Rigal, M. L. (2013). The antibacterial and cicatrising properties of honey (Les propriétés antibactériennes et cicatrisantes du miel). *Actualités Pharmaceutiques*, 52 (531), 22-25. <http://dx.doi.org/10.1016/j.actpha.2013.10.005>
- Crane, E. (1975). Honey: A comprehensive survey. Editorial Heinemann. London.

- Cui, Z. W., Sun, L. J., Chen, W & Sun, D. W. (2008). Preparation of dry honey by microwave-vacuum drying. *Journal of Food Engineering*, 84 (4), 582-590. <https://doi-org.ubues.idm.oclc.org/10.1016/j.jfoodeng.2007.06.027>
- Cuq, B., Rondet, E & Abecassis, J. (2011). Food powders engineering, between knowhow and science: Constraints, stakes and opportunities. *Powder Technology*, 2, 244-251. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2010.08.012>
- da Silva, P. M., Gauche, C., Valdemiro, L., Oliveira, A. C & Fett, R. (2016). Honey: Chemical composition, stability and authenticity. *Food Chemistry*, 196, 309-323. <https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2015.09.051>
- Dadant, C. (1975). La colmena y la abeja melífera. Editorial Hemisferio. Montevideo (Uruguay).
- De Lorenzo, C., Guadalix, M., González, M. M., Navarro, T., Pérez, R. A., Sanz, M. L *et al.* (2002). La miel de Madrid. Madrid. Editorial Consejería de Economía e Innovación Tecnológica.
- Desai, K. G. H & Jin Park, H. (2005). Recent developments in microencapsulation of food ingredients. *Drying Technology*, 23 (7), 1361-1394. <https://doi.org/10.1081/DRT-200063478>
- Devi, K. D., Paul, S. K & Sahu, J. K. (2016). Study of sorption behavior, shelf life and colour kinetics of vacuum puffed honey at accelerated storage conditions. *Journal of Food Science & Technology*, 53 (5), 2334-2341. <https://doi.org/10.1007/s13197-016-2204-1>
- Díaz-Moreno, A. C. (2009). Influencia de las condiciones de almacenamiento sobre la calidad físico-química y biológica de la miel. Tesis doctoral. Universidad de Zaragoza.
- Di-Stefano, E., White, J., Seney, S., Hekmat, S., McDowell, T., Sumarah, M *et al.* (2017). A novel millet-based probiotic fermented food for the developing world. *Nutrients*, 9 (5), 529. <https://doi.org/10.3390/nu9050529>
- Dobre, I., Georgescu, L. A., Alexe, P., Escudero, O & Seijo, M. C. (2012). Rheological behavior of different honey types from Romania. *Food Research International*, 49 (1), 126-132. <https://doi.org/10.1016/j.foodres.2012.08.009>
- DOCE (2002). Directiva 2001/110/CE del Consejo, de 20 de diciembre de 2001, relativa a la miel. *Diario Oficial de las Comunidades Europeas*, 10, de 12 de enero de 2002. Bruselas.
- Du, J., Ge, Z. Z., Xu, Z., Zou, B., Zhang, Y & Li, C. M. (2014). Comparison of the efficiency of five different drying carriers on the spray drying of persimmon Pulp powders. *Drying Technology*, 32 (10), 1157-1166. <https://doi.org/10.1080/07373937.2014.886259>
- Egas Astudillo, L. A. (2019). Aplicación de la atomización y la liofilización para la obtención de polvo y snack de pomelo. Tesis doctoral. Universidad Politécnica de Valencia.
- Electrical work book (2022). What is freeze dryer? Working principle, construction, diagram, advantages, disadvantages & applications [Internet]. [consulted 23 september 2024]. Freeze-dryer. Retrieved from: <https://electricalworkbook.com/freeze-dryer/>
- El-Seedi, H. R., Eid, N., El-Wahed, A. A. A., Rateb, M. E., Afifi, H. S., Algethami, A. F *et al.* (2022). Honey bee products: Preclinical and clinical studies of their anti-inflammatory and immunomodulatory properties. *Frontiers in Nutrition*, 8, 761267. <https://doi.org/10.3389/fnut.2021.761267>
- Escriche, I.; Talenque-Alberto, F; Visquert, M & Oroian, M. (2017). Physicochemical and rheological characterization of honey from Mozambique. *LWT- Food Science and Technology*, 86 (4), 108-115. <http://dx.doi.org/10.1016/j.lwt.2017.07.053>

Estupiñan, S., Sanjuan, E., Millan, R & González-Cortes, A. (1998). Parámetros de calidad de la miel: I. Microbiología, características físico-químicas y envejecimiento: Revisión. *Alimentaria*, 296, 89-94.

Eteraf-Oskouei, T & Najafi, M. (2013). Traditional and modern uses of natural honey in human diseases: A review. *Iranian Journal of Basic Medical Sciences*, 16 (6), 731-742. <https://pubmed.ncbi.nlm.nih.gov/23997898>

European Commission. (2024). Honey Market Presentation. Agriculture and Rural Development.

Fan, F & Roos, Y. H. (2019). Physicochemical properties, structural transformation, and relaxation time in strength analysis for honey powder models. *Food Research International*, 122, 137-148. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1016/j.foodres.2019.04.003>

FAO. (1990). Control de calidad de la miel y la cera. Boletín de Servicios Agrarios 68/3. Roma. Italia.

Fattori, S. (2004). La miel: propiedades, composición y análisis físico-químico. Buenos Aires. Editorial Apimondia.

Fennema, O. R. (2000). Química de los alimentos. 2 edición. Editorial Acribia.

Fitzpatrick, J. J., Barringer, S. A & Iqbal, T. (2004). Flow property measurement of food powders and sensitivity of Jenike's hopper design methodology to the measured values. *Journal of Food Engineering*, 61, 399-405. [https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1016/S0260-8774\(03\)00147-X](https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1016/S0260-8774(03)00147-X)

Fratianni, F., Amato, G., Ombra, M. N., De Feo, V., Nazzaro, F & De Giulio, B. (2024). Chemical characterization and biological properties of leguminous honey. *Antioxidants*, 13, 482. <https://doi.org/10.3390/antiox13040482>

Gacche, R. N., Shinde, B. T., Dhole, N. A., Pund, M. M & Jadhav, A. D. (2009). Evaluation of floral honey for inhibition of polyphenol oxidase mediated browning, antioxidant and antimicrobial activities. *Journal of Food Biochemistry*, 33 (5), 693-706. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1111/j.1745-4514.2009.00245.x>

Gámbaro, A., Ares, G., Giménez, A & Pahor, A. G. S. (2007). Preference mapping of color of Uruguayan honeys. *Journal of Sensory Studies*, 22 (5), 507-519. <http://dx.doi.org/10.1111/j.1745-459X.2007.00125.x>

Ganaie, T. A., Masoodi, F. A., Rather, S. A & Gani, A. (2021). Exploiting maltodextrin and whey protein isolate macromolecules as carriers for the development of freeze dried honey powder. *Carbohydrate Polymer Technologies & Applications*, 2, 100040. <https://doi.org/10.1016/j.carpta.2021.100040>

Ge, S., Han, J., Sun, Q., Zhou, Q., Ye, Z., Li, P *et al.* (2024). Research progress on improving the freeze-drying resistance of probiotics: A review. *Trends in Food Science & Technology*, 147, 104425. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1016/j.tifs.2024.104425>

Gheldof, N & Engeseth, N. J. (2002). Antioxidant capacity of honeys from various floral sources based on the determination of oxygen radical absorbance capacity and inhibition of in vitro lipoprotein oxidation in human serum samples. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 50 (10), 3050-3055. <https://doi.org/10.1021/jf0114637>

Gorle, A. P & Chopade, S. S. (2020). Liquisolid technology: Preparation, characterization and applications. *Journal of Drug Delivery and Therapeutics*, 10 (3-s), 295-307. <http://dx.doi.org/10.22270/jddt.v10i3-s.4067>

Graça, M. (1987). Contribuição para o estudo do mel, polen, geleia real e propólis. *Bol. Fac. Farm. Coimbra*, 11 (2), 17-47.

Grand View Research. (2022). Honey powder market size, share & trends analysis report by type (organic, conventional), by application (food & beverages, beauty & personal care), by distribution channel (online,

offline), by region, and segment forecasts, 2024-2030. Grand View Research, <https://www.grandviewresearch.com/industry-analysis/honey-powder-market#>

Greenbaum, A & Aryana, K. J. (2013). Effect of honey a natural sweetener with several medicinal properties on the attributes of a frozen dessert containing the probiotic *Lactobacillus acidophilus*. Open Journal of Medical Microbiology, 3 (2), 95. <http://dx.doi.org/10.4236/ojmm.2013.32015>

Hakim, D. A., Tjahjaningsih, W & Sudarno. (2019). Antibacterial activity of honey in preserving high-pressure cooked milkfish stored at room temperature. IOP Conference Series: Earth and Environmental Science, 236 (1), 012079. <http://dx.doi.org/10.1088/1755-1315/236/1/012079>

Hananeh, W. M., Ismail, Z.B., Alshehabat, M. A., Mahmoud, A. A & Ali, J. H. (2015). Effects of Sidr honey on second-intention of contaminated full-thickness skin wounds in healthy dogs. Bulletin of the Veterinary Institute in Pulawy, 59 (3), 433-439. <http://dx.doi.org/10.1515/bvip-2015-0063>

Hasnol, N. D. S., Jinap, S & Sanny, M. (2014). Effect of different types of sugars in a marinating formulation on the formation of heterocyclic amines in grilled chicken. Food Chemistry, 145, 514-521. <https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2013.08.086>

Hegazi, A. G., Al Guthami, F. M., Al Gethami, A. F., Allah F. M. A., Saleh, A. A & Fouad, E. A. (2017). Potential antibacterial activity of some Saudi Arabia honey, Veterinary World, 10 (2), 233-237. <https://doi.org/10.14202/vetworld.2017.233-237>

Hegde, S., Sharathchandra, K., Abhisheka, G & Sridhar, K. R. (2023). Comparison of the bioactive potential of floral honey from the Western Ghats of India. International Journal of Agricultural Technology, 19 (3), 949-966. [http://www.ijat-aatsea.com/pdf/v19_n3_2023_May/7_IJAT_19\(3\)_2023_Hegde,%20S..pdf](http://www.ijat-aatsea.com/pdf/v19_n3_2023_May/7_IJAT_19(3)_2023_Hegde,%20S..pdf)

Hercegová, D., Ivanišová, E., Zagula, G., Terentjeva, M., Kročko, M., Tvrdá, E *et al.* (2019). Technological, phytochemical and sensory profile of honey biscuits made from buckwheat, rye, spelt and wheat flour. Quality Assurance and Safety of Crops & Foods, 11 (4), 333-340. <http://dx.doi.org/10.3920/QAS2018.1376>

Holubová, A., Chlupáčová, L., Cetlová, L., Cremers, N. A. J & Pokorná, A. (2021). Medical grade honey as an alternative treatment for antibiotics in non healing wounds a prospective case series, 10 (8): 918. <https://doi.org/10.3390/antibiotics10080918>

Hospital, X. F., Hierro, E., Martín-Cabrejas, I., Caballero, N., Jiménez, B., Sánchez-Martín, V *et al.* (2024). Bee products as an alternative for the preservation of nitrate and nitrite-reduced dry fermented sausages. Food Bioscience, 59, 104048. <https://doi.org/10.1016/j.fbio.2024.104048>

Huachuahuilca Lizarme, D. (2017). Efecto de liofilización sobre los compuestos bioactivos y capacidad antioxidante en la pulpa de aguaymanto (*Physalis peruviana* L.). Tesis doctoral. Universidad Nacional José María Arguedas.

Huidobro, J. & Simal, J. (1984). Determinación del color y la turbidez en las mieles. Anales de Bromatología, 36 (2), 225-245.

Hussain, T., Tan, B., Yin, Y., Blachier, F., Tossou, M.C & Rohu, N. (2016). Oxidative stress and inflammation: What polyphenols can do for us?. Oxidative medicine and cellular longevity, 2016 (1), 7432797. <https://doi.org/10.1155%2F2016%2F7432797>

Iglesias, M. T., Martian-Alvarez, P. J., Polo, M. C., Lorenzo, C., Gonzalez, M & Pueyo, E. N. (2006). Changes in the free amino acid contents of honeys during storage at ambient temperature. Journal Agricultural and Food Chemistry, 54 (24), 9099-9104. <https://doi.org/10.1021/jf061712x>

Ivars, J. Trofalaxia: Intercambio de alimentos y comunicación [Internet]. Ivars, J; s.f. [consultado 23 septiembre 2024]. Disponible en: <https://www.latiendadelapicultor.com/blog/trofalaxia-intercambio-de-alimentos-y-comunicacion/>

Jangra, M. R., Kumar, R., Jangra, S., Jain, A & Nehra, K. S. (2018). Production and characterization of wine from ginger, honey and sugar blends. *Global Journal of Bio-Science and Biotechnology*, 7 (1), 74-80. https://www.researchgate.net/publication/322821684_PRODUCTION_AND_CHARACTERIZATION_OF_WINE_FROM_GINGER_HONEY_AND_SUGAR_BLENDS

Januário, J. G. B., Oliveira, A. S., Dias, S. S., Klososki, S. J & Pimentel, T. C. (2018). Kefir ice cream flavored with fruits and sweetened with honey: physical and chemical characteristics and acceptance. *International Food Research Journal*, 25 (1), 179-187. [http://www.ifrj.upm.edu.my/25%20\(01\)%202018/\(23\).pdf](http://www.ifrj.upm.edu.my/25%20(01)%202018/(23).pdf)

Jedlińska, A., Samborska, K., Wieczorek, A., Wiktor, A., Ostrowska-Ligęza, E., Jamróz, W *et al.* (2019). The application of dehumidified air in rapeseed and honeydew honey spray drying- Process performance and powders properties considerations. *Journal of Food Engineering*, 245, 80-87. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1016/j.jfoodeng.2018.10.017>

Jedlińska, A., Wiktor, A., Witrowa-Rajchert, D., Derewiaka, D., Wołosiaś, R., Matwijczuk, A *et al.* (2021). Quality assessment of honey powders obtained by high and low temperature spray drying. *Applied Sciences*, 11, 224. <https://doi.org/10.3390/app11010224>

Jeon, M & Zhao, J. (2005). Honey in combination with vacuum impregnation to prevent enzymatic browning of fresh-cut apples. *International Journal of Food Sciences and Nutrition*, 56 (3), 165-176. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1080/09637480500131053>

Johnston, J. E., Sepe, H. A., Miano, C. L., Brannan, R. G & Alderton, A. L. (2005). Honey inhibits lipid oxidation in ready to eat ground beef patties. *Meat Science*, 70 (4), 621-631. <https://doi.org/10.1016/j.meatsci.2005.02.011>

Juan, T. (2001). Identificación y cuantificación de flavonoides en mieles españolas de diferentes orígenes botánicos y geográficos. Tesis Doctoral. Universidad de Zaragoza.

Juan-Borrás, M. (2016). Herramientas analíticas en la clasificación de mieles en base a criterios de Calidad e inocuidad. Tesis doctoral. Universidad de Valencia.

Juan-Borrás, M., Domenech, E., Hellebrandova, M & Escriche, I. (2014). Effect of country origin on physicochemical, sugar and volatile composition of acacia, sunflower and tilia honeys. *Food Research International*, 60, 86-94. <https://doi.org/10.1016/j.foodres.2013.11.045>

Karabagias, I. K., Badeka, A., Kontakos, S., Karabournioti, S & Kontominas, M. G. (2014). Characterisation and classification of Greek pine honeys according to their geographical origin based on volatiles, physicochemical parameters and chemometrics. *Food Chemistry*, 146, 548-557. <https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2013.09.105>

Karam, M. C., Petit, J., Zimmer, D., Baudelaire Djantou, E & Scher, J. (2016). Effects of drying and grinding in production of fruit and vegetable powders: A review. *Journal of Food Engineering*, 188, 32-49. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2016.05.001>

Kaur, R., Ahluwalia, P., Sachdev, P. A & Kaur, A. (2018). Development of gluten-free cereal bar for gluten intolerant population by using quinoa as major ingredient. *Journal of Food Science and Technology*, 55 (9), 3584-3591. <https://doi.org/10.1007%2Fs13197-018-3284-x>

- Kazanci, M., Gurbuz-Guner, K & Durakli-Velioglu, S. (2024). The effect of the use of pekmez and honey as sugar substitutes on the quality characteristics and the acrylamide content of sponge cakes and cookies. *Journal of Food and Characterization*, 18, 1392-1411. <https://doi.org/10.1007/s11694-023-02286-9>
- Keke, A & Cinkmanis, I. (2020). α -Amilase activity in freeze-dried and spray-dried honey. *Agriculture & Food Sciences*, 35, 112-117. <https://doi.org/10.22616/rrd.26.2020.017>
- Keke, A & Cinkmanis, I. (2021). Total phenolic content and antiradical activity of honey powders. *Agriculture & Food Sciences*, 36, 104-110. <https://doi.org/10.22616/rrd.27.2021.015>
- Keke, A & Cinkmanis, I. (2022). Changes in the content of phenolic compounds in honey after spray drying. *Proceedings of the Latvian Academy of Sciences, section B*, 76, 1, 157-160. <https://doi.org/10.2478/prolas-2022-0024>
- Keshani, S., Daud, W. R. W., Nourouzi, M. M., Namvar, F & Ghasemi, M. (2015). Spray drying: An overview on wall deposition, process and modeling. *Journal of Food Engineering*, 146, 152-162. <https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2014.09.004>
- Khaliduzzaman, A., Siddiqui, A. A., Islam, M. M., Easani, Mv & Bhuiyan, M. H. R. (2012). Effect of honey on freezing point and acceptability of ice cream. *Bangladesh Research Publications Journal*, 7 (4), 355-360. <http://www.bdresearchpublications.com/admin/journal/upload/09359/09359.pdf>
- Khalil, M. I., Hua Gan, S & Hing Goh, B. (2023). Honey Composition and Health Benefits. In John Wiley & Sons (1 Ed). *Aromatic compounds* (chapter 10). Retrieved from: <https://www.wiley.com/en-be/Honey%3A+Composition+and+Health+Benefits-p-9781119113324>
- Khataybeh, B., Jaradat, Z & Ababneh, Q. (2023). Anti-bacterial, anti-biofilm and anti-quorum sensing activities of honey: A review. *Journal of Ethnopharmacology*, 317, 116830. <https://doi.org/10.1016/j.jep.2023.116830>
- Kilinc, M & Demir, M. K. (2017). The facilities of spray dried honey powder use as a substitute for sugar in cookie production. *Journal of Food and Health Science*, 3 (2), 67-74. <https://doi.org/10.3153/JFHS17009>
- Kołodziejczak, K., Onopiuk, A., Szpicer, A & Poltorak, A. (2024). The effect of type of vegetable fat and addition of antioxidant components on the physicochemical properties of a pea-based meat analogue. *Foods*, 13 (1), 71. <https://doi.org/10.3390/foods13010071>
- Kozłowicz, K., Różyło, R., Gładyszewska, B., Matwijczuk, A., Gładyszewski, G., Chocyk, D *et al.* (2020). Identification of sugars and phenolic compounds in honey powders with the use of GC-MS, FTIR spectroscopy, and X-ray diffraction. *Scientific Reports*, 10, 16269. <https://doi.org/10.1038/s41598-020-73306-7>
- Kristbergsson, K & Ötles, S. (2016). Functional properties of traditional foods. In Springer Science+Business Media (1 Ed). *General functional properties of foods* (chapter 1). Retrieved from: <https://link.springer.com/book/10.1007/978-1-4899-7662-8>
- Krushna, N. S. A., Kowsalya, A., Radha, S & Narayanan, R. B. (2007). Honey as a natural preservative of milk. *Indian Journal of Experimental Biology*, 45 (5), 459-464. <https://pubmed.ncbi.nlm.nih.gov/17569289/>
- Kurek-Górecka, A., Górecki, M., Rzepecka-Stojko, A., Balwierz, R & Stojko J. (2020). Bee products in dermatology and skin care. *Molecules*, 25 (3), 556. <https://doi.org/10.3390/molecules25030556>
- Labuza, T. P., Acott, K., Tatini, S.R., Lee, R. Y., Flink, J & McCall, W. J. (1976). Water activity determination: A collaborative study of different methods. *Journal of Food Science*, 41, 910-917.

- Lakhmili, H.; Warda, K.; El-Abbassi, A & Hafidi, A. (2024). Antioxidant and anti-glycation activity of eight Moroccan honeys from different botanical origins. *Discover Food*, 4, 6. <http://dx.doi.org/10.1007/s44187-024-00074-y>
- León-Ruiz, V. (2013). Caracterización, determinación de vitaminas hidrosolubles y actividad antioxidante de mieles monoflorales de Castilla La Mancha. Tesis doctoral. Universidad de Alcalá.
- Liu, Y., Zhao, Y & Feng, X. (2008). Exergy analysis a freeze-drying process. *Applied Thermal Engineering*, 28 (7), 675-690. <http://dx.doi.org/10.1016/j.applthermaleng.2007.06.004>
- Lobanovska, M & Pilla, G. (2017). Penicillin's discovery and antibiotic resistance: Lessons for the future? *Yale Journal of Biology and Medicine*, 90 (1), 135-145. <https://pubmed.ncbi.nlm.nih.gov/28356901>
- Lobo, V., Patil, A., Phatak, A & Chandra, N. (2010). Free radicals, antioxidants and functional foods: Impact on human health. *Pharmacognosy Review*, 4 (8), 118-126. <https://doi.org/10.4103/0973-7847.70902>
- López-Patiño, C., Arroqui, C., Horvitz, S & Virseda, P (2023). Evaluación del efecto conservante de la miel de abejas liofilizada en polvo sobre la carne molida de ternera. *Ciencia & Tecnología Agropecuaria*, 24 (1), e2841. https://doi.org/10.21930/rcta.vol24_num1_art:2841
- Lovászová, V. Z., Kunová, S., Haščík, P & Kačaniová, M. (2024). Microbiological quality of sous vide fish meat treated with honey. *Journal of Microbiology and Food Sciences*, 13 (4), e10710. <https://doi.org/10.55251/jmbfs.10710>
- Maicelo-Quintana, J. L., Reyna-Gonzales, K.; Balcázar-Zumaeta, C. R., Auquiñivín-Silva, E. A.; Castro-Alayo, E. M., Medina-Mendoza, M *et al.* (2024). Potential application of bee products in food industry: An exploratory review. *Heliyon*, 10, e24056. <https://doi.org/10.1016/j.heliyon.2024.e24056>
- Mandal, M.D & Mandal, S. (2011). Honey: Its medicinal property and antibacterial activity. *Asian Pacific Journal of Tropical Biomedicine*, 1 (2), 154-60. [https://doi.org/10.1016%2FS2221-1691\(11\)60016-6](https://doi.org/10.1016%2FS2221-1691(11)60016-6)
- Manickavasagam, G., Saaïd, M & Lim, V. (2024). Impact of prolonged storage on quality assessment properties and constituents of honey: a systematic review. *Journal of Food Science*, 89 (2), 811-833. <https://doi.org/10.1111/1750-3841.16921>
- MAPA. (2023). El sector apícola español en 2023: Principales magnitudes e indicadores económicos. Subdirección General de Producciones Ganaderas y Cinegéticas. Ministerio de Agricultura, Pesca y Alimentación.
- Mato, I. (2004). Estudio de los ácidos orgánicos no aromáticos en la miel. Tesis doctoral. Universidad de Santiago de Compostela.
- Mato, I., Huidobro, J. F., Simal-Lozano, J & Sancho, M. T. (2006). Analytical methods for the determination of organic acids in honey. *Critical Reviews in Analytical Chemistry*, 36 (1), 3-11. <http://dx.doi.org/10.1080/10408340500451957>
- Matwiczuk, A., Budziak-Wieczorek, I., Czernel, G., Karcz, D., Barańska, A., Jedlińska, A *et al.* (2022). Classification of honey powder composition by FTIR spectroscopy coupled with chemometric analysis. *Molecules*, 27, 3800. <https://doi.org/10.3390/molecules27123800>
- McKibben, J & Engeseth, N. J. (2002). Honey as a protective agent against lipid oxidation in ground turkey. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 50 (3), 592-595. <https://doi.org/10.1021/jf010820a>
- Menon, A., Stojceska, V & Tassou, S. A. (2020). A systematic review of the recent advances of the energy efficiency improvements in non-conventional food drying technologies. *Trends in Food Science & Technology*, 100, 67-76. <https://doi.org/10.1016/j.tifs.2020.03.014>

- Mohammed, R. A., Sulieman, M. A & Elgasim, E. A. (2013). Effect of bee honey in safety and storability of beef sausage. *Pakistan Journal of Nutrition*, 12 (6), 560-566. <http://dx.doi.org/10.3923/pjn.2013.560.566>
- Moody, M. N., Landau, J.M., Goldberg, L.H., Marquez, D & Vergilis-Kalner, I. J. (2011). 595 nm long pulsed dye laser with a hydrocolloid dressing for the treatment of hypergranulation tissue on the scalp in postsurgical defects. *Dermatology Online Journal*, 17 (7), 2. <https://doi.org/10.5070/D38cn396s7>
- Moriano, M. E & Alamprese, C. (2017). Honey, trehalose and erythritol as sucrose-alternative sweeteners for artisanal ice cream. A pilot study. *LWT-Food Science and Technology*, 75, 329-334. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1016/j.lwt.2016.08.057>
- Mutlu, C & Erbas, M. (2023). Evaluating the effects of different drying methods, carrier materials and their ratios to produce bioactive honey-like powder. *Journal of Apicultural Research*, 62 (2), 364-373. <https://doi.org/10.1080/00218839.2021.1885877>
- Mutlu, C. (2023). Bee pollen usage as carrier material in the drying of honey and some properties of honey-bee pollen powders. *British Food Journal*, 125 (10), 3734-3747. <http://dx.doi.org/10.1108/BJFJ-11-2022-1029>
- Mutlu, C., Koç, A & Erbaş, M. (2020). Some physical properties and adsorption isotherms of vacuum-dried honey powder with different carrier materials. *LWT-Food Science & Technology*, 134, 110166. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1016/j.lwt.2020.110166>
- Mutlu, C., Tontul, S. A & Erbaş, M. (2018). Production of a minimally processed jelly candy for children using honey instead of sugar. *LWT-Food Science and Technology*, 93, 499-505. <https://doi.org/10.1016/j.lwt.2018.03.064>
- Nagai, T., Inoue, R., Kanamori, N., Suzuki, N & Nagashima, T. (2006). Characterization of honey different floral sources. Its functional properties and effects of honey species on storage of meat. *Food Chemistry*, 97 (2), 256-262. <https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2005.03.045>
- Nesterenko, A., Alric, I., Silvestre, F & Durrieu, V. (2013). Vegetables proteins in microencapsulation: A review of recent interventions and their effectiveness. *Industrial Crops and Products*, 42, 469-479. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1016/j.indcrop.2012.06.035>
- Nolan, V. C., Harrison, J & Cox, J. A. G. (2019). Dissecting the antimicrobial composition of honey. *Antibiotics*, 8 (4): 251. <https://doi.org/10.3390/antibiotics8040251>
- Nurhadi, B & Roos, Y. H. (2016). Dynamic water sorption for the study of amorphous content of vacuum-dried honey powder. *Powder Technology*, 301, 981-988. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1016/j.powtec.2016.07.055>
- Nurhadi, B & Roos, Y. H. (2017). Influence of anti-caking agent on the water sorption isotherm and Flowability properties of vacuum dried honey powder. *Journal of Food Engineering*, 210, 76-82. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1016/j.jfoodeng.2017.04.020>
- Nurhadi, B., Andoyo, R., Mahani & Indarto, R. (2012). Study the properties of honey powder produced from spray drying method. *International Food Research Journal*, 19 (3), 907-912. https://www.researchgate.net/publication/275947213_Study_the_properties_of_honey_powder_produced_from_spray_drying_and_vacuum_drying_method
- Nurhadi, B., Maidannyk, V. A., Djali, M., Dwiyantri, E. H., Editha, N. P & Febrian, M. (2022). Physical and functional properties of agglomerated coconut sugar powder and honey powder using polyvinylpyrrolidone as a binder. *International Journal of Food Properties*, 25 (1), 93-104. <https://doi.org/10.1080/10942912.2021.2023177>

- Olaitan, P. B., Adeleke, O. E., Iyabo, O. O. (2007). Honey: a reservoir for microorganisms and an inhibitory agent for microbes. *African Health Sciences*, 7 (3), 159-165. https://www.researchgate.net/publication/5794975_Honey_a_Reservoir_for_Microorganisms_and_an_Inhibitory_Agent_for_Microbes
- Oluwapelumi, O. B., Morayo, A., Buru, A. S., Richard, A. Y., Funmilayo, A. J & Funmi, A. A. (2017). Antimicrobial activities of different honeys sold in Ado-Ekiti on bacteria associated with upper respiratory tract infections. *International Journal of Current Microbiology and Applied Sciences*, 6 (2), 1-10. <http://dx.doi.org/10.20546/ijcmas.2017.602.001>
- Oryan, A., Alemzadeh, E & Moshiri, A (2016). Biological properties and therapeutic activities of honey in wound healing: A narrative review and meta-analysis. *Journal of Tissue Viability*, 25 (2), 98-118. <https://doi.org/10.1016/j.jtv.2015.12.002>
- Oyinloye, T. M & Yoon, W. B. (2020). Effect of freeze-drying on quality and grinding process of food produce: A review. *Processes*, 8, 354. <https://doi.org/10.3390/pr8030354>
- Ozdemir, C., Dagdemir, E., Ozdemir, S & Sagdic, O. (2008). The effects of using alternative sweeteners to sucrose on ice cream quality. *Journal of Food Quality*, 31 (4), 415-428. <https://doi-org.ubues.idm.oclc.org/10.1111/j.1745-4557.2008.00209.x>
- Ozmen, L & Langrish, T. (2002). Comparison of glass transition temperatura and sticky point temperatura for skim milk poder. *Drying Technology*, 20 (6), 1177-1192. <https://doi.org/10.1081/DRT-120004046>
- Palma, J. M & Seiquer, I. (2020). To be or not be...antioxidant? That is the question. *Antioxidants*, 9 (12), 1234. <https://doi.org/10.3390/antiox9121234>
- Pascual-Maté, A. (2016). Characterization of artesanal honeys from Castilla y León. Tesis doctoral. Universidad de Burgos.
- Patrignani, M., Battaiotto, L. L & Conforti, P. A. (2022). Development of a good quality honey biscuit filling: Optimization, sensory properties and shelf life analysis. *International Journal of Gastronomy and Food Science*, 28, 100508. <https://doi.org/10.1016/j.ijgfs.2022.100508>
- Pereira Souza, A. C., Gurak, P. D & Ferreira Marczak, L. D. (2017). Maltodextrin, pectin and soy protein isolate as carrier agents in the encapsulation of anthocyanins rich extract from jaboticaba pomace. *Food and Bioproducts Processing*, 102, 186-194. <https://doi-org.ubues.idm.oclc.org/10.1016/j.fbp.2016.12.012>
- Pham-Huy, L. A., He, H & Pham-Huy, C. (2008). Free radicals, antioxidants in disease and health. *International Journal of Biomedical Science*, 4 (2), 89-96. <http://dx.doi.org/10.59566/IJBS.2008.4089>
- Półtorak, A., Marcinkowska-Lesiak, M., Lendzion, K., Moczowska, M., Onopiuk, A., Wojtasik-Kalinowska, I *et al.* (2018). Evaluation of the antioxidant, anti-inflammatory and antimicrobial effects of catuaba, galangal, roseroot, maca root, guarana and polyfloral honey in sausages during storage. *LWT-Food Science and Technology*, 96, 364-370. <https://doi.org/10.1016/j.lwt.2018.05.035>
- Półtorak, A., Marcinkowska-Lesiak, M., Lendzion, K., Onopiuk, A., Moczowska, M., Wojtasik-Kalinowska, I *et al.* (2019). The effect of bioactive components of plant origin on the physicochemical and sensory characteristics of functional sausages. *Food Science and Technology*, 39 (1), 232-239. <https://doi.org/10.1590/fst.03018>
- Poulsen-Silva, E., Gordillo-Fuenzalida, F., Velásquez, P., Llancahuen, F. M., Carvajal, R., Cabaña Brunod, M *et al.* (2023). Antimicrobial, antioxidant, and anti-inflammatory properties of monofloral honeys from Chile. *Antioxidants*, 12 (9), 1785. <https://doi.org/10.3390/antiox12091785>

- Prakash, A & Kuila, A. (2024). Nonthermal food processing, safety, and preservation. In Scrivener Publishing LLC (1 Ed)., Selected physical properties of processed food products and biological materials (chapter 1). Retrieved from: https://www.researchgate.net/profile/Divya_Jain12/publication/380477487_The_Extraction_of_Valuable_Phenolic_Compounds_from_Food_By-Products_Using_Neoteric_Solvents/links/6641b78f35243041539fd16d/The-Extraction-of-Valuable-Phenolic-Compounds-from-Food-By-Products-Using-Neoteric-Solvents.pdf
- Rafael, V., Flavia, Z., Gloria, M & Ady, G. (2021). Bioactive compounds in *Apis mellifera* monofloral honeys. Journal of Food Science, 86 (5), 1552-1582. <https://doi.org/10.1111/1750-3841.15706>
- Ramírez-Miranda, I., Moguel-Ordoñez, Y & Betancur-Ancona, D. (2023). Bioactive properties of honeys from stingless bees and *Apis mellifera* bees in the food industry. Journal of Apicultural Research, 62 (1), 113-130. <https://doi.org/10.1080/00218839.2022.2146368>
- Rana, S. (2014). Evaluation of therapeutic potential of honey and incorporation of honey in food products. Ph.D. Thesis, Jiwaji University, Gwalior, MP.
- Ranneh, Y., Akim, A. M., Hamid, H. A., Khazaai, H., Fadel, A., Zakaria, Z. A *et al.* (2021). Honey and its nutritional and Anti-inflammatory value. BMC Complementary Medicine and Therapies, 21, 30. <https://doi.org/10.1186/s12906-020-03170-5>
- Rasmussen, C. N., Wang, X. H., Leung, S., Andrae-Nightingale, L. M., Schmidt, S & Engeseth, N. J. (2008). Selection and use of honey as an antioxidant in a french salad dressing system. Journal of Agriculture and Food Chemistry, 56 (18), 8650-8657. <https://doi.org/10.1021/jf800635d>
- Ray, S., Raychaudhuri, U & Chakraborty, R. (2016). An overview of encapsulation of active compounds used in food products by drying technology. Food Bioscience, 13 (1), 76-83. <https://doi.org/10.1016/j.fbio.2015.12.009>
- Rivero, R. C., Archaina, D. A., Busquet, C. M., Baldi Coronel, B. M & Busch, V. M. (2021). Development of a honey-based powder ingredient using a mixture design: Botanical origin effect and hydration properties. LWT-Food Science & Technology, 147, 111446. <https://doi-org.ubus.idm.oclc.org/10.1016/j.lwt.2021.111446>
- Roos, Y. H & Karel, M. (1993). Effects of glass transitions on processing and storage. Annual Review of Food Science and Technology, 1, 469-496. https://www.researchgate.net/publication/313621265_Effects_of_glass_transitions_on_processing_and_storage
- Roos, Y. H. (2010). Glass transition temperature and its relevance in food processing. Annual Review of Food Science and Technology, 1, 469-496. <https://doi.org/10.1146/annurev.food.102308.124139>
- Ruan, R., Choi, Y. J & Chung, M. S. (2007). Caking in food powders. Food Science and Biotechnology, 16 (3), 329-336.
- Ryland, D., Vaisey-Genser, M., Arntfield, S. D & Malcolmson, L. J. (2010). Development of a nutritious acceptable snack bar using micronized flaked lentils. Food Research International, 43, 642-649. <http://dx.doi.org/10.1016/j.foodres.2009.07.032>
- Sáenz, C & Gómez, C. (2000). Mielles españolas: Características e identificación mediante el análisis del polen. Ediciones Mundi-Prensa. Madrid (España).
- Sahu, J. K & Devi, K. D. (2013). Modeling of vacuum puffing characteristics and color change of liquid honey. Industrial Crops & Products, 48, 118-123. <http://dx.doi.org/10.1016/j.indcrop.2013.04.019>

- Sahu, J. K. (2008). The effect of additives on vacuum dried honey powder properties. *International Journal of Food Engineering*, 4 (8), 9. <http://dx.doi.org/10.2202/1556-3758.1356>
- Samarghandian S., Farkhondeh T & Samini F. (2017). Honey and health: A review of recent clinical research. *Pharmacognosy Research*, 9 (2), 121-127. <https://doi.org/10.4103%2F0974-8490.204647>
- Samborska, K & Bieńkowska, B. (2013). Physicochemical properties of spray dried honey preparations. *Zeszyty Problemowe Postępów Nauk Rolniczych*, 575, 91-105. https://www.researchgate.net/publication/269333546_Physicochemical_properties_of_spray_dried_honey_preparations
- Samborska, K & Czelejewska, M. (2014). The influence of thermal treatment and spray drying on the physicochemical properties of polish honeys. *Journal of Food Processing and Preservation*, 38, 413-419. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1111/j.1745-4549.2012.00789.x>
- Samborska, K. (2019). Powdered honey – drying methods and parameters, types of carriers and drying aids, physicochemical properties and storage stability. *Trends in Food Science & Technology*, 88, 133-142. <https://doi.org/10.1016/j.tifs.2019.03.019>
- Samborska, K., Barańska, A., Szulc, K., Jankowska, E., Truszkowska, M., Ostrowska-Ligeza, E *et al.* (2020). Reformulation of spray-dried apple concentrate and honey for the enhancement of drying process performance and the physicochemical properties of powders. *Journal of the Science of Food & Agriculture*, 100 (5), 2224-2235. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1002/jsfa.10247>
- Samborska, K., Boostani, S., Geranpour, M., Hosseini, H., Dima, C., Khoshnoudi-Nia, S *et al.* (2021). Green biopolymers from by-products as wall materials for spray drying microencapsulation of phytochemicals. *Trends in Food Science & Technology*, 108, 297-325. <https://doi.org/10.1016/j.tifs.2021.01.008>
- Samborska, K., Gajek, P & Kamińska-Dwórznińska, A. (2015b). Spray drying of honey: The effect of drying aids on powder properties. *Polish Journal of Food & Nutrition Sciences*, 65 (2), 109–118. <http://dx.doi.org/10.2478/pjfn-2013-0012>
- Samborska, K., Jedlińska, A., Barańska, A., Wiktor, A., Michalska-Ciechanowska, A & Goula, A. M. (2024). Spray drying for the food industry. In Elsevier (Ed.), *Spray drying of sugar rich food products* (chapter 6). Retrieved from: <https://www.sciencedirect-com.ubu-es.idm.oclc.org/science/article/pii/B9780128197998000181> (Accessed 11 August 2024).
- Samborska, K., Jedlińska, A., Wiktor, A., Derewiaka, D., Wołosiaś, R., Matwijczuk, A *et al.* (2019a). The effect of low-temperature spray drying with dehumidified air on phenolic compounds, antioxidant activity, and aroma compounds of rapeseed honey powders. *Food & Bioprocess Technology*, 12, 919-932. <https://doi.org/10.1007/s11947-019-02260-8>
- Samborska, K., Langa, E & Bakier, S. (2015a). Changes in the physical properties of honey powder during storage. *International Journal of Food Science & Technology*, 50, 1359–1365. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1111/ijfs.12797>
- Samborska, K., Langa, E., Kamińska-Dwórznińska, A., & Witrowa-Rajchert, D. (2014). The influence of sodium caseinate on the physical properties of spray-dried honey. *International Journal of Food Science & Technology*, 50, 256–262. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1111/ijfs.12629>
- Samborska, K., Sokołowska, P & Szulc, K. (2017a). Diafiltration and agglomeration as methods to improve the properties of honey powder obtained by spray drying. *Innovative Food Science & Emerging Technologies*, 39, 33-41. <http://dx.doi.org/10.1016/j.ifset.2016.10.002>

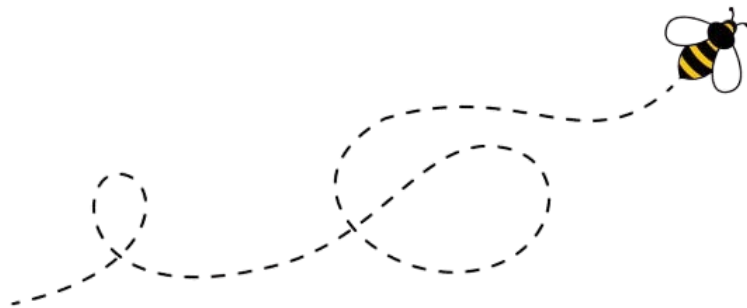
- Samborska, K., Wasilewska, A., Gondek, E., Jakubczyk, E & Kamińska-Dwórzniha, A. (2017b). Diastase activity retention and physical properties of honey/Arabic gum mixtures after spray drying and storage. *International Journal of Food Engineering*, 13 (6), 20160320. <https://doi.org/10.1515/ijfe-2016-0320>
- Samborska, K., Wiktor, A., Jedlińska, A., Matwijczuk, A., Jamróz, W., Skwarczyńska-Maj, K *et al.* (2019b). Development and characterization of physical properties of honey-rich powder. *Food & Bioproducts Processing*, 115, 78-86. <https://doi.org/10.1016/j.fbp.2019.03.004>
- Sancho, M. T.; Muniategui, S., Huidobro, J. F & Simal, J. (1991). Mieles del País Vasco X: Tendencia a la granulación. *Anales de Bromatología*, XLIII-2/3, 283-292.
- Santagata, G., Mallardo, S., Fasulo, G., Lavermicocca, P., Valerio, F., Di-Biase, M *et al.* (2018). Pectin-honey coating as novel dehydrating bioactive agent for cut fruit: Enhancement of the functional properties of coated dried fruits. *Food Chemistry*, 258, 104-110. <https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2018.03.064>
- Santos, D., Colette Mauricio, A., Sencadas, C., Domingos Santos, J., Fernandes, M. H & Gomes, P. S. (2017). Biomaterials-Physics and Chemistry-New Edition. In IntechOpen (Ed.), *Spray Drying: An Overview* (chapter 2). Retrieved from: https://www.researchgate.net/publication/324914757_Spray_Drying_An_Overview (Accessed 11 August 2024).
- Sari, N., Tahir, M. M & Zainal. (2020). Effect of the addition of honey on the growth of lactic acid bacteria in functional drinks of fermenting cassava stored at frozen temperatures. *IOP Conference Series: Earth and Environmental Science*, 486 (1), 012060. <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/1755-1315/486/1/012060>
- Sathivel, S., Kosal, A., Espinoza, L., King, J., Cueto, R., & Mis Solval, K. (2013). Application of honey powder in bread and its effect on bread characteristics. *Journal of Food Processing & Technology*, 4 (11). 1000279. <https://doi.org/10.4172/2157-7110.1000279>
- Sepúlveda, J. (1986). *Apicultura*. Editorial Aedos. Barcelona (España).
- Seth, D & Mishra, H. N. (2011). Optimization of honey candy recipe using response surface methodology. *American Journal of Food Technology*, 6 (11), 985-993. <http://dx.doi.org/10.3923/ajft.2011.985.993>
- Shi, Q., Fang, Z & Bhandari, B. (2013). Effect of addition of whey protein isolate on spray-drying behavior of honey with maltodextrin as a carrier material. *Drying Technology: An International Journal*, 31, 1681-1692. <http://dx.doi.org/10.1080/07373937.2013.783593>
- Shin, H. S & Ustunol, Z. (2006). Influence of honey containing marinades on heterocyclic aromatic amine formation and overall mutagenicity in fried beef steak and chicken breast. *Journal of Food Science*, 69 (3), 147-153. <https://doi.org/10.1111/j.1365-2621.2004.tb13350.x>
- Shishir, M. R. I., Xie, L., Sun, C., Zheng, X & Chen, W. (2018). Advances in micro and nano encapsulation of bioactive compounds using biopolymer and lipid based transporters. *Trends in Food Science and Technology*, 78, 34-60. <https://doi.org/10.1016/j.tifs.2018.05.018>
- Silva, P. M., Gauche, C., Gonzaga, L. V., Costa, A. C. O & Fett, R. (2016). Honey: Chemical composition, stability and authenticity. *Food Chemistry*, 196, 309-323. <https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2015.09.051>
- Singh, N & Bath, P. (1997). Quality evaluation of different types of Indian honey. *Food Chemistry*, 58 (1-2), 129-133. [https://doi.org/10.1016/S0308-8146\(96\)00231-2](https://doi.org/10.1016/S0308-8146(96)00231-2)
- Sobrino, L. (2020). *Avances en el esclarecimiento de la autenticidad de la miel*. Tesis doctoral. Universidad Politécnica de Valencia.
- Sobulska, M & Zbicinski, I. (2020). Advances in spray drying of sugar rich products. *Drying Technology*, 39 (12), 1774-1799. <https://doi.org/10.1080/07373937.2020.1832513>

- Sramek, M., Woerz, B., Horn, H., Weiss, J & Kohlus, R. (2016). Preparation of high-grade powders from honey-glucose syrup formulations by vacuum foam-drying method. *Journal of Food Processing and Preservation*, 40, 790-797. <http://dx.doi.org/10.1111/jfpp.12660>
- Sridhar, A., Ponnuchamy, M., Kumar, P. S & Kapoor, A. (2021). Food preservation techniques and nanotechnology for increased shelf life of fruits, vegetables, beverages and spices: A review. *Environmental Chemistry letters*, 19 (2), 1715-1735. <https://doi.org/10.1007/s10311-020-01126-2>
- Stelmakienė, A., Ramanauskienė, K., Briedis, V & Leskauskaitė, D. (2012). Examination of rheological and physicochemical characteristics in Lithuanian honey. *African Journal of Biotechnology*, 11 (60), 12406-12414. <http://dx.doi.org/10.5897/AJB12.829>
- Suhag, R., Kellil, A & Razem, M. (2024). Factors influencing food powder flowability. *Powders*, 3 (1), 65-76. <https://doi.org/10.3390/powders3010006>
- Suhag, Y & Nanda, V. (2015). Optimisation of process parameters to develop nutritionally rich spray-dried honey powder with vitamin C content and antioxidant properties. *International Journal of Food Science & Technology*, 50 (8), 1771-1777. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1111/ijfs.12841>
- Suhag, Y & Nanda, V. (2016a). Evaluation of different carrier agents with respect to physico-chemical, functional and morphological characteristics of spray dried nutritionally rich honey powder. *Journal of Food Processing & Preservation*, 40 (6), 1429-1437. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1111/jfpp.12728>
- Suhag, Y & Nanda, V. (2016b). Optimization for spray drying process parameters of nutritionally rich honey powder using response Surface methodology. *Cogent Food & Agriculture*, 2, 1176631. <http://dx.doi.org/10.1080/23311932.2016.1176631>
- Suhag, Y & Nanda, V. (2017). Degradation kinetics of ascorbic acid in encapsulated spray-dried honey powder packaged in aluminium laminated polyethylene and high-density polyethylene. *International Journal of Food Properties*, 20 (3), 645-653. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1080/10942912.2016.1174939>
- Suhag, Y., Nayik, G. A & Nanda, V. (2016). Effect of gum concentration and inlet temperature during spray drying on physical and antioxidant properties of honey powder. *Journal of Food Measurement & Characterization*, 10 (2), 350-356. <https://link.springer.com/article/10.1007/s11694-016-9313-4>
- Suhag, Y., Nayik, G. A., Karabagias, I. K & Nanda, V. (2021). Development and characterization of a nutritionally rich spray-dried honey powder. *Foods*, 10, 162. <https://doi.org/10.3390/foods10010162>
- Talenque, F. J. (2019). Características diferenciadoras de mieles y ceras de abeja del norte y centro de Mozambique. Tesis doctoral. Universidad Politécnica de Valencia.
- Tomczyk, M., Zagula, G & Dżugan, M. (2020b). A simple method of enrichment of honey powder with phytochemicals and its potential application in isotonic drink industry. *LWT- Food Science & Technology*, 125, 109204. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1016/j.lwt.2020.109204>
- Tomczyk, M., Zagula, G., Tarapatskyy, M., Kačaniová, M & Dżugan, M. (2020a). The effect of honey variety on the quality of honey powder. *Journal of Microbiology, Biotechnology & Food Sciences*, 9 (5), 949-954. <https://doi.org/10.15414/jmbfs.2020.9.5.949-954>
- Tong, Q., Zhang, X., Wu, F., Tong, J., Zhang, P & Zhang, J. (2010). Effect of honey powder on dough rheology and bread quality. *Food Research International*, 43, 2284-2288. <https://doi.org/10.1016/j.foodres.2010.08.002>

- Toniazzo, T., Collado-González, M., Tadini, C. C & Mackie, A. R. (2023b). Evaluation of physicochemical properties of honey powder using rice and pea proteins as carrier. *Food Research International*, 167, 112692. <https://doi.org/10.1016/j.foodres.2023.112692>
- Toniazzo, T., Minami Fioroto, A., da Silva Araújo, E & Tadini, C. C. (2023a). Honey powder produced by spray drying as an ingredient: A new perspective using a plant-based protein as a carrier. *Drying Technology*, 41 (10), 1651-1662. <https://doi.org/10.1080/07373937.2023.2172028>
- Truzzi, C., Annibaldi, A., Illuminati, S., Finale, C & Scarponi, G. (2014). Determination of proline in honey: Comparison between official methods, optimization and validation of the analytical methodology. *Food Chemistry*, 150, 477-481. <https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2013.11.003>
- Ueda, J. M., Morales, P., Fernández-Ruiz, V., Ferreira, A., Barros, L., Caroch, M *et al.* (2023). Powdered Foods: Structure, processing, and challenges: A review. *Applied sciences*, 13, 12496. <https://doi.org/10.3390/app132212496>
- Vaclavik, V. A & Christian, E. W. (2014). Essentials of food science. In Springer Science+Business Media (4 Ed.), *Baked products: Batters and dough* (chapter 15). Retrieved from: https://k8449r.weebly.com/uploads/3/0/7/3/30731055/28_essentials_of_food_science-signed.pdf
- Velásquez, P., Montenegro, G., Valenzuela, L. M., Giordano, A., Cabrera-Barjas, G & Martin-Belloso, O. (2022). K-carrageenan edible films for beef: Honey and bee pollen phenolic compounds improve their antioxidant capacity. *Food Hydrocolloids*, 124, 107250. <https://doi.org/10.1016/j.foodhyd.2021.107250>
- Visquert, M. (2015). Influencia de las condiciones térmicas en la calidad de la miel. Tesis doctoral. Universidad Politécnica de Valencia.
- Witzak, M.; Juszczak, L & Gałkowska, D. (2011). Non-Newtonian behaviour of heather honey. *Journal of Food Engineering*, 104 (4), 532-537. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2011.01.013>
- Yang, Y., Bazhin, A. V., Werner, J & Karakhanova, S. (2013). Reactive oxygen species in the immune system. *International Reviews of Immunology*, 32 (3), 249-270. <https://doi.org/10.3109/08830185.2012.755176>
- Ye, Q., Georges, N & Selomulya, C. (2018). Microencapsulation of active ingredients in functional foods: From research stage to commercial food products. *Trends in Food Science and Technology*, 78, 167-179. <https://doi.org/10.1016/j.tifs.2018.05.025>
- Yupanqui-Mieles, J., Vyas, C., Aslan, E., Humphreys, G., Diver, C & Bartolo, P. (2022). Honey: An advanced antimicrobial and wound healing biomaterial for tissue engineering applications. *Pharmaceutics*, 14 (8), 1663. <https://doi.org/10.3390/pharmaceutics14081663>
- Zammit, G-W & Blundell, R. (2023). A review on the phytochemical composition and health applications of honey. *Heliyon*, 9 (2), e12507. <https://doi.org/10.1016/j.heliyon.2022.e12507>
- Zandamela, E. M. F. (2008). Caracterización físico-química y evaluación sanitaria de la miel de Mozambique. Tesis doctoral. Universidad Autónoma de Barcelona.
- Zapata-Vahos, I. C., Henao-Rojas, J. C., Yepes-Betancur, D. P., Marín-Henao, D., Giraldo-Sánchez, C. E., Calvo-Cardona, S.J *et al.* (2023). Physicochemical parameters, antioxidant capacity, and antimicrobial activity of honey from Tropical Forest of Colombia: *Apis mellifera* and *Melipona eburnea*. *Foods*, 12 (5), 1001. <https://doi.org/10.3390/foods12051001>
- Zhang, G., Han, L., Li, S., Zheng, H & Hu, F. (2024). Antioxidant and antimicrobial properties of three monofloral kinds of honey from medicinal plants. *Food and Fermentation Industries*, 50, 100-108. <https://doi.org/10.13995/j.cnki.11-1802/ts.034676>

Justificación y

objetivos



Los objetivos principales de este trabajo han sido la obtener miel en polvo seleccionando el procedimiento tecnológico y el coadyuvante más adecuado y evaluar el impacto de los procesos de desecación sobre las propiedades físico-químicas, funcionales y microbiológicas del producto final, comparándolo con los valores de las mismas mieles naturales.

Los objetivos específicos han sido:

1. Investigar las ventajas e inconvenientes de los procedimientos de desecación a vacío, liofilización y desecación por atomización (spray-drying) para elaborar mieles en polvo.
2. Evaluar las propiedades físico-químicas y características sensoriales de las mieles en polvo.
3. Analizar los contenidos en fenoles totales y flavonoides totales en mieles naturales y en mieles en polvo.
4. Estudiar la capacidad antioxidante de las mieles naturales y de las mieles en polvo.
5. Realizar ensayos sobre las actividades antimicrobianas de las mieles naturales y de las mieles en polvo.
6. Examinar las propiedades anti-inflamatorias en mieles naturales y mieles en polvo.
7. Evaluar la influencia del origen botánico de la miel en las propiedades físico-químicas y biológicas de las mieles en polvo.

Capítulo 1

Atributos de miel de brechina en polvo obtenida por diferentes métodos con varios coadyuvantes

El artículo original incluido en los anexos de esta Tesis doctoral es el siguiente:

Osés, S. M., Cantero, L., Crespo, M., Puertas, G., González-Ceballos, L., Vallejos, S., Fernández-Muiño, M. A & Sancho, M. T. (2021). Attributes of ling-heather honey powder obtained by different methods with several carriers. LWT-Food Science and Technology, 150, 112063.
<https://doi.org/10.1016/j.lwt.2021.112063>



Resumen

Para obtener la miel en polvo con las mejores propiedades fisicoquímicas y sensoriales, esta investigación evaluó tres procedimientos de secado (atomización, vacío y liofilización), así como tres coadyuvantes (goma arábica, aislado de proteína de lactosuero y maltodextrina) en la deshidratación de mieles de breña [*Calluna vulgaris* (L.) Hull]. Independientemente del coadyuvante, tanto el secado a vacío como la liofilización fueron los procedimientos que proporcionaron mayores recuperaciones (76% – 98%) y mayores concentraciones finales de miel en los polvos (56% – 73%). El coadyuvante más adecuado fue la maltodextrina, porque con ella se logró un menor contenido en agua (1,90% – 4,20%), mayor solubilidad (21 s – 123 s) y una menor higroscopicidad (6,32% – 13,68%). Las mieles en polvo obtenidas con maltodextrina mediante secado a vacío y liofilización mostraron mayores recuperaciones (88% – 98%) y las mejores características sensoriales, con olores y sabores florales más fuertes, mayor dulzura, menor viscosidad y menores percepciones cerosas.

1. Introducción

La miel es un alimento natural elaborado por las abejas, muy apreciado por sus agradables atributos sensoriales, excelentes propiedades culinarias, así como por sus ventajas para la salud, sector cosmético y ámbitos tecnológicos, entre otros. Los componentes mayoritarios de la miel son la fructosa y la glucosa que, junto con otros azúcares, le proporcionan alta viscosidad y pegajosidad, lo que puede dificultar su manejo en algunas especialidades culinarias y aplicaciones farmacéuticas. La miel en polvo es una buena alternativa que puede añadirse directamente a mezclas secas, condimentos o recubrimientos secos, manteniendo los sabores y proporcionando facilidad de manejo y pesaje, así como mejores aspectos sanitarios (Samborska, 2019).

La elaboración de miel en polvo es difícil debido al alto contenido de azúcares con bajas temperaturas de transición vítrea (T_g), lo que genera un producto muy pegajoso y extremadamente difícil de manejar (Jedlińska et al., 2019; Samborska et al., 2019; Shi, Fang, & Bhandari, 2013; Umesh Hebbar et al., 2008). Por lo tanto, la adición de coadyuvantes que proporcionen altos pesos moleculares es esencial para fabricar miel en polvo, ya que aumentan la T_g . Entre ellos destacan la goma arábica, la maltodextrina, el almidón o el jarabe de glucosa (Fan & Roos, 2019; Nurhadi et al., 2012; Ram, 2011; Sramek et al., 2016). Asimismo, la adición de pequeñas cantidades de sustancias tensoactivas, como el aislado de proteína de lactosuero o el caseinato de sodio, es común para obtener miel en polvo, porque las proteínas ayudan a encapsular la miel (Samborska et al., 2014a; Shi et al., 2013; Suhag & Nanda, 2016).

El secado por atomización es actualmente la técnica más estudiada para obtener miel en polvo, siendo descrita como una opción más rentable, rápida y fácil de escalar que otros procedimientos (Samborska et al., 2014a; Shi et al., 2013; Suhag & Nanda, 2015). Algunos investigadores han mejorado las recuperaciones de polvo (hasta un 90%) y/o han obtenido mayores concentraciones finales de miel (hasta un 80%) utilizando proteínas como coadyuvantes, el uso de diafiltración antes del secado por atomización o aire deshumidificado como medio de secado durante el secado por atomización (Jedlińska et al., 2019; Samborska et al., 2017; Shi et al., 2013). El secado a vacío (Nurhadi et al., 2012; Sahu, 2008), la liofilización (Sramek et al., 2016), el secado mediante esponjado a vacío (Sahu & Devi, 2013), el secado por microondas-vacío (Cui et al., 2008) y el secado por espuma (Sramek et al., 2016)

han sido métodos menos investigados. El secado a vacío y la liofilización podrían ser procedimientos prometedores para obtener miel en polvo. Hasta ahora, la literatura no ha mostrado datos sobre la mayor concentración de miel que se podría obtener utilizando métodos de secado a vacío o liofilización para hacer miel en polvo.

La mayoría de los estudios sobre mieles en polvo se realizaron con muestras multiflorales, de colza, trigo sarraceno y girasol. Jedlińska et al. (2019) obtuvieron miel en polvo utilizando mieles de mielada, que fueron más fáciles de secar que las mieles de flores debido al mayor contenido de oligosacáridos en las mieles de mielada. En la actualidad, resultan de gran interés los estudios sobre las propiedades de las mieles en polvo obtenidos con otras mieles, ya que mieles distintas pueden reaccionar de manera diferente a los procedimientos de secado y al uso de coadyuvantes, proporcionando diferentes características a los polvos. La miel de brechina [*Calluna vulgaris* (L.) Hull] y otras mieles de brezo son muy apreciadas por los consumidores debido a sus sabores especiales y sus posibles propiedades biológicas. La miel de brechina es una miel no newtoniana con comportamiento tixotrópico, por lo que su viscosidad aparente disminuye a medida que aumenta la velocidad de cizallamiento debido a las sustancias coloidales de alto peso molecular, como las proteínas o los dextranos (Osés et al., 2017). Además, las mieles de brezo tienen un contenido más alto de monosacáridos (alrededor del 71%) y un contenido más bajo de disacáridos (alrededor del 4,9%) en comparación con otras mieles (Pascual-Maté et al., 2018), lo que podría ser una desventaja para obtener miel en polvo, ya que la glucosa y la fructosa generan una mayor pegajosidad que otros azúcares como la sacarosa, lo cual está relacionado con la T_g más baja de los primeros azúcares (31 °C para la glucosa y 5 °C para la fructosa) en comparación con la T_g más alta (62 °C) de la sacarosa (Jayasundera et al., 2009).

En los últimos años, diversos investigadores han estudiado las propiedades fisicoquímicas de las mieles en polvo obtenidas principalmente mediante secado por atomización, utilizando goma arábica, aislado de proteínas de lactosuero y maltodextrina como coadyuvantes (Nurhadi et al., 2012; Sahu & Nanda, 2016; Samborska et al., 2015a; Shi et al., 2013). A pesar de su importancia primordial para los consumidores, el análisis sensorial de las mieles en polvo ha sido poco realizado hasta ahora (Nurhadi et al., 2012). Samborska (2019) publicó una revisión que resume los principales métodos y coadyuvantes utilizados para el secado de mieles, así como los problemas

y las propiedades fisicoquímicas de las mieles en polvo, concluyendo que «la producción de miel en polvo sigue siendo un desafío tanto para la industria como para los investigadores». De acuerdo con Samborska (2019), el objetivo de este trabajo fue producir una miel en polvo de brechina con el mayor contenido de miel, la menor cantidad de coadyuvante y el mayor rendimiento posible, logrando también agradables características sensoriales y buenas propiedades fisicoquímicas. Se investigaron tres métodos de secado diferentes (atomización, vacío y liofilización) y tres coadyuvantes diferentes (goma arábica, aislado de proteína de lactosuero y maltodextrina).

2. Materiales y métodos

2.1. Muestras de miel

Este trabajo se realizó con tres muestras de miel de brechina [*Calluna vulgaris* (L.) Hull] procedentes de "Castilla-León" (España), y suministradas por apicultores (LH1, LH2 y LH3). Los orígenes botánicos se determinaron mediante melisopalinología (Louveau et al., 1978; Terradillos et al., 1994; Von der Ohe et al., 2004) y análisis sensoriales (Marañón et al., 2018; Persano Oddo & Piro, 2004; Piana et al., 2004). Los polvos correspondientes (LHP) para cada muestra de miel se nombraron como: LHP1, LHP2 y LHP3.

2.1.1. Parámetros de control de calidad

El contenido en agua, la actividad de agua (a_w), los azúcares fructosa, glucosa y sacarosa, la conductividad eléctrica, pH, acidez, índice de formol, índice de diastasa, hidroximetilfurfural (HMF), prolina y color se determinaron según los procedimientos de la AOAC (Asociación Oficial de Analistas Químicos, 2012), Bogdanov (2009), el Codex Alimentarius para la Miel (2001), la Comisión Internacional de Iluminación (2004), Hadorn & Zürcher (1963), Pascual-Maté et al., (2018) y Sancho et al., (1991).

2.2. Coadyuvantes

Goma arábica (AG) (Sigma-Aldrich, 30888, secada por atomización, certificada según Ph Eur). Aislado de proteína de lactosuero (WH) con un contenido de proteína del 90% (Myprotein, Northwich, Reino Unido). Maltodextrina con un equivalente de dextrosa de 20 (MD) gentilmente proporcionada por Calaf Nuances (Barcelona, España).

2.3. Métodos de secado

Las mieles en polvo de brechina (LHP) (27 muestras) se obtuvieron a partir de tres mieles (LH1, LH2 y LH3) mediante tres técnicas: secado por atomización (SP), secado a vacío (VC) y liofilización (FZ), utilizando para cada método tres coadyuvantes: AG, WH y MD. Con el fin de obtener la mayor concentración de miel posible para cada técnica con cada coadyuvante, se probaron diferentes concentraciones de miel y coadyuvante, así como diferentes condiciones de tratamiento para cada técnica antes de establecer el procedimiento final descrito en este trabajo. Para determinar el contenido final de miel, se eligió el contenido más alto de miel con el que el producto final pudiera ser pulverizado adecuadamente. La Tabla 1 muestra las proporciones de sólidos de miel: sólidos de coadyuvante y la concentración (%) de la solución de mezcla inicial obtenida para cada técnica de secado con cada coadyuvante.

SP: Las soluciones iniciales con diferente proporción miel: coadyuvante se prepararon con una fracción sólida del 18% (p/p). Se secaron por atomización 300 ml de solución para cada tanda en un secador por atomización mini Büchi B-290 (Büchi Labortechnik AG, Suiza) en un sistema de ciclo abierto, con temperaturas de entrada y salida del aire de secado de 120 ± 1 °C y $67,5 \pm 2,5$ °C, respectivamente. El caudal de aire se mantuvo a 50 mm con una tasa de aspiración del 70%, limpieza de la boquilla de 4 veces/min y bomba al 5%. Las mieles en polvo (SP-LHP) se recolectaron del ciclón después de cada proceso de secado por atomización y se almacenaron en frascos de vidrio en un deshidratador con silicalgel hasta su análisis.

VC: La miel y los coadyuvantes se mezclaron primero con agua por separado. Luego, se combinaron suavemente agitando con un agitador magnético a temperatura ambiente ($24 \pm 1,5$ °C), manteniendo una concentración total de sólidos del 43 – 48% (p/p) y las proporciones de sólidos de miel (concentración de miel) a sólidos de coadyuvante en la solución inicial, como se muestra en la Tabla 1. Cada muestra se vertió en un molde de silicona con un grosor de 3–4 mm y se secó en una estufa de vacío a escala de laboratorio (Heraeus Instruments Vacutherm, Thermo Scientific) a 60 °C con una presión absoluta mantenida dentro de la cámara a 100 mbar (75 mmHg) durante 24 horas. Luego, las muestras se mantuvieron en un deshidratador hasta enfriarse y, antes del análisis, se trituraron con un mortero y las mieles en

polvo (VC-LHP) se almacenaron en frascos de vidrio en un desecador con silicagel.

FZ: La mezcla de miel y coadyuvante se preparó de la misma manera que se describe para el secado a vacío (Tabla 1) y también se vertió en un molde de silicona. La mezcla se congeló a - 30 °C durante 5 horas y luego a - 80 °C durante 24 horas antes de ser deshidratada por liofilización en un liofilizador Labconco Freezone 12L (Kansas, EE.UU.) durante 3 días a una presión de 0,112 mbar. Tras la liofilización, se molió inmediatamente. Las mieles en polvo (FZ-LHP) se almacenaron en frascos de vidrio en un desecador con silicagel hasta su análisis.

Tabla 1. Promedios de las muestras LHP1, LHP2 y LHP3 correspondientes a la relación sólidos de miel: sólidos de coadyuvante y la concentración de la solución inicial (%) obtenidos para cada técnica de secado con tres coadyuvantes diferentes (AG, WH y MD). Las desviaciones estándar fueron inferiores al 0,2% para todos los porcentajes.

	SP		VC		FZ	
	Relación de sólidos de miel a sólidos de coadyuvante	Solución inicial	Relación de sólidos de miel a sólidos de coadyuvante	Solución inicial	Relación de sólidos de miel a sólidos de coadyuvante	Solución inicial
AG	58:42	18,7%	73:27	43,2%	73:27	43,2%
WH	72:28	18,7%	72:28	43,2%	72:28	43,2%
MD	46:54	17,2%	56:44	48,8%	72:28	43,2%

AG: Goma arábica; MD: maltodextrina; WH: aislado de proteína de suero; SP: atomización; VC: vacío; FZ: liofilización.

2.4. Recuperación del polvo

La recuperación del polvo se calculó de acuerdo con la siguiente fórmula:

$$\% \text{ recuperación del polvo} = \frac{\text{Sólidos totales en el polvo resultante}}{\text{Contenido total de sólidos en la solución inicial}}$$

2.5. Parámetros de calidad y propiedades físicas

La actividad de agua (a_w), la prolina y los parámetros de color L^* , a^* y b^* de las LHP se determinaron siguiendo los mismos procedimientos descritos para las mieles crudas.

2.5.1. Temperatura de transición vítrea

Las propiedades térmicas de las muestras de miel y los polvos obtenidos de LH1 (como representante de todos los polvos obtenidos) se midieron utilizando calorimetría diferencial de barrido (DSC, 10 – 15 mg de muestra bajo un flujo constante de nitrógeno de 50 ml·min⁻¹, con un analizador DSC TA Instruments Q200 equipado con un sistema de enfriamiento Intra-Cooler, a 20 °C·min⁻¹). El método de medición se basó en una secuencia de calentamiento/enfriamiento/calentamiento, que comenzó a - 80 °C y subió hasta no más de 120 °C, evitando así la degradación de la muestra (Cordella et al., 2002; Cordella et al., 2003). Las mediciones se llevaron a cabo en vasos de aluminio perforados, y los valores de T_g se calcularon utilizando el software “TA Universal Analysis”.

2.5.2. Contenido en agua

El contenido en agua se determinó gravimétricamente secando 1 g de LHP a 105 °C durante 4 horas (Samborska et al., 2015b).

2.5.3. Higroscopicidad

Para la medición de la higroscopicidad, 1 g de LHP se colocó en cápsulas de vidrio de fondo bajo y se mantuvieron en desecadores a temperatura ambiente, utilizando una solución saturada de NaCl (75% de humedad relativa) durante una semana. Las muestras se pesaron cada hora durante las primeras 4 horas para obtener la tasa higroscópica (g H₂O/min, la pendiente de la variación de peso de la miel en polvo) y después de 7 días para obtener el índice higroscópico, que se expresó como gramos de humedad absorbida después de una semana por cada 100 g de sólidos secos (g/100 g) (Nurhadi et al., 2012; Shi et al., 2013; Suhag & Nanda, 2015).

2.5.4. Densidad compacta

La densidad compacta se midió vertiendo 2 g de LHP en una probeta de 10 ml, golpeando suavemente 25 veces y registrando el volumen (Suhag & Nanda, 2015; Suhag & Nanda, 2016). Los resultados se expresaron en g/ml.

2.5.5. Solubilidad

La solubilidad de los polvos se midió agregando 1 g de LHP a 25 ml de agua destilada en un vaso de vidrio de 100 ml a temperatura ambiente. La mezcla se agitó con un agitador magnético a 890 rpm (barra de agitación de 8 mm ×

25 mm), registrando el tiempo necesario para que cada polvo se disolviera completamente (Samborska & Bieńkowska, 2013).

2.5.6. Azúcares

La glucosa, la fructosa y la sacarosa se determinaron siguiendo los mismos procedimientos para mieles crudas mediante cromatografía de gases (GC) después de la derivatización previa descrita por Pascual-Maté et al. (2018).

2.6. Análisis sensorial

Se seleccionó un método descriptivo cuantitativo de perfil sensorial para obtener las diferencias organolépticas entre 9 muestras de LHP, realizando el análisis con las muestras en polvo obtenidas con LH1. El método se desarrolló siguiendo las normas ISO y procedimientos internacionales (ISO 4121, 2003; ISO 13299, 2016; ISO 6658, 2017; Marcazzan et al., 2018).

El panel estuvo compuesto por siete evaluadores seleccionados (4 mujeres y 3 hombres, con edades comprendidas entre 31 y 57 años) con experiencia previa en análisis sensorial de miel (uno de ellos registrado como experto en Análisis Sensorial de Miel por el Gobierno Italiano).

En la primera sesión, el panel generó descriptores de forma individual para describir las diferencias entre los coadyuvantes y las mieles en polvo, degustando diferentes mieles de brecina, coadyuvantes disueltos en agua (AG, WH y MD) y tres tipos diferentes de miel en polvo obtenidos en experimentos previos. En la misma sesión, se eligieron y definieron en común diecinueve atributos (Tabla 2). Además, la intensidad de cada descriptor fue consensuada.

La segunda sesión se llevó a cabo eligiendo como representantes de los polvos las 9 muestras de LHP1 (con los tres coadyuvantes y obtenidas mediante los tres procedimientos de secado), para evitar la saturación del paladar con 27 muestras, si también se probaran LHP2 y LHP3. Las muestras de LHP1 se disolvieron en agua (2,5:1 [miel: agua]) y luego se evaluaron. Todos los descriptores y la percepción global se cuantificaron para cada muestra en una escala continua unipolar de 10 cm [escala continua de 10 cm, anclada en 1 cm (mínimo) y 9 cm (máximo), marcada del 1 al 9, donde el lado izquierdo de la escala correspondía a la ausencia de la característica y el lado derecho a la máxima intensidad]. La intensidad de los atributos se cuantificó

midiendo desde el lado izquierdo en la línea de escala hasta la marca del evaluador, calculando el valor medio para cada atributo.

Las 9 muestras de LHP1 se presentaron de manera aleatoria y anónima (con un código de tres dígitos) en un recipiente de vidrio con tapa para evitar la contaminación y dispersión de los aromas de miel, manteniendo la proporción muestra/volumen cerca de 1/4. Se usaron cucharas de plástico para agitar la miel durante la evaluación olfativa y para probar el producto. Se utilizaron agua mineral y pan bajo en sal para limpiar el paladar entre degustaciones.

Tabla 2. Atributos seleccionados por el panel en este estudio para la evaluación del perfil sensorial de mieles en polvo.

Características olfativas	Descriptor de flavor	Descriptor de sabor	Percepciones de textura
floral	floral	dulce	viscoso
dulce	dulce	ácido	cristalizado
lácteo	lácteo	salado	gomoso/untuoso
goma/neumático	químico	amargo	
fruta seca	jabón		
animal			
químico			

2.7. Análisis estadístico

Todos los ensayos se realizaron por triplicado, excepto el análisis sensorial. Los resultados se expresaron como promedios y desviaciones estándar. Se realizó una prueba de normalidad. Se utilizó el análisis de varianza (ANOVA) de un solo factor seguido de la prueba de diferencia significativa de Tukey ($p < 0,05$) para los valores paramétricos, mientras que los valores no paramétricos se analizaron utilizando la prueba de Kruskal-Wallis seguida de interpretaciones gráficas de caja y bigotes. Para el análisis sensorial, se realizaron un análisis de componentes principales (PCA) y un análisis de clúster utilizando el algoritmo de enlace de Ward y la distancia euclidiana. Los análisis se llevaron a cabo utilizando el software Statgraphics Centurion XVIII (Statgraphics Technologies, Inc., The Plains, VA, EE. UU.).

3. Resultados y discusión

3.1. Muestras de miel

La Tabla 3 muestra los resultados de los parámetros de control de calidad de las mieles. En cuanto a los criterios de composición que deben cumplir las mieles europeas, el contenido en humedad (16,04 – 17,54%), la suma de fructosa y glucosa (60,05 – 71,69%), la sacarosa (0,24 – 2,70%), la conductividad eléctrica (0,33 – 1,01 mS/cm), la acidez libre (41,02 – 49,77 meq/kg), la actividad diastásica (3,93 – 23,55 en la escala de Schade) y el contenido de HMF (0,00 – 18,01 mg/kg) cumplieron con los límites europeos para estos parámetros (OJEC- Diario Oficial de las Comunidades Europeas, 2002). Los valores de a_w (0,5400 – 0,6243) se encontraban dentro del rango habitual para muestras de miel, siendo LH3 el que mostró el resultado más bajo de a_w y el menor porcentaje de agua. Los valores de a_w menores a 0,6 inhiben las levaduras osmófilas que pueden ser responsables de la fermentación de la miel (Bogdanov, 2011). El pH de las muestras varió de 3,87 a 4,14, estando dentro de los valores habituales para las mieles florales (Bogdanov et al., 2004). Las tres LH mostraron una acidez libre alta (41,02 – 49,77 meq/kg) y una acidez de lactónica muy baja (0,00 – 0,23 meq/kg). El índice de formol (0,61 – 0,93 meq/100 g), que está relacionado con el contenido de aminoácidos libres (Hadorn & Zürcher, 1963), concordó con las referencias bibliográficas (Andrade et al., 1999; Manuel Suisse des Denrées Alimentaires, 1974). La prolina (73,06 – 107,24 mg/100 g) fue superior a 18 mg/100 g, que es el nivel mínimo propuesto para mieles auténticas (Bogdanov, 2016). Las muestras exhibieron un color rojizo, típico de las mieles de brezo. LH3 fue más clara, menos rojiza y más amarillenta en comparación con las otras mieles. Algunos investigadores señalaron que cuanto más oscuras eran las mieles, mayores eran los contenidos fenólicos y las actividades antioxidantes (Meda et al., 2005; Alvarez-Suárez et al., 2010).

3.1. Mieles en polvo

3.1.1. Recuperación del polvo

LHP mostró recuperaciones entre 59,88% y 97,90% (Fig. 1). Independientemente de la muestra de miel, VC-LHP (80,55 – 97,90%) y FZ-LHP (73,62 – 96,41%) exhibieron las mayores recuperaciones, mientras que SP-LHP mostró las menores (59,10 – 78,60%). El menor rendimiento de SP en comparación con VC y FZ podría deberse a la mayor diferencia de

temperatura entre la temperatura a la que se obtiene el polvo y su T_g (Jedlińska et al., 2019), ya que este hecho aumenta la pegajosidad del producto, afectando negativamente al rendimiento. De todas formas, nuestros datos para SP-LHP fueron superiores al 50% descrito como recuperaciones exitosas para el secado por atomización por Shi et al. (2013). MD fue el coadyuvante con el que se obtuvieron las mayores recuperaciones por VC y FZ, mientras que WH fue el coadyuvante con el que se obtuvo la mayor recuperación por SP.

Tabla 3. Propiedades fisicoquímicas de las mieles de brechina utilizadas para obtener miel en polvo (n = 3, excepto azúcares n = 1).

	LH1	LH2	LH3
Contenido en agua (%)	16,72 ± 0,12 _b	17,54 ± 0,05 _c	16,04 ± 0,23 _a
A_w	0,624 ± 0,044 _b	0,605 ± 0,004 _b	0,540 ± 0,008 _a
Fructosa (%)	37,14	34,59	32,16
Glucosa (%)	34,55	33,52	27,89
Sacarosa (%)	2,70	0,24	2,63
Conductividad (mS/cm)	0,647 ± 0,002 _b	1,012 ± 0,006 _c	0,332 ± 0,001 _a
pH	4,05 ± 0,01 _b	4,14 ± 0,02 _c	3,87 ± 0,03 _a
Acidez libre (meq/kg)	49,77 ± 3,05 _a	49,70 ± 2,49 _a	41,02 ± 6,56 _a
Acidez láctica (meq/kg)	0,00 ± 0,00 _a	0,23 ± 0,05 _a	0,00 ± 0,00 _a
Índice de formol (meq/100 g)	0,61 ± 0,05 _a	0,74 ± 0,01 _a	0,93 ± 0,13 _a
Índice de diastasas (escala Schade)	3,93 ± 0,07 _a	13,55 ± 0,35 _b	23,55 ± 1,49 _c
HMF (mg/kg)	0,00 ± 0,00 _a	0,00 ± 0,00 _a	18,01 ± 0,43 _b
Prolina (mg/100 g)	74,33 ± 3,72 _a	107,24 ± 4,85 _b	73,06 ± 0,75 _a
L*	24,77 ± 0,03 _a	25,66 ± 0,03 _b	44,61 ± 0,01 _c
a*	16,54 ± 0,02 _b	16,61 ± 0,03 _c	10,17 ± 0,01 _a
b*	33,15 ± 0,07 _a	34,49 ± 0,11 _b	40,42 ± 0,03 _c

a-c: letras diferentes muestran diferencias significativas (p < 0,05) entre las mieles.

Con respecto a los coadyuvantes: 1) Usando AG las recuperaciones variaron entre 60% y 69%, con una concentración de miel del 58% (proporción 58:42) en SP-LHP. Suhag et al. (2016) describieron valores similares para el mismo coadyuvante y el mismo procedimiento, logrando una miel en polvo con 65% de miel y 60% de recuperación. Otros investigadores que también deshidrataron mieles con AG mediante SP obtuvieron polvos con menor cantidad de miel (50%) y rendimientos entre 36,6% (Nurhadi et al., 2012) y 68%, aumentando la recuperación hasta 75% si se añadía caseinato al 2% (Samborska et al., 2014a). Samborska et al. (2017) obtuvieron un polvo con 75% de miel, pero con un rendimiento del 25% aplicando diafiltración como

paso previo a la desecación SP. Deshidratando mediante VC, Nurhadi et al. (2012) obtuvieron una recuperación del 73,8% con 50% de miel en el polvo final. En nuestro estudio, se obtuvieron rendimientos considerablemente más altos (80% – 89,4%) con VC usando AG (VC-AG). FZ demostró ser el mejor y más efectivo procedimiento para hacer mieles en polvo, ya que usando este método se logró la mayor recuperación (87% – 93%) y la mayor concentración de miel en el polvo (73%). 2) Empleando WH, se obtuvo la misma concentración final de miel (72%) con las tres técnicas con las siguientes recuperaciones: SP: 74,8 – 78,6%, VC: 85 – 95%, FZ: 75 – 94%. Para SP, WH resultó ser el coadyuvante más eficiente, ya que se lograron mayores cantidades de miel en el polvo (72%) y mayores porcentajes de recuperación (75% – 79%), coincidiendo con otros estudios (Shi et al., 2013; Suhag & Nanda, 2016). 3) Utilizando MD, el rendimiento varió del 59% al 72% y la concentración final de miel en el polvo fue del 46% en SP-LHP. Aplicando la misma técnica y empleando el mismo coadyuvante, otros científicos mostraron recuperaciones entre 9,7% (Nurhadi et al., 2012) y 74% (Samborska et al., 2020) con un 50% de miel en el producto final. Sin embargo, para obtener una mayor concentración de miel, Shi et al. (2013) añadieron un 2,5% de WH a la mezcla, obteniendo un polvo con un 60% de miel y un rendimiento del 70%. Trabajando con una miel de colza, Samborska et al. (2019) obtuvieron un polvo con mayor cantidad de miel (60 - 80%) y con un rendimiento muy alto (75 - 90%) después de usar aire deshumidificado durante el proceso de secado por atomización, siendo probable que las mieles de colza sean más fáciles de secar que las mieles de brezo. En nuestro estudio, se obtuvieron mayores rendimientos y concentraciones más altas de miel utilizando VC (90 - 98% de rendimiento, 56% de miel) y FZ (88 - 96% de rendimiento, 72% de miel), siendo nuestros resultados considerablemente mejores que los obtenidos por Nurhadi et al. (2012), utilizando VC y MD (73% de recuperación, 50% de miel en el polvo)

por Fan y Roos (2019), quienes obtuvieron un polvo con 50% de miel utilizando FZ.

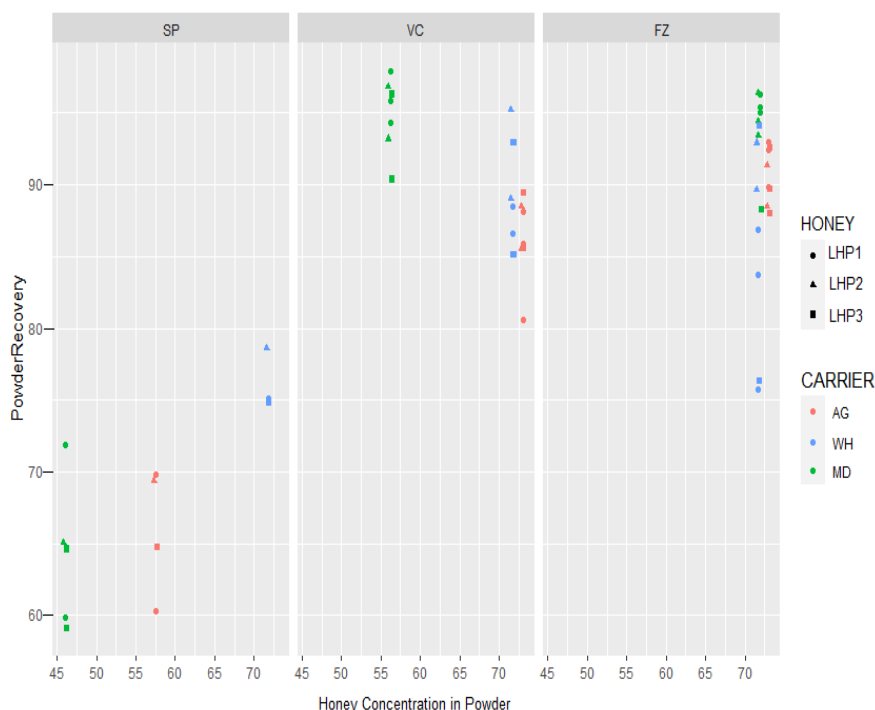


Fig. 1. Diagrama de la relación entre la recuperación del polvo y la cantidad de miel en muestras de miel en polvo obtenidas mediante secado por atomización (SP), vacío (VC) y liofilización (FZ), utilizando goma arábica (AG), aislado de proteína de suero (WH) y maltodextrina (MD). Gráfico realizado con R-Studio.

3.1.2. Propiedades físicas

3.1.2.1. Temperatura de transición vítrea (T_g)

La Tabla 4 muestra una sola T_g en LH (entre - 27,33 y - 29,81 °C). Nuestros valores fueron superiores a los obtenidos para otras mieles (Kántor et al., 1999; Nurhadi et al., 2012; Shi et al., 2013; Sramek et al., 2016), donde se describieron valores entre - 40,2 y - 51 °C. Este contraste entre los valores podría deberse a los diferentes orígenes botánicos o al diferente procedimiento de medición de T_g . Nurhadi et al. (2012) explicaron que la temperatura de transición vítrea de la miel líquida está fuertemente afectada por el contenido de humedad, ya que el agua actúa como plastificante y la T_g de la muestra disminuye considerablemente.

Tabla 4. Temperatura de transición vítrea T_g (°C) de mieles crudas (LH1, LH2, LH3) y mieles en polvo (LHP1) obtenidas por secado por atomización (SP), vacío (VC) y liofilización (FZ), utilizando goma arábica (AG), aislado de proteína de suero (WH) y maltodextrina (MD).

Muestra	T_{g1} (T_{MEDIA} °C)	T_{g2} (T_{MEDIA} °C)
LH1	-27,66	–
LH2	-29,81	–
LH3	-27,33	–
SP-AG-LHP1	49,86	–
SP-WH-LHP1	13,31	64,54
SP-MD-LHP1	25,44	90,58
VC-AG-LHP1	13,62	80,09
VC-WH-LHP1	22,20	71,08
VC-MD-LHP1	25,99	91,34
FZ-AG-LHP1	19,34	81,26
FZ-WH-LHP1	14,32	66,52
FZ-MD-LHP1	18,47	88,82

– : Ausente (no hay T_{g2})

Sin embargo, LHP1 mostró dos transiciones a temperaturas más altas (Tabla 4). Este hecho puede explicarse por el doble papel del agua como compatibilizador y plastificante. Las dos T_g observadas en las muestras secas corresponden a dos polímeros diferentes. T_{g1} probablemente se debió a los polímeros de miel seca. T_{g2} (que fue menos notable que la primera, Fig. 1-material suplementario) probablemente se debió a los coadyuvantes. T_{g2} parecía ser menor que la T_g de los coadyuvantes puros (205,5 °C para MD; 194,5 °C para AG; 132,12 °C para WH, Nurhadi et al., 2012; Shi et al., 2013), lo que mostró una compatibilidad parcial entre los polímeros de miel y los coadyuvantes, pero no una compatibilidad total, ya que, en este último caso, solo se observaría una única T_g . Los valores de T_{g2} de los polvos obtenidos con WP fueron menores que T_{g2} para los polvos obtenidos con MD, confirmando la influencia de la naturaleza química de los coadyuvantes en la compatibilidad de las mezclas. Se puede destacar la muestra SP-AG-LHP1, porque solo se observó una única T_g a 49,86 °C, lo que significa que los polímeros de miel y el coadyuvante eran totalmente compatibles en este caso.

La T_{g1} para LHP1 varió entre 13,31 y 25,99 °C, excepto para SP-AG-LHP1. Los resultados fueron menores que los obtenidos por otros investigadores que describieron valores de T_g entre 42,6 y 49,7 °C en polvos obtenidos por vacío y valores de T_g entre 47,5 y 82,14 °C en polvos obtenidos por secado por atomización (Sahu et al., 2008; Samborska et al., 2020; Shi et al., 2013). Sin embargo, obtuvimos valores de T_g similares a los de Jedlińska et al. (2019) y

Samborska et al. (2019) para mieles en polvo obtenidas por secado por atomización con aire deshumidificado (T_g entre 6,5 y 26,1 °C). Estos investigadores obtuvieron una concentración de miel similar (60 - 80%) a la nuestra en los polvos finales, confirmando que los valores de T_g disminuyen a medida que aumenta la concentración de miel. MD-LHP exhibió los valores de T_g más altos para todos los procedimientos de secado, probablemente debido a la menor proporción de miel en estas muestras.

Los valores bajos de T_g para las mieles en polvo (cerca de la temperatura ambiente) sugieren que las mieles en polvo deben almacenarse a temperaturas de refrigeración en envases de alta barrera porque los materiales amorfos son inestables si se almacenan a temperaturas cercanas o superiores a la T_g (Jedlińska et al., 2019).

3.1.2.2. Color

El color del LHP es un factor de calidad de suma importancia para los consumidores. El color de la miel varía desde incoloro y amarillo claro hasta ámbar oscuro o casi negro, a veces con reflejos verdes o rojizos (Bogdanov, 2011), y está relacionado con el origen botánico. Las mieles de brezo, junto con las mieles de castaño y de melaza, son de color oscuro con valores de L^* inferiores a 50 (González-Miret et al., 2005). La Figura 2 muestra imágenes de los polvos, donde se puede observar el color de los polvos. La Tabla 5 muestra que la luminosidad (L^*) de LHP fue significativamente mayor ($p < 0,05$) para SP-LHP y significativamente menor ($p < 0,05$) para VC-LHP. Nurhadi et al. (2012) describieron valores más altos de L^* en polvos SP y VC con AG y MD (94,3 – 98,1), al igual que Samborska et al. (2019) en polvos SP con MD (93,9 – 94,3). En general, AG-LHP mostró una mayor luminosidad. Como se esperaba, LHP3 mostró los valores más altos para la luminosidad (ver Tabla 5).

En cuanto a los valores de a^* , todos los coadyuvantes y la mayoría de los SP-LHP mostraron valores negativos, lo que significaba que tenían una tonalidad ligeramente verde. Por el contrario, los VC-LHP y FZ-LHP tendieron al rojo, siendo el VC-LHP el más rojizo. LHP3 exhibió los valores de a^* más bajos, lo que coincidió con los valores obtenidos para las LH (Tabla 3). En general, AG-LHP mostró valores de a^* más bajos que WH-LHP y MD-LHP. VC-WH-LHP exhibió los valores de a^* más altos ($p < 0,05$). Entre otros estudios también se describieron valores negativos de a^* para las mieles en polvo SP (-0,1 a -0,5) (Nurhadi et al., 2012; Samborska et al., 2019). Sin

embargo, en los polvos VC, Nurhadi et al. (2012) obtuvieron valores negativos ($-0,2$). Esta diferencia contrastante entre los resultados de Nurhadi et al. (2012) y los resultados de este estudio probablemente se deba al diferente tiempo de secado. Las mieles en polvo elaboradas por Nurhadi et al. (2012) se obtuvieron en 1 hora, mientras que los LHP de nuestra investigación se obtuvieron en 24 horas.

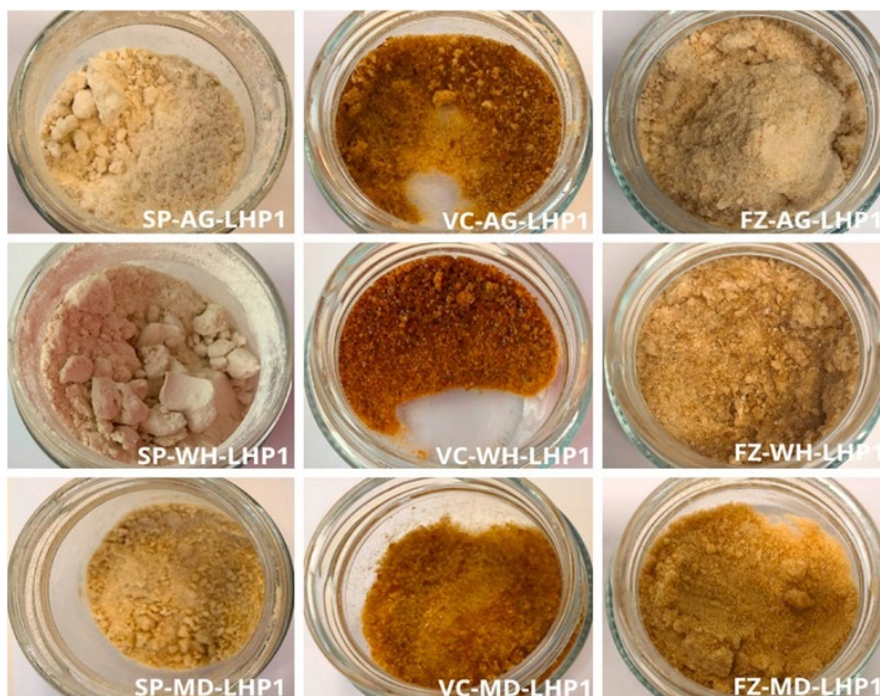


Fig. 2. Imágenes de mieles de brechina en polvo (LH1) obtenidas mediante secado por atomización (SP), vacío (VC) y liofilización (FZ), utilizando goma arábica (AG), aislado de proteínas de suero (WH) y maltodextrina (MD).

En cuanto a los valores de b^* , todos los LHP tendieron al amarillo. Los SP-LHP mostraron los valores de b^* más bajos, en contraste con los VC-LHP, que exhibieron los valores de b^* más altos ($p < 0,05$). En comparación con LHP1 y LHP2, LHP3 mostró los valores de b^* más bajos, a diferencia de los datos obtenidos para el LH3 crudo (Tabla 3). Todos los AG-LHP mostraron los valores de b^* más bajos y VC-WH-LHP los valores más altos. Nurhadi et al. (2012) obtuvieron valores de b^* más bajos con AG y MD (2,1–10,5), también obteniendo valores más altos de b^* en los polvos VC en comparación con los polvos SP.

Tabla 5. Parámetros de color (L*, a* and b*) de los coadyuvantes y mieles en polvo obtenidos mediante secado por atomización (SP), vacío (VC) y liofilización (FZ) utilizando goma arábiga (AG), aislado de proteína de suero (WH) y maltodextrina (MD) (n = 3).

L*										
		LHP1			LHP2			LHP3		
		SP	VC	FZ	SP	VC	FZ	SP	VC	FZ
AG	89,52±0,11	°88,50±0,02 _b	°59,74±0,14 _c	°73,29±0,01 _c	°88,42±0,02 _c	°63,73±0,02 _c	°71,80±0,06 _c	°93,79±0,06 _c	°79,06±0,02 _c	°75,84±0,04 _a
WH	58,59±0,07	°88,31±0,03 _b	°51,94±0,35 _a	°67,22±0,02 _a	°87,70±0,05 _b	°50,48±0,13 _a	°66,89±0,12 _a	°93,14±0,03 _b	°57,88±0,02 _a	°78,31±0,04 _b
MD	95,50±0,19	°79,78±0,05 _a	°58,72±0,16 _b	°70,99±0,03 _b	°84,86±0,03 _a	°63,43±0,03 _b	°69,46±0,17 _b	°92,31±0,04 _a	°76,98±0,02 _b	°83,05±0,03 _c
a*										
		LHP1			LHP2			LHP3		
		SP	VC	FZ	SP	VC	FZ	SP	VC	FZ
AG	-0,68±0,01	△-0,15±0,01 _b	°7,56±0,04 _a	°3,87±0,01 _a	△-0,47±0,02 _a	°6,11±0,01 _a	°4,55±0,05 _a	△-1,31±0,01 _b	°2,60±0,01 _a	°0,03±0,03 _a
WH	-0,35±0,01	△-0,28±0,01 _a	°13,20±0,14 _c	°5,50±0,01 _b	△-0,26±0,01 _b	°13,18±0,05 _c	°5,72±0,05 _b	△-1,19±0,01 _c	°12,55±0,01 _c	°2,40±0,01 _c
MD	-1,64±0,01	△2,43±0,01 _c	°8,46±0,10 _b	°5,74±0,02 _c	△0,95±0,01 _c	°7,84±0,01 _b	°6,04±0,09 _c	△-1,59±0,01 _a	°2,73±0,00 _b	°1,15±0,02 _b
b*										
		LHP1			LHP2			LHP3		
		SP	VC	FZ	SP	VC	FZ	SP	VC	FZ
AG	9,72±0,00	△12,18±0,03 _a	°29,26±0,11 _a	°24,71±0,00 _a	△11,89±0,03 _a	°28,65±0,03 _a	°27,20±0,09 _a	△5,64±0,02 _a	°22,33±0,01 _a	°20,94±0,04 _a
WH	17,34±0,03	△13,49±0,01 _b	°34,70±0,07 _c	°26,22±0,05 _b	△14,13±0,03 _b	°32,96±0,22 _c	°27,73±0,13 _b	△7,81±0,01 _c	°35,56±0,01 _c	°22,49±0,07 _b
MD	1,16±0,02	△21,87±0,02 _c	°30,99±0,26 _b	°28,40±0,03 _c	△18,26±0,04 _c	°32,60±0,03 _b	°29,05±0,19 _c	△7,01±0,02 _b	°27,37±0,02 _b	°20,92±0,31 _a

A-C: Letras diferentes indican diferencias significativas (p < 0,05) entre los procedimientos de secado para cada miel y coadyuvante.

a-c: Letras diferentes indican diferencias significativas (p < 0,05) entre los coadyuvantes para cada miel y procedimiento de secado.

Al comparar los parámetros de color entre las mieles crudas y sus polvos, se puede observar que en los LHP L^* aumentó (tendiendo a un tono blanquecino), mientras que a^* y b^* disminuyeron, probablemente debido al uso de coadyuvantes. Además, la disminución significativa del valor de L^* y el aumento en los valores de a^* y b^* de VC-LHP, particularmente para el VC-WH-LHP, podrían atribuirse a las reacciones de Maillard y la caramelización de fructosa y glucosa. Los VC-LHP se deshidrataron a 60 °C durante un largo tiempo. Además, es probable que haya habido reacciones de deterioro de los polifenoles con proteínas al usar WH (Samborska et al., 2014a).

3.1.2.3. Contenido en agua y actividad de agua

La Tabla 6 muestra los resultados para el contenido en agua y la a_w . Los LHP mostraron resultados de humedad entre 1,90% y 7,48%. En general, los porcentajes de agua más bajos se obtuvieron para las mieles deshidratadas con MD (MD-LHP) y los más altos para las mieles deshidratadas con WH (WH-LHP). Otros estudios mostraron la misma tendencia en las mieles en polvo SP (Shi et al., 2013 y Suhag & Nanda, 2016), donde las mieles deshidratadas con WH exhibieron el mayor contenido en agua (4,5 – 5,7%), con GA un valor intermedio (4,6%) y con MD el contenido de agua más bajo (3,1 – 3,6%). Este comportamiento podría esperarse dado que existen diferencias entre las estructuras químicas de los coadyuvantes. Las proteínas muestran una fuerte capacidad para retener agua y recubren las gotas con una capa delgada, evitando la evaporación (Suhag & Nanda, 2016). Sin embargo, esta tendencia no se observó en otros estudios en VC-LHP, donde los porcentajes finales de humedad variaron entre 1,40% y 1,92% utilizando AG, WP y MD, sin diferencias significativas entre los coadyuvantes (Mutlu et al., 2020). Se obtuvieron valores de humedad más bajos (0,9 – 1,6%) cuando se utilizó aire deshumidificado para SP (Samborska et al., 2019). No hubo diferencias entre las muestras de miel, la concentración de miel o el método de secado, aunque en general, el VC-LHP tuvo porcentajes de humedad más bajos. Además, Nurhadi et al. (2012) mostraron una humedad menor en las mieles en polvo VC (1,1 – 2%) en comparación con las mieles en polvo SP (2,3 – 4,4%). Otros estudios concluyeron que el contenido de agua de los polvos dependía de la proporción de coadyuvante en el polvo. Cuanto mayor es el contenido de coadyuvante, mayor es el contenido final de agua (Samborska et al., 2015a, 2017, 2019). En nuestro estudio, comparamos las tres muestras

Tabla 6. Contenido de humedad (%) y actividad de agua de coadyuvantes y mieles en polvo obtenidos por secado por atomización (SP), vacío (VC) y liofilización (FZ), utilizando goma arábica (AG), aislado de proteína de suero (WH) y maltodextrina (MD) (n = 3).

Humedad										
		LHP1			LHP2			LHP3		
		SP	VC	FZ	SP	VC	FZ	SP	VC	FZ
AG	7,51 ± 0,33	^A 4,63 ± 0,47 _a	^A 3,43 ± 0,12 _b	^A 4,09 ± 0,68 _b	^A 3,00 ± 0,11 _a	^B 4,52 ± 0,13 _b	^B 4,59 ± 0,27 _b	^B 4,87 ± 0,20 _b	^A 2,74 ± 0,56 _a	^B 5,12 ± 0,36 _b
WH	1,33 ± 0,20	^B 7,27 ± 0,23 _b	^A 5,74 ± 0,28 _b	^B 7,40 ± 0,61 _c	^B 7,02 ± 0,16 _c	^A 5,35 ± 0,66 _b	^A 5,99 ± 0,19 _c	^C 7,48 ± 0,36 _c	^A 3,91 ± 0,46 _b	^B 5,67 ± 0,13 _b
MD	2,34 ± 0,27	^B 4,08 ± 0,10 _a	^A 2,61 ± 0,26 _a	^A 2,21 ± 0,16 _a	^C 3,80 ± 0,01 _b	^B 2,91 ± 0,21 _a	^A 1,90 ± 0,00 _a	^A 1,92 ± 0,09 _a	^A 2,12 ± 0,09 _a	^B 3,42 ± 0,09 _a
aw										
		LHP1			LHP2			LHP3		
		SP	VC	FZ	SP	VC	FZ	SP	VC	FZ
AG	0,324 ± 0,003	^A 0,263 ± 0,001 _b	^B 0,317 ± 0,021 _{ab}	^A 0,254 ± 0,004 _b	^A 0,211 ± 0,001 _a	^B 0,250 ± 0,005 _b	^C 0,304 ± 0,002 _c	^A 0,236 ± 0,001 _a	^B 0,257 ± 0,007 _a	^C 0,315 ± 0,001 _c
WH	0,120 ± 0,001	^A 0,256 ± 0,002 _a	^B 0,297 ± 0,001 _a	^A 0,253 ± 0,007 _b	^B 0,257 ± 0,001 _b	^A 0,240 ± 0,000 _a	^C 0,263 ± 0,002 _b	^B 0,260 ± 0,002 _b	^B 0,260 ± 0,003 _a	^A 0,250 ± 0,002 _a
MD	0,204 ± 0,001	^C 0,342 ± 0,002 _c	^B 0,337 ± 0,001 _b	^A 0,211 ± 0,002 _a	^A 0,257 ± 0,001 _b	^B 0,271 ± 0,000 _c	^A 0,250 ± 0,006 _a	^B 0,267 ± 0,001 _c	^C 0,318 ± 0,001 _b	^A 0,261 ± 0,001 _b

A-C: Letras diferentes indican diferencias significativas (p < 0,05) entre los procedimientos de secado para cada miel y coadyuvante.

a-c: Letras diferentes indican diferencias significativas (p < 0,05) entre los coadyuvantes para cada miel y procedimiento de secado

MD-LHP, donde se utilizaron distinta relación miel: coadyuvante para cada tratamiento, MD-LHP1 y MD-LHP2 siguieron la tendencia mencionada, a diferencia de MD-LHP3. En otros polvos de FZ, se obtuvo una humedad del 3,10% en la miel en polvo con 50% de miel, utilizando jarabes de glucosa + 1% de WP como agente secante (Sramek et al., 2016).

WH mostró el valor más bajo para a_w y AG el más alto. Los LHP exhibieron una gran variabilidad con valores de a_w que oscilaban entre 0,2106 y 0,3421. Nurhadi et al. (2012), Nurhadi y Roos (2017) y Shi et al. (2013) obtuvieron valores similares para SP y VC, mientras que Samborska et al. (2014a, 2017, 2020) y Samborska y Czelejewska (2014b) obtuvieron resultados de actividad de agua más bajos (0,066–0,138) en polvos SP con AG o MD. Estas diferencias podrían atribuirse al tipo de miel, el tiempo hasta el análisis y las condiciones de almacenamiento.

3.1.2.1. Solubilidad y densidad compacta

MD fue el coadyuvante con la mayor solubilidad (10 s), mientras que AG mostró la menor (311 s). LHP también exhibió la misma tendencia, siendo MD-LHP el más soluble (37 – 92 s) sin importar el procedimiento de secado. Las mieles deshidratadas con AG (AG-LHP) fueron las menos solubles ($p < 0,05$), tardando entre 83 y 286 s (Fig. 3A). FZ-LHP tuvo los mejores valores de solubilidad, seguido por SP-LHP, mientras que VC-LHP mostró la menor solubilidad ($p < 0,05$). Samborska y Bienkowska (2013) obtuvieron valores similares para los polvos SP con MD (28 – 148 s). Estos autores demostraron que cuanto menor era el contenido de humedad de los polvos, peor era la solubilidad. No obstante, en nuestra investigación esa relación cambió, ya que los polvos con menor humedad, como MD-LHP, mostraron la mejor solubilidad, mientras que WH-LHP, que eran las muestras con mayor humedad, presentaron una solubilidad intermedia.

La densidad compacta fue mayor en MD (0,64 g/ml) que en el resto de los coadyuvantes (0,42 – 0,45 g/ml). LHP no siguió una tendencia clara en relación al coadyuvante, aunque MD-LHP mostró la mayor densidad en la mayoría de las muestras (0,29 – 0,79 g/ml) (Fig. 3B). Samborska, Gajek y Kamińska-Dwórznička (2015b) y Shi et al. (2013) también concluyeron que la densidad compacta era mayor en los polvos con MD, lo que estaba

relacionado con su alto grado de aglomeración y colapso estructural, resultando en una disminución del volumen de las partículas del polvo.

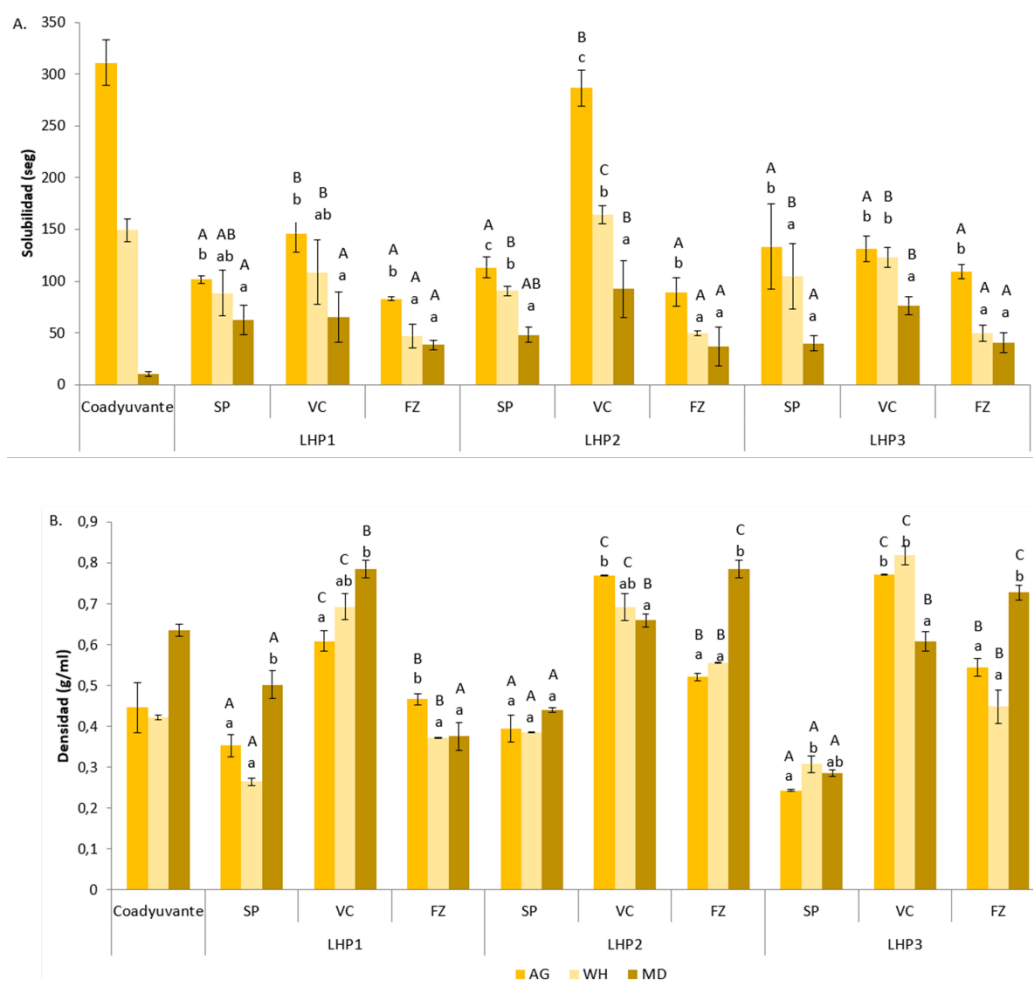


Fig. 3. Solubilidad (s) y densidad (g/ml) de las mieles de brechina en polvo (LHP) obtenidos mediante secado por atomización (SP), vacío (VC) y por liofilización (FZ), utilizando goma arábica (AG), aislado de proteína de suero (WH) y maltodextrina (MD) como coadyuvantes (n=3, densidad n=2). Las barras de error representan la desviación estándar para cada punto de datos. A-C: letras diferentes indican diferencias significativas ($p < 0,05$) entre los procedimientos de secado para cada miel y portados; a-c: letras diferentes indican diferencias significativas ($p < 0,05$) entre los coadyuvantes para cada miel y procedimiento de secado.

La muestra MD-LHP, con diferentes concentraciones de miel para cada tratamiento de secado (Tabla 1), mostró que la densidad compacta de SP-MD-LHP era menor que la densidad compacta de VC-MD-LHP y FZ-MD-LHP, siendo FZ-MD-LHP1 la excepción. Por lo tanto, hubo un aumento en la densidad compacta cuando la concentración de miel aumentó (o la concentración de coadyuvante disminuyó). En otros estudios se observaron resultados similares (Suhag et al., 2016). Se mostró una menor densidad

compacta en SP-LHP (0,24 – 0,50 g/ml), por lo que se necesita más espacio para almacenar este producto en comparación con VC-LHP (0,61 – 0,79 g/ml) y FZ-LHP (0,37 – 0,78 g/ml). VC-LHP mostró la mayor densidad, excepto para VC-MD-LHP2 y VC-MD-LHP3. Mutlu et al. (2020) obtuvieron valores similares para polvos VC con tres coadyuvantes diferentes (AG, WH, MD) (0,74 – 0,80 g/ml). Se observó una ligera correlación negativa entre la densidad compacta y el contenido en agua ($r = -0,3814$, $p = 0,0020$), concordando con otras investigaciones (Samborska et al., 2015b; Shi et al., 2013). La densidad de un producto es relevante para el almacenamiento, procesado, envasado y distribución. Tener una mayor densidad podría ser positivo, ya que implica un menor volumen y, por lo tanto, un almacenamiento, envasado y distribución más eficientes. Sin embargo, también podría ser negativo, ya que una mayor densidad podría provocar una mayor cohesión entre las partículas y formar aglomerados más fácilmente.

3.1.2.2. Higroscopicidad

LHP es un producto con alta higroscopicidad debido a su alto contenido de azúcares. La Fig. 4 representa la higroscopicidad de las mieles en polvo y los coadyuvantes. La Fig. 4A muestra el porcentaje de agua absorbida en una semana (índice higroscópico). La Fig.4B exhibe la cantidad de agua absorbida por minuto (tasa higroscópica). El coadyuvante WH mostró la mayor higroscopicidad en ambas mediciones.

En general, MD-LHP mostró un índice higroscópico más bajo (7,21 – 13,14%), a diferencia de AG-LHP que mostró porcentajes más altos (10,18 – 16,26%), excepto para VC-AG-LHP3 y FZ-AG-LHP3. Los valores higroscópicos obtenidos en nuestro estudio fueron más bajos que los descritos en otras investigaciones de mieles en polvo obtenidas mediante SP utilizando los tres coadyuvantes y las mismas condiciones de análisis (1 g/25 °C/75% HR/7 días), con valores entre 20,13% y 27,8% (Samborska et al., 2020; Shi et al., 2013; Suhag & Nanda, 2015). La discrepancia en los resultados podría deberse al tipo de miel. Nuestros resultados también fueron contradictorios con los de Suhag & Nanda (2016), quienes observaron la menor higroscopicidad (23,1%) para mieles en polvo SP con WH y la mayor (26,4%) para polvos con MD. Sin embargo, nuestros valores coincidieron con los

resultados de Samborska et al. (2015b), cuyos polvos de miel con MD mostraron la menor higroscopicidad.

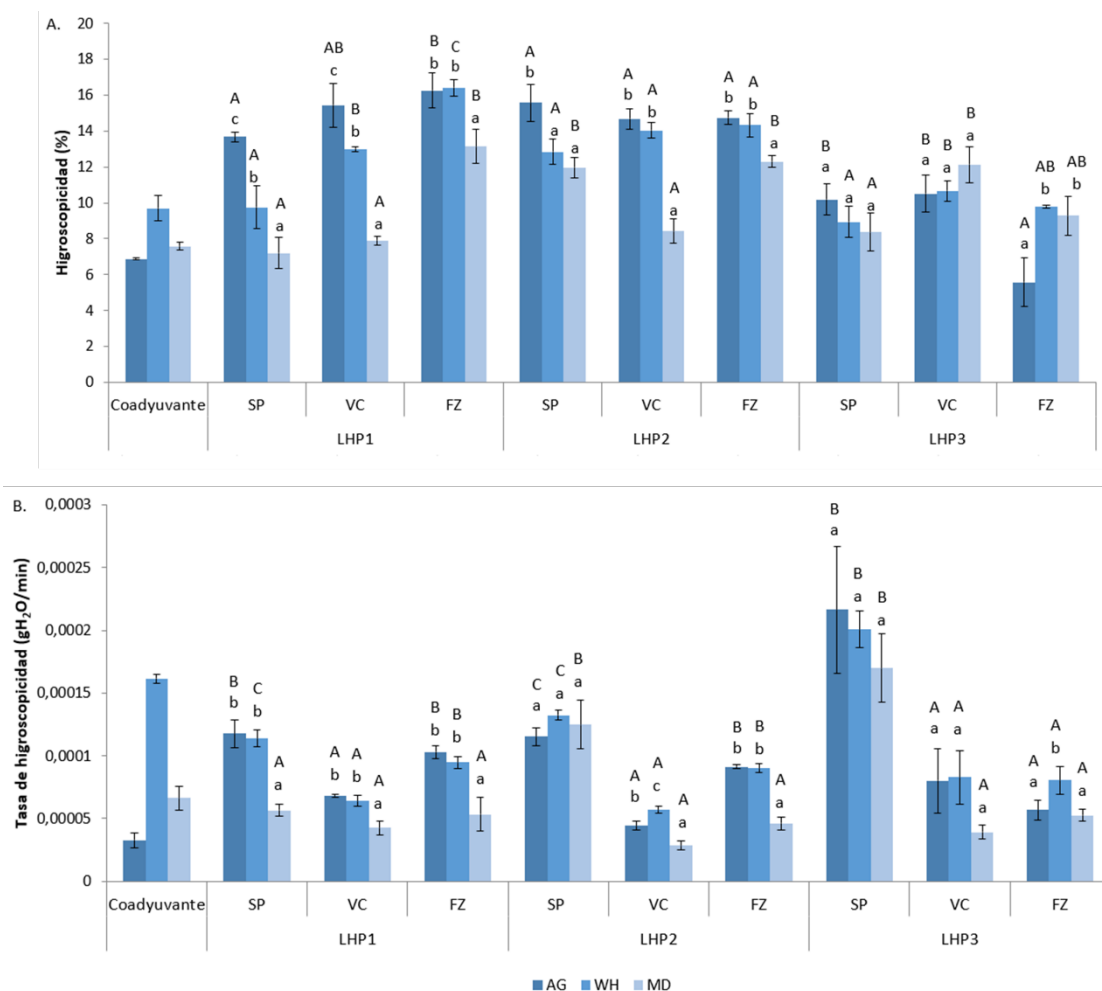


Fig. 4. Higroscopicidad (%) y tasa higroscópica (g H₂O/ min) de mieles de brechina en polvo (LHP) obtenidos por secado por atomización (SP), vacío (VC) y liofilización (FZ), utilizando goma arábica (AG), aislado de proteína de suero (WH) y maltodextrina (MD) como coadyuvantes (n=3). Las barras de errores representan la desviación estándar para cada punto de datos. A-C: letras diferentes indican diferencias significativas ($p < 0,05$) entre los procedimientos de secado para cada miel y coadyuvante; a-c: letras diferentes indican diferencias significativas ($p < 0,05$) entre coadyuvantes para cada miel y procedimiento de secado.

Estos investigadores atribuyeron sus valores a la menor higroscopicidad del MD, así como a una combinación de factores, como la conformación y la topología de la molécula y los sitios hidrofílicos/hidrofóbicos absorbidos en la interfaz (Pérez-Alonso et al., 2006). SP-LHP mostró porcentajes de higroscopicidad entre 8,37% y 15,58%, VC-LHP exhibió valores entre 7,9% y

15,43%, y FZ-LHP entre 5,56% y 16,41%. Nurhadi et al. (2012) describieron resultados similares en mieles en polvo obtenidas por VC con AG y MD (12 – 13,7%). El análisis de varianza reveló que el método de secado no tuvo un efecto significativo sobre el índice higroscópico. Sin embargo, el SP-LHP mostró la tasa de higroscopicidad más alta (Fig. 4B), siendo menores y similares las de VC-LHP y FZ-LHP. Por lo tanto, durante las primeras 4 horas, SP-LHP absorbió agua más rápido que los polvos obtenidos por los otros dos tratamientos. Sin embargo, después de una semana, el índice de higroscopicidad fue similar para los polvos obtenidos por todos los procedimientos. Tasas de higroscopicidad más altas fueron obtenidas por Nurhadi et al. (2012), quienes describieron valores entre 0,00020 y 0,00033 g H₂O/min en polvos SP y VC, con resultados menores en polvos obtenidos con MD que con AG. Aunque algunos autores habían descrito una relación entre el contenido en agua del polvo y la higroscopicidad (Shi et al., 2013), en nuestra investigación no se encontró esa correlación. Sin embargo, se encontró una correlación muy débil entre la cantidad de miel en el polvo final y el nivel de higroscopicidad ($r = 0,3$, $p = 0,017$), que también observaron Samborska et al. (2019).

3.1.3. Prolina

Este aminoácido se está utilizando como un posible indicador de la calidad de la miel. Por lo que es interesante comprobar en qué medida la incorporación de aditivos con proteínas que contienen prolina (por ejemplo, aislado de proteínas de suero) puede aumentar el contenido de prolina en las mieles en polvo en comparación con las mieles iniciales, con el fin de detectar en el futuro mieles en polvo elaboradas con compuestos que contienen prolina.

En cuanto a los coadyuvantes, como se esperaba, el suero (WH) mostró el valor más alto, seguido por la goma arábica (AG), que está compuesta por una mezcla de polisacáridos con un 10% de material proteico, que contiene un 50% de hidroxiprolina, serina y prolina (Lopera et al., 2009). Los LHP mostraron contenidos de prolina menores que los correspondientes LH, siendo el WP-LHP el que presentó los valores más altos, seguido por el AG-LHP. El LHP2 mostró mayores contenidos de prolina, coincidiendo con el valor más alto del LH2. El FZ-LHP mostró los contenidos de prolina más altos, probablemente porque estos polvos contenían la mayor cantidad de miel y no se sometieron a ningún tratamiento térmico. El VC-LHP mostró el

contenido de prolina más bajo, principalmente debido a los intensos tratamientos térmicos recibidos (60 °C/24 h), donde la reacción de Maillard entre azúcar y aminoácido podría provocar una disminución de la prolina (Tabla 7).

3.1.4. Azúcares

El contenido de azúcares se puede utilizar para detectar la adulteración de la miel. Por lo tanto, determinar los cambios en los azúcares después del proceso de secado es útil para verificar las mieles en polvo provenientes de mieles adulteradas o la posible adición de azúcares a la miel en polvo.

La fructosa y la glucosa fueron los principales componentes de LHP. La Tabla 8 muestra que, entre los coadyuvantes, solo AG tenía una pequeña cantidad de ambos monosacáridos. En la mayoría de los LHP, la fructosa fue mayor que la glucosa, aunque hubo algunas excepciones. La sacarosa no se detectó en ningún polvo. En los métodos cromatográficos, tanto la cromatografía de gases como la HPLC, un % RSD de alrededor del 3 se considera aceptable. Un método cromatográfico muy bueno puede tener valores alrededor del 1% RSD, siendo común en la bibliografía encontrar valores del 6%, 7% o incluso 8%. Suponiendo un método con un 1% RSD, un valor menor al 1% de sacarosa no es analíticamente significativo, lo que puede explicar por qué en nuestro estudio se obtuvieron valores de 0,00. De hecho, verificamos que había picos pequeños de sacarosa en los cromatogramas, pero después de dividir este valor por el área considerablemente mayor de manitol (utilizado como patrón interno), y después de llevar este valor de la división a la curva de calibración de sacarosa, se obtuvieron valores de 0,00 en todos los casos para las mieles en polvo de nuestro estudio. Lo que queda claro, sin embargo, es que los contenidos de sacarosa disminuyeron después del tratamiento de secado. Por lo tanto, si se detectaran altos contenidos de sacarosa en una miel en polvo, es probable que se haya añadido sacarosa al polvo.

No encontramos una tendencia clara en cuanto a la composición de azúcares en relación con el procedimiento de secado o con el coadyuvante utilizado, aunque los LHP mostraron una menor cantidad de azúcares que los LH. Comparando nuestros resultados con los de otros estudios, Nurhadi et al. (2012) obtuvieron valores más bajos en polvos de miel obtenidos por SP y VC con AG y MD, mientras que Kozłowicz et al. (2020) y Tomczyk et al.,

(2020) mostraron valores más altos en polvos SP con MD (fructosa: 30,6–39,5%, glucosa: 27,2–51,6%).

3.1.1. Análisis sensorial

La primera parte consistió en establecer un perfil sensorial descriptivo cuantitativo previo de las mieles de brechina en polvo (LHP). Se evaluaron diecinueve atributos, de los cuales se seleccionaron seis (característica olfativa floral, descriptor del sabor floral y a caramelo, dulzura, viscosidad y percepción cerosa), junto con la percepción general, para una segunda etapa, tras realizar un estudio estadístico de diferencias significativas ($p < 0,05$). La Fig. 5 muestra el promedio de cada atributo para cada LHP. Los WH-LHP fueron descritos como muy insípidos, con olores y sabores extremadamente débiles, alta viscosidad y mala percepción general. Los AG-LHP fueron descritos como muy viscosos, siendo más cerosos y mostrando un olor floral y una mejor percepción del sabor. Los MD-LHP fueron los más apreciados, obteniendo la puntuación más alta en cuanto a percepción general. Los VC-MD-LHP y FZ-MD-LHP obtuvieron la puntuación más alta para el olor y sabor floral, así como para la dulzura, y la más baja para la viscosidad y la percepción cerosa. Los VC-LHP tenían un sabor a caramelo más alto y los FZ-LHP un olor floral más fuerte. Los SP-LHP fueron los peor puntuados por el panel, describiéndose como los más viscosos. Las referencias bibliográficas muestran que solo Nurhadi et al. (2012) realizaron un análisis sensorial en el que la miel en polvo elaborada por VC fue más atractiva que la miel en polvo hecha por SP, considerando el aroma y el sabor. Estos autores también encontraron que el uso de MD aumentó la aceptación sensorial. Con los resultados del análisis sensorial, se realizó un PCA. La primera componente describió el 43,48% de la varianza, mientras que el segundo componente describió el 29,97% (Fig. 6A y B). El PC1 se definió principalmente por la percepción general, la viscosidad y la percepción cerosa, mientras que el PC2 se definió principalmente por el olor floral y el sabor a caramelo. Los polvos se pudieron dividir en tres grupos diferentes: grupo I, donde se incluyeron VC-MD-LHP y FZ-MD-LHP, siendo los polvos más atractivos en términos de percepción general y sabores florales dulces;

Tabla 7. Valores de prolina (mg/100 g de polvo en materia seca) de coadyuvantes y mieles en polvo obtenidos por secado por atomización (SP), vacío (VC) y liofilización (FZ), utilizando goma arábica (AG), aislado de proteína de suero (WH) y maltodextrina (MD) (n = 3).

		LHP1			LHP2			LHP3		
		SP	VC	FZ	SP	VC	FZ	SP	VC	FZ
AG	25,62±2,23	^A 31,48 ± 1,75 _b	^A 29,45 ± 0,97 _b	^B 42,44 ± 0,56 _b	^B 50,73 ± 1,37 _b	^A 37,05 ± 1,05 _b	^C 65,68 ± 1,75 _a	^A 25,81 ± 2,37 _a	^B 31,88 ± 1,78 _b	^C 43,53 ± 1,02 _b
WH	75,70±5,04	^B 60,78 ± 0,86 _c	^A 31,16 ± 1,11 _b	^B 65,34 ± 3,65 _c	^B 88,16 ± 1,21 _c	^A 38,61 ± 1,42 _b	^C 108,99 ± 3,81 _b	^C 65,95 ± 2,37 _b	^A 29,43 ± 0,72 _b	^B 56,82 ± 2,05 _c
MD	8,21 ± 0,23	^B 25,40 ± 0,11 _a	^A 21,96 ± 0,88 _a	^C 36,03 ± 1,05 _a	^B 38,16 ± 1,80 _a	^A 24,75 ± 0,50 _a	^C 67,70 ± 0,17 _a	^A 21,39 ± 1,44 _a	^A 19,56 ± 1,01 _a	^B 35,73 ± 1,51 _a

A-C: letras diferentes indican diferencias significativas (p < 0,05) entre los métodos de secado para cada miel y coadyuvante.

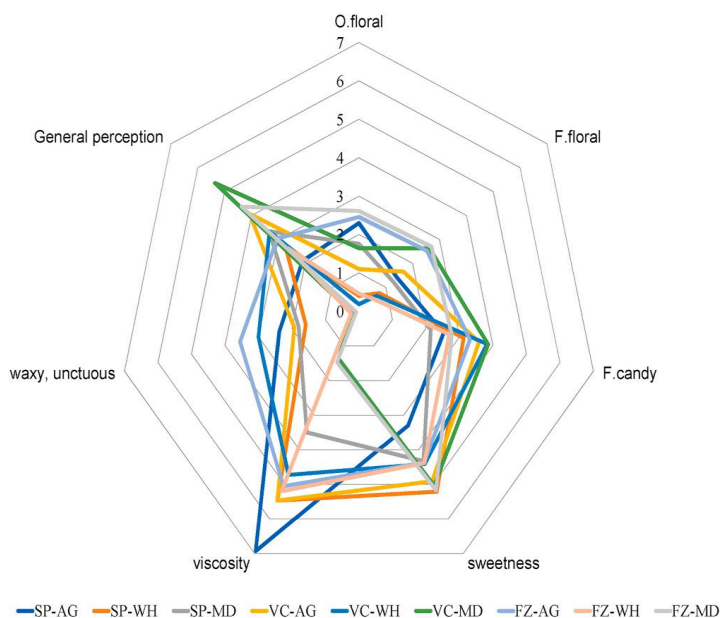
a-c: letras diferentes indican diferencias significativas (p < 0,05) entre los coadyuvantes para cada miel y método de secado.

Tabla 8. Fructosa y glucosa obtenidas por CG-MS expresadas en materia seca (g/100 g de polvo seco) de coadyuvantes y mieles en polvo obtenidos por secado por atomización (SP), vacío (VC) y liofilización (FZ), utilizando goma arábica (AG), aislado de proteína de suero (WH) y maltodextrina (MD) (n = 1).

Fructosa										
		LHP1			LHP2			LHP3		
		SP	VC	FZ	SP	VC	FZ	SP	VC	FZ
AG	0,36	29,41	32,18	27,61	28,74	24,46	27,13	27,62	32,96	27,98
WH	0,00	28,99	31,82	31,15	27,97	28,76	30,21	29,71	25,57	31,68
MD	0,00	27,40	26,00	30,43	23,88	32,21	26,47	25,63	24,16	32,13
Glucosa										
		LHP1			LHP2			LHP3		
		SP	VC	FZ	SP	VC	FZ	SP	VC	FZ
AG	0,25	24,68	27,52	21,53	25,46	29,74	21,38	23,57	29,43	21,91
WH	0,00	22,77	26,19	24,30	22,69	27,91	24,10	25,16	27,90	27,06
MD	0,00	25,38	21,83	26,50	23,26	32,93	27,15	26,58	25,13	28,36

grupo II, donde se incluyeron WH-LHP y VC-AG-LHP, siendo los polvos menos atractivos caracterizados por olores y sabores florales débiles; y grupo III, donde se incluyeron SP-AG-LHP, SP-MD-LHP y FZ-AG-LHP, caracterizándose estos polvos por su menor dulzura y sabor a caramelo. La misma división de los polvos en grupos se observó en el dendrograma (Fig. 6C). Por lo tanto, se puede concluir que el método de secado, el tipo de coadyuvante y el contenido de miel influyen en gran medida en la aceptación sensorial del polvo.

Fig. 5. Diagrama que representa la media (n = 7) de los análisis descriptivos sensoriales realizados por expertos, en LHP1 obtenidos por secado por atomización (SP), vacío (VC) y por liofilización (FZ), utilizando goma arábica (AG), suero (WH) y maltodextrina (MD) como coadyuvantes.



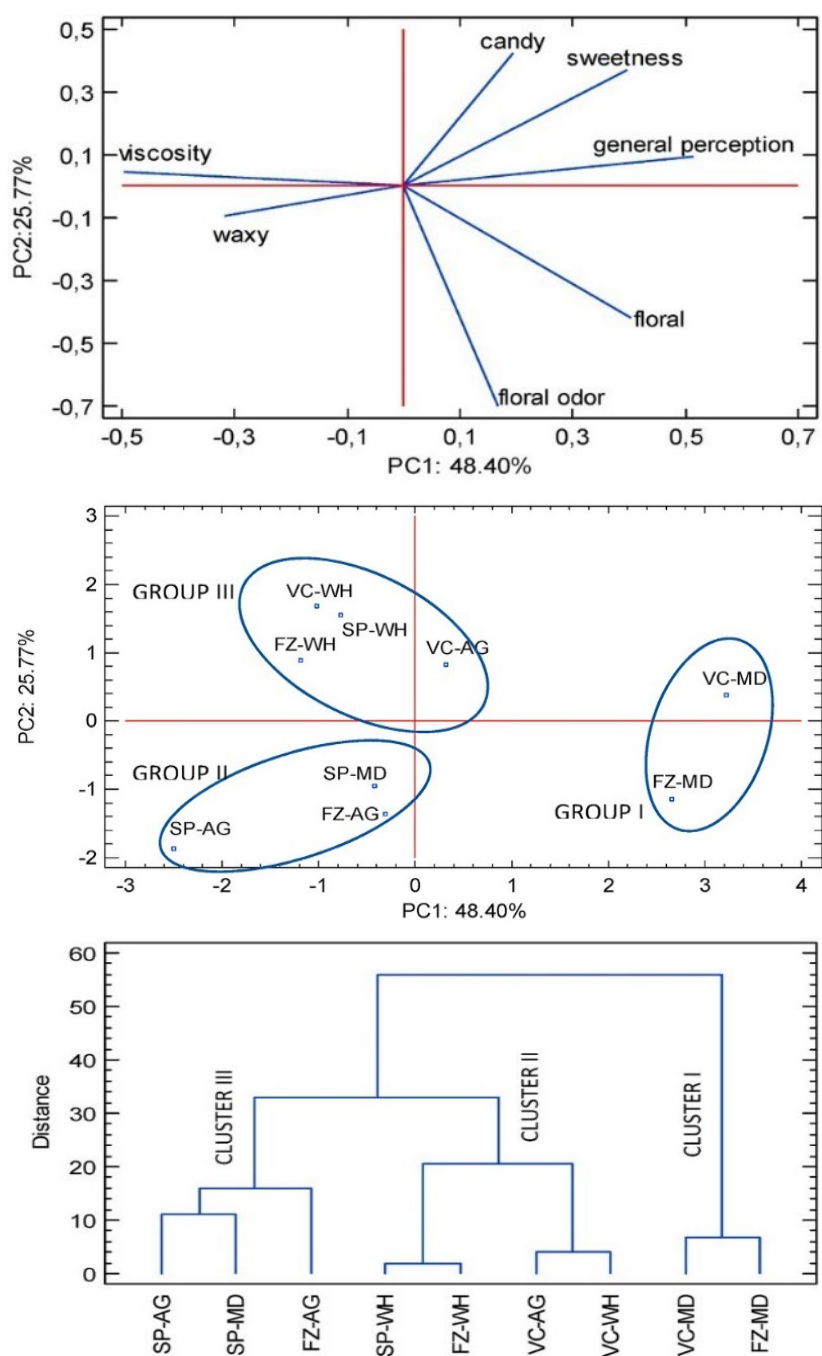


Fig. 6. Gráfico de PCA y dendrograma derivado del análisis de conglomerados jerárquico para atributos sensoriales.

4. Conclusión

Se investigaron por primera vez tres procedimientos de secado diferentes (SP, VC y FZ) y tres coadyuvantes distintos (AG, WH y MD) para producir mieles en polvo. A diferencia del SP, tanto el VC como el FZ fueron los procedimientos que proporcionaron mayores recuperaciones y mayores concentraciones finales de miel en los polvos para cada coadyuvante. El coadyuvante más adecuado fue MD, ya que con él se lograron menores contenidos en agua, mayor solubilidad y menor higroscopicidad. VC-MD-LHP y FZ-MD-LHP lograron mayores recuperaciones y las mejores características sensoriales, con olores y sabores florales más intensos, mayor dulzura, menor viscosidad y menor percepción cerosa.

Apéndice A- Datos suplementarios

Los datos suplementarios de este artículo se pueden encontrar en línea en <https://doi.org/10.1016/j.lwt.2021.112063>.

Referencias

- Alvarez-Suárez, J. M., Tulipani, A., Díaz, D., Estevez, Y., Romandini, S., Giampieri, F., et al. (2010). Antioxidant and antimicrobial capacity of several monofloral Cuban honeys and their correlation with color, polyphenol content and other chemical compounds. *Food and Chemical Toxicology*, 48(8–9), 2490–2499. <https://doi.org/10.1016/j.fct.2010.06.021>
- Andrade, P. B., Amaral, M. T., Isabel, P., Carvalho, J. C. M. F., Seabra, R. M., & Proença da Cunha, A. (1999). Physicochemical attributes and pollen spectrum of Portuguese heather honeys. *Food Chemistry*, 66(4), 503–510. [https://doi.org/10.1016/S0308-8146\(99\)00100-4](https://doi.org/10.1016/S0308-8146(99)00100-4)
- AOAC-Association of Official Analytical Chemists. (2012). In J. W. Latimer (Ed.), *Official methods of analysis of AOAC international*. Gaithersburg, Maryland, USA.
- Bogdanov, S. (2009). Harmonised methods of the international honey commission. Retrieved from <http://www.ihc-platform.net/ihcmethods2009.pdf> Accessed December 20, 2020.
- Bogdanov, S. (2011). Physical properties. In S. Bogdanov (Ed.), *The honey book* (pp. 19–27).
- Bogdanov, S. (2016). Honey composition. In S. Bogdanov (Ed.), *The Honey Book, bee product science* (chapter 5). Retrieved from <https://www.researchgate.net/publication/304011775> Accessed December 26, 2020.
- Bogdanov, S., Ruoff, K., & Persano-Odoó, L. (2004). Physico-chemical methods for the characterization of unifloral honeys: A review. *Apidologie*, 35(1), S4–S17. <https://doi.org/10.1051/apido:2004047>
- Codex Alimentarius Standard for Honey. (2001). Codex standard for honey 12-1981. In *Revised Codex standard for honey. Standards and Standard Methods*, 11. Retrieved from <http://www.codexalimentarius.net> Accessed November 25, 2020.
- Commission Internationale de Lélairage-CIE. (2004). Technical report (3rd ed., Vol. 15). CIE, 2004.
- Cordella, C., Antinelli, J. F., Aurières, C., Faucon, J. P., Cabrol-Bass, D., & Sbirrazzuoli, N. (2002). Use of differential scanning calorimetry (DSC) as a new technique for detection of adulteration in honeys. 1. Study of adulteration effect on honey thermal behavior. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 50, 203–208.
- Cordella, C., Faucon, J. P., Cabrol-Bas, D., & Sbirrazzuoli, N. (2003). Application of DSC as a tool for honey floral species characterization and adulteration detection. *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, 71, 279–290.
- Cui, Z. W., Sun, L. J., Chen, W., & Sun, D. W. (2008). Preparation of dry honey by microwave-vacuum drying. *Journal of Food Engineering*, 84, 582–590. <https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2007.06.027>
- Fan, F., & Roos, Y. H. (2019). Physicochemical properties, structural transformation, and relaxation time in strength analysis for honey powder models. *Food Research International*, 122, 137–148. <https://doi.org/10.1016/j.foodres.2019.04.003>
- González-Miret, M. L., Terrab, A., Hernanz, D., Fernández-Recamales, M. A., & Heredia, F. J. (2005). Multivariate correlation between color and mineral composition of honeys and by their botanical origin. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 53(7), 2574–2580. <https://doi.org/10.1021/jf048207p>
- Hadorn, H., & Zürcher, K. (1963). Formolzahl von Honig. Gleichzeitige Bestimmung von. Formolzahl, pH, freie S'aure und Lactongehalt in Honig. *Mitteilungen aus dem Gebiete der Lebensmitteluntersuchung und Hygiene = Travaux de Chimie Alimentaire et D'hygiene*, 54, 304–321.

ISO 13299. (2016). Sensory analysis. Methodology. General guidance for establishing a sensory profile (ISO 13299:2016). Geneva.

ISO 4121. (2003). Sensory analysis. Guidelines for the use of quantitative response scales (ISO 4121:2003). Geneva.

ISO 6658. (2017). Sensory analysis, methodology, general guidance. Geneva. Jayasundera, M., Adhikari, B., Aldred, P., & Ghandi, A. (2009). Surface modification of spray dried food and emulsion powders with surface-active proteins: A review. *Journal of Food Engineering*, 93, 266–277. <https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2009.01.036>

Jedlińska, A., Samborska, K., Wieczorek, A., Wiktor, A., Ostrowska-Ligeza, E., Jamróz, W., et al. (2019). The application of dehumidified air in rapeseed and honeydew honey spray drying - process performance and powders properties considerations. *Journal of Food Engineering*, 245, 80–87. <https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2018.10.017>

Kántor, Z., Pitsi, G., & Thoen, J. (1999). Glass transition temperature of honey as a function of water content as determined by differential scanning calorimetry. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 47, 2327–2330.

Kozłowicz, K., Różyło, R., Gładyszewska, B., Matwijczuk, A., Gładyszewski, G., Chocyk, D., et al. (2020). Identification of sugars and phenolic compounds in honey powders with the use of GC-MS, FTIR spectroscopy, and X-ray diffraction. *Scientific Reports*, 10, 16269. <https://doi-org.ubues.idm.oclc.org/10.1038/s41598-020-73306-7>

Lopera, C., Guzmán, C., Cataño, C., & Gallardo, C. (2009). Development and characterization of folic acid microparticles formed by spray-drying with gum Arabic and maltodextrin. *Vitae, revista de la Facultad de química farmacéutica*, 16, 55–65.

Louveaux, J., Maurizio, A., & Vorwohl, G. (1978). International Commission for Bee Botany of IUBS. In *Methods of Melissopalynology*. *Bee World* (Vol. 59, pp. 139–157).

Manuel Suisse des Denrées Alimentaires. (1974). Office Central Fédéral de imprimés et du Matériel. Suisse: Berna.

Marcazzan, G. L., Mucignat-Caretta, C., Marchese, C. M., & Piana, M. L. (2018). A review of methods for honey sensory analysis. *Journal of Apicultural Research*, 57, 75–87. <https://doi.org/10.1080/00218839.2017.1357940>

Meda, A., Lamien, C. E., Romito, M., Millogo, J., & Nacoulma, O. G. (2005). Determination of the total phenolic, flavonoid and proline contents in Burkina Fasan honey, as well as their radical scavenging activity. *Food Chemistry*, 91, 571–577. <https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2004.10.006>

Mutlu, C., Koç, A., & Erbas, M. (2020). Some physical properties and adsorption isotherms of vacuum-dried honey powder with different carrier materials. *LWT-Food Science and Technology*, 134, 110166. <https://doi.org/10.1016/j.lwt.2020.110166>

Nurhadi, B., Andoyo, R., Mahani, R., & Indarto, R. (2012). Study the properties of honey powder produced from spray drying and vacuum drying method. *International Food Research Journal*, 19(3), 907–912.

Nurhadi, B., & Roos, Y. H. (2017). Influence of anti-caking agent on the water sorption isotherm and flowability properties of vacuum dried honey powder. *Journal of Food Engineering*, 210, 76–82. <https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2017.04.020>

OJEC-Official Journal of the European Communities, (2002). Council directive 2001/110/EC of 20 December 2001 relating to honey.

Osés, S. M., Ruiz, M. O., Pascual-Maté, A., Bocos, A., Fernández-Muiño, M. A., & Sancho, M. T. (2017). Ling-heather honey authentication by thixotropic parameters. *Food and Bioprocess Technology*, 10, 973–979. <https://doi.org/10.1007/s11947-017-1875-6>

Pascual-Maté, A., Osés, S. M., Marcazzan, G. L., Gardini, S., Fernández Muiño, M. A., & Sancho, M. T. (2018). Sugar composition and sugar-related parameters of honeys from the northern Iberian Plateau. *Journal of Food Composition and Analysis*, 74, 34–43. <https://doi.org/10.1016/j.jfca.2018.08.005>

Pérez-Alonso, C., Beristain, C. I., Lobato-Calleros, C., Rodriguez-Huezo, M. E., & Vernon Carter, E. J. (2006). Thermodynamic analysis of the sorption isotherms of pure and blended carbohydrate polymers. *Journal of Food Engineering*, 77, 753–760. <https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2005.08.002>

Persano Oddo, L., & Piro, R. (2004). Main European unifloral honeys: Descriptive sheets. *Apidologie*, 35, 38–81. <https://doi.org/10.1051/apido:2004049>

Piana, M. L., Persano Oddo, L., Bentabol, A., Bruneau, E., Bogdanov, S., & Guyot Declerck, C. (2004). Sensory analysis applied to honey: State of the art. *Apidologie*, 35, 26–37. <https://doi.org/10.1051/apido:2004048>

Ram, A. (2011). Production of spray-dried honey powder and its application in bread. PhD Thesis to the graduate Faculty of the Louisiana State University and Agricultural and Mechanical College of the degree of Master of Science.

Sahu, J. K. (2008). The effect of additives on vacuum dried honey powder properties. *International Journal of Food Engineering*, 4(8). <https://doi.org/10.2202/1556-3758.1356> . article 9.

Sahu, J. K., & Devi, K. D. (2013). Modeling of vacuum puffing characteristics and color change of liquid honey. *Industrial Crops and Products*, 48, 118–123. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2013.04.019>

Samborska, K. (2019). Powdered honey-drying methods and parameters, types of carriers and drying aids, physicochemical properties and storage stability. *Trends in Food Science & Technology*, 88, 133–142. <https://doi.org/10.1016/j.tifs.2019.03.019>

Samborska, K., Barańska, A., Szulc, K., Jankowska, E., Truszkowska, M., Ostrowska-Ligeża, E., et al. (2020). Reformulation of spray-dried apple concentrate and honey for the enhancement of drying process performance and the physicochemical properties of powders. *Journal of the Science of Food and Agriculture*, 100, 2224–2235. <https://doi.org/10.1002/jsfa.10247>

Samborska, K., & Bienkowska, B. (2013). Physicochemical properties of spray dried honey preparations. *Zeszyty Problemowe Postępów Nauk Rolniczych*, 575, 91–105.

Samborska, K., & Czelejewska, M. (2014b). The influence of thermal treatment and spray drying on the physicochemical properties of Polish honeys. *Journal of Food Processing and Preservation*, 38, 413–419. <https://doi.org/10.1111/j.1745-4549.2012.00789.x>

Samborska, K., Gajek, P., & Kamińska-Dwórznicza, A. (2015a). Spray drying of honey: The effect of drying agents on powder properties. *Polish Journal of Food and Nutrition Sciences*, 65, 109–118. <https://doi.org/10.2478/pjfn-2013-0012>

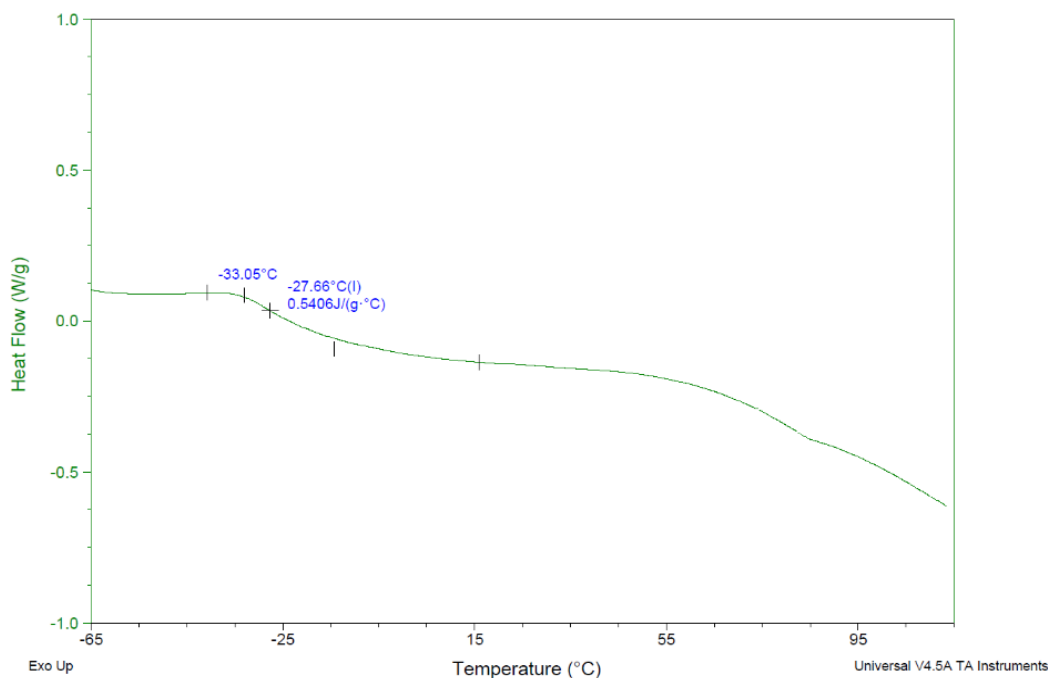
Samborska, K., Gajek, P., & Kamińska-Dwórznicza, A. (2015b). Spray drying of honey: The effect of drying agents on powder properties. *Polish Journal of Food and Nutrition Sciences*, 50, 256–262. <https://doi.org/10.2478/pjfn-2013-0012>

- Samborska, K., Langa, E., Kamińska-Dwórznička, A., & Witrowa-Rajchert, D. (2014a). The influence of sodium caseinate on the physical properties of spray-dried honey. *International Journal of Food Science and Technology*, 50(1), 256–262. <https://doi.org/10.1111/ijfs.12629>
- Samborska, K., Sokolowska, P., & Szulc, K. (2017). Diafiltration and agglomeration as methods to improve the properties of honey powder obtained by spray drying. *Innovative Food Science & Emerging Technologies*, 39, 33–41. <https://doi.org/10.1016/j.ifset.2016.10.002>
- Samborska, K., Wiktor, A., Jedlińska, A., Matwijczuk, A., Jamróz, W., Skwarczyńska- Maj, K., et al. (2019). Development and characterization of physical properties of honey-rich powder. *Food and Bioprocess Processing*, 115, 78–86. <https://doi.org/10.1016/j.fbp.2019.03.004>
- Sancho, M. T., Muniategui, S., Huidrobo, J. F., & Simal, J. (1991). Correlation between the electrical conductivity of honey in humid matter and dry matter. *Apidologie*, 22, 221–227. <https://doi.org/10.1051/apido:19910306.1991>
- Shi, Q., Fang, Z., & Bhandari, B. (2013). Effect of addition of whey protein isolate on spray-drying behaviour of honey with maltodextrin as a carrier material. *Drying Technology: An International Journal*, 31, 13–14. <https://doi.org/10.1080/07373937.2013.783593>
- Sramek, M., Woerz, B., Horn, H., Weiss, J., & Kohlus, R. (2016). Preparation of highgrade powders form honey-glucose syrup formulations by vacuum foam-drying method. *Journal of Food Processing and Preservation*, 40, 790–797. <https://doi.org/10.1111/jfpp.12660>
- Suhag, Y., & Nanda, V. (2015). Optimisation of process parameters to develop nutritionally rich spray-dried honey powder with vitamin C content and antioxidant properties. *International Journal of Food Science and Technology*, 50, 1771–1777. <https://doi.org/10.1111/ijfs.1284>
- Suhag, Y., & Nanda, V. (2016). Evaluation of different carrier agents with respect to physico-chemical, functional and morphological characteristics of spray dried nutritionally rich honey powder. *Journal of Food Processing and Preservation*, 40, 1429–1437. <https://doi.org/10.1111/jfpp.12728>
- Suhag, Y., Nayik, G. A., & Nanda, V. (2016). Effect of gum Arabic concentration and inlet temperature during spray drying on physical and antioxidant properties of honey powder. *Food Measure*, 10, 350–356. <https://doi.org/10.1007/s11694-016-9313-4>
- Terradillos, L. A., Muniategui, S., Sancho, M. T., Huidobro, J. F., & Simal-Lozano, J. (1994). An alternative method for analysis of honey sediment. *Bee Science*, 3, 86–93.
- Tomczyk, M., Zagula, G., Tarapatsky, M., Kačániová, M., & D' zugan, M. (2020). The effect of honey variety on the quality of honey powder. *Journal of Microbiology, Biotechnology and Food Sciences*, 9(5), 949–954. <https://doi.org/10.15414/jmbfs.2020.9.5.949-954>
- Umesh Hebbar, H., Rastogi, N. K., & Subramanian, R. (2008). Properties of dried and intermediate moisture honey products: A review. *International Journal of Food Properties*, 11, 804–819. <https://doi.org/10.1080/10942910701624736>
- Von der Ohe, W., Persano Oddo, L., Piana, M. L., Morlot, M., & Martin, P. (2004). Harmonized methods of melissopalynology. *Apidologie*, 35, 18–25. <https://doi.org/10.1051/apido:2004050>

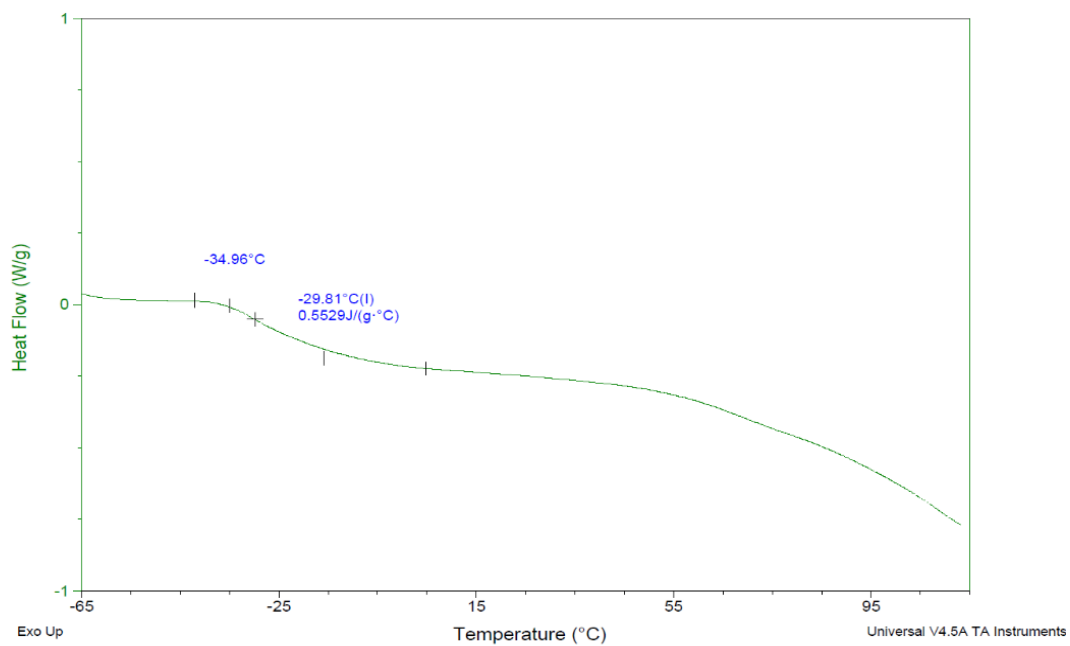
Material suplementario

Figura 1. Curvas DSC a 20 °C/min para mieles crudas (LH1, LH2, LH3) y mieles en polvo (LHP1) obtenidas mediante secado por atomización (SP), vacío (VC) y liofilización (FZ), utilizando goma arábica (AG), aislado de proteína de suero (WH) y maltodextrina (MD) en una atmósfera de nitrógeno. La figura muestra la variación de la capacidad calorífica específica (ΔC_p) y la temperatura de transición vítrea (T_g) en el inicio y en el punto medio.

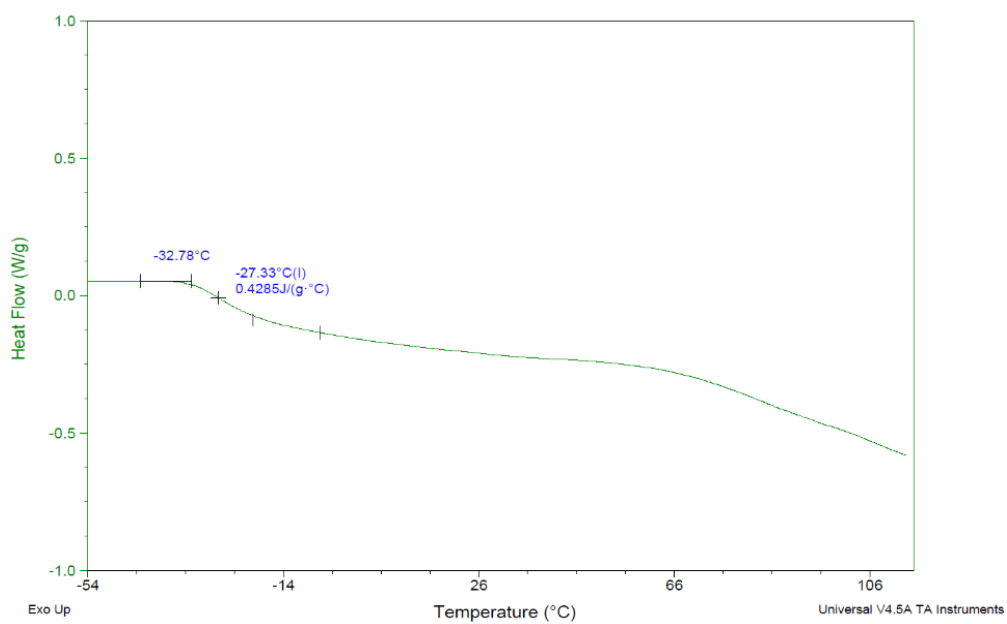
LH1



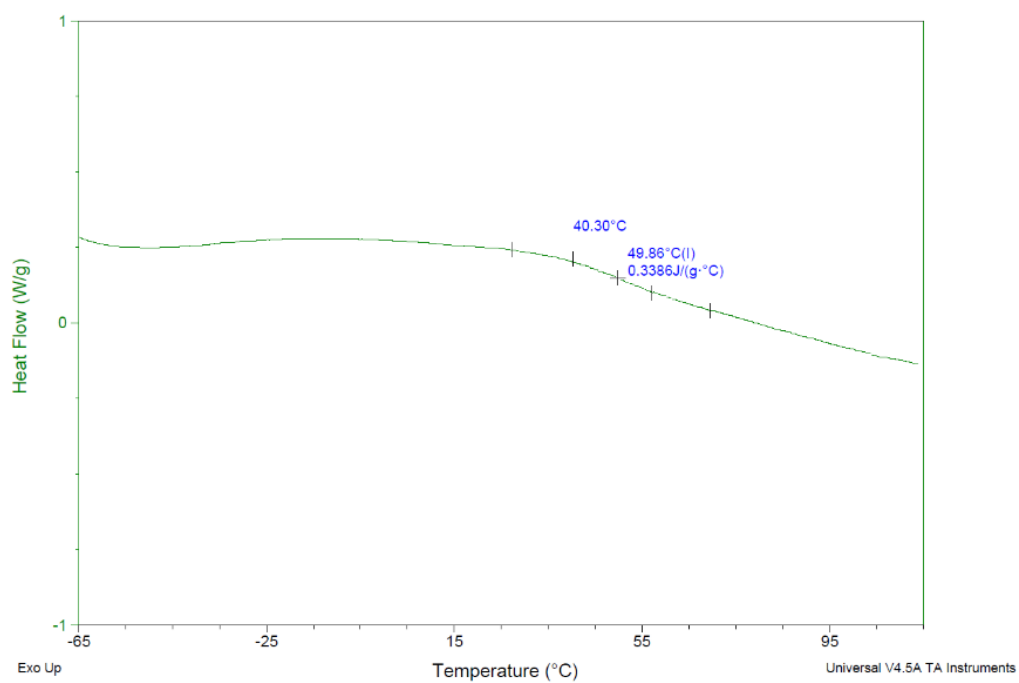
LH2



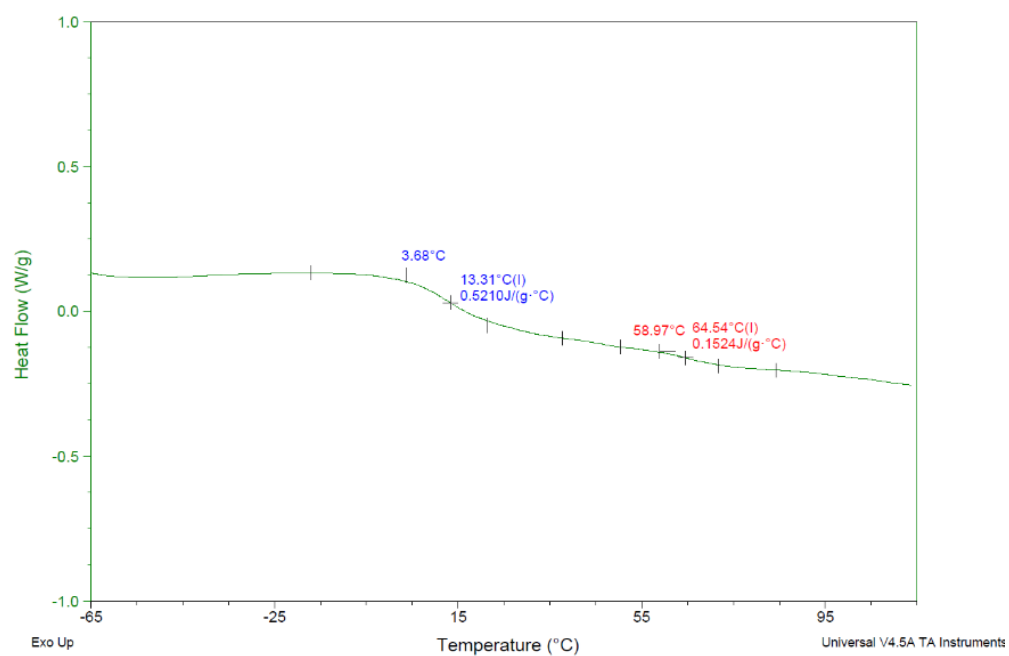
LH3



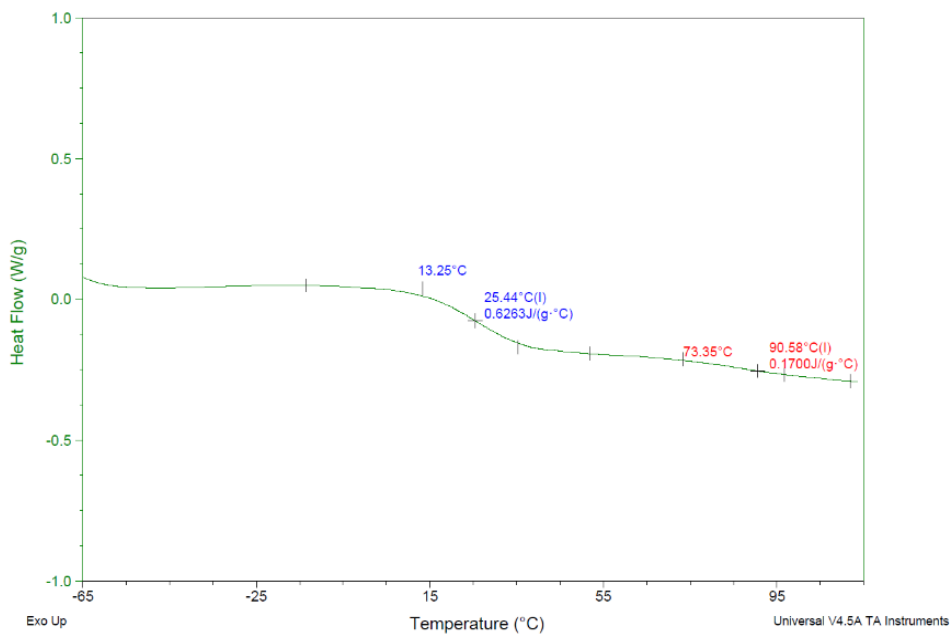
SP-AG-LHP1



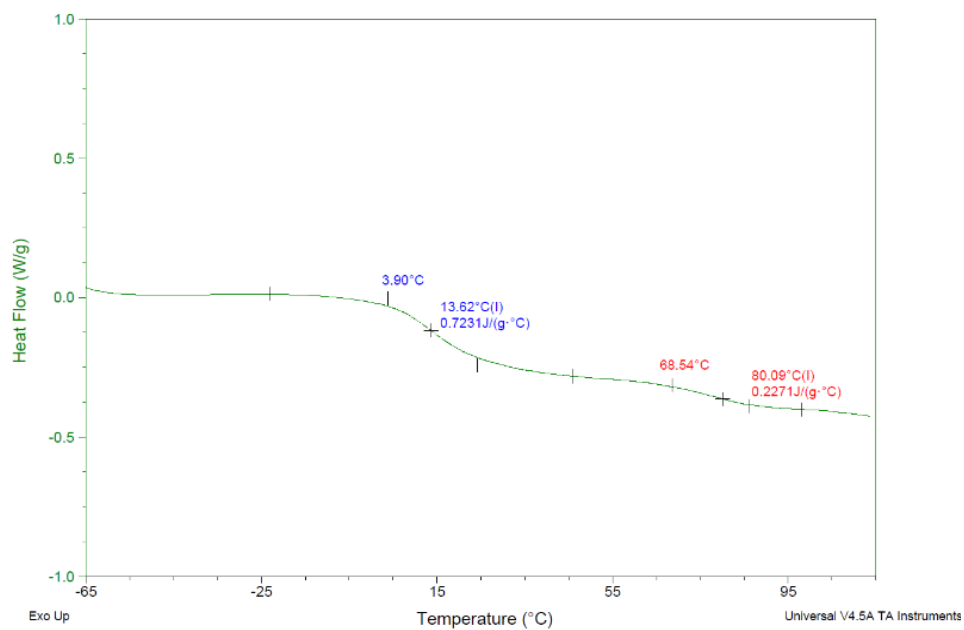
SP-WH-LHP1



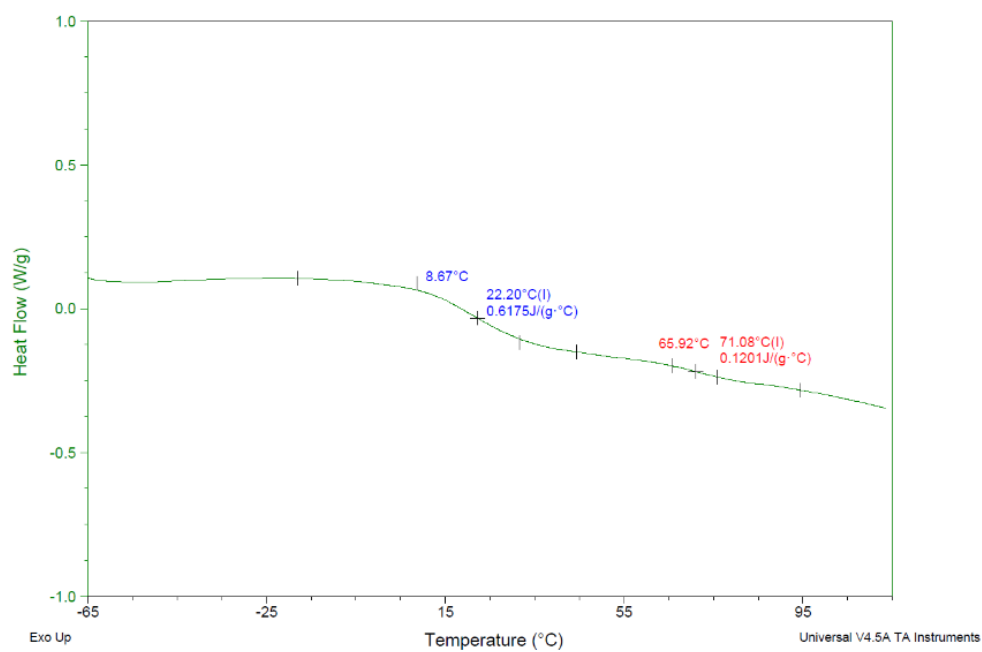
SP-MD-LHP1



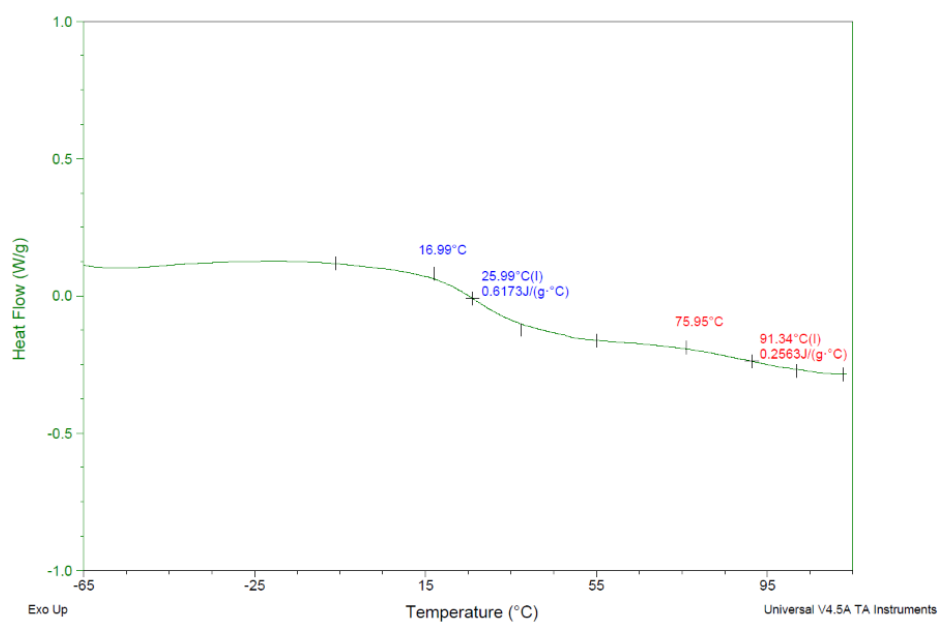
VC-AG-LHP1



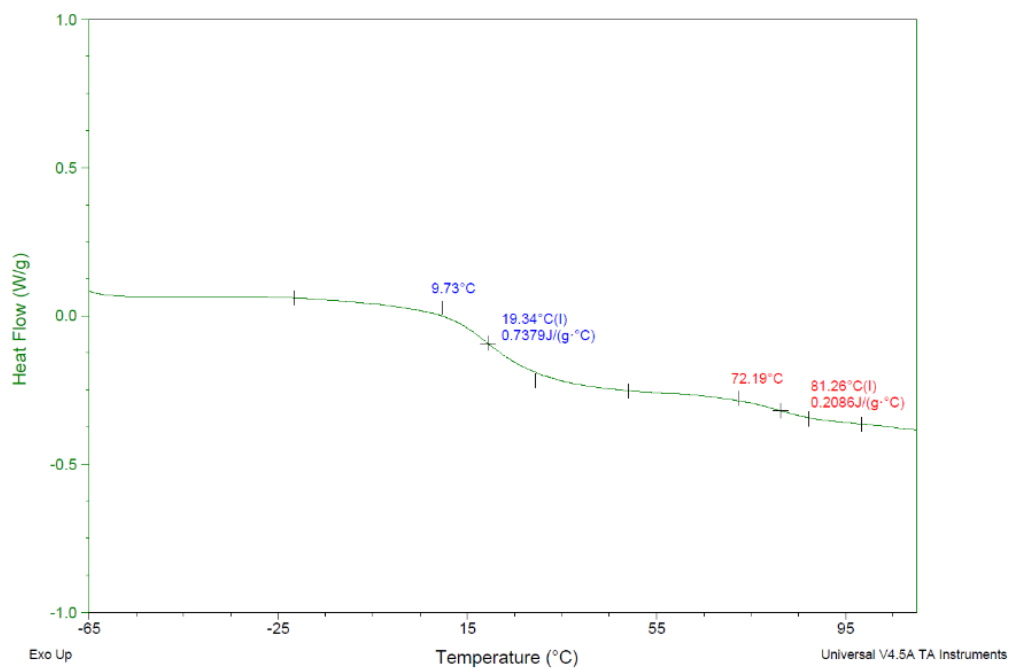
VC-WH-LHP1



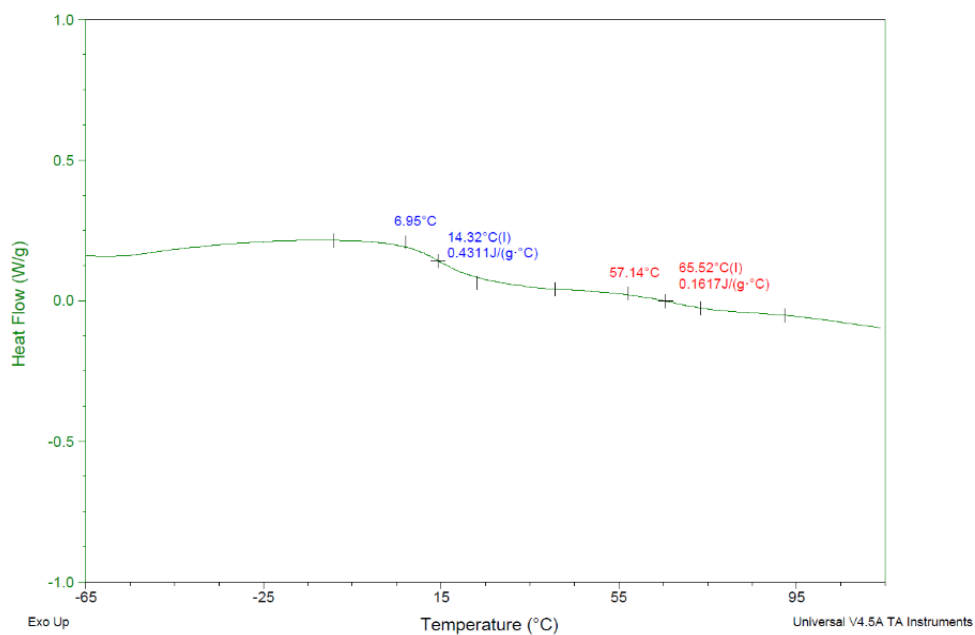
VC-MD-LHP1



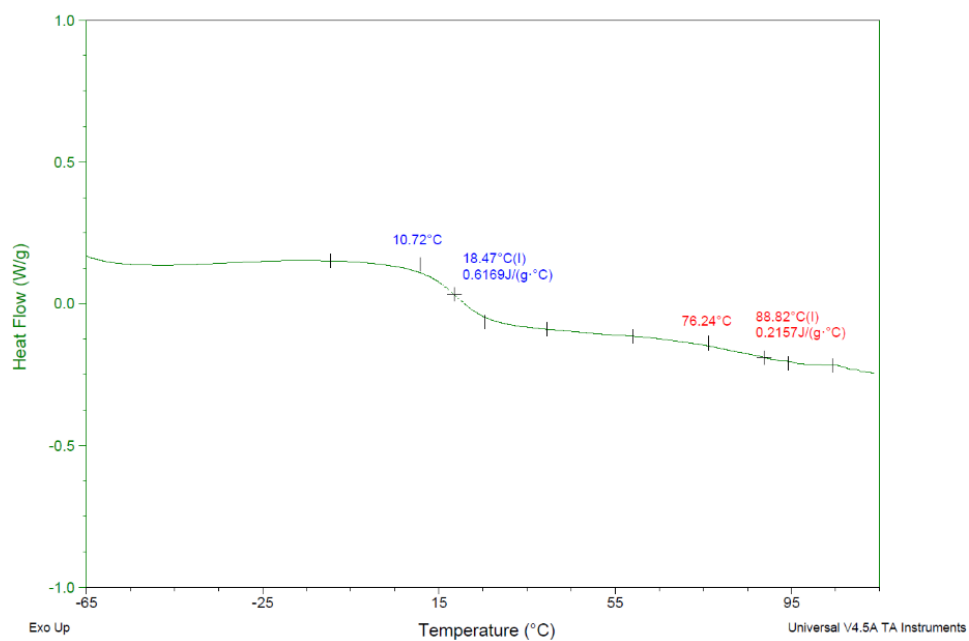
FZ-AG-LHP1



FZ-WH-LHP1



FZ-MD-LHP1



Capítulo 2

Actividad antioxidante, antimicrobiana y anti-inflamatoria de la miel en polvo de brecina obtenida por diferentes métodos con varios coadyuvantes

El artículo original incluido en los anexos de esta Tesis doctoral es el siguiente:

Osés, S. M., Cantero, L., Puertas, G., Fernández-Muiño, M. A & Sancho, M. T. (2022). Antioxidant, antimicrobial and anti-inflammatory activities of ling-heather honey powder obtained by different methods with several carriers. LWT-Food Science and Technology, 159, 113235. <https://doi.org/10.1016/j.lwt.2022.113235>



Resumen

La miel en polvo se está utilizando cada vez más en la industria alimentaria, cosmética y farmacéutica, ya que evita inconvenientes de la miel cruda, como son su alta viscosidad, pegajosidad y formación de cristales de azúcar. Es de gran importancia conocer si las mieles en polvo conservan las características de las mieles crudas. Este es el primer estudio en el que se evaluaron los fenoles totales, los flavonoides totales y las propiedades biológicas de miel de brechina [*Calluna vulgaris* (L.) Hull] en polvo obtenidas por diferentes métodos de secado (secado por atomización, secado a vacío y secado por liofilización), utilizando diferentes coadyuvantes (goma arábiga, aislado de proteína de suero y maltodextrina). Los resultados mostraron que todos los procedimientos de secado y coadyuvantes retuvieron los fenoles de la miel en las mieles en polvo. Las actividades antioxidantes de las mieles en polvo contra diferentes radicales libres (ABTS^{•+}, ROO[•], •OH y O₂^{•-}) fueron mayores que las de las mieles crudas, mientras que las actividades anti-inflamatorias y antimicrobianas frente a distintos microorganismos (*Staphylococcus aureus*, *Listeria monocytogenes* y *Escherichia coli*) de las mieles en polvo fueron menores. La concentración de miel en el polvo y el tipo de coadyuvante utilizado para la deshidratación fueron los factores clave para la calidad de las mieles en polvo. Sin embargo, el procedimiento de secado no influyó significativamente en los parámetros y propiedades estudiados.

1. Introducción

Hoy en día, existe una alta demanda por parte de los consumidores de alimentos que promuevan beneficios para la salud, como la miel. La miel es un alimento natural producido por abejas que ha sido utilizado desde la antigüedad como medicina tradicional para el tratamiento de heridas, infecciones microbianas y quemaduras, entre otras afecciones (Bogdanov, 2016). Numerosos estudios destacan una variedad de propiedades potencialmente funcionales de las mieles (Alevia et al., 2021; Molan, 1992; Seraglio et al., 2019; Alvarez-Suárez et al., 2010), principalmente atribuidas a compuestos fenólicos, ácidos orgánicos, aminoácidos, enzimas y compuestos de Maillard (Alvarez-Suárez et al., 2010; Bogdanov et al., 2008). La miel se utiliza cada vez más como sustituto del azúcar en caramelos, confitería y productos de panadería, y también se añade a diferentes alimentos, como salchichas, hamburguesas de carne de ternera, pescado, frutas y verduras, con el fin de extender su vida útil y/o mejorar sus propiedades bioactivas (Chen et al., 2000; Hakim et al., 2019; Johnston et al., 2005; Póltorak et al., 2018). Sin embargo, el uso de la miel está limitado debido a su alta viscosidad, pegajosidad y la formación de cristales de glucosa, lo que causa problemas de manejo (Suhag et al., 2016). Para solucionarlo, estudios recientes se han centrado en la elaboración de mieles en polvo atractivas para los consumidores, con propiedades fisicoquímicas óptimas que puedan ser fácilmente almacenadas, transportadas y mezcladas con otros productos alimenticios, como pan y carne de pechuga de pavo (Antony et al., 2000; Ram, 2011; Rivero et al., 2021; Samborska, 2019; Suhag et al., 2021). Sin embargo, la miel en polvo es difícil de fabricar debido al aumento de su pegajosidad producida como consecuencia del procedimiento de secado. La pegajosidad se debe a la composición química de la miel, principalmente a los azúcares de bajo peso molecular, como la glucosa y la fructosa, que exhiben bajas temperaturas de transición vítrea (T_g) (31 y 5 °C, respectivamente) (Jayasundera et al., 2009). La T_g de la miel varía entre -27 y -51 °C (Osés et al., 2021; Sramek et al., 2016).

Habitualmente, la miel en polvo se obtiene por diferentes procedimientos, siendo el secado por atomización el más investigado (Jedlińska et al., 2019; Samborska, 2019; Shi et al., 2013; Suhag & Nanda, 2015). Otros procedimientos, como el secado a vacío (Nurhadi et al., 2012; Sahu, 2008), el secado por liofilización (Rivero et al., 2021; Sramek et al., 2016), el secado por microondas a vacío (Cui et al., 2008), el secado mediante esponjado a vacío

(Sahu & Devi, 2013) y el secado por espuma (Sramek et al., 2016), también se describen como técnicas de secado comunes. Para obtener miel en polvo evitando los problemas relacionados con la pegajosidad, es de enorme importancia el uso de coadyuvantes que aumenten la T_g . Los coadyuvantes más utilizados para hacer miel en polvo son la maltodextrina, la goma arábica, el aislado de proteína de suero o el caseinato de sodio (Samborska et al., 2014; Suhag & Nanda, 2017). Para aumentar el valor nutricional de la miel en polvo se emplearon Nutriose o leche en polvo desnatada (Samborska et al., 2020).

La mayoría de las investigaciones sobre la miel en polvo se centran en las propiedades fisicoquímicas como el color, T_g , higroscopicidad, solubilidad, densidad por compactación, humedad, actividad del agua, composición de azúcares, prolina, propiedades morfológicas y características sensoriales (Nurhadi et al., 2012; Osés et al., 2021; Samborska, 2019; Shi et al., 2013). Hay muchos menos estudios sobre los parámetros beneficiosos de las mieles en polvo, limitándose a los compuestos fenólicos totales y las capacidades antioxidantes, como FRAP, CUPRAC, DPPH y TEAC, utilizando diferentes procedimientos de extracción de polifenoles. Suhag & Nanda (2016) obtuvieron el extracto fenólico de mieles en polvo con acetona al 60%, agitándolo durante 30 min a 30 °C; Bansal et al. (2017) con metanol, centrifugándolo durante 10 min; Samborska et al. (2020) con acetona al 70%, agitándolo durante 2 h, seguido de una extracción estática a 4 °C durante 24 h, agitándolo finalmente durante 30 min y filtrándolo. Este último procedimiento fue modificado por Jedlińska et al. (2021), disolviendo el polvo en agua y etanol en lugar de utilizar acetona al 70%, mientras que Barańska et al. (2021) y Tomczyk et al. (2020) disolvieron la miel en polvo solo con agua destilada. El uso de diferentes procedimientos de extracción para los fenoles de la miel dificulta la comparación de resultados entre los estudios sobre mieles en polvo, así como entre mieles en polvo y mieles crudas, en las cuales los extractos fenólicos se obtuvieron mayormente empleando amberlita o SPE (Baltrušaitytė et al., 2007; Sancho et al., 2016). Toda la investigación mencionada sobre extractos fenólicos de mieles en polvo se realizó en polvos obtenidos por secado por atomización. Solo Rivero et al. (2021) evaluaron la actividad antioxidante de la miel en polvo obtenida por liofilización. Tomczyk et al. (2020) también evaluaron la actividad antimicrobiana de la miel en polvo obtenida por secado por atomización utilizando maltodextrina como coadyuvante. Las actividades antioxidantes

de las mieles en polvo frente a radicales libres particularmente dañinos para los organismos vivos, como el peróxido ($\text{ROO}^\bullet$), hidroxilo ($^\bullet\text{OH}$) y superóxido ($\text{O}_2^{\bullet-}$), no han sido investigadas hasta ahora. Además, no se ha publicado ningún artículo científico que trate sobre las actividades antioxidantes, antimicrobianas o anti-inflamatorias de las mieles en polvo obtenidas por diferentes procedimientos de secado utilizando diferentes coadyuvantes. Por lo tanto, el objetivo de este estudio fue investigar en qué medida se modificó la cantidad de polifenoles, y las actividades antioxidantes, antimicrobianas y anti-inflamatorias de las mieles en polvo obtenidas con diferentes tratamientos (secado por atomización, secado a vacío y secado por liofilización) utilizando diferentes coadyuvantes (maltodextrina, goma arábica y suero de leche).

2. Materiales y métodos

2.1. Patrones, reactivos y equipos

Goma arábica (Sigma-Aldrich, 30888). Aislado de proteína de lactosuero con un contenido de proteína del 90% (Myprotein, Manchester, Reino Unido). Maltodextrina con equivalente de dextrosa de 20 (Calaf Nuances, Barcelona, España). Metanol, carbonato de sodio, cloruro de sodio, hidróxido de sodio, hidróxido de potasio, persulfato de potasio, $\text{Fe}(\text{NH}_4)_2(\text{SO}_4)_2$, EDTA, ácido acético, ácido fórmico, p-dimetilaminobenzaldehído, HCl , H_2SO_4 , H_2O_2 , agar Baird Parker (BP), agar Tripona bilis x-glucurónido (TBX) y emulsión estéril de telurito de yema de huevo (VWR International Eurolab, parte de Avantor, Llinars del Vallés, España). Ácido gálico, NaNO_2 , Na_2SO_4 y catequina (Panreac, Barcelona, España). AlCl_3 y sal de fluoresceína (Fluka Chemie GmbH, parte de Sigma-Aldrich, Buchs, San Galo, Suiza). Na_2HPO_4 , NaH_2PO_4 (Scharlab, Sentmenat, España). Tetraborato de potasio, tetrazolio nitroazul, benzoato de sodio y ácido úrico (Alfa Aesar, parte de Thermo Fisher, Kandel, Rheinland-Pfalz, Alemania). Caldo nutritivo No.2 (NB), infusión cerebro-corazón (BHI), agar técnico No.2 y solución de Ringer (Oxoid, parte de Thermo Fisher, Basingstoke, Hampshire, Reino Unido). Base de Agar Microinstant Listeria (LAB), suplemento de enriquecimiento de Listeria Ottaviani & Agosti y suplemento selectivo de Listeria (Scharlau S.L., Sentmenat, España). Reactivo Folin-Ciocalteu, quercetina, dinitrofenilhidrazina, ácido 2,2'-azino-bis(3-etilbenzotiazolina-6-sulfónico) (ABTS), ácido 6-hidroxi-2,5,7,8-tetrametilcroman-2-carboxílico (Trolox), ácido tiobarbitúrico, xantina, xantina oxidasa (10110434001), 2,2'-azobis(2-

amidopropano) dihidrocloruro (ABAP), N-acetil-D-glucosamina (NAG), sal sódica de ácido hialurónico de *Streptococcus equi* (53747), albúmina de suero bovino, hialuronidasa de testículos bovinos tipo IV-S (1400 U/ml, H3884) (Sigma-Aldrich, parte de Merck, Steinheim, Nordrhein-Westfalen, Alemania). El agua se desionizó utilizando un sistema de purificación Milli-Q (Millipore, parte de Merck, Bedford, MA, EE. UU.). Las absorbancias se midieron con un espectrofotómetro UV-visible 400Bio (Varían, Mulgrave, Vic., Australia). Las mediciones de fluorescencia se realizaron con un lector de microplacas Varioskan LUX (Thermo Fisher).

2.2. Muestras

Se utilizaron tres mieles de brechina [*Calluna vulgaris* (L.) Hull] (LH), denominadas como LH1, LH2 y LH3, y sus correspondientes polvos (LHP) denominados como LHP1, LHP2 y LHP3. Los orígenes botánicos de las mieles se determinaron tanto por melisopalinología (Louveau et al., 1978; Terradillos et al., 1994; Von der Ohe et al., 2004) como por análisis sensorial (Marcazzan et al., 2018; Persano Oddo & Piro, 2004; Piana et al., 2004). LH1 y LH2 eran mieles de brezo, en las que la frecuencia relativa de la suma de pólenes de brezos (*Erica* spp.) y brechina era superior al 45%, siendo la frecuencia relativa del polen de brechina superior al 20%. Sin embargo, la frecuencia relativa de la suma de los pólenes de brezo y brechina en LH3 no alcanzó el 45%, siendo la frecuencia relativa del polen de brechina superior al 15%. El polen de *Calluna vulgaris* (L.) Hull puede estar infrarrepresentado en las mieles de esta especie (Von der Ohe et al., 2004), por lo que las muestras con una frecuencia relativa del 10% de polen de brechina pueden ser mieles monoflorales si sus atributos físico-químicos y sensoriales corresponden con los de este tipo de miel. Las tres muestras (LH1, LH2 y LH3) tenían propiedades sensoriales notables de las mieles de brechina, como un tono rojizo oscuro, un sabor floral cálido y amaderado, un amargor medio y una persistencia larga en el retrogusto (Persano Oddo & Piro, 2004), entre otras, por lo que todas ellas podrían comercializarse como mieles monoflorales de brechina. Los polvos (27 muestras) se obtuvieron con tres métodos de secado: secado por atomización (SP), secado a vacío (VC) y liofilización (FZ), utilizando para cada procedimiento tres coadyuvantes diferentes: goma arábica (AG), aislado de proteína de lactosuero (WH) y maltodextrina (MD). Todos los procedimientos de secado se describieron en detalle en un artículo anterior (Osés et al., 2021), así como en el archivo suplementario (S1).

2.3. Análisis de propiedades biológicas

En LH y LHP, se determinaron por triplicado los fenoles totales, los flavonoides, la actividad antioxidante frente a cuatro radicales, la actividad anti-inflamatoria y la actividad antimicrobiana frente a *Staphylococcus aureus*, *Listeria monocytogenes* y *Escherichia coli*.

2.3.1. Extractos fenólicos

Los compuestos fenólicos de las muestras de LH (5,00 g) y LHP (2,00 g) disueltos en 20 ml de agua destilada acidificada (pH = 2, con HCl), se extrajeron por extracción en fase sólida (SPE) eluyendo con 5 ml de metanol (Sancho et al., 2016), utilizando columnas SPE Strata-X PRO (200 mg/6 ml; Phenomenex, Torrance, CA, USA) y un colector de vacío (Phenomenex). Los extractos se mantuvieron congelados (– 30 °C) en frascos de vidrio ámbar hasta su análisis.

2.3.2. Contenido de fenoles totales (TPC)

El contenido de fenoles totales (TPC) se determinó en LH, LHP y sus correspondientes extractos metanólicos (Meda et al., 2005). Las muestras de miel (10,0 g/100 ml de agua destilada) y polvos (0,5 g en 5 ml de agua destilada) se filtraron a través de un filtro Whatman nº 40. Las muestras (100 µl de LH y LHP disueltos o 100 µl de extractos metanólicos) se mezclaron con 500 µl de reactivo de Folin-Ciocalteu 0,2 mol/l. Después de 5 minutos, se añadieron 400 µl de NaCO₃ (75 g/l) y las muestras se incubaron durante 2 horas a temperatura ambiente. La absorbancia se midió a 760 nm, utilizando ácido gálico (GA) como estándar para la curva de calibrado (5 – 500 mg/L). Los resultados se expresaron como mg de GA/100 g de miel o 100 g de miel en polvo (m.s.).

2.3.3. Flavonoides totales

Las determinaciones de flavonoides en LH y LHP se realizaron en extractos metanólicos. Se determinaron dos tipos de flavonoides: flavonas/flavonoles y flavanoles.

El contenido de flavonas/flavonoles se analizó mediante la reacción de estos flavonoides con AlCl₃ en medio neutro (Meda et al., 2005). 500 µl de extractos metanólicos se mezclaron con 500 µl de AlCl₃ (2% en metanol). Después de 10 minutos, se leyó la absorbancia a 415 nm, utilizando quercetina (Q) como patrón para la curva de calibración (1 – 200 µg/ml). Para cada muestra se

necesitó una corrección de color, reemplazando AlCl_3 por metanol. Los resultados se expresaron como mg de Q/100 g de miel o 100 g de miel en polvo (m.s.).

Los flavanoles se analizaron mediante la reacción con AlCl_3 en medio alcalino (Pękal & Pyrzynska, 2014). 500 μl de extractos metanólicos se mezclaron con 150 μl de NaNO_2 (5 g/100 ml). Después de 5 minutos, se añadieron 250 μl de AlCl_3 (2 g/100 ml en metanol) y se mezclaron. Después de 6 minutos, se añadieron 250 μl de NaOH 1 mol/l. Tras 10 minutos a temperatura ambiente, se leyó la absorbancia a 510 nm, utilizando catequina (Ct) como patrón para la curva de calibración (1 – 100 $\mu\text{g/ml}$). Los resultados se expresaron como mg de Ct/100 g de miel o 100 g de miel en polvo (m.s.).

2.3.4. Actividades antioxidantes

Capacidad antioxidante frente al radical $\text{ABTS}^{\bullet\bullet}$: La capacidad antioxidante equivalente a Trolox (TEAC) de LH (0,5 g en 1 ml de agua) y LHP (0,1 g en 1 ml de agua) se evaluó siguiendo los pasos detallados en el artículo de Osés et al. (2020), basado en el método de Re et al. (1999) modificado por Sancho et al. (2016). La capacidad secuestrante de $\text{ABTS}^{\bullet\bullet}$ por la muestra se midió espectrofotométricamente a 734 nm, utilizando Trolox (T) como patrón para la curva de calibración (0,625 – 3 mmol/l). Los resultados se expresaron como μmol de T/100 g de miel o 100 g de miel en polvo (m.s.).

La concentración de las soluciones acuosas de LH y LHP fue de 0,1 g/ml para la medición de la capacidad de absorción de radicales de oxígeno (ORAC), que determina la actividad antioxidante frente a $\text{ROO}^{\bullet}$. Las capacidades antioxidantes como el efecto secuestrante de radicales frente a $\bullet\text{OH}$ (AOA) y $\text{O}_2^{\bullet-}$ (SRS) se evaluaron en soluciones acuosas al 75% de LH y 75% de LHP. Los procedimientos analíticos de ORAC, AOA y SRS se llevaron a cabo siguiendo los pasos detallados por Osés et al. (2020).

ORAC: se determinó mediante fluorescencia (siendo las longitudes de onda de excitación y emisión 485 nm y 520 nm, respectivamente). Los radicales peroxilo reaccionaron con fluoresceína disódica liberando un producto no fluorescente. Una vez que se añadió las muestras diluidas de LH y LHP, la fluorescencia se midió siguiendo el procedimiento de Osés et al. (2020).

A 187 μl de muestra diluida en el tampón (75 mmol/l de fosfato de sodio, pH 7,4), o a 187 μl de tampón (75 mmol/l de fosfato de sodio, pH 7,4) o a una mezcla de 181 μl de tamón (75 mmol/l de fosfato de sodio, pH 7,4) y 6 μl de

soluciones de T 0,2 $\mu\text{mol/L}$, se le añadió 3 μl de fluoresceína disódica 4,1 $\mu\text{mol/L}$ en una placa blanca de 96 pocillos (Greiner Bio-one, San Sebastián de los Reyes, Madrid, España), manteniendo la placa a 37 °C durante 5 minutos. Luego, se añadió 10 μl de ABAP 0,37 mol/l a la mezcla y se midió a 37 °C cada 5 minutos durante 90 minutos. Los resultados se expresaron como $\mu\text{mol T/g}$ de miel o g de miel en polvo (m.s.) usando la siguiente ecuación:

$$\text{ORAC } (\mu\text{mol T/g}) = [(\text{área muestra} - \text{área blanco}) / ((\text{área T} - \text{área blanco}) / \mu\text{mol T})]$$

AOA: se realizó mediante el método de Koracevic et al. (2001), que midió espectrofotométricamente (532 nm) la capacidad de las muestras diluidas (75% LH y 75% LHP) para reaccionar con TBARS (sustancias reactivas al ácido tiobarbitúrico), liberadas de la reacción de $\cdot\text{OH}$ y benzoato. Los $\cdot\text{OH}$ se produjeron mediante una reacción tipo Fenton de H_2O_2 con un complejo Fe-EDTA. Se utilizó ácido úrico (UA) a 1 mmol/l en NaOH (5 mmol/l) como patrón, expresando los resultados como mmol UA/100 g de miel o 100 g de miel en polvo (m.s.).

SRS: el $\text{O}_2^{\cdot-}$ se generó mediante el sistema xantina-xantina oxidasa (Küçük et al., 2007). La capacidad de las muestras diluidas LH y LHP para inhibir el $\text{O}_2^{\cdot-}$ se midió espectrofotométricamente (560 nm), expresando los resultados como % de inhibición = $(A - (M-B)/A) \times 100$, donde A era la absorbancia en el control positivo (en el que el tampón reemplazaba a la muestra), M era la absorbancia de cada reacción de muestra y B era la absorbancia de las muestras en blanco (en las que el tampón reemplazaba a la enzima).

2.3.5. Actividad anti-inflamatoria

La actividad anti-inflamatoria de LH y LHP (75% en agua) se evaluó mediante el ensayo de inhibición de hialuronidasa (Ferrerres et al., 2012), basado en el mecanismo de la reacción de Morgan-Elson con algunas modificaciones descritas por Osés et al. (2020). La actividad de la hialuronidasa se definió como 1 unidad (U) de hialuronidasa que cataliza la liberación de 1 μmol de NAG por minuto bajo condiciones específicas. Las soluciones estándar de NAG (en el rango de 0 a 2 μmol por prueba) se utilizaron como estándar para las curvas de calibración. La absorbancia se midió a 586 nm frente a un blanco, en el cual el tampón reemplazaba a la hialuronidasa. Con el NAG producido por cada reacción enzimática y

utilizando la ecuación de regresión lineal, se calculó el porcentaje de inhibición enzimática como $\% \text{ Inhibición} = (A - B/A) \times 100$, donde A era μmol de NAG en el control positivo (en el cual el tampón reemplazaba a la muestra) y B era μmol de NAG en cada reacción de muestra.

2.3.6. Actividad antimicrobiana

La actividad antimicrobiana de LH y LHP se evaluó mediante el método de microdilución en caldo frente a tres bacterias: *Staphylococcus aureus* CECT 435, *Escherichia coli* CECT 99 y *Listeria monocytogenes* CECT 934 (Colección Española de Cultivos Tipo, Universidad de Valencia, España). Las cepas de referencia se mantuvieron en NB para *St. aureus* y *E. coli*, o en BHI para *L. monocytogenes*, con glicerol (20%) a -80°C . El inóculo bacteriano se preparó en NB o BHI a 37°C durante 24 h. Se utilizó Ringer estéril para preparar las suspensiones celulares a 6 log UFC/ml (determinadas mediante conteo en placa). Se usaron placas de microtitulación estériles de 96 pocillos de fondo redondo de poliestireno (Brand, Wertheim, Alemania).

Para cada muestra, se estudiaron 8 concentraciones diferentes de LH y LHP (70 g/100 ml, 60 g/100 ml, 50 g/100 ml, 40 g/100 ml, 30 g/100 ml, 20 g/100 ml, 10 g/100 ml y 5 g/100 ml). Cada muestra, a cada concentración, se disolvió en el caldo correspondiente para cada bacteria. Luego, se inocularon 20 μl del microorganismo correspondiente (6 log UFC/ml) en un volumen final de 200 μl , obteniendo una concentración final de microorganismo de 5 log UFC/ml (verificada mediante conteo en placa). Las placas de 96 pocillos se incubaron a 37°C durante 24 h. Tras la incubación, se observó turbidez debido al precipitado producido por el crecimiento del microorganismo. La concentración mínima inhibitoria (CMI) se describió como la mínima concentración de LH o LHP en la que no se observó crecimiento bacteriano en la placa. Finalmente, se incubaron 10 μl de cada placa de fondo redondo a 37°C durante 24 h en placas con agar específico para cada microorganismo (BP para *St. aureus*, LAB para *L. monocytogenes* y TBX para *E. coli*), determinando así la concentración mínima bactericida (CMB), descrita como la mínima concentración de LH o LHP en la que no se observó crecimiento de la bacteria en la placa.

2.4. Análisis estadístico

Se utilizó el análisis de varianza de un factor (ANOVA) y el ANOVA multifactorial, seguidos por la prueba de diferencia significativa de Tukey (p

< 0,05). Se evaluaron correlaciones de Pearson, análisis de componentes principales (PCA) y análisis de conglomerados (método del vecino más lejano y distancia euclídea al cuadrado). Se empleó el software estadístico Statgraphics Centurion XVIII (Statgraphics Technologies, Inc., The Plains, VA, EE.UU.).

3. Resultados y discusión

Todos los datos, excepto el % de inhibición (SRS y actividad anti-inflamatoria) y la MBC, se expresaron en materia seca (m.s.) para una comparación adecuada de los resultados de LH y LHP.

3.1. Fenoles, flavonoides y propiedades biológicas de las mieles de brechina

La Tabla 1 muestra los promedios y las desviaciones estándar de los resultados correspondientes a LH. El TPC varió entre 81 y 272 mg GA/100 g m.s. El TPC de los extractos metanólicos fue bastante menor (11-22,3 mg AG/100 g m.s.). Estos valores coincidieron con los resultados obtenidos por otros autores, que oscilaron entre 110 y 195 mg GA/100 g en mieles de brezo y entre 15,6 y 60,3 mg GA/100 g en extractos (Kaygusuz et al., 2016; Sancho et al., 2016; Starowicz et al., 2021). Como era de esperar, en los extractos metanólicos se obtuvieron valores menores de TPC, ya que el reactivo de Folin-Ciocalteu también cuantifica otros compuestos reductores, como los azúcares (Petretto et al., 2015) que están presentes en las muestras crudas, pero no en sus extractos metanólicos.

Las flavonas y los flavonoles oscilaron entre 0,71 y 1,669 mg Q/100 g de materia seca (m.s.), siendo estos valores inferiores a los obtenidos por otros investigadores en mieles de brezo, que varían entre 2,4 y 21 mg Q/100 g (Aazza et al., 2013; Kivima et al., 2021; Rodríguez-Flores et al., 2019). Los flavanoles oscilaron entre 2,08 y 4,42 mg Ct/100 g m.s.

Los valores de TEAC, ORAC, AOA y SRS obtenidos en las muestras de LH revelaron que los resultados de TEAC (20–825 $\mu\text{mol T}/100\text{ g m.s.}$) y AOA (<0,15 mmol UA/100 g m.s.) fueron similares a los obtenidos por otros investigadores (Gorjanović et al., 2013; Osés et al., 2016) en diferentes mieles. Sin embargo, en este trabajo se obtuvieron valores de ORAC más altos que los obtenidos en otros estudios, con resultados de 22,6 $\mu\text{mol T/g m.s.}$ para mieles de brezo (Aazza et al., 2013). En cuanto a SRS, LH (750 mg/ml) mostró una inhibición de $\text{O}_2^{\bullet-}$ entre el 25% y el 78%. En otro estudio realizado en

mieles de castaño, rododendro y multiflorales, el IC₅₀ osciló entre 5,2 y 7,6 mg/ml (Küçük et al., 2007).

Tabla 1. Promedios y desviaciones estándar (n=3) de los fenoles totales, flavonoides, actividad antioxidante frente a los radicales ABTS^{•+}, ROO[•], O₂^{•-} y [•]OH, actividad anti-inflamatoria y antimicrobiana frente a *St. aureus*, *L. monocytogenes* y *E. coli* de las mieles de brechina (LH1, LH2 y LH3) utilizadas para hacer la miel en polvo. Todos los resultados se expresan en materia seca.

	LH1	LH2	LH3
Fenoles totales (mg GA/100 g)	272 ± 15 ^a	169 ± 1 ^b	81 ± 3 ^c
Fenoles totales en extracto metanólico (mg GA/100 g)	22,3 ± 0,4 ^a	21,4 ± 0,1 ^b	11,0 ± 0,4 ^c
Flavonas/flavonoles totales (mg Q/100 g)	1,50 ± 0,03 ^b	1,69 ± 0,05 ^a	0,71 ± 0,01 ^c
Flavonoles totales (mg Ct/100 g)	4,24 ± 0,19 ^a	4,42 ± 0,05 ^a	2,08 ± 0,06 ^b
TEAC (ABTS^{•+}) (μmol T/100 g)	240 ± 23 ^b	449 ± 21 ^a	123 ± 2 ^c
ORAC (ROO[•]) (μmol T/g)	37,0 ± 4,6 ^b	44,0 ± 1,1 ^a	36,3 ± 1,4 ^b
AOA ([•]OH) (mmol UA/100 g)	0,047 ± 0,010 ^a	0,049 ± 0,008 ^a	0,052 ± 0,012 ^a
SRS (O₂^{•-}) (% inh)	53 ± 1 ^b	78 ± 1 ^a	25 ± 2 ^c
Actividad anti-inflamatoria (% inh)	54,2 ± 0,3 ^a	46,6 ± 0,7 ^c	53,0 ± 0,3 ^b
MBC <i>St. aureus</i>	40 ± 0 ^a	5 ± 0 ^b	<5 ± 0 ^b
MBC <i>L. monocytogenes</i>	20 ± 0 ^a	10 ± 0 ^b	20 ± 0 ^a
MBC <i>E. coli</i>	40 ± 0 ^a	20 ± 0 ^b	20 ± 0 ^b

inh = inhibición; las letras minúsculas diferentes (a-c) indican diferencias significativas (p < 0,05) entre las mieles.

La actividad anti-inflamatoria de las muestras de LH osciló entre 46,6 y 54,2% siendo alrededor de 0,75 g/ml (75%) el IC₅₀. Los resultados para esta actividad fueron similares a las capacidades descritas por Osés et al., (2016) y Osés et al., (2020) para otras mieles de ericáceas españolas, pero inferiores a los datos de Kolayli et al., (2016) obtenidos en mieles de brezo turcas (0,17-0,22 g/ml).

Las tres muestras de LH mostraron actividad antimicrobiana frente a los tres patógenos estudiados. MBC varió entre < 5% y 40%. *St. aureus* fue el microorganismo más sensible y *E. coli* el más resistente. Para mieles de brezo, otros investigadores obtuvieron MBC que oscilan entre 4,7 y 37,5% frente a *St. aureus* (Osés et al., 2016; Salonen et al., 2017).

3.2. Mieles en polvo

3.2.1. Fenoles y flavonoides totales

Tanto WH como WH-LHP mostraron claramente el mayor TPC (Fig. 1A). WH incrementó los valores obtenidos para las muestras LH

correspondientes entre 300 y 1300%. Los valores muy altos de TPC obtenidos para WH-LHP probablemente se debieron al alto contenido de proteínas de WH (> 90%) que también reaccionaron con el reactivo de Folin-Ciocalteu (Singleton et al., 1999). AG-LHP y MD-LHP exhibieron retenciones entre el 39% y el 106% en comparación con las mieles LH crudas. En comparación con MD-LHP, AG-LHP mostró un TPC más alto mediante SP y VC. Con respecto a FZ, no se encontraron diferencias significativas entre el TPC de FZ-AG-LHP y FZ-MD-LHP, probablemente debido a la cantidad de miel en las muestras de polvo, que fue alrededor del 75% en todas las FZ-LHP. En cambio, el contenido de miel en SP-AG-LHP fue alrededor del 60%, en VC-AG-LHP fue alrededor del 75%, en SP-MD-LHP fue alrededor del 50% y en VC-MD-LHP fue alrededor del 60%. Con respecto a la técnica de deshidratación, en general VC-LHP mostró el mayor TPC, probablemente debido a los compuestos de la reacción de Maillard formados durante el procedimiento de deshidratación a 60 °C/72 h. Por lo tanto, el procedimiento de secado, el coadyuvante utilizado y su interacción influyeron significativamente en el TPC (Tabla 2).

Para eliminar la interferencia de azúcares (provenientes de la miel) y proteínas (principalmente de WH) en el análisis de TPC, se realizaron mediciones de este parámetro en extractos metanólicos (Fig. 1B). Como era de esperar, los resultados de TPC fueron más bajos en los extractos de los polvos que en los de LHP. A diferencia de los procedimientos de secado, los coadyuvantes estudiados y su interacción con los procedimientos de secado no mostraron influencia en el TPC (Tabla 2).

Los extractos de LHP obtenidos de LH3 exhibieron los valores más bajos (5 – 16 mg GA/100 g m.s.), mientras que los extractos obtenidos de LH1 mostraron los resultados más altos (22 – 37 mg GA/100 g m.s.), los cuales estaban en consonancia con los datos de LH. Valores similares (28,6 mg GA/100 g) fueron obtenidos por Samborska et al. (2020) para polvos de miel SP obtenidos con MD al 50%, mientras que Suhag & Nanda (2016) y Tomczyk et al. (2020) obtuvieron TPC más altos (29,6 – 51,1 mg GA/100 g) en polvos SP con AG, WH o MD.

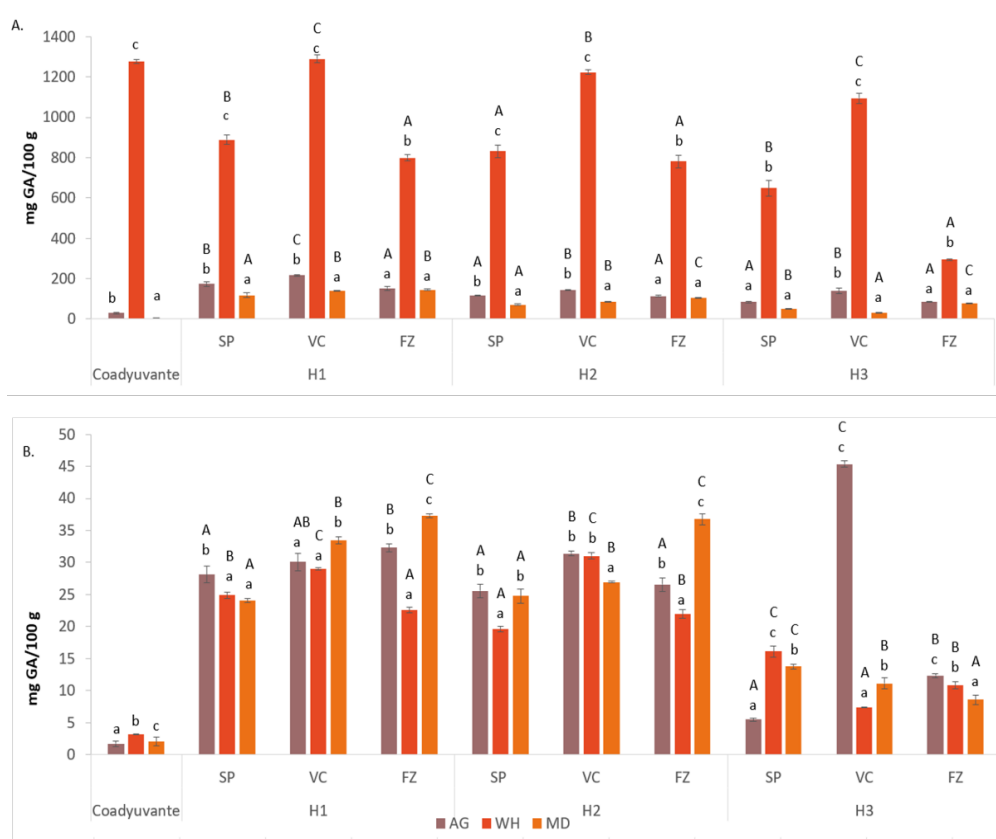


Fig. 1. Fenoles totales (mg de GA/100 g (m.s.)) de los coadyuvantes y mieles en polvo (A) y sus extractos metanólicos (B) obtenidos mediante secado por atomización (SP), vacío (VC) y liofilización (FZ), usando goma arábiga (AG), aislado de proteína de suero (WH) y maltodextrina (MD) (n = 3). Las barras de error representan la desviación estándar para cada punto de datos. Las letras mayúsculas diferentes (A–C) indican diferencias significativas ($p < 0,05$) entre los procedimientos de secado para cada miel y coadyuvante. Las letras minúsculas diferentes (a–c) indican diferencias significativas ($p < 0,05$) entre los coadyuvantes para cada miel y procedimiento de secado.

Estas ligeras diferencias podrían deberse al uso de diferentes tipos de miel, pero también a diferentes procedimientos de extracción de fenoles utilizados por cada equipo de investigación. Se obtuvieron TPC más altos por otros autores (Suhag et al., 2016), añadiendo extractos de aonla o grosella de la India (*Embllica officinalis. Gaertn*) y albahaca a los polvos de miel (60 – 62 mg GA/100 g); o usando leche desnatada en polvo (Samborska et al., 2020) como coadyuvante (50 – 70 mg GA/100 g). El TPC de los polvos mostró una retención entre el 50% y el 172% en comparación con las mieles crudas, y solo tres LHP estuvieron por debajo del 90% de retención. Los resultados de LHP fueron más altos que los obtenidos por Jedlińska et al. (2021) en polvos de miel SP usando Nutriose como coadyuvante en una proporción de 1:1

(retención del 41 – 59% en polvos SP, y 80 – 91% usando aire deshumidificado SP), probablemente debido al uso de diferentes concentraciones de miel, diferentes coadyuvantes y diferentes métodos para la extracción de fenoles. Por lo tanto, independientemente del método de secado, todos los LHP retuvieron los TPC y ninguno de los procedimientos de secado utilizados deterioró los compuestos fenólicos de la miel. Por el contrario, otros investigadores observaron un TPC más bajo en mieles deshidratadas por SP a alta temperatura (Suhag et al., 2016).

Tabla 2. Efecto de la interacción (ANOVA multifactorial) entre los métodos de secado y los coadyuvantes en los compuestos fenólicos, flavonoides, actividades antioxidantes, anti-inflamatoria y antimicrobiana.

Fuente	TPC	TPC _{ex}	Flavon.	Flavan.	ABTS ^{•+}	ROO [•]	•OH	O2 ^{•-}	Anti-infl.	<i>St. aureus</i>	<i>L. mono</i>	<i>E. coli</i>
A: Secado	***	*	NS	*	***	*	***	***	NS	NS	NS	*
B: coadyuvante	***	NS	NS	*	***	***	***	***	***	**	NS	NS
Interacción: AB	***	NS	NS	NS	***	NS	***	*	*	NS	***	*

TPC: Contenido de fenoles totales; TPC_{ex}: Contenido de fenoles en extractos metanólicos; Flavon.: Flavona/Flavonol; Flavan: Flavanoles. Anti-infl.: Anti-inflamatorio; L. mono: *L. monocytogenes*.

* p-valor <0,05; ** p-valor <0,01; *** p-valor < 0,001; NS: no significativo

El contenido total de flavanoles en LHP varió de 0,38 a 36,3 mg Ct/100 g m.s. El contenido total de flavonas/flavonoles osciló entre 0 y 3,6 mg Q/100 g m.s. (Fig. 2). Estos resultados fueron superiores a los obtenidos para las mieles crudas. Aunque todos los coadyuvantes parecían de alguna manera contribuir o influir en los análisis de flavonoides, en cuanto a flavonoles, los resultados no estaban relacionados ni con el método de secado ni con el tipo de coadyuvante. En cuanto a los flavanoles, los resultados fueron ligeramente influenciados por ambos factores, pero no por su interacción (Tabla 2). Los resultados obtenidos confirmaron que la cantidad total de diferentes flavonoides en las mieles se retuvo completamente en las mieles en polvo correspondientes.

3.2.2. Actividad antioxidante

La Fig. 3 muestra la actividad antioxidante de todos los coadyuvantes y LHP contra los cuatro radicales estudiados. La actividad antioxidante de las mieles en polvo no ha sido extensamente estudiada hasta ahora. Solo cuatro investigadores determinaron la capacidad TEAC contra el radical ABTS^{•+} (Barańska et al., 2021; Mutlu & Erbas, 2021; Rivero et al., 2021; Samborska et al., 2020), sin que haya estudios sobre radicales peróxido, hidroxilo y superóxido. En este estudio, TEAC (Fig. 3A) varió entre 201 y 754 µmol T/100

g m.s. para AG-LHP y MD-LHP, y entre 646 y 2518 $\mu\text{mol T}/100\text{ g m.s.}$ para WH-LHP. El TEAC de LHP fue mayor que el de LH. LHP3 mostró el TEAC más bajo, al igual que su miel correspondiente (LH3).

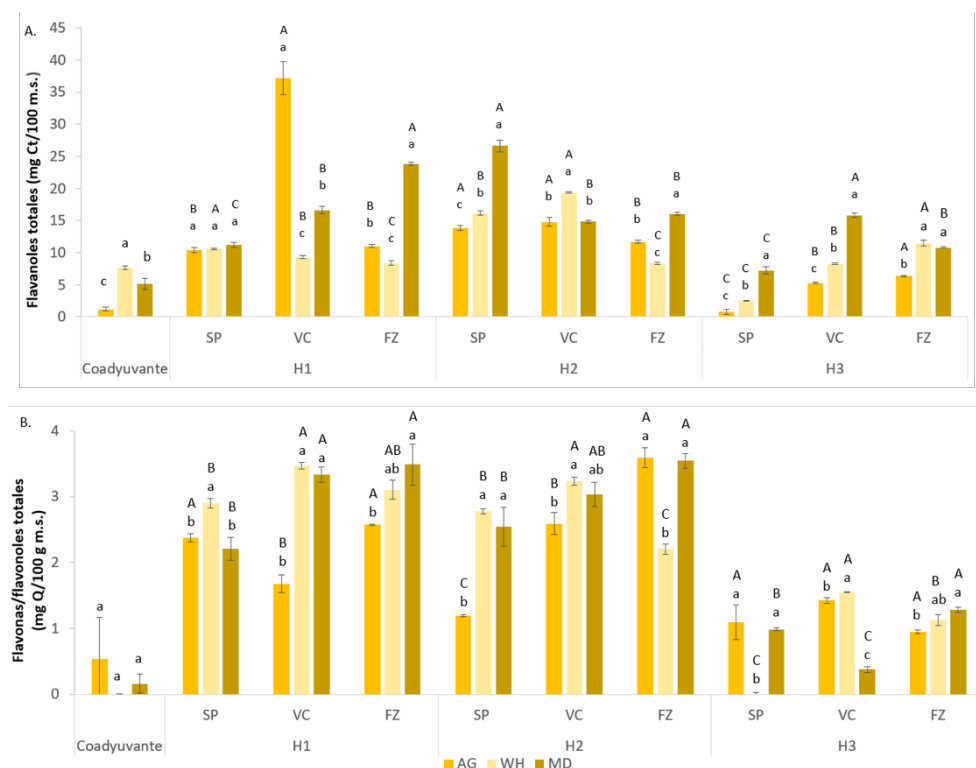


Fig. 2. Flavonoles totales (mg de Ct/100 g (m.s.)) y flavonas/flavonoles totales (mg de Q/100 g (m.s.)) de coadyuvantes y mieles en polvo obtenidas mediante secado por atomización (SP), vacío (VC) y liofilización (FZ), utilizando goma arábica (AG), aislado de proteína de suero (WH) y maltodextrina (MD) (n = 3). Las barras de error representan la desviación estándar para cada punto de datos. Las letras mayúsculas diferentes (A–C) indican diferencias significativas (p < 0,05) entre los procedimientos de secado para cada miel y coadyuvante. Las letras minúsculas diferentes (a–c) indican diferencias significativas (p < 0,05) entre los coadyuvantes para cada miel y procedimiento de secado.

Todos los coadyuvantes exhibieron altos resultados de TEAC, siendo en parte responsables de las capacidades anti-ABTS^{•+} de LHP (Tabla 2). WH-LHP presentó los valores de TEAC más altos, lo que podría atribuirse a la actividad antioxidante de WH, debido a sus aminoácidos hidrofóbicos y aromáticos que pueden estabilizar radicales deficientes en electrones al donar protones (Arranz et al., 2019). Mutlu & Erbas (2021) describieron resultados similares en miel en polvo obtenida por VC y SP, con valores de TEAC de 251 $\mu\text{mol T}/100\text{ g}$ en polvos que contienen MD, 787 $\mu\text{mol T}/100\text{ g}$ en polvos que contienen AG y 3017 $\mu\text{mol T}/100\text{ g}$ en polvos que contienen WH. Nuestros resultados también fueron comparables a los de Samborska

et al. (2020), con un TEAC de 726 mg T/kg (= 290 $\mu\text{mol T}/100\text{ g sólidos}$) en una miel en polvo obtenida por SP utilizando MD, y valores de 1080 a 1245 mg T/kg (= 431 – 497 $\mu\text{mol T}/100\text{ g sólidos}$) en mieles en polvo utilizando leche desnatada como coadyuvante. En mieles en polvo obtenidas por FZ utilizando diferentes proporciones de WH y AG, Rivero et al. (2021) describieron valores de TEAC que variaban de 5 a 10 mmol T/100 g, observando también mayores actividades antioxidantes en las mieles en polvo que en las mieles crudas correspondientes (0,7 – 2,3 mmol T/100 g). Estos investigadores concluyeron que el TEAC estaba mayormente relacionado con el tipo de miel y su origen, no viéndose afectado en gran medida por la proporción de coadyuvante. En general, con respecto a la técnica de deshidratación, VC-LHP proporcionó el TEAC más alto, probablemente debido a los compuestos de Maillard que podrían contribuir a aumentar las actividades antioxidantes frente a ABTS^{•+} (Suhag & Nanda, 2017). Mutlu & Erbas (2021) también describieron valores de TEAC más altos para mieles deshidratadas por secado a vacío, en comparación con los polvos de miel obtenidos por otros métodos. Los resultados de TEAC mostraron estar altamente influenciados por la interacción entre los coadyuvantes y los procedimientos de secado (Tabla 2).

ORAC varió entre 197 y 333 $\mu\text{mol T/g m.s.}$ para WH-LHP, de 2,5 a 69,2 $\mu\text{mol T/g m.s.}$ para AG-LHP y de 13,4 a 55,9 $\mu\text{mol T/g m.s.}$ para MD-LHP, obteniendo una actividad de ORAC en el siguiente orden decreciente WH > AG > MD (Fig. 3B). Este orden podría estar relacionado con la composición del coadyuvante, así como con la concentración de miel, ya que las muestras de SP-WH-LHP y VC-WH-LHP tenían concentraciones de miel más altas (75%) que SP-MD-LHP (50% miel) y VC-MD-LHP (60% miel). Un valor de ORAC de 23000 $\mu\text{mol T}/100\text{ g}$ fue obtenido para WH (Adjonu et al., 2013).

AOA mostró una enorme variabilidad entre las muestras e incluso para la misma muestra (Fig. 3C). Los resultados de AOA variaron entre 0 y 0,168 mmol UA/100 g m.s., siendo en casi todos los LHP más altos que en los LH (Tabla 1). AOA parecía estar muy influenciado por el coadyuvante (Tabla 2), ya que MD exhibió los valores más altos, seguido de AG y luego de WH. Contrariamente a lo que ocurrió con otras capacidades antioxidantes, WH no mostró los resultados más altos de AOA, destacando la importancia de usar varios métodos contra diferentes radicales libres para determinar la actividad antioxidante, ya que ningún método único es capaz de evaluar adecuadamente todas las capacidades antioxidantes. En general, en lo que

respecta a la técnica de deshidratación, SP-LHP mostró los valores más altos de AOA, lo que significa que la técnica de secado también influyó en esta actividad, al igual que la interacción entre los coadyuvantes y los procedimientos de secado (Tabla 2).

LHP mostró un SRS entre el 11% y el 88%, presentando LHP2 la mayor inhibición de radicales (Fig. 3D), coincidiendo con el resultado de LH2 (Tabla 1). WH exhibió una inhibición del 94%, obteniendo WH-LHP el mayor porcentaje de inhibición. En cuanto a la técnica de secado, SP-LHP mostró la menor inhibición y VC-LHP la mayor. Otros autores evaluaron la actividad antioxidante de los polvos de miel contra otros radicales libres, como DPPH o FRAP (Jedlińska et al., 2021; Suhag et al., 2021; Suhag & Nanda, 2016; Tomczyk et al., 2020), concluyendo que cuando se utilizaba SP, a mayor temperatura de entrada, menor era la actividad antioxidante, ya que a altas temperaturas los fenoles, que son principalmente responsables de la capacidad antioxidante, se oxidaban y se degradaban fácilmente. Estos investigadores también afirmaron que WH promovía un aumento de la actividad antioxidante debido a sus mayores propiedades como encapsulante.

Los valores más bajos de fenoles totales, flavonoides, TEAC y SRS obtenidos para la muestra LH3 y sus polvos correspondientes podrían deberse a la menor pureza en brezo de LH3 en comparación con LH1 y LH2, aunque todas las muestras eran mieles monoflorales de brezo.

3.2.3. Actividad anti-inflamatoria

La Fig. 4 muestra la actividad anti-inflamatoria de los coadyuvantes y los LHP. Aunque los coadyuvantes no exhibieron ninguna actividad anti-inflamatoria en el ensayo de inhibición de hialuronidasa, el uso de diferentes coadyuvantes pareció afectar la retención de esta actividad de la miel, sin haber una relación con el procedimiento de secado ni con el porcentaje de miel en el polvo. Los AG-LHP mostraron el mayor porcentaje de inhibición, lo que significa que hubo una retención completa de las actividades anti-inflamatorias de las mieles crudas (91 - 137%).

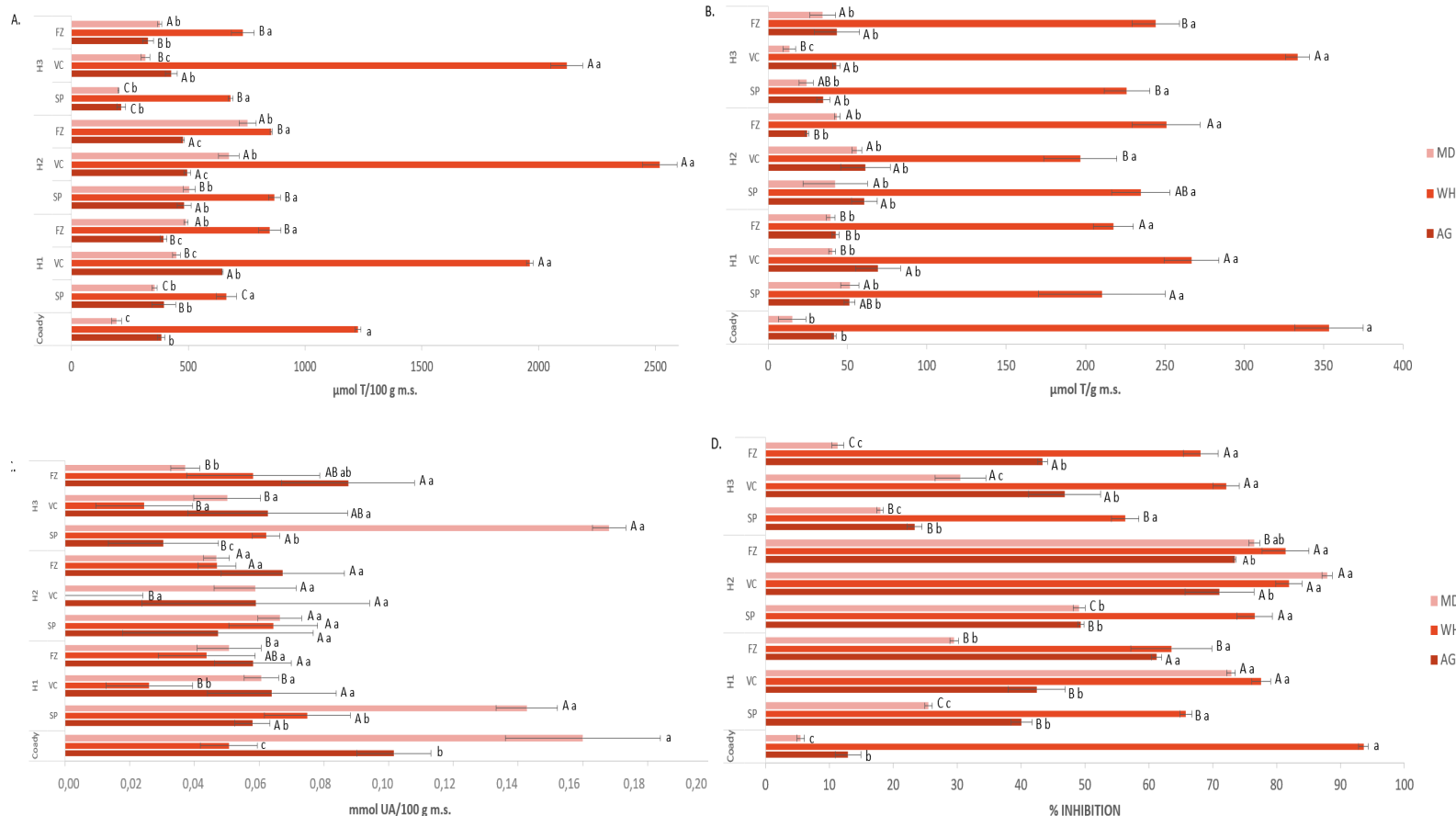


Fig. 3. Actividad antioxidante de los coadyuvantes (Carr) y polvos de miel obtenidos mediante secado por atomización (SP), vacío (VC) y liofilización (FZ), utilizando goma arábiga (AG), aislado de proteína de suero (WH) y maltodextrina (MD) frente a diferentes radicales (ABTS•⁺ (A), ROO• (B), •OH (C) y O₂•⁻ (D)). Las barras de error representan la desviación estándar para cada punto de datos. Las letras mayúsculas diferentes (A–C) indican diferencias significativas ($p < 0,05$) entre los procedimientos de secado para cada miel y coadyuvante. Las letras minúsculas diferentes (a–c) indican diferencias significativas ($p < 0,05$) entre los coadyuvantes para cada miel y procedimiento de secado ($n = 3$).

Sin embargo, en comparación con las actividades anti-inflamatorias correspondientes de las LH, los MD-LHP retuvieron entre el 77 y el 145% de la actividad anti-inflamatoria, y los WH-LHP solo entre el 6 y el 17% de la actividad anti-inflamatoria. Por lo tanto, los WH mostraron la menor retención de los componentes responsables de esta actividad. En las mieles de madroño, Osés et al. (2020) informaron que la actividad anti-inflamatoria de la miel estaba principalmente relacionada con compuestos no fenólicos, como algunas sustancias volátiles y semivolátiles.

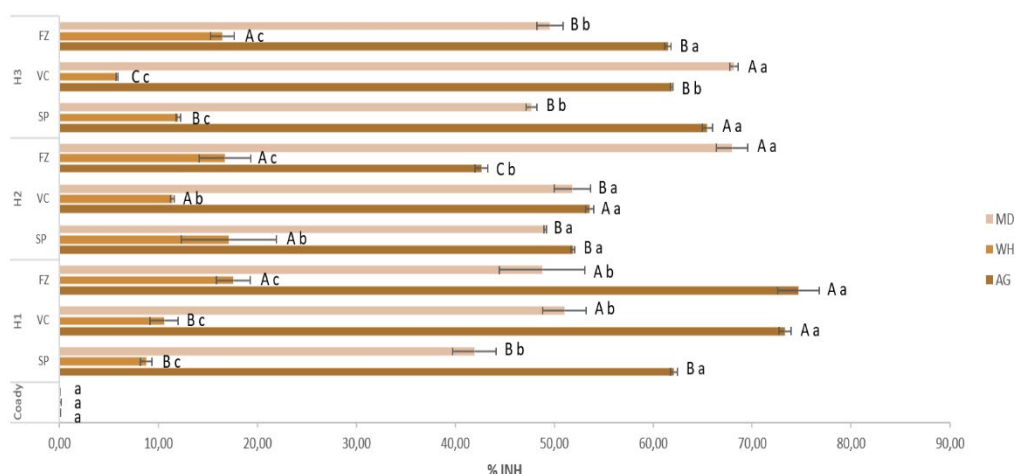


Fig. 4. Actividad anti-inflamatoria de los coadyuvantes y las mieles en polvo obtenidas mediante secado por atomización (SP), vacío (VC) y liofilización (FZ), utilizando goma arábica (AG), aislado de proteína de suero (WH) y maltodextrina (MD). Las barras de error representan la desviación estándar para cada punto de datos. Las letras mayúsculas diferentes (A–C) indican diferencias significativas ($p < 0,05$) entre los procedimientos de secado para cada miel y coadyuvante. Las letras minúsculas diferentes (a–c) indican diferencias significativas ($p < 0,05$) entre coadyuvantes para cada miel y procedimiento de secado ($n = 3$).

3.2.4. Actividad antimicrobiana

La actividad antimicrobiana se evaluó en los coadyuvantes y en los LHP a concentraciones entre el 5% y el 70% utilizando el método de microdilución en caldo (Tabla 3). Los coadyuvantes no mostraron actividad antimicrobiana a esas concentraciones, mientras que los LHP presentaron una MBC entre el 10% y superiores al 70%, que fueron actividades antimicrobianas menores en comparación con sus correspondientes LH. *E. coli* fue el microorganismo más sensible a los LHP, mientras que *L. monocytogenes* fue el más resistente. De manera similar a lo ocurrido con los LH, el LHP1 mostró las actividades antimicrobianas más bajas, siendo estas capacidades similares en LHP2 y

LHP 3. Los WH-LHP y MD-LHP mostraron mayores actividades frente a *St. aureus* que el AG-LHP (Tablas 2 y 3).

En cuanto a los procedimientos de secado, el FZ-LHP mostró mayores actividades antimicrobianas frente a *E. coli* que el SP-LHP y el VC-LHP (Tabla 3), lo cual podría deberse a que durante el SP y VC las muestras se calientan, a diferencia de lo que ocurre con la FZ, que se realiza en frío. La interacción entre los coadyuvantes y los procedimientos de secado influyó en las actividades antimicrobianas contra *L. monocytogenes* y *E. coli* (Tabla 2).

Tomczyk et al. (2020) también evaluaron la actividad antimicrobiana mediante la difusión en agar de miel en polvo obtenida por SP utilizando MD al 50%. Estos investigadores observaron que ninguna de las muestras mostró acción antibacteriana frente a los microorganismos evaluados, lo que podría atribuirse a la pérdida de componentes antioxidantes termolábiles de la miel, al 50% de MD en el producto final o a las concentraciones de polvo evaluadas (12,5 – 50%), que no fueron suficientes para proporcionar actividades antibacterianas.

4. Análisis estadístico

A un nivel de confianza del 95%, los TPC se correlacionaron linealmente con TEAC ($r = 0,8474$), ORAC ($r = 0,9136$) y SRS ($r = 0,617$), mientras que los TPC de los extractos metanólicos se correlacionaron linealmente con los flavanoles ($r = 0,4823$) y las flavonas/flavonoles ($r = 0,7190$). Estos resultados revelan que las actividades antioxidantes están relacionadas con los compuestos fenólicos, así como con otras sustancias no fenólicas, como proteínas o productos de Maillard. Con los resultados de todos los parámetros, se llevó a cabo un PCA. La primera componente explicó un 34,78% de la varianza total observada, mientras que la segunda componente explicó un 22,30% de la varianza total observada (Fig. 5A y B). Los factores que principalmente definen la PC1 son los TPC, las actividades antioxidantes y anti-inflamatorias, mientras que la PC2 se definió principalmente por el TPC de los extractos metanólicos, los flavonoides y las actividades antimicrobianas. Los LHP se podían dividir en dos grupos diferentes. El primer grupo se situaba en el lado derecho del eje e incluye los WH-LHP, que eran las mieles en polvo con mayores componentes reductores, TEAC, ORAC y SRS, y menor actividad anti-inflamatoria. El segundo grupo se situaba en el lado izquierdo del eje y comprendía los AG-LHP y MD-LHP, que eran las mieles en polvo con mayor AOA y actividad anti-inflamatoria.

Tabla 3. Concentración bactericida mínima (MBC) de coadyuvantes y mieles en polvo obtenidas mediante secado por atomización (SP), vacío (VC) y liofilización (FZ), usando goma arábica (AG), suero de leche (WH) y maltodextrina (MD) expresada como % de miel frente a *S. aureus*, *L. monocytogenes* y *E. coli*. Los triplicados muestran MBC idénticas para cada muestra. Diferentes valores de MBC indican diferencias significativas ($p < 0,05$) entre las muestras.

<i>S. aureus</i>										
		LHP1			LHP2			LHP3		
		SP	VC	FZ	SP	VC	FZ	SP	VC	FZ
AG	>70	^A 70 ± 0 _b	^A 70 ± 0 _b	^B 60 ± 0 _b	^A 50 ± 0 _a	^A 50 ± 0 _a	^A 50 ± 0 _a	^A 70 ± 0 _a	^A 60 ± 0 _a	^A 70 ± 0 _a
WH	>70	^A >70 _a	^B 70 ± 0 _b	^A >70 _a	^B 20 ± 0 _c	^A 50 ± 0 _a	^B 20 ± 0 _b	^B 20 ± 0 _b	^A 30 ± 0 _c	^B 20 ± 0 _b
MD	>70	^A >70 _a	^A >70 _a	^A 60 ± 0 _b	^A 30 ± 0 _b	^A 30 ± 0 _b	^B 20 ± 0 _b	^B 20 ± 0 _b	^A 50 ± 0 _b	^C 10 ± 0 _c
<i>L. monocytogenes</i>										
		LHP1			LHP2			LHP3		
		SP	VC	FZ	SP	VC	FZ	SP	VC	FZ
AG	>70	^B 70 ± 0 _b	^B 67 ± 6 _b	^A >70 _a	^B 37 ± 6 _b	^B 37 ± 6 _b	^A >70 _a	^B 70 ± 0 _a	^B 50 ± 0 _b	^B 47 ± 6 _b
WH	>70	^A >70 _a	^A >70 _a	^A >70 _a	^C 20 ± 0 _c	^B 47 ± 6 _b	^A >70 _a	^C 20 ± 0 _c	^A >70 _a	^B 57 ± 6 _a
MD	>70	^A 70 ± 0 _b	^A 70 ± 0 _b	^B 60 ± 0 _b	^A 70 ± 0 _a	^A 70 ± 0 _a	^B 57 ± 6 _b	^B 60 ± 0 _b	^A >70 _a	^C 20 ± 0 _c
<i>E. coli</i>										
		LHP1			LHP2			LHP3		
		SP	VC	FZ	SP	VC	FZ	SP	VC	FZ
AG	>70	^A 50 ± 0 _b	^B 40 ± 0 _b	^B 40 ± 0 _b	^A 40 ± 0 _a	^A 40 ± 0 _a	^B 30 ± 0 _a	^A 50 ± 0 _a	^A 50 ± 0 _a	^B 40 ± 0 _a
WH	>70	^B 50 ± 0 _b	^C 40 ± 0 _b	^A >70 _a	^A 30 ± 0 _b	^A 30 ± 0 _b	^A 27 ± 6 _a	^B 20 ± 0 _c	^A 50 ± 0 _a	^B 20 ± 0 _b
MD	>70	^A 63 ± 6 _a	^B 50 ± 0 _a	^C 30 ± 0 _c	^A 30 ± 0 _b	^A 40 ± 0 _a	^C 20 ± 0 _b	^B 30 ± 0 _b	^A 50 ± 0 _a	^C 20 ± 0 _b

A-C: Letras diferentes indican diferencias significativas ($p < 0,05$) entre los procedimientos de secado para cada miel y coadyuvante. a-c: Letras diferentes indican diferencias significativas ($p < 0,05$) entre los coadyuvantes para cada miel y procedimiento de secado.

El LHP1 se situó en la parte superior, mostrando altos contenidos de flavonoides y la menor actividad antimicrobiana (mayor MBC). Por el contrario, el LHP3 se situó en la parte inferior, exhibiendo el menor contenido de flavonoides y la mayor actividad antimicrobiana.

El PCA no mostró diferencias entre los procedimientos de secado en cuanto a los parámetros estudiados. El análisis de conglomerados también dividió las muestras en dos grupos de manera similar al PCA (Fig. 5C). En el dendrograma se observaron dos conglomerados, el primero con WH-LHP y el segundo con AG-LHP y MD-LHP. Los LHP3 estaban ligeramente separados de las otras muestras en cada conglomerado. Por lo tanto, se puede concluir que la contribución de las especies botánicas y el tipo de coadyuvante influye en las propiedades biológicas de la miel en polvo.

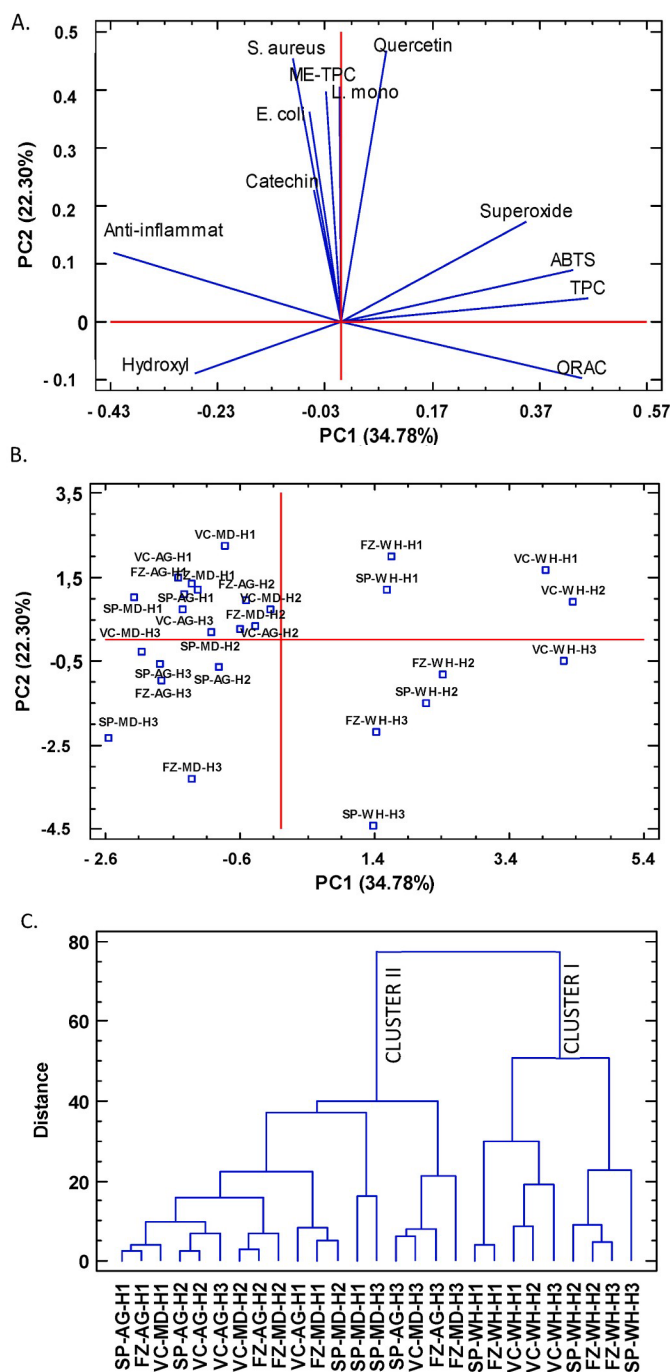


Fig. 5. Diagrama de cargas (A) y diagrama de puntuaciones (B) del Análisis de Componentes Principales. Diagrama de dendrograma derivado del análisis de conglomerados jerárquico (C). ME-TPC: Compuestos fenólicos totales en extractos metanólicos; SP: Secado por atomización; VC: Secado a vacío; FZ: Secado por liofilización; AG: Goma arábica; WH: aislado de proteína de suero; MD: Maltodextrina; H: Miel.

5. Conclusiones

Todos los métodos de secado y coadyuvantes retuvieron los TPC y los flavonoides de las mieles, aunque es necesario un procedimiento normalizado para extraer los compuestos fenólicos de la miel para obtener una comparación más adecuada de los resultados. Las actividades antioxidantes de las mieles en polvo fueron superiores a las de las mieles crudas. WH-LHP mostró los valores más altos de TEAC, ORAC y SRS, mientras que MD-LHP mostró la mayor actividad AOA. Las actividades antioxidantes de LHP dependieron del contenido de miel en el polvo, del coadyuvante utilizado y del procedimiento de secado. La actividad anti-inflamatoria de LH y LHP fue similar cuando se utilizó AG como coadyuvante, y disminuyó si los coadyuvantes eran WH o MD. Las actividades antimicrobianas de LHP fueron inferiores a las de LH, debido al factor de dilución del coadyuvante o a la degradación de compuestos antimicrobianos termolábiles. En general, las propiedades biológicas de las mieles en polvo estuvieron principalmente influenciadas por el tipo de coadyuvante utilizado para la deshidratación, siendo apenas influenciadas por el procedimiento de secado.

Apéndice A. Datos suplementarios

Los datos suplementarios de este artículo se pueden encontrar en línea en <https://doi.org/10.1016/j.lwt.2022.113235>.

Referencias

- Aazza, S., Lyoussi, B., Antunes, D., & Miguel, M. G. (2013). Physicochemical characterization and antioxidant activity of commercial Portuguese honeys. *Journal of Food Science*, 78(8), C1159–C1165. <https://doi.org/10.1111/1750-3841.12201>
- Adjonu, R., Doran, G., Torley, P., & Agboola, S. (2013). Screening of whey protein isolate hydrolysates for their dual functionality: Influence of heat pre-treatment and enzyme specificity. *Food Chemistry*, 136(3–4), 1435–1443.
- Alevia, M., Rasines, S., Cantero, L., Sancho, M. T., Fernández-Muiño, M. A., & Osés, S. M. (2021). Chemical extraction and gastrointestinal digestion of honey: Influence of its antioxidant, antimicrobial and anti-inflammatory activities. *Foods*, 10, 1412. <https://doi.org/10.3390/foods10061412>
- Alvarez-Suárez, J. M., Tulipani, A., Romandini, S., Bertoli, E., & Battino, M. (2010). Contribution of honey in nutrition and human health: A review. *Mediterranean Journal of Nutrition and Metabolism*, 3, 15–23. <https://doi.org/10.1007/s12349-009-0051-6>
- Antony, S., Rieck, J. R., & Dawson, P. L. (2000). Effect of dry honey on oxidation inturket breast meat. *Poultry Science*, 79, 1846–1850.
- Arranz, E., Corrochano, A. R., Shanahan, C., Villalva, M., Jaime, L., Santoyo, S., et al. (2019). Antioxidant activity and characterization of whey protein-based beverages: Effect of shelf life and gastrointestinal transit on bioactivity. *Innovative Food Science & Emerging Technologies*, 57, Article 102209. <https://doi.org/10.1016/j.ifset.2019.102209>
- Baltrušaitytė, V., Venskutonis, P. R., & Čeksterytė, V. (2007). Radical scavenging activity of different floral origin honey and beebread phenolic extracts. *Food Chemistry*, 101, 502–514. <https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2006.02.007>
- Bansal, V., Premi, M., Sharma, H. K., & Nanda, V. (2017). Compositional, physical, functional attributes and flow characterization of spray-dried skim milk poder enriched with honey. *Food Measure*, 11, 1474–1485. <https://doi.org/10.1007/s11694-017-9526-1>
- Barańska, A., Jedlińska, A., & Samborska, K. (2021). Dehumidified-air-assisted spray drying of buckwheat honey with maltodextrin and skim milk powder as carriers. *Applied Sciences*, 11, 3150. <https://doi.org/10.3390/app11073150>
- Bogdanov, S. (2016). Honey in medicine. In S. Bogdanov (Ed.), *Book of honey, bee producto science* (chapter 9). Retrieved from https://www.researchgate.net/publication/304011973_Honey_in_Medicine . (Accessed 5 July 2021).
- Bogdanov, S., Jurendic, T., Sieber, R., & Gallmann, P. (2008). Honey for nutrition and health: A review. *Journal of the American College of Nutrition*, 27, 677–689. <https://doi.org/10.1080/07315724.2008.10719745>
- Chen, L., Mehta, A., Berenbaum, M., Zangerl, A. R., & Engeseth, N. J. (2000). Honey from different floral sources as inhibitors of enzymatic browning in fruit and vegetable homogenates. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 48, 4997–5000. <https://doi.org/10.1021/jf000373j>
- Cui, Z. W., Sun, L. J., Chen, W., & Sun, D. W. (2008). Preparation of dry honey by microwave-vacuum drying. *Journal of Food Engineering*, 84, 582–590. <https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2007.06.027>
- Ferreres, F., Lopes, G., Gil-Izquierdo, A., Andrade, P., Sousa, C., Mouga, T., et al. (2012). Phlorotannin extracts from fucles characterized by HPLC-DAD-ESI-MSn: Approaches to hyaluronidase inhibitory capacity and antioxidant properties. *Marine Drugs*, 10(12), 2766–2781.

- Gorjanović, S.Ž., Alvarez-Suarez, J. M., Novaković, M. M., Pastor, F. T., Pezo, L., Battino, M., et al. (2013). Comparative analysis of antioxidant activity of honey of different floral sources using recently developed polarographic and various spectrophotometric assays. *Journal of Food Composition and Analysis*, 30, 13–18. <https://doi.org/10.1016/j.jfca.2012.12.004>
- Hakim, D. A., Tjahjaningsih, W. T., & Sudarno. (2019). Antibacterial activity of honey in preserving high-pressure cooked milkfish stored at room temperature. *IOP Conference Series: Earth and Environmental Science*, 236, Article 012079. <https://doi.org/10.1088/1755-1315/236/1/012079>
- Jayasundera, M., Adhikari, B., Aldred, P., & Ghandi, A. (2009). Surface modification of spray dried food and emulsion powders with surface-active proteins: A review. *Journal of Food Engineering*, 93, 266–277. <https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2009.01.036>
- Jedlińska, A., Samborska, K., Wieczorek, A., Wiktor, A., Ostrowska-Ligeza, E., Jamróz, W., et al. (2019). The application of dehumidified air in rapeseed and honeydew honey spray drying - process performance and powders properties considerations. *Journal of Food Engineering*, 245, 80–87. <https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2018.10.017>
- Jedlińska, A., Wiktor, A., Witrowa-Rajchert, D., Derewiaka, D., Wołosiak, R., Matwijczuk, A., et al. (2021). Quality assessment of honey powders obtained by high-and low-temperature spray drying. *Applied Sciences*, 11, 224. <https://doi.org/10.3390/app11010224>
- Johnston, J. E., Sepe, H. A., Miano, C. L., Brannan, R. G., & Alderton, A. L. (2005). Honey inhibits lipid oxidation in ready-to-eat ground beef patties. *Meat Science*, 70, 627–631. <https://doi.org/10.1016/j.meatsci.2005.02.011>
- Kaygusuz, H., Tezcan, F., Erim, F. B., Yildiz, O., Sahin, H., Can, Z., et al. (2016). Characterization of Anatolian honeys based on minerals, bioactive components and principal components analysis. *LWT-Food Science and Technology*, 68, 273–279. <https://doi.org/10.1016/j.lwt.2015.12.005>
- Kivima, E., Tanilas, K., Martverk, K., Rosenvald, S., Timbert, L., & Laos, K. (2021). The composition, physicochemical properties, antioxidant activity and sensory properties of Estonian honeys. *Foods*, 10, 511. <https://doi.org/10.3390/foods10030511>
- Kolaylı, S., Sahin, H., Can, Z., Yildiz, O., & Sahin, K. (2016). Honey shows potent inhibitory activity against the bovine testes hyaluronidase. *Journal of Enzyme Inhibition and Medicinal Chemistry*, 31(4), 599–602. <https://doi.org/10.3109/14756366.2015.1054819>
- Koracevic, D., Koracevic, G., Djordjevic, V., Andrejevic, S., & Cosic, V. (2001). Method for the measurement of antioxidant activity in human fluids. *Journal of Clinical Pathology*, 54(5), 356–361.
- Küçük, M., Kolaylı, S., Karaoğlu, S., Ulusoy, E., Baltacı, C., & Candan, F. (2007). Biological activities and chemical composition of three honeys of different types from Anatolia. *Food Chemistry*, 100, 526–534.
- Louveaux, J., Maurizio, A., & Vorwohl, G. (1978). International commission for bee botany of IUBS. *Methods of Melissopalynology*. *Bee World*, 59, 139–157.
- Marcazzan, G. L., Mucignat-Caretta, C., Marchese, C. M., & Piana, M. L. (2018). A review of methods for honey sensory analysis. *Journal of Apicultural Research*, 57, 75–87. <https://doi.org/10.1080/00218839.2017.1357940>
- Meda, A., Lamien, C. E., Romito, M., Millogo, J., & Nacoulma, O. G. (2005). Determination of the total phenolic, flavonoid and proline contents in Burkina Fasan honey, as well as their radical scavenging activity. *Food Chemistry*, 91, 571–577. <https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2004.10.006>

- Molan, P. C. (1992). The antibacterial activity of honey. *Bee World*, 73(2), 59–76. <https://doi.org/10.1080/0005772X.1992.11099118>
- Mutlu, C., & Erbas, M. (2021). Evaluating the effects of different drying methods, Carrier materials and their ratios to produce bioactive honey-like powder. *Journal of Apicultural Research*, 1–10. <https://doi.org/10.1080/00218839.2021.1885877>
- Nurhadi, B., Andoyo, R., Mahani, R., & Indianto, R. (2012). Study the properties of honey powder produced from spray drying and vacuum drying method. *International Food Research Journal*, 19(3), 907–912.
- Osés, S. M., Cantero, L., Crespo, M., Puertas, G., González-Ceballos, L., Vallejos, S., et al. (2021). Attributes of ling-heather honey powder obtained by different methods with several carriers. *LWT-Food Science and Technology*, 150, Article 112063. <https://doi.org/10.1016/j.lwt.2021.112063>
- Osés, S. M., Nieto, S., Rodrigo, S., Pérez, S., Rojo, S., Sancho, M. T., et al. (2020). Authentication of strawberry tree (*Arbutus unedo* L.) honeys from southern Europe based on compositional parameters and biological activities. *Food Bioscience*, 38, Article 100768. <https://doi.org/10.1016/j.fbio.2020.100768>
- Osés, S. M., Pascual-Maté, A., Fernández-Muiño, M. A., López-Díaz, T. M., & Sancho, M. T. (2016). Bioactive properties of honey with propolis. *Food Chemistry*, 196, 1215–1223. <https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2015.10.050>
- Pękal, A., & Pyrzyńska, K. (2014). Evaluation of aluminium complexation reaction for flavonoid content assay. *Food Analytical Methods*, 7, 1776–1782. <https://doi.org/10.1007/s12161-014-9814-x>
- Persano Oddo, L., & Piro, R. (2004). Main European unifloral honeys: Descriptive sheets. *Apidologie*, 35, 38–81. <https://doi.org/10.1051/apido:2004049>
- Petretto, G. L., Cossu, M., & Alamanni, M. C. (2015). Phenolic content, antioxidant and physico-chemical properties of Sardinian monofloral honeys. *International Journal of Food Science and Technology*, 50, 482–491. <https://doi.org/10.1111/ijfs.12652>
- Piana, M. L., Persano Oddo, L., Bentabol, A., Bruneau, E., Bogdanov, S., & Guyot Declerck, C. (2004). Sensory analysis applied to honey: State of the art. *Apidologie*, 35, 26–37. <https://doi.org/10.1051/apido:2004048>
- Półtorak, A., Marcinkowska-Lesiak, M., Lendzion, K., Moczowska, M., Onopiuk, A., Wojtasik-Kalinowska, I., et al. (2018). Evaluation of the antioxidant, antiinflammatory and antimicrobial effects of catuaba, galangal, roseroot, maca root, guarana and polyfloral honey in sausages during storage. *LWT-Food Science and Technology*, 96, 364–370. <https://doi.org/10.1016/j.lwt.2018.05.035>
- Ram, K. A. (2011). Production of spray-dried honey powder and its application in bread. PhD Thesis to the graduate Faculty of the Louisiana State University and Agricultural and Mechanical College of the degree of Master of Science. Department of Food Science Vellore Institute of Technology. Retrieved from: https://digitalcommons.lsu.edu/gradschool_theses/1743/ . (Accessed 23 July 2021).
- Re, R., Pellegrini, N., Proteggente, A., Pannal, A., Yang, M., & Rice-Evans, C. (1999). Antioxidant activity applying an improved ABTS radical cation decolorization assay. *Free Radical Biology & Medicine*, 26, 1231–1237.
- Rivero, R. C., Archaina, D. A., Busquet, C. M., Baldi-Coronel, B. M., & Busch, V. M. (2021). Development of a honey-based powder ingredient using a mixture design: Botanical origin effect and hydration properties. *LWT-Food Science and Technology*, 147, Article 111446. <https://doi.org/10.1016/j.lwt.2021.111446>

- Rodríguez-Flores, M. S., Escuredo, O., Seijo-Rodríguez, & Seijo, M. C. (2019). Characterization of the honey produced in Heather communities (NW Spain). *Journal of Apicultural Research*, 58(1), 84–91. <https://doi.org/10.1080/00218839.2018.1495417>
- Sahu, J. K. (2008). The effect of additives on vacuum dried honey powder properties. *International Journal of Food Engineering*, 4(8). <https://doi.org/10.2202/1556-3758.1356> . article 9.
- Sahu, J. K., & Devi, K. D. (2013). Modeling of vacuum puffing characteristics and color change of liquid honey. *Industrial Crops and Products*, 48, 118–123. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2013.04.019>
- Salonen, A., Virjamo, V., Tammela, P., Fauch, L., & Julkunen-Tiitto, R. (2017). Screening bioactivity and bioactive constituents of Nordic unifloral honeys. *Food Chemistry*, 237, 214–224. <https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2017.05.085>
- Samborska, K. (2019). Powdered honey-drying methods and parameters, types of carriers and drying aids, physicochemical properties and storage stability. *Trends in Food Science & Technology*, 88, 133–142. <https://doi.org/10.1016/j.tifs.2019.03.019>
- Samborska, K., Barańska, A., Szulc, K., Jankowska, E., Truszkowska, M., Ostrowska-Ligęza, E., et al. (2020). Reformulation of spray-dried apple concentrate and honey for the enhancement of drying process performance and the physicochemical properties of powders. *Journal of the Science of Food and Agriculture*, 100, 2224–2235. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1002/jsfa.10247>
- Samborska, K., Langa, E., Kamińska-Dwórznińska, A., & Witrowa-Rajchert, D. (2014). The influence of sodium caseinate on the physical properties of spray-dried honey. *International Journal of Food Science and Technology*, 50(1), 256–262. <https://doi.org/10.1111/ijfs.12629>
- Sancho, M. T., Pascual-Maté, A., Rodríguez-Morales, E. G., Osés, S. M., Escriche, I., Periche, A., et al. (2016). Critical assessment of antioxidant-related parameters of honey. *International Journal of Food Science and Technology*, 51, 30–36. <https://doi.org/10.1111/ijfs.12988>
- Seraglio, S. K. T., Silva, B., Bergamo, G., Brugnerotto, P., Gonzaga, L. V., Fett, R., et al. (2019). An overview of physicochemical characteristics and health-promoting properties of honeydew honey. *Food Research International*, 119, 44–46. <https://doi.org/10.1016/j.foodres.2019.01.028>
- Shi, Q., Fang, Z., & Bhandari, B. (2013). Effect of addition of whey protein isolate on spray-drying behaviour of honey with maltodextrin as a carrier material. *Drying Technology: International Journal*, 31, 13–14. <https://doi.org/10.1080/07373937.2013.783593>
- Singleton, V. L., Orthofer, R., & Lamuela-Raventós, R. M. (1999). Analysis of total phenols and other oxidation substrates and antioxidants by means of Folin-Ciocalteu reagent. *Methods in Enzymology*, 299, 152–178. [https://doi.org/10.1016/S0076-6879\(99\)99017-1](https://doi.org/10.1016/S0076-6879(99)99017-1)
- Sramek, M., Woerz, B., Horn, H., Weiss, J., & Kohlus, R. (2016). Preparation of highgrade powders form honey-glucose syrup formulations by vacuum foam-drying method. *Journal of Food Processing and Preservation*, 40, 790–797. <https://doi.org/10.1111/jfpp.12660>
- Starowicz, M., Ostaszyk, A., & Zieliński, H. (2021). The relationship between the browning index, total phenolics, color, and antioxidant activity of Polish-originated honey samples. *Foods*, 10, 967. <https://doi.org/10.3390/foods10050967>
- Suhag, Y., & Nanda, V. (2015). Optimisation of process parameters to develop nutritionally rich spray-dried honey powder with vitamin C content and antioxidant properties. *International Journal of Food Science and Technology*, 50, 1771–1777. <https://doi.org/10.1111/ijfs.1284>

- Suhag, Y., & Nanda, V. (2016). Evaluation of different carrier agents with respect to physico-chemical, functional and morphological characteristics of spray dried nutritionally rich honey powder. *Journal of Food Processing and Preservation*, 40, 1429–1437. <https://doi.org/10.1111/jfpp.12728>
- Suhag, Y., & Nanda, V. (2017). Degradation kinetics of ascorbic acid in encapsulated spray-dried honey powder packaged in aluminium laminated polyethylene and highdensity polyethylene. *International Journal of Food Properties*, 20(3), 645–653. <https://doi.org/10.1080/10942912.2016.1174939>
- Suhag, Y., Nayik, G. A., Karabagias, I. K., & Nanda, V. (2021). Development and characterization of a nutritionally rich spray-dried honey powder. *Foods*, 10, 162. <https://doi.org/10.3390/foods10010162>
- Suhag, Y., Nayik, G. A., & Nanda, V. (2016). Effect of gum Arabic concentration and inlet temperature during spray drying on physical and antioxidant properties of honey powder. *Food Measure*, 10, 350–356. <https://doi.org/10.1007/s11694-016-9313-4>
- Terradillos, L. A., Muniategui, S., Sancho, M. T., Huidobro, J. F., & Simal-Lozano, J. (1994). An alternative method for analysis of honey sediment. *Bee Science*, 3, 86–93.
- Tomczyk, M., Zagula, G., Tarapatskyy, M., Kač'aniov'a, M., & D' zugan, M. (2020). The effect of honey variety on the quality of honey powder. *Journal of Microbiology, Biotechnology and Food Sciences*, 9(5), 949–954. <https://doi.org/10.15414/jmbfs.2020.9.5.949-954>
- Von der Ohe, W., Persano Oddo, L., Piana, M. L., Morlot, M., & Martin, P. (2004). Harmonized methods of melissopalynology. *Apidologie*, 35, 18–25. <https://doi.org/10.1051/apido:2004050>

Material suplementario

LH1

LH2

LH3

% HONEY

SPRAY DRYING (SP)

18% solid fraction (w/w).

Büchi B-290 mini spray dryer in open-cycle system

Air inlet T°: 120 ± 1 °C

Air outlet T°: 67.5 ± 2.5 °C

Air flow rate: 50 mm

Aspirator rate: 70%,

nozzle cleanliness: 4 times/min

pump at 5%

AG

SP-AG-LHP1

SP-AG-LHP2

SP-AG-LHP3

58%

WH

SP-WH-LHP1

SP-WH-LHP2

SP-WH-LHP3

72%

MD

SP-MD-LHP1

SP-MD-LHP2

SP-MD-LHP3

46%

VACUUM DRYING (VC)

Total solid concentration: 43-48% (w/w)

Silicon baking cup 3-4 mm thickness

Lab scale vacuum oven at 60 °C with absolute

pressure maintained inside the chamber at 100

mbar (75 mmHg) for 24/48 h

Grounded with a mortar

AG

VC-AG-LHP1

VC-AG-LHP2

VC-AG-LHP3

72%

WH

VC-WH-LHP1

VC-WH-LHP2

VC-WH-LHP3

72%

MD

VC-MD-LHP1

VC-MD-LHP2

VC-MD-LHP3

56%

FREEZE DRYING (FZ)

Total solid concentration: 43-48% (w/w)

Silicon baking cup 3-4 mm thickness

Frozen at -30 °C / 5 h

Frozen at -80 °C / 24 h

Freeze drying 3 days / 0.112 mbar

Grounded with a mortar

AG

FZ-AG-LHP1

FZ-AG-LHP2

FZ-AG-LHP3

72%

WH

FZ-WH-LHP1

FZ-WH-LHP2

FZ-WH-LHP3

72%

MD

FZ-MD-LHP1

FZ-MD-LHP2

FZ-MD-LHP3

72%

27 LHP samples
stored in glass
jars in desiccator

3 LH samples

3 carriers

33 samples

Osés, S.M., Cantero, L., Crespo, M., Puertas, G., González-Ceballos, L., Vallejos, S., Fernández-Muñilo, M.A., Sancho, M.T. (2021). Attributes of ling-heather honey powder obtained by different methods with several carriers. LWT-Food Science and Technology, 150, 112063. <https://doi.org/10.1016/j.lwt.2021.112063>.

Capítulo 3

Impacto del procedimiento de secado y del origen botánico en las propiedades físico-químicas y potencialmente bioactivas de las mieles en polvo

El artículo original incluido en los anexos de esta Tesis Doctoral es el siguiente:

Cantero, L., González-Ceballos, L., Vallejo, S., Puertas, G., Fernández-Muiño, M. A., Sancho, M. T & Osés, S. M. (2023). Impact of the drying procedure and botanical origin on the physico-chemical and potentially bioactive properties of honey powders. *Foods*, 12, 3990.

<https://doi.org/10.3390/FOODS12213990>



Resumen

Este estudio tuvo como objetivo investigar el impacto del procedimiento de secado (utilizando la concentración más adecuada de miel–maltodextrina para cada técnica de secado) y el origen botánico de la miel en las propiedades físico-químicas y las propiedades potencialmente bioactivas de mieles en polvo que se elaboraron utilizando maltodextrina como coadyuvante. La investigación se llevó a cabo con miel de tomillo, lavanda, veza y multifloral deshidratada utilizando secado a vacío y liofilización. Los parámetros analizados fueron: contenido en agua, actividad de agua (a_w), color, temperatura de transición vítrea, recuperación del polvo, índice y tasa higroscópica, densidad compacta, solubilidad, compuestos fenólicos, así como actividades antirradicales ($ABTS^{\bullet+}$, $ROO^{\bullet}$, $\bullet OH$ y $O_2^{\bullet-}$), antiinflamatoria y antimicrobiana (frente a *Staphylococcus aureus*, *Escherichia coli* y *Listeria monocytogenes*). La liofilización proporcionó las mayores recuperaciones. Los polvos obtenidos mediante liofilización mostraron mayor contenido en agua y solubilidad, así como menor temperatura de transición vítrea, densidad e higroscopicidad en comparación con los obtenidos mediante secado a vacío. La higroscopicidad, la temperatura de transición vítrea y la actividad antimicrobiana frente a *S. aureus* dependieron del procedimiento de secado–concentración de miel. El color, la actividad anti- $O_2^{\bullet-}$ y la actividad antimicrobiana frente a *L. monocytogenes* dependieron del origen botánico de la miel cruda. El contenido en agua, la solubilidad, la densidad, el contenido de fenoles totales, las actividades anti- $ABTS^{\bullet+}$ y anti- $ROO^{\bullet}$, así como la actividad antiinflamatoria y antimicrobiana frente a *E. coli*, dependieron tanto del procedimiento de secado–concentración de miel como del origen botánico.

1. Introducción

La miel es un edulcorante natural con una larga historia de uso en la nutrición humana. Las mieles de diferentes orígenes botánicos/geográficos son muy apreciadas por los consumidores debido a sus sabores únicos y composiciones nutritivas. En España, se valoran mucho las mieles de brezo, tomillo, veza (*Leguminosae* tipo *Vicia*), lavanda y algunas multiflorales. Las industrias y distribuidores alimentarios aprecian la miel por sus potenciales beneficios para la salud, que generalmente están relacionados con microcomponentes como polifenoles, ácidos orgánicos, enzimas y aminoácidos, entre otros, que pueden proporcionar acciones antioxidantes, antimicrobianas, antiinflamatorias e inmunoestimulantes (Mutlu & Erbas, 2021; Rivero et al., 2021; Sramek et al., 2016). Los consumidores asocian la miel con la naturaleza y la ecología (Nedić et al., 2020). Un inconveniente importante respecto al uso potencial de la miel en las industrias alimentaria, farmacéutica y cosmética es su alta viscosidad y pegajosidad, que crea múltiples problemas, principalmente relacionados con la tendencia de la miel a cristalizar debido a su alto contenido de azúcares. Por lo tanto, actualmente se están investigando alternativas a la miel cruda, entre las cuales la miel en polvo (P) es una de las opciones más importantes (Suhag & Nanda, 2016). La miel en polvo se ha utilizado como ingrediente en varios productos alimenticios, como pan, galletas o marinados para carne (Antony et al., 2000; Tong et al., 2010; Kiliñç & Demir, 2017). La adición de hasta un 15% de miel en polvo a los productos alimentarios inhibió el desarrollo de compuestos oxidativos en la carne de pavo cocida (Antony et al., 2000). La adición de miel en polvo también mejoró la reología de la masa y la textura del pan (Tong et al., 2010). Kiliñç & Demir (2017) hicieron galletas sustituyendo el azúcar por miel en polvo, aumentando el contenido mineral y los compuestos fenólicos totales. López-Patiño et al., (2023) utilizó miel en polvo en carne a la parrilla, ralentizando el crecimiento microbiano de enterobacterias y aumentando la vida útil del producto.

La miel en polvo tiene muchas ventajas en comparación con la miel, como la facilidad de envasado, transporte y almacenamiento debido a la reducción de volumen y peso, así como la posibilidad de combinarlo con otros productos secos (Mutlu & Erbas, 2021; Jendlińska et al., 2019). La miel en polvo es higroscópica, por lo cual es difícil de obtener debido a su composición y estructura. La fructosa (38 – 40%) y la glucosa (33 – 35%) de la miel, junto con otros componentes, son responsables de las bajas

temperaturas de transición vítrea (T_g) de este alimento, entre - 27 °C y - 51 °C (Sramek et al., 2016; Osés et al., 2021), lo que hace imposible obtener el polvo sin la adición de coadyuvantes (Nurhadi & Roos, 2016; Samborska et al., 2017). La goma arábiga, las dextrinas, las maltodextrinas y el concentrado de proteínas de lactosuero son coadyuvantes comunes que actúan como agentes emulsionantes, agentes antiaglomerantes y materiales de relleno de alto peso molecular. Otros coadyuvantes que se están utilizando con éxito en la actualidad son el polen de abeja junto con la goma arábiga (Mutlu, 2023) y las proteínas de arroz y guisante (Toniazzi et al., 2023). Estos aumentan la T_g de las mezclas, manteniendo la estabilidad de los polvos con alto contenido de azúcar y evitando la transición del material de un estado vítreo a uno gomoso. Los coadyuvantes minimizan los principales problemas durante el secado, como la pegajosidad y las dificultades de secado (Nurhadi et al., 2012; Samborska et al., 2014). Sin embargo, el uso de grandes cantidades de coadyuvantes de secado aumenta los costes de producción y puede alterar el sabor original de las mieles crudas, pudiendo los polvos resultantes, correr el riesgo de no ser aceptados por parte de los consumidores (Shi et al., 2013).

El secado por atomización (SP) es el método más utilizado para la producción de miel en polvo debido a su reducido tiempo de secado, lo que previene la degradación de sabores, colores y nutrientes. El secado por atomización proporciona polvos con buenas características de reconstitución, estabilidad en almacenamiento y baja actividad de agua, aunque con una disminución de la actividad antioxidante y del contenido de fenoles totales (Samborska et al., 2020). Entre las diversas tecnologías de secado, existen otros procedimientos menos utilizados, como el secado a vacío (VC), el secado por microondas a vacío y el secado por liofilización (FZ). Las técnicas mencionadas son de gran interés ya que reducen los cambios debidos a la alta temperatura del secado por atomización (Mutlu & Erbas, 2021; Rivero et al., 2021). El secado a vacío además se realiza en ausencia de oxígeno, lo que reduce la degradación oxidativa y tiene un índice de secado rápido debido a la formación de una estructura espumosa o hinchada en el polvo (Sramek et al., 2016; Sahu, 2008). Como resultado de las condiciones de secado (baja temperatura en comparación con el secado por atomización y presión reducida), se conservan cantidades de nutrientes termorresistentes (Sramek et al., 2016). La liofilización es más lenta y costosa que otros procedimientos (Sramek et al., 2016). Sin embargo, la liofilización

(realizada en ausencia de oxígeno y utilizando bajas temperaturas de secado) muestra algunas ventajas sobre otras técnicas de secado, tales como mayor contenido de compuestos volátiles, retención de compuestos y aromas sensibles al calor, preservación de la estructura, menor daño por reacciones no enzimáticas u oxidativas y mantenimiento de las propiedades nutricionales y bioactivas (Rivero et al., 2021).

En estudios anteriores, verificamos que las mieles en polvo de brechina (LHP) obtenidas mediante secado a vacío y liofilización utilizando únicamente maltodextrina (MD) como coadyuvante mostraron mayores recuperaciones (88 – 98%) y mejores características sensoriales en comparación con las mieles en polvo obtenidas mediante secado por atomización y/o utilizando otros coadyuvantes (Osés et al., 2021). Los LHP también proporcionaron interesantes actividades antirradicales, antimicrobianas y antiinflamatorias, lo que podría ayudar a fomentar el uso de estos polvos (Osés et al., 2022). Considerando investigaciones previas sobre mieles en polvo, el objetivo de este trabajo fue determinar el impacto real tanto del procedimiento de secado (utilizando la concentración más adecuada de miel–maltodextrina para cada técnica de secado) como del origen botánico de la miel en las características físico-químicas y funcionales de la miel en polvo elaborada con mieles de diferentes orígenes botánicos y deshidratada por secado a vacío y liofilización, analizando las propiedades físico-químicas y bioactivas, así como las actividades antirradicales libres.

2. Materiales y métodos

2.1. Materiales

Reactivos: Maltodextrina (MD) con equivalente de dextrosa 20 (Calaf Nuances, Barcelona, España). Metanol, carbonato de sodio, cloruro de sodio, hidróxido de sodio, hidróxido de potasio, persulfato de potasio, Fe (NH₄)₂(SO₄)₂, EDTA, ácido acético, ácido fórmico, *p*-dimetilaminobenzaldehído (DMAB), HCl, H₂SO₄, H₂O₂, agar Baird Parker (BP), agar Tripona bilis x-glucurónido (TBX) y emulsión estéril de yema de huevo con telurito (VWR International Eurolab, parte de Avantor, Llinars del Vallés, España). Ácido gálico, NaNO₂, Na₂SO₄ y catequina (Panreac, Barcelona, España). AlCl₃ y sal sódica de fluoresceína (Fluka Chemie GmbH, parte de Sigma-Aldrich, Buchs, San Galo, Suiza). Na₂HPO₄, NaH₂PO₄ (Scharlab, Sentmenat, España). Tetraborato de potasio, nitroazul de tetrazolio, benzoato de sodio y ácido úrico (Alfa Aesar, parte de Thermo

Fisher, Kandel, Rheinland-Pfalz, Alemania). Caldo nutritivo No. 2 (NB), infusión de cerebro y corazón (BHI), agar técnico No. 2 y solución de Ringer (Oxoid, parte de Thermo Fisher, Basingstoke, Hampshire, Reino Unido). Base de Agar Microinstant Listeria (LAB), suplemento de enriquecimiento de Listeria Ottaviani & Agosti y Suplemento Selectivo de Listeria (Scharlau S.L., Senmanat, España). Reactivo fenólico Folin-Ciocalteu, quercetina, dinitrofenilhidrazina, ácido 2,2'-azino-bis(3-etilbenzotiazolina-6-ácido sulfónico) (ABTS), ácido 6-hidroxi-2,5,7,8-tetrametilcromano-2-carboxílico (Trolox), ácido tiobarbitúrico (TBA), xantina, xantina oxidasa (10110434001), 2,2'-azobis(2-amino-propano)dihidrocloreuro (ABAP), N-acetil-D-glucosamina (NAG), ácido hialurónico en sal sódica de *Streptococcus equi* (53,747), albúmina sérica bovina (BSA), hialuronidasa de testículos bovinos tipo IV-S (1400 U/ml, H3884) (Sigma-Aldrich, parte de Merck, Steinheim, Nordrhein-Westfalen, Alemania). El agua fue desionizada utilizando un sistema de purificación de agua Milli-Q (Millipore, parte de Merck, Bedford, MA, EE.UU.).

Equipos: Vacuotherm Heraeus Instruments (ThermoFisher Scientific, Madrid, España); LyoQuest-55 ECO PLUS (Azbil Telstar Technologies, S.L.U., Barcelona, España); AquaLab Serie 4 TE (Labferrer, Lleida, España); colorímetro Hunter Lab (ColorFlex EZ System®, Reston, VA, EE.UU.); calorimetría de barrido diferencial con un Q200 DSC equipado con un sistema de enfriamiento Intra-Cooler (TA Instruments, New Castle, DE, EE.UU.) a 20 °C/min; espectrofotómetro UV-visible 400Bio (Varian, Mulgrave, Vic., Australia); lector de microplacas Varioskan LUX (ThermoFisher Scientific); microplacas estériles de poliestireno con fondo redondo de 96 pocillos (Brand, Wertheim, Alemania).

2.2. Muestras de miel y procedimientos de secado

Nueve muestras de mieles de tomillo (TH), lavanda (LV), veza (V) y multifloral (M) (Tabla 1), recolectadas por apicultores de Castilla y León (España), fueron procesadas para obtener miel en polvo. Los orígenes botánicos se determinaron utilizando melissopalínología y análisis sensoriales (Louveaux et al., 1978; Marcazzan et al., 2018; Persano-Oddo & Piro, 2004; Piana et al., 2004; Terradillos et al., 1994; Von der Ohe et al., 2004).

Tabla 1. Orígenes botánicos de las muestras de miel.

Miel	Familia	Nombre científico	Nombre común
TH1	Labiatae	<i>Thymus</i> sp.	Tomillo
TH2	Labiatae	<i>Thymus</i> sp.	Tomillo
LV1	Labiatae	<i>Lavandula hybrida</i> Reverchon	Lavanda
LV2	Labiatae	<i>Lavandula latifolia</i> Medik	Lavanda
LV3	Labiatae	<i>Lavandula stoechas</i> Lam	Lavanda
V1	Leguminosae	<i>Vicia</i> sp.	Veza
M1	Multifloral	-	Multifloral
M2	Multifloral	-	Multifloral
M3	Multifloral	-	Multifloral

2.3. Mieles en polvo

La miel líquida se mezcló con MD y agua. Se obtuvieron dieciocho muestras de miel en polvo a partir de las nueve mieles y del coadyuvante de secado (MD) utilizando dos procedimientos de secado: vacío y liofilización. La miel y la MD se disolvieron primero por separado en agua. Luego, se mezclaron suavemente con un agitador magnético a temperatura ambiente. Los métodos de secado y las proporciones de miel y coadyuvante se seleccionaron de acuerdo con experimentos preliminares (Osés et al., 2021).

VC: Se preparó una mezcla con una concentración total de sólidos del 42% (w/w) $[(\text{miel} + \text{MD})/(\text{miel} + \text{MD} + \text{H}_2\text{O}) \times 100]$ y una proporción de miel: MD de 60:40 (57% de miel en materia seca), que se vertió en un molde de silicona con un grosor de 3–4 mm y se secó en una estufa de vacío escala de laboratorio (Heraeus Instruments vacutherm) a 60 °C con una presión de 100 mbar durante dos días, enfriando hasta temperatura ambiente, posteriormente las muestras, en un desecador antes de ser molido con un mortero.

FZ: Las mezclas se prepararon con una proporción miel: MD de 75:25 (73% de miel en materia seca), manteniendo una concentración total de sólidos del 45%. La mezcla se congeló a - 30 °C en un molde de silicona (3–4 mm) durante 5 horas y luego a - 80 °C durante 24 horas. Posteriormente, las muestras se desecaron por liofilización en un equipo LyoQuest-55 ECO PLUS durante 3 días a una presión de 0,057 mbar, triturándolas inmediatamente. Cada procedimiento de secado se realizó tres veces para cada miel, y la combinación de los tres polvos (obtenidos utilizando el mismo procedimiento para la misma miel) se utilizó para el análisis. Las muestras de vacío y liofilización se almacenaron en frascos de vidrio en un desecador

con silicagel hasta su análisis posterior. La humedad, a_w , higroscopicidad, solubilidad, densidad y color se analizaron durante la primera semana. Los fenoles totales, flavonoides totales, actividad antioxidante, anti-inflamatoria y antimicrobiana se determinaron dentro del primer mes después de la elaboración de las mieles en polvo.

2.4. Parámetros de calidad y propiedades físicas de la miel y las mieles en polvo

La humedad, la a_w y el color de las mieles se determinaron utilizando los métodos AOAC (969.38) (AOAC, 2012), Bogdanov (2019), el Estándar Codex Alimentarius para miel (2001), Commission Internationale de l'Éclairage (2004), Pascual-Maté et al. (2018) y Sancho et al. (1991). Los parámetros de actividad de agua y color L^* , a^* y b^* de miel en polvo se determinaron siguiendo los mismos procedimientos descritos para la miel, utilizando un AquaLab Series 4 TE y un colorímetro Hunter Lab, respectivamente. Se determinó la recuperación del polvo, el contenido en agua (gravimetría, secado a 105 °C durante 4 h), el índice y la tasa de higroscopicidad (1,00 g colocado en un desecador a 25 °C con una solución saturada de NaCl durante 1 semana), la densidad compacta (registrando el volumen de 2,00 g de miel en polvo en una probeta después de golpear 25 veces), la solubilidad (tiempo requerido para que 2,00 g de miel en polvo se disuelvan completamente en 25 ml de agua destilada en un vaso de vidrio de 100 ml a temperatura ambiente, agitando a 890 rpm), y la T_g (calorimetría de barrido diferencial con un Q200 DSC equipado con un sistema de enfriamiento Intra-Cooler a 20 °C/min) siguiendo los procedimientos de Osés et al. (2021) brevemente descritos en la Figura Suplementaria S1.

2.5. Análisis de propiedades potencialmente bioactivas de la miel y la miel en polvo

Los compuestos fenólicos (fenoles totales, flavonas/flavonoles totales y flavanoles totales), las actividades antirradicales frente a ABTS^{•+}, [•]OH y O₂^{•-} y la actividad anti-inflamatoria se midieron utilizando un espectrofotómetro UV-visible 400Bio para absorbancia, mientras que la fluorescencia (actividad antirradical contra ROO[•]) se midió con un lector de microplacas Varioskan LUX. La actividad antimicrobiana frente a *Staphylococcus aureus* CECT 435, *Escherichia coli* CECT 99 y *Listeria monocytogenes* CECT 934 (Colección Española de Cultivos Tipo, Universidad de Valencia, España) se evaluó mediante un método de microdilución en caldo (5–70 µg/100 ml),

determinando la concentración mínima bactericida (MBC) utilizando microplacas de poliestireno estériles con fondo redondo de 96 pocillos. Todas las propiedades bioactivas de la miel y la miel en polvo se realizaron siguiendo los procedimientos de Osés et al. (2022), descritos brevemente en la Figura Suplementaria S2.

2.6. Análisis estadístico

Todos los análisis se realizaron por triplicado, excepto T_g (solo una vez). Los resultados se expresaron como medias y desviaciones estándar. Se utilizaron el análisis de varianza de un solo factor (ANOVA) y ANOVA multifactorial seguido de la prueba de diferencia significativa de Tukey ($p < 0,05$). Se aplicaron correlaciones de Pearson y análisis de componentes principales (PCA) (utilizando una matriz de datos de 18×7 para propiedades fisicoquímicas y una matriz de 18×12 para propiedades bioactivas, escaladas automáticamente). Se utilizó el software estadístico Startgraphics Centurion XVIII (Statgraphics Technologies, Inc., The Plains, VA, EE.UU.).

3. Resultados y discusión

Las propiedades bioactivas, excepto el % inhibición (actividades anti- $O_2^{\bullet-}$ y antiinflamatorias) y la concentración mínima bactericida (MBC), se expresaron en materia seca (m.s.) para una comparación adecuada de los datos de miel y miel en polvo. La Tabla 2 muestra los resultados de las propiedades fisicoquímicas y bioactivas de las mieles crudas.

3.1. Recuperación de polvo

La miel en polvo mostró recuperaciones entre 85,82% y 99,89% (Tabla 3). FZ-P exhibió las recuperaciones más altas (96,60 – 99,89%), con una concentración de miel del 73%, independientemente del origen botánico de la miel. VC-P también mostró altas recuperaciones (85,82 – 94,89%) con una concentración de miel del 57%. Estos rendimientos fueron similares a los descritos por Osés et al. (2021) (56% de miel, MD-VC: 93,34 – 96,01%; 72% de miel, MD-FZ 89,87 – 95,57%) y Mutlu & Erbas (2021) en mieles en polvo obtenidas mediante VC utilizando diferentes coadyuvantes (90,95%), siendo superiores a los obtenidos por Mutlu y Erbas (2021) con MD, independientemente del proceso de secado (61,95%). Nuestra recuperación de miel en polvo también fue superior al valor descrito por Nurhadi et al. (2012) (50% de miel, MD-VC: 73%).

Tabla 2. Propiedades fisicoquímicas y bioactivas (media $\pm$ SD) de mieles crudas de diversos orígenes botánicos utilizadas para obtener miel en polvo (n=3).

	LV1	LV2	LV3	TH1	TH2	V1	M1	M2	M3
Humedad	13,85 $\pm$ 0,00 ^f	14,67 $\pm$ 0,00 ^e	18,74 $\pm$ 0,00 ^a	16,18 $\pm$ 0,22 ^b	15,63 $\pm$ 0,24 ^c	15,09 $\pm$ 0,02 ^d	16,18 $\pm$ 0,23 ^b	16,31 $\pm$ 0,00 ^b	14,67 $\pm$ 0,00 ^e
a_w	0,506 $\pm$ 0,028 ^c	0,499 $\pm$ 0,002 ^c	0,625 $\pm$ 0,038 ^{ab}	0,546 $\pm$ 0,007 ^{bc}	0,557 $\pm$ 0,025 ^{bc}	0,523 $\pm$ 0,044 ^c	0,694 $\pm$ 0,038 ^a	0,536 $\pm$ 0,003 ^c	0,542 $\pm$ 0,035 ^c
L*	49,87 $\pm$ 0,02 ^a	4,83 $\pm$ 0,02 ^d	25,90 $\pm$ 0,04 ^c	46,92 $\pm$ 2,29 ^a	29,48 $\pm$ 0,02 ^{bc}	44,33 $\pm$ 0,01 ^a	33,23 $\pm$ 0,04 ^b	28,43 $\pm$ 0,01 ^{bc}	12,34 $\pm$ 0,02 ^d
a*	0,553 $\pm$ 0,012 ^g	1,11 $\pm$ 0,01 ^f	-0,437 $\pm$ 0,031 ^f	7,14 $\pm$ 0,02 ^c	11,30 $\pm$ 0,01 ^a	0,477 $\pm$ 0,023 ^h	4,89 $\pm$ 0,02 ^d	7,55 $\pm$ 0,02 ^b	3,33 $\pm$ 0,03 ^e
b*	27,43 $\pm$ 0,02 ^e	6,71 $\pm$ 0,04 ⁱ	19,33 $\pm$ 0,06 ^g	38,06 $\pm$ 0,02 ^a	34,18 $\pm$ 0,07 ^b	23,98 $\pm$ 0,05 ^f	33,26 $\pm$ 0,11 ^c	31,86 $\pm$ 0,15 ^d	16,22 $\pm$ 0,10 ^h
TPC	61,41 $\pm$ 1,41 ^d	100,65 $\pm$ 0,65 ^b	61,64 $\pm$ 2,13 ^d	62,67 $\pm$ 0,35 ^d	131,50 $\pm$ 4,34 ^a	32,73 $\pm$ 1,73 ^e	60,86 $\pm$ 1,78 ^d	76,97 $\pm$ 0,82 ^c	105,50 $\pm$ 0,80 ^b
TPC-E	4,30 $\pm$ 0,09 ^e	12,08 $\pm$ 0,14 ^a	6,34 $\pm$ 0,19 ^c	11,58 $\pm$ 0,30 ^a	9,03 $\pm$ 0,35 ^b	4,48 $\pm$ 0,05 ^e	6,80 $\pm$ 0,13 ^c	8,67 $\pm$ 0,08 ^b	5,71 $\pm$ 0,12 ^d
TFCc	2,07 $\pm$ 0,06 ^e	4,05 $\pm$ 0,06 ^a	2,56 $\pm$ 0,10 ^d	4,12 $\pm$ 0,17 ^a	3,05 $\pm$ 0,13 ^c	2,38 $\pm$ 0,06 ^d	1,97 $\pm$ 0,05 ^e	3,62 $\pm$ 0,10 ^b	3,15 $\pm$ 0,02 ^c
TFCq	0,340 $\pm$ 0,018 ^g	1,055 $\pm$ 0,012 ^b	0,529 $\pm$ 0,012 ^f	1,14 $\pm$ 0,03 ^a	0,715 $\pm$ 0,014 ^d	0,608 $\pm$ 0,018 ^e	0,600 $\pm$ 0,007 ^e	0,900 $\pm$ 0,018 ^c	0,367 $\pm$ 0,007 ^g
TEAC (ABTS^{••})	17,74 $\pm$ 5,13 ^e	106,31 $\pm$ 3,40 ^d	31,33 $\pm$ 8,61 ^e	116,13 $\pm$ 3,77 ^{cd}	277,72 $\pm$ 21,55 ^a	32,73 $\pm$ 0,97 ^e	95,18 $\pm$ 12,99 ^d	146,13 $\pm$ 5,76 ^c	234,21 $\pm$ 22,00 ^b
AOA ([•]OH)	0,056 $\pm$ 0,007 ^{bc}	0,052 $\pm$ 0,001 ^{bc}	0,054 $\pm$ 0,011 ^{bc}	0,076 $\pm$ 0,008 ^a	0,056 $\pm$ 0,006 ^{bc}	0,055 $\pm$ 0,000 ^{bc}	0,062 $\pm$ 0,006 ^{ab}	0,041 $\pm$ 0,002 ^c	0,062 $\pm$ 0,001 ^{ab}
ORAC (ROO[•])	42,76 $\pm$ 2,15 ^{cd}	34,45 $\pm$ 0,56 ^{cd}	67,85 $\pm$ 16,15 ^{ab}	32,98 $\pm$ 8,38 ^{cd}	37,84 $\pm$ 7,46 ^{cd}	24,92 $\pm$ 7,81 ^d	53,91 $\pm$ 5,00 ^{bc}	76,52 $\pm$ 2,71 ^a	31,91 $\pm$ 1,55 ^d
SRS (O₂^{•-})	45,33 $\pm$ 3,06 ^{cd}	58,67 $\pm$ 2,08 ^a	25,67 $\pm$ 3,51 ^e	42,67 $\pm$ 2,08 ^d	51,33 $\pm$ 0,58 ^{bc}	12,50 $\pm$ 0,71 ^f	47,33 $\pm$ 1,53 ^{cd}	22,00 $\pm$ 1,41 ^e	56,50 $\pm$ 3,54 ^{ab}
Actividad antiinflamatoria	62,60 $\pm$ 0,73 ^b	10,86 $\pm$ 0,75 ^g	64,16 $\pm$ 0,81 ^{ab}	68,61 $\pm$ 0,39 ^a	48,21 $\pm$ 0,71 ^{ef}	44,76 $\pm$ 5,14 ^f	59,79 $\pm$ 0,05 ^{bc}	53,73 $\pm$ 0,77 ^{de}	54,48 $\pm$ 1,76 ^{cd}
MBC <i>St. aureus</i>	20,00 $\pm$ 0,00 ^d	30,00 $\pm$ 0,00 ^c	30,00 $\pm$ 0,00 ^c	5,00 $\pm$ 0,00 ^e	60,00 $\pm$ 0,00 ^b	70,00 $\pm$ 0,00 ^a	20,00 $\pm$ 0,00 ^d	70,00 $\pm$ 0,00 ^a	20,00 $\pm$ 0,00 ^d
MBC <i>E. coli</i>	20,00 $\pm$ 0,00 ^c	20,00 $\pm$ 0,00 ^c	30,00 $\pm$ 0,00 ^b	20,00 $\pm$ 0,00 ^c	40,00 $\pm$ 0,00 ^a	20,00 $\pm$ 0,00 ^c	20,00 $\pm$ 0,00 ^c	40,00 $\pm$ 0,00 ^a	20,00 $\pm$ 0,00 ^c
MBC <i>L. monocytogenes</i>	20,00 $\pm$ 0,00 ^b	50,00 $\pm$ 0,00 ^b	60,00 $\pm$ 0,00 ^a	40,00 $\pm$ 0,00 ^c	50,00 $\pm$ 0,00 ^b	53,33 $\pm$ 5,77 ^{ab}	53,33 $\pm$ 5,77 ^{ab}	50,00 $\pm$ 0,00 ^b	40,00 $\pm$ 0,00 ^c

LV: miel de lavanda; TH: miel de tomillo; V: miel de veza; M: miel multifloral; humedad (%); TPC fenoles totales (mg GA/100 g); TPC-E: fenoles totales del extracto (mg GA/100 g); TFCc: flavanoles totales (mg C/100 g); TFCq: flavonas/flavonoles totales (mg Q/100 mg); TEAC (μ mol T/100 g); ORAC (μ mol T/g); AOA (mmol UA/100 g); SRS (% inh); actividad antiinflamatoria (% inh); MBC *St. aureus*, *E. coli* y *L. monocytogenes* (%). a-i: letras diferentes indican diferencias significativas (p < 0,05) entre los diferentes orígenes botánicos.

3.2. Propiedades fisicoquímicas

3.2.1. T_g

La T_g se define como la temperatura por encima de la cual el material alimenticio amorfo (estado metaestable) transita de un sólido vítreo a un estado gomoso, con cambios significativos en las propiedades físicas y la movilidad molecular (la posición de las moléculas unas respecto a otras es aleatoria) (Bhatta et al., 2020; Santivarangkna et al., 2011). La Tabla 4 muestra la T_g de las mieles y mieles en polvo obtenidas mediante liofilización y vacío. Los valores de T_g de las mieles variaron desde - 25,45 hasta - 37,37 °C. T_g osciló dependiendo tanto del origen botánico de las muestras como del contenido de humedad. En general, la T_g de las mieles disminuyó con el aumento de la humedad, excepto para las mieles tomillo. La T_g del agua es muy baja, alrededor de - 138 °C, lo que le permite actuar como plastificante ayudando a reducir la T_g de las mezclas (Nurhadi et al., 2012). Los polvos se caracterizaron por exhibir dos T_g (T_{g1} y T_{g2}), en comparación con la miel, que solo exhibió una T_g . Las dos T_g de las mieles en polvo correspondieron a dos polímeros diferentes formados en las muestras deshidratadas, donde T_{g1} corresponde al polímero de la miel en polvo y T_{g2} corresponde al polímero del coadyuvante (Osés et al., 2021). Los valores de T_g de los polvos fueron más altos que los de las mieles. Los valores de T_{g1} de FZ-P (12,58 – 16,50 °C) fueron más bajos que los de VC-P (27,75 – 35,50 °C), confirmando la influencia tanto de la concentración de miel como del procedimiento de secado en la T_g del producto final. Las muestras de vacío tenían una concentración más baja de miel (57%) en comparación con las muestras de liofilización (73% de miel), confirmando que los valores de T_g disminuyen cuando aumenta la concentración de miel y aumentan cuando lo hace la concentración del coadyuvante, en este caso MD, cuya T_g es de 205,5 °C (Nurhadi et al., 2012; Samborska et al., 2014; Shi et al., 2013). Los porcentajes de contenido en agua (Tabla 3) de VC-P (0,702% – 1,63%) fueron inferiores a los de FZ-P (1,30% – 1,63%), corroborando la influencia de la humedad en la T_g . Dado que T_{g1} de FZ-P fue inferior a la temperatura ambiente (25 °C), FZ-P debe almacenarse a temperaturas de refrigeración dentro de un envase de alta barrera (Bhatta et al., 2020; Santivarangkna et al., 2011; Ganaie et al., 2021).

3.2.2. Contenido en agua y actividad de agua (a_w)

La Tabla 3 muestra los resultados del contenido en agua y de la a_w . El porcentaje de agua fue menor en VC-P (57% miel) que en FZ-P (73%), a diferencia de los datos descritos por Samborska et al. (2017), donde las mieles en polvo con mayores concentraciones de miel presentaban los porcentajes de agua más bajos. Nuestros valores fueron similares a los de Nurhadi et al. (2012) para VC-P (1,1%) en muestras de 50% de miel obtenidas mediante secado a vacío usando MD, y menores que los resultados obtenidos en miel en polvo de trigo sarraceno al 50% (MD-FZ) por Keke & Cinkmanis (2021) (5,6%).

Mutlu & Erbas (2021) obtuvieron un valor medio de humedad de 3,15% en MD-P independientemente del proceso utilizado (VC o SP) o del contenido de miel (50, 57 o 67%), siendo este porcentaje considerablemente mayor que los porcentajes de nuestra investigación. Las diferencias con otros estudios podrían deberse principalmente a la concentración de miel. Entre los FZ-P, no se observaron diferencias significativas ($p \leq 0,05$) considerando los diferentes orígenes botánicos. Sin embargo, en lo que respecta a VC-P, se observaron diferencias significativas considerando los orígenes de las mieles, siendo LVP1, LVP2, LVP3, THP1 y MP1 los polvos con los porcentajes de agua más bajos. Por lo tanto, los orígenes botánicos, los procedimientos de secado y su interacción influyen en el contenido en agua, como se muestra en el análisis ANOVA multifactorial (Tabla 5A). La reducción del porcentaje de agua durante los procesos de secado al hacer miel en polvo contribuyó significativamente a una mayor estabilidad de la miel durante el almacenamiento (Nedić et al., 2020).

Nuestros valores de a_w en VC-P fueron similares a los obtenidos por Mutlu & Erbas (2021), independientemente del coadyuvante utilizado (0,32), siendo también similares a los valores de a_w obtenidos con MD, independientemente del procedimiento de secado (0,24). Nuestros valores de a_w en FZ-P fueron similares al valor obtenido en miel en polvo multifloral obtenida mediante liofilización (0,215) por Ganaie et al. (2021). En general, la a_w fue algo mayor en VC-P, dependiendo del tipo de miel, el tiempo transcurrido hasta el análisis y las condiciones de almacenamiento [11].

Tabla 3. Propiedades fisicoquímicas de la miel en polvo (media $\pm$ SD) de diversos orígenes botánicos obtenidas mediante secado a vacío (VC) y secado por liofilización (FZ) utilizando maltodextrina (MD) (n=3).

		LVP1	LVP2	LVP3	THP1	THP2	VP1	MP1	MP2	MP3
Recuperación de polvo	VC	94,62 $\pm$ 0,20 ^{Ab}	94,89 $\pm$ 0,31 ^{Ab}	92,33 $\pm$ 0,15 ^{Bb}	92,07 $\pm$ 3,45 ^{Bb}	94,24 $\pm$ 4,00 ^{ABa}	94,20 $\pm$ 3,25 ^{ABa}	85,82 $\pm$ 9,77 ^{Bb}	93,83 $\pm$ 0,23 ^{Bb}	90,41 $\pm$ 3,97 ^{Bb}
	FZ	97,36 $\pm$ 3,55 ^{Aa}	96,60 $\pm$ 1,92 ^{Aa}	99,64 $\pm$ 3,21 ^{Aa}	99,89 $\pm$ 2,21 ^{Aa}	98,36 $\pm$ 4,46 ^{Aa}	98,57 $\pm$ 4,21 ^{Aa}	98,47 $\pm$ 3,62 ^{Aa}	99,50 $\pm$ 2,52 ^{Aa}	97,31 $\pm$ 3,07 ^{Aa}
Humedad (%)	VC	0,720 $\pm$ 0,029 ^{D^b}	0,971 $\pm$ 0,109 ^{CD^b}	0,740 $\pm$ 0,041 ^{D^b}	1,01 $\pm$ 0,10 ^{CD^b}	1,23 $\pm$ 0,03 ^{BCa}	1,63 $\pm$ 0,12 ^{Aa}	0,702 $\pm$ 0,108 ^{D^b}	1,61 $\pm$ 0,15 ^{Aa}	1,43 $\pm$ 0,21 ^{ABa}
	FZ	1,32 $\pm$ 0,18 ^{Aa}	1,47 $\pm$ 0,26 ^{Aa}	1,30 $\pm$ 0,16 ^{Aa}	1,36 $\pm$ 0,04 ^{Aa}	1,53 $\pm$ 0,27 ^{Aa}	1,33 $\pm$ 0,03 ^{Ab}	1,32 $\pm$ 0,08 ^{Aa}	1,48 $\pm$ 0,22 ^{Aa}	1,63 $\pm$ 0,08 ^{Aa}
a_w	VC	0,214 $\pm$ 0,001 ^{Ea}	0,207 $\pm$,002 ^{Fb}	0,206 $\pm$ 0,002 ^{Fb}	0,300 $\pm$ 0,003 ^{Aa}	0,292 $\pm$ 0,002 ^{Ba}	0,258 $\pm$ 0,002 ^{Da}	0,303 $\pm$ 0,002 ^{Aa}	0,273 $\pm$ 0,002 ^{Ca}	0,298 $\pm$,001 ^{Aa}
	FZ	0,210 $\pm$ 0,002 ^{DFa}	0,224 $\pm$,002 ^{Aa}	0,211 $\pm$ 0,002 ^{CD^{Ea}}	0,209 $\pm$ 0,003 ^{EB}	0,219 $\pm$ 0,001 ^{AB^b}	0,214 $\pm$ 0,003 ^{BCDE^b}	0,216 $\pm$ 0,002 ^{BCDE^b}	0,215 $\pm$ 0,002 ^{BCDE^b}	0,217 $\pm$,002 ^{AB^{Cb}}
L*	VC	89,84 $\pm$ 0,01 ^{Aa}	83,20 $\pm$ 0,01 ^{Da}	88,77 $\pm$ 0,01 ^{Ba}	77,75 $\pm$ 0,02 ^{Fb}	81,32 $\pm$ 0,03 ^{Ea}	88,69 $\pm$ 0,01 ^{Ba}	74,61 $\pm$ 0,18 ^{Hb}	84,27 $\pm$ 0,02 ^{Ca}	75,05 $\pm$ 0,01 ^{Cb}
	FZ	87,71 $\pm$ 0,08 ^{Ab}	75,88 $\pm$ 0,03 ^{Eb}	84,86 $\pm$ 0,01 ^{Bb}	81,98 $\pm$ 0,07 ^{Ca}	79,27 $\pm$ 0,01 ^{D^b}	86,57 $\pm$ 0,03 ^{Ab}	84,48 $\pm$ 0,05 ^{Ba}	84,55 $\pm$ 1,76 ^{Ba}	79,16 $\pm$ 0,00 ^{Da}
a*	VC	-1,28 $\pm$ 0,01 ^{Ia}	1,45 $\pm$ 0,01 ^{Eb}	-0,780 $\pm$ 0,000 ^{Ga}	2,22 $\pm$ 0,01 ^{Ca}	2,48 $\pm$ 0,01 ^{Ba}	-1,22 $\pm$ 0,01 ^{Ha}	1,71 $\pm$ 0,01 ^{Da}	1,13 $\pm$ 0,01 ^{Fa}	2,69 $\pm$ 0,01 ^{Aa}
	FZ	-1,67 $\pm$ 0,00 ^{Hb}	2,85 $\pm$ 0,02 ^{Aa}	-1,32 $\pm$ 0,01 ^{Hb}	-0,870 $\pm$,010 ^{Eb}	0,677 $\pm$ 0,032 ^{Bb}	-1,75 $\pm$ 0,00 ^{Ib}	-1,05 $\pm$ 0,02 ^{Fb}	-0,567 $\pm$ 0,015 ^{D^b}	0,457 $\pm$,006 ^{Cb}
b*	VC	11,62 $\pm$ 0,01 ^{Ib}	20,01 $\pm$ 0,01 ^{Eb}	13,21 $\pm$ 0,01 ^{Hb}	26,71 $\pm$ 0,01 ^{Aa}	21,52 $\pm$ 0,03 ^{D^b}	13,69 $\pm$ 0,01 ^{Ga}	25,27 $\pm$ 0,01 ^{Ba}	19,43 $\pm$ 0,02 ^{Fa}	23,90 $\pm$ 0,01 ^{Ca}
	FZ	12,20 $\pm$ 0,05 ^{Ha}	28,73 $\pm$ 0,06 ^{Aa}	14,10 $\pm$ 0,01 ^{Ga}	18,26 $\pm$ 0,06 ^{D^b}	22,30 $\pm$ 0,04 ^{Ba}	10,82 $\pm$ 0,04 ^{Ib}	17,06 $\pm$ 0,01 ^{Fb}	17,24 $\pm$ 0,02 ^{Eb}	19,24 $\pm$ 0,01 ^{Cb}
Solubilidad (s)	VC	22,05 $\pm$ 0,07 ^{Fa}	23,47 $\pm$ 0,10 ^{Ea}	24,41 $\pm$ 0,16 ^{Ca}	18,09 $\pm$ 0,09 ^{Ia}	20,26 $\pm$ 0,06 ^{Ha}	25,05 $\pm$ 0,07 ^{Ba}	23,97 $\pm$ 0,05 ^{Da}	27,44 $\pm$ 0,20 ^{Aa}	21,25 $\pm$ 0,07 ^{Ga}
	FZ	14,62 $\pm$ 0,53 ^{Ab}	11,60 $\pm$ 0,52 ^{Bb}	10,09 $\pm$ 0,01 ^{Cb}	11,36 $\pm$ 0,37 ^{Bb}	7,27 $\pm$ 0,05 ^{Eb}	7,10 $\pm$ 0,07 ^{Eb}	10,52 $\pm$ 0,16 ^{BCb}	8,75 $\pm$ 0,05 ^{D^b}	5,28 $\pm$ 0,04 ^{Fb}
Densidad (g/ml)	VC	0,844 $\pm$ 0,000 ^{Aa}	0,785 $\pm$ 0,000 ^{Da}	0,838 $\pm$ 0,000 ^{Ba}	0,628 $\pm$ 0,000 ^{Ha}	0,677 $\pm$ 0,000 ^{Ga}	0,727 $\pm$ 0,000 ^{Fa}	0,836 $\pm$ 0,001 ^{Ca}	0,771 $\pm$ 0,000 ^{Ea}	0,770 $\pm$,000 ^{Ea}
	FZ	0,626 $\pm$ 0,000 ^{Ab}	0,544 $\pm$ 0,021 ^{Bb}	0,501 $\pm$ 0,002 ^{BC^b}	0,514 $\pm$ 0,018 ^{BC^b}	0,498 $\pm$ 0,008 ^{CD^b}	0,537 $\pm$ 0,018 ^{BC^b}	0,627 $\pm$ 0,000 ^{Ab}	0,456 $\pm$ 0,000 ^{D^b}	0,455 $\pm$,000 ^{D^b}
Índice de higroscopicidad	VC	9,88 $\pm$ 0,74 ^{Ca}	12,80 $\pm$ 0,62 ^{ABa}	10,33 $\pm$ 0,83 ^{BCa}	13,81 $\pm$ 1,06 ^{Aa}	8,24 $\pm$ 1,94 ^{Ca}	9,54 $\pm$ 0,65 ^{Ca}	13,51 $\pm$ 0,66 ^{Aa}	10,66 $\pm$ 0,28 ^{BCa}	8,83 $\pm$ 0,22 ^{Ca}
	FZ	3,32 $\pm$ 0,39 ^{Bb}	2,92 $\pm$ 0,03 ^{Bb}	3,46 $\pm$ 0,17 ^{ABb}	3,35 $\pm$ 0,23 ^{ABb}	3,57 $\pm$ 0,29 ^{ABb}	3,10 $\pm$ 0,19 ^{ABb}	3,15 $\pm$ 0,15 ^{ABb}	3,57 $\pm$ 0,29 ^{ABb}	3,66 $\pm$ 0,22 ^{Ab}

LV: miel en polvo de lavanda; THP: miel en polvo de tomillo; VP: miel en polvo de veza; MP: miel en polvo multifloral; VC: vacío; FZ: liofilización. A-I: letras diferentes indican diferencias significativas ($p < 0,05$) entre los diferentes orígenes botánicos. a-b: letras diferentes indican diferencias significativas ($p < 0,05$) entre los procedimientos de secado.

Tabla 4. Temperatura de transición vítrea T_g (temperatura media, °C) de mieles crudas (tomillo, lavanda, multifloral, veza) y mieles en polvo obtenidas mediante secado por liofilización (FZ) y secado a vacío (VC) utilizando maltodextrina (MD) (n=1).

	LV1	LV2	LV3	TH1	TH2	V1	M1	M2	M3
T_{g1}	-26,00	-28,51	-29,51	-25,81	-29,37	-25,45	-31,31	-37,37	-25,98
T_{g2}	---	---	---	---	---	---	---	---	---
	FZ- LVP1	FZ- LVP2	FZ- LVP3	FZ- THP1	FZ- THP2	FZ- VP1	FZ- MP1	FZ- MP2	FZ- MP3
T_{g1}	12,58	16,50	15,28	14,36	15,89	14,26	14,41	14,41	15,97
T_{g2}	85,75	85,80	85,43	83,03	81,69	92,00	78,34	78,34	83,22
	VC- LVP1	VC- LVP2	VC- LVP3	VC- THP1	VC- THP2	VC- VP1	VC- MP1	VC- MP2	VC- MP3
T_{g1}	28,09	27,75	34,12	31,39	35,50	31,50	34,27	34,70	34,77
T_{g2}	85,39	81,87	91,84	---	92,02	94,84	94,51	94,56	87,88

LV: miel de lavanda; TH: miel de tomillo; V: miel de veza; M: miel multifloral; LVP: miel en polvo de lavanda; THP: miel en polvo de tomillo; VP: miel en polvo de veza; MP: miel en polvo de multifloral; VC: secado a vacío; FZ: secado por liofilización. ---: ausente (no hay T_{g2}).

Teniendo en cuenta los gráficos de desorción térmica de mieles en polvo, se esperaba que, a mayor contenido de humedad, mayor a_w [38,39], pero según Nurhadi et al. (2017), este aumento es mínimo y poco significativo con valores de a_w por debajo de 0,35 (valor límite). Este hecho, junto con las diferencias en la composición, podría explicar que, respecto al mismo proceso de secado, las muestras con menor contenido en agua mostrasen mayores a_w . La no concordancia de resultados de la misma muestra sometida a diferentes métodos de secado podría deberse a las diferentes proporciones de miel: MD o a diferentes efectos estéricos en las mieles en polvo obtenidas mediante ambos métodos. Sin embargo, la a_w no dependió del procedimiento de secado y la concentración de miel o el origen botánico de las mieles (Tabla 5A). El secado a vacío redujo la a_w entre un 56% y un 67% y la liofilización entre un 55% y un 62%, siendo estos porcentajes mayores que el valor obtenido por Nedić et al. (2020) (28%). En consecuencia, nuestra miel en polvo podría ser menos susceptible al crecimiento microbiano, evitando la posibilidad de fermentación, ya que la mayoría de los microorganismos no pueden multiplicarse por debajo de 0,900 a_w y la división celular de especies extremófilas se evita por debajo de 0,61 a_w (Bouhlali et al., 2019).

3.2.3. Color

La Tabla 3 muestra los valores de triestímulo del espacio de color CielAB de mieles en polvo obtenidas mediante liofilización y secado a vacío.

Para los métodos de secado a vacío y liofilización, el valor más alto de L^* se obtuvo en la muestra LVP1, que mostró la intensidad de color más clara en comparación con las muestras de otros orígenes botánicos. Después del secado, todos los valores de L^* de mieles en polvo fueron más altos que los valores de L^* de las mieles crudas porque, durante el proceso de secado, las muestras se aclararon, tendiendo a un color blanquecino, probablemente relacionado con la adición de MD.

Todos los valores de a^* de mieles en polvo fueron más bajos que los de las mieles crudas (Tabla 2), excepto en LVP2. En general, VC-P exhibió valores de a^* más altos que FZ-P, tendiendo a mostrar colores rojizos, probablemente debido a reacciones de Maillard, caramelización de fructosa y reacciones de deterioro de polifenoles a 60 °C (Gonzales et al., 1991).

Todos los valores de b^* de mieles en polvo tendieron hacia el amarillo. Como ocurrió con a^* , los valores de b^* de mieles en polvo también fueron más bajos que los de las mieles crudas (Tabla 2), principalmente debido a la adición de MD (factor de dilución), excepto en LVP2 y MP3 elaboradas mediante secado a vacío y liofilización. LV2 y M3 fueron las mieles con los valores más bajos de b^* (Tabla 2), por lo que el procedimiento de secado afectó a los valores finales de b^* de sus polvos.

Los valores obtenidos para L^* , a^* , b^* de VC-P fueron similares a los obtenidos por Nurhadi et al. (Nurhadi et al., 2022) en muestras obtenidas por secado a vacío usando MD ($L^* = 90,39$; $a^* = 0,06$; $b^* = 14,29$). Por el contrario, nuestros resultados obtenidos para FZ-P fueron ligeramente diferentes de los de Ganaie et al. (2021) ($L^* = 90,84$; $a^* = 0,01$; $b^* = 12,52$).

Tabla 5. Efecto de la interacción (ANOVA multifactorial) entre los procedimientos de secado (usando la concentración más apropiada de miel-maltodextrina para cada técnica de secado) y el origen botánico sobre las propiedades fisicoquímicas (A) y bioactivas (B) de las mieles en polvo.

(A)	Contenido en agua		Índice de higroscopicidad	a_w	L^*	a^*	b^*	Solubilidad	Densidad compacta	T_g1	
A: Proceso de secado- Concentración de miel	**		***	NS	NS	***	NS	***	***	***	
B: Bot. Orig.	**		NS	NS	***	***	***	**	***	NS	
Interacción: AB	**		NS	NS	**	**	*	**	*	NS	
(B)	TPC	TPC-E	TFCC	TFCQ	ABTS ^{•+}	ROO [•]	•OH	O ₂ ^{•-}	<i>St. aureus</i>	<i>L. mono</i>	<i>E. coli</i>
A: Proceso de secado- Concentración de miel	**	NS	NS	NS	**	**	NS	NS	**	NS	***
B: Bot. Orig.	***	***	***	***	***	***	NS	**	NS	**	***
Interacción: AB	NS	NS	**	**	NS	***	NS	NS	NS	NS	***

Bot. Orig.: origen botánico; TPC: contenido fenólico total; TPC-E: contenido fenólico total en extractos metanólicos; TFCC: flavanoles; TFCQ: flavonas/flavonoles; Anti-infl.; antiinflamatorio; L. mono: *L. monocytogenes*. * valor $p < 0,05$; ** valor $p < 0,01$; *** valor $p < 0,001$; NS: no significativo.

El origen botánico de las mieles y su interacción con el procedimiento de secado–concentración de miel fueron los factores que demostraron una influencia en los valores de L^* , a^* y b^* . El método de secado–concentración de miel solo influyó en los valores de a^* (Tabla 5A). El color final de la miel en polvo dependió del color inicial de la miel, claramente influenciado por el origen botánico. La influencia de la interacción del procedimiento de secado–concentración de miel y el origen botánico podría explicarse por el hecho de que el color final también dependía del contenido de compuestos de Maillard, que estaba relacionado con la temperatura del procedimiento, el contenido de miel en la muestra original (que, a su vez, dependía del procedimiento de secado–concentración de miel) y la composición de azúcares en la muestra original (que, a su vez, dependía del origen botánico). La influencia de los tres factores se observó más intensamente en el valor de a^* (color rojo) ya que los compuestos de Maillard son marrones con una intensa influencia del rojo. El color de la miel cruda resultó ser el factor principal que influyó en los parámetros L^* y b^* , estando relacionado con el origen botánico y la cantidad de miel, lo que explicó la influencia de la interacción entre el origen botánico y el procedimiento de secado–concentración de miel.

3.2.4. Solubilidad y densidad compacta

Nuestros tiempos de solubilidad fueron más bajos que los descritos por Nurhadi et al. (2012) (MD-VC: 1,08 min) y ligeramente más altos que los obtenidos por Nurhadi et al. (2022) (15,74 s) en otro ensayo con las mismas condiciones. FZ-P mostró valores de solubilidad más altos en comparación con VC-P y los datos de solubilidad de otros investigadores. Por lo tanto, el método de secado–concentración de miel demostró una gran influencia en la solubilidad de las muestras en agua, así como el origen botánico de las muestras, y la interacción entre ambos factores (Tabla 5A). A diferencia de lo que indicaron otros autores como Samborska y Bieńskowska (2013), en este estudio, el contenido de humedad no influyó en el comportamiento de solubilidad de las muestras, ya que nuestros resultados mostraron que, aunque la mayoría de las mieles evaluadas tenían un porcentaje de humedad similar, su solubilidad era diferente ($r = -0,3089$; $p = 0,0676$).

La densidad compacta fue más alta en VC-P que en FZ-P, con una fuerte correlación positiva con la solubilidad ($r = 0,8824$; $p = 0,000$), lo cual también había sido descrito por Mutlu & Erbas (2021) en mieles en polvo obtenidas

mediante secado a vacío y atomización. Ganaie et al. (2021) presentaron valores similares en mieles en polvo obtenidas mediante liofilización usando MD (0,52 g/mL) y por Nurhadi et al. (2022) en mieles en polvo obtenidas mediante secado a vacío usando MD (0,80 g/mL). Mutlu & Erbas (2021) también obtuvieron valores similares para mieles en polvo elaboradas a vacío (0,72 g/mL). Dentro de los VC-P, LV-P presentó la densidad compacta más alta, seguido por M-P, V-P y finalmente TH-P. En el caso de las mieles en polvo obtenidas mediante liofilización no hubo una tendencia clara basada en el origen botánico. En estudios previos que compararon el mismo procedimiento de secado, se observó que la densidad compacta aumentaba a medida que aumentaba la concentración de miel o disminuía la concentración del coadyuvante (Suhag et al., 2016). Sin embargo, los resultados de este estudio demostraron que la densidad compacta estaba más influenciada por el procedimiento de secado que por la concentración de miel, ya que en lugar de ser las muestras FZ-P (73% miel) las que tenían el mayor valor, fueron las muestras VC-P (57% miel) las mieles en polvo que mostraron los valores de densidad compacta más altos. Esta influencia del procedimiento de secado en la densidad compacta puede explicarse debido a las diferencias en la porosidad de las partículas de polvo formadas por cada procedimiento. Además, Shi et al. (2013) y Mutlu et al. (2020) afirmaron que, a mayor contenido de humedad en los alimentos, menor es la densidad compacta. Esta afirmación coincide con nuestros resultados porque, en nuestro caso, las muestras obtenidas mediante liofilización fueron las que tuvieron el mayor contenido de humedad, mostrando una correlación negativa ($r = -0,5534$; $p = 0,0011$). Así, se necesita un mayor espacio para el almacenamiento, envasado y distribución de FZ-P, aunque FZ-P podría ser menos susceptible a fenómenos de cohesión y aglomeración (Osés et al., 2021). El origen botánico y los métodos de secado fueron factores que influyeron en la densidad de las mieles en polvo, influyendo la interacción de estos dos factores en menor medida (Tabla 5A).

3.2.5. Higroscopicidad

La miel en polvo es altamente higroscópica por naturaleza debido a la alta capacidad de absorción de humedad de la fructosa (Suhag & Nanda, 2016). FZ-P mostró un índice higroscópico menor ($p < 0,05$) (2,92 – 3,66%) que VC-P (8,24 – 13,81%) (Tabla 4). El método de secado–concentración de miel demostraron influir en la higroscopicidad (Tabla 5A). Los resultados de VC-P fueron similares a los obtenidos por Nurhadi et al. (2012) (12,0%) y

menores que los valores obtenidos por Mutlu & Erbas (2021) en mieles en polvo deshidratadas por VC (14,56%). En M-P secadas mediante liofilización usando MD, Ganaie et al. (2021) describieron un índice higroscópico del 28,67%, que fue considerablemente más alto que nuestros valores. La tasa higroscópica (cantidad de agua ganada por minuto) varió en VC-P de 2×10^{-5} a 1.9×10^{-4} g H₂O/min y en FZ-P de 4×10^{-5} a 6×10^{-5} g H₂O/min. Durante las primeras 4 horas, VC-P absorbió agua más rápidamente que FZ-P. Nurhadi et al. (2012) obtuvieron un valor de $2,4 \times 10^{-4}$ g H₂O/min para mieles en polvo elaboradas mediante secado a vacío usando MD.

Shi et al. (2013) observaron una correlación inversa entre la humedad y la higroscopicidad de las mieles en polvo. La misma correlación se observó en este estudio, aunque fue muy débil ($r = -0,4522$, $p = 0,001$). Se notó una correlación moderada entre la higroscopicidad y la densidad ($r = 0,6584$, $p = 0,0001$) y entre la higroscopicidad y el tiempo de solubilidad ($r = 0,6775$, $p = 0,0001$).

Así, las muestras con niveles más altos de higroscopicidad exhibieron una mayor compactibilidad y una menor solubilidad.

3.3. Propiedades potencialmente bioactivas de las mieles en polvo

3.3.1. Contenido de fenoles totales (TPC) y contenido de flavonoides totales (TFC)

La Figura 1A muestra el contenido de fenoles totales (TPC) de las mieles en polvo. VP1 mostró los valores más bajos de TPC tanto para VC-P (37,37 mg GA/100 g m.s.) como para FZ-P (17,19 mg GA/100 g m.s.). THP2 exhibió los valores más altos tanto en las secadas a vacío (97,54 mg GA/100 g m.s.) como en las obtenidas mediante liofilización (78,67 mg GA/100 g m.s.), aunque FZ-THP2 no mostró diferencias significativas en comparación con FZ-MP3. Por otro lado, se observó un TPC más alto en VC-P que en FZ-P (excepto para MP3), a pesar de que el contenido de miel era mayor en FZ-P (73% miel) en comparación con VC-P (57% miel). Este TPC más alto se debió posiblemente a los compuestos de Maillard formados durante el proceso de calentamiento (60 °C/48 h), que podrían haber influido en el color medido a 734 nm. Aunque no se observó una tendencia clara basada en el origen botánico de las mieles, tanto el procedimiento de secado–concentración de miel como el origen botánico de la miel influyeron significativamente en el TPC (Tabla 5B). Keke & Cinkmanis (2021) obtuvieron un TPC más alto en miel de trigo sarraceno

en polvo con MD usando la liofilización (92 – 130 mg GA/100 g m.s.), y Osés et al. (2022) también obtuvieron valores más altos en miel de brechina en polvo (LHP) con MD usando el secado a vacío (29,64 a 143,95 mg GA/100 g m.s.) y la liofilización (74,35 a 149,72 mg GA/100 g m.s.). El TPC de las mieles en polvo fue menor que el TPC de las mieles crudas, con excepción de VC-VP1 (Tabla 2). Las mieles en polvo demostraron ser capaces de retener entre el 49,7% y el 114,2% de los compuestos fenólicos, manteniendo los polifenoles presentes en las mieles. El TPC en extractos metanólicos (TPC-E) se evaluó para eliminar la interferencia de otras sustancias reductoras (por ejemplo, azúcares) que reaccionan con el reactivo de Folin–Ciocalteu en los TPC de miel. Como se esperaba, el TPC-E fue más bajo que el TPC (Figura 1B). Los extractos metanólicos de VC-P mostraron el TPC más alto (3,45–16,86 mg GA/100 g m.s.) en comparación con los extractos de FZ-P (0,411–15,30 mg GA/100 g m.s.), con la excepción de la muestra THP1. Como era de esperar, la muestra VP1 mostró el TPC-E más bajo. MP3 fue el polvo con el TPC-E más alto respecto a las secadas a vacío, mientras que THP1 fue el polvo con el TPC-E más alto respecto a las liofilizadas. El TPC-E estuvo influenciado por el origen botánico de las mieles (Tabla 5B).

Los flavanoles (TFCC) variaron (Figura 1C) de 5,39 a 20,45 mg C_t/100 g m.s., mientras que las flavonas/flavonoles (TFCQ) (Figura 1D) variaron de 0,757 a 2,90 mg Q/100 g m.s., siendo los valores superiores a los obtenidos para las mieles crudas (Tabla 2). VC-VP1 y FZ-VP1 mostraron los valores más bajos de TFC (tanto para TFCC como para TFCQ). En general, no hubo diferencias significativas en TFCC considerando el método de secado–concentración de miel. Sin embargo, en cuanto a TFCQ, VC-MP mostró contenidos más altos, mientras que, para el resto de las mieles en polvo, las muestras liofilizadas exhibieron contenidos más altos. El ANOVA multifactorial mostró que, a diferencia del método de secado, el origen botánico influyó en el TFC (Tabla 5B). Los rangos de TFCC y TFCQ fueron más bajos que los obtenidos por Osés et al. [21] en LHP (0,38 – 36,3 mg C_t/100 g m.s. y 0 – 3,6 mg Q/100 g m.s.). En comparación con las mieles crudas (Tabla 2), los valores de TFCC de la miel en polvo fueron más altos, probablemente debido a la interferencia de la MD.

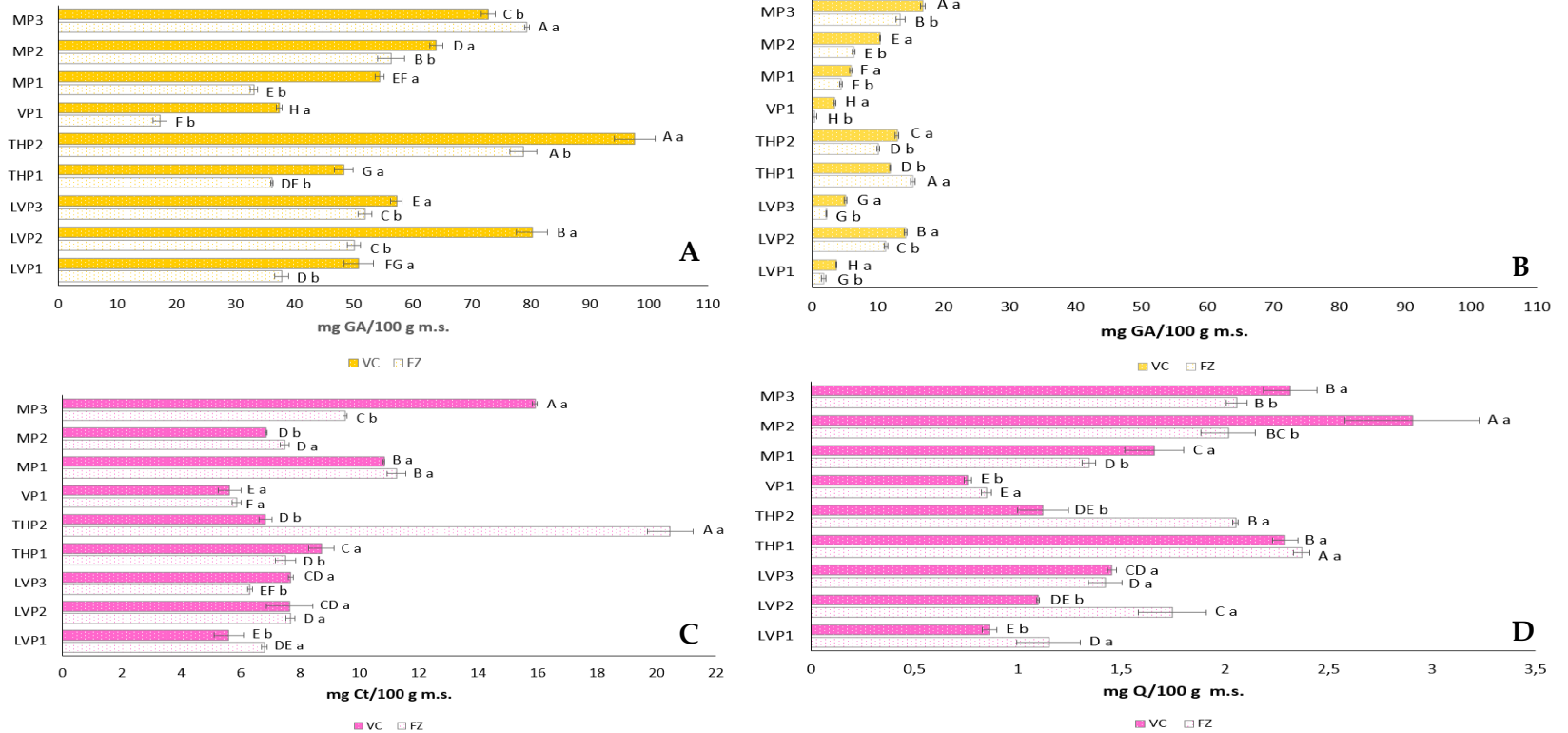


Figura 1. Fenoles totales (mg de GA/100 g (m.s.)) de miel en polvo (A) y sus extractos metanólicos (B), flavanoles totales (mg de Ct/100 g (m.s.)) (C) y flavonas/flavonoles totales (mg de Q/100 g (m.s.)) (D) obtenidos mediante secado a vacío (VC) y liofilización (FZ) utilizando maltodextrina (MD) (n = 3). Las barras de error representan la desviación estándar para cada punto de datos. Letras mayúsculas diferentes (A–H) indican diferencias significativas ($p < 0,05$) entre diferentes mieles. Letras minúsculas diferentes (a, b) indican diferencias significativas ($p < 0,05$) entre procedimientos de secado. Ct: catequina; Q: quercetina; LVP: miel en polvo de lavanda; THP: miel en polvo de tomillo; VP: miel en polvo de veza; MP: miel en polvo multifloral.

3.3.2. Actividades antirradicales libres

La Figura 2 muestra las actividades antirradicales libres de las mieles en polvo. TEAC (capacidad antioxidante equivalente a Trolox) (Figura 2A), frente a $\text{ABTS}^{\bullet+}$, osciló entre 230,83 y 365,58 $\mu\text{mol T}/100 \text{ g m.s.}$ para VC-P, y entre 194,18 y 332,25 $\mu\text{mol T}/100 \text{ g m.s.}$ para FZ-P. Los valores más bajos de TEAC se observaron en VC-LVP1 y FZ-VP1. No se encontraron diferencias significativas ($p < 0,05$) para las muestras VC-THP1 y VC-VP1 y para las muestras FZ-LVP1 y FZ-LVP3. VC-MP2 y FZ-MP3 exhibieron los valores más altos de TEAC. En general, VC-P obtuvo un TEAC más alto que FZ-P, probablemente debido a los compuestos de Maillard, que podrían contribuir a un aumento de las actividades antioxidantes. Los valores de TEAC de las mieles en polvo fueron más altos que los valores de TEAC de las mieles crudas (Tabla 2). MD exhibió un alto valor de TEAC (193,43 $\mu\text{mol T}/100 \text{ g m.s.}$), contribuyendo a la actividad anti- $\text{ABTS}^{\bullet+}$ de las mieles en polvo. Nuestros valores de TEAC fueron similares a los obtenidos por Mutlu & Erbas (2021) para mieles en polvo de miel de flores obtenidas con MD mediante ambas técnicas, secado a vacío y atomización (251 $\mu\text{mol T}/100 \text{ g}$), y por Samborska et al. (2020) para polvos obtenidos mediante secado por atomización, también utilizando MD (726 mg T/kg = 290 $\mu\text{mol T}/100 \text{ g sólidos}$). Nuestros valores de TEAC fueron más bajos que los de VC-LHP y FZ-LHP obtenidos por Osés et al. (2022) (317 – 673 $\mu\text{mol T}/100 \text{ g m.s.}$), usando MD. Se demostró que el TEAC estaba influenciado por el método de secado–concentración de miel y el origen botánico de las mieles (Tabla 5B), siendo esta última influencia también descrita por Rivero et al. (2021). La capacidad de absorción de radicales de oxígeno (ORAC) frente a $\text{ROO}^{\bullet}$ (Figura 2B) osciló entre 12,05 y 30,77 $\mu\text{mol T}/100 \text{ g m.s.}$ para VC-P, mientras que para FZ-P, varió de 13,15 a 63,47 $\mu\text{mol T}/100 \text{ g m.s.}$ Se obtuvo un valor ORAC de 15,21 $\mu\text{mol T}/100 \text{ g}$ para MD. Los resultados del ORAC fue mayor para la mayoría de las mieles en comparación con las mieles en polvo (Tabla 2). Nuestros ORACs fueron similares a las capacidades obtenidas por Osés et al. (2022) en VC-LHP y FZ-LHP usando MD (13,40 – 55,88 $\mu\text{mol T}/100 \text{ g m.s.}$). Se demostró que los resultados del ORAC estaba altamente influenciado por el origen botánico de las mieles, el método de secado–concentración de miel y la interacción de ambos factores (Tabla 5B).

La actividad secuestrante de radicales hidroxilos (AOA) (Figura 2C) fluctuó entre 0,036 y 0,082 mmol AU/100 g m.s. para VC-P y entre 0,065 y 0,086 mmol AU/100 g m.s. para FZ-P. MD mostró una AOA de 0,160 mmol AU/100 g

(Osés et al., 2022), influenciando así la actividad de las muestras. Ni el origen botánico ni el procedimiento de secado influyeron significativamente en la AOA (Tabla 5B). En este trabajo, los resultados de AOA fueron superiores a los de LHP obtenidos mediante secado a vacío y liofilización usando MD (0,037 – 0,061 mmol AU/100 g m.s.) (Osés et al., 2022).

La actividad secuestrante de radicales superóxidos (SRS) (Figura 2D) osciló entre el 7% y el 45% para las muestras secadas a vacío y entre el 9,5% y el 40% para las muestras liofilizadas, siendo el porcentaje de inhibición de MD del 5,5%. Tanto para muestras secadas a vacío como para las liofilizadas, MP3 mostró la mayor inhibición. No se encontraron diferencias entre las SRS de mieles en polvo obtenidas mediante secado a vacío y liofilización ($p \leq 0,05$), excepto para las muestras MP1 y MP2, cuyos resultados de SRS fueron superiores en las muestras secadas a vacío. Las SRS fueron inferiores en las mieles en polvo que en las mieles crudas (Tabla 2). En general, las SRS también fueron inferiores a la actividad anti- $O_2^{\bullet-}$ de LHP obtenida mediante secado a vacío y liofilización usando MD (11 – 88%) (Osés et al., 2022). La SRS esta influenciada por el origen botánico de las mieles, pero no por el método de secado (Tabla 5B).

Estos resultados muestran que la actividad antirradical de la miel en polvo frente a diferentes radicales es diferente y depende de diferentes compuestos en la miel, que pueden variar cuantitativa o cualitativamente de una miel a otra y que pueden o no ser modificados por el proceso de secado. El análisis estadístico muestra una correlación positiva entre las actividades frente a los radicales $ABTS^{\bullet+}$, $ROO^{\bullet}$ y $O_2^{\bullet-}$ con los fenoles totales y flavonoides (r entre 0,329 y 0,6298; $p < 0,05$), mientras que no hay correlación entre estos compuestos y la actividad frente al radical $\bullet OH$ ($p > 0,05$).

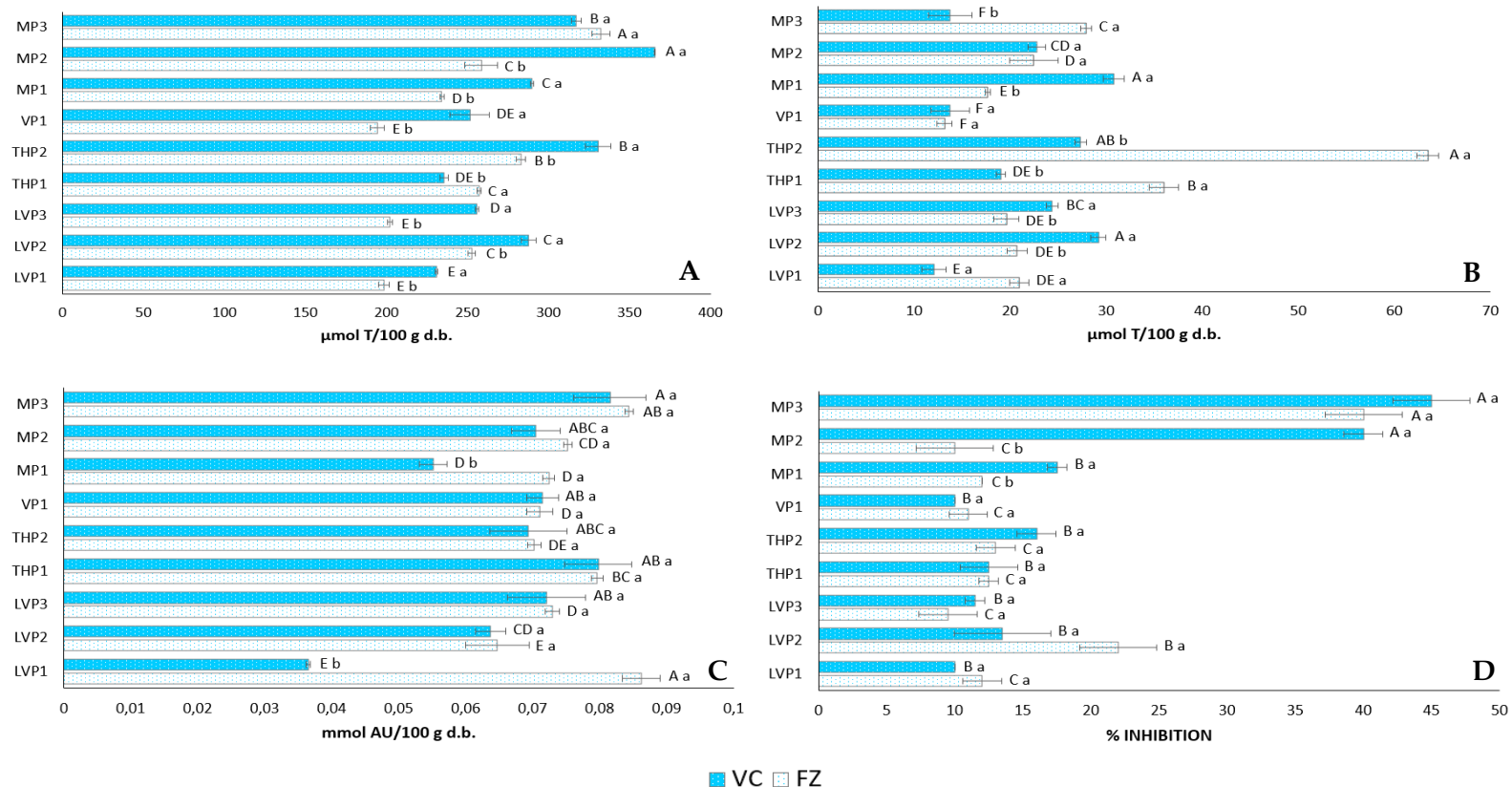


Figura 2. Actividad antioxidante de las mieles en polvo obtenidas por liofilización (FZ) y secado a vacío (VC), utilizando maltodextrina (MD) frente a diferentes radicales (ABTS^{•+} (A), ROO[•] (B), •OH (C) y O₂^{•-} (D)) (n = 3). Las barras de error representan la desviación estándar para cada punto de datos. Letras mayúsculas diferentes (A–F) indican diferencias significativas (p < 0,05) entre los diferentes orígenes botánicos. Letras minúsculas diferentes (a, b) indican diferencias significativas (p < 0,05) entre procedimientos de secado. LV-P: miel en polvo de lavanda; TH-P: miel en polvo de tomillo; V-P: miel en polvo de veza; M-P: miel en polvo multifloral.

3.3.3. Actividad anti-inflamatoria

La actividad antiinflamatoria de P (Figura 3) fluctuó entre el 28,53 y el 51,72% (VC) y entre el 35,69 y el 72,81% (FZ). MD no mostró inhibición de hialuronidasa (Osés et al., 2021). Los porcentajes de inhibición fueron más altos en las muestras liofilizadas (73% miel) que en las muestras secadas a vacío (57% miel), excepto para THP2. En comparación con las mieles crudas (Tabla 2), la actividad anti-inflamatoria fue similar para FZ-P y menor para VC-P. La actividad anti-inflamatoria se vio afectada por el método de secado-concentración de miel, el origen botánico de las mieles y la interacción de ambos factores (Tabla 5B), pareciendo estar fuertemente influenciada por la concentración de miel. Sin embargo, esta actividad no estuvo correlacionada con los fenoles totales o los flavonoides totales ($p > 0,05$).

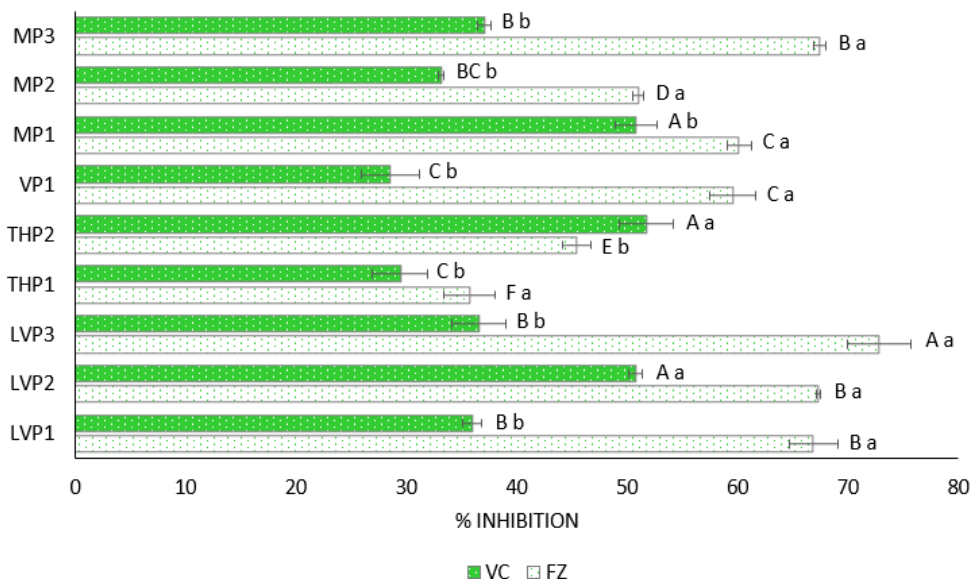


Figura 3. Actividad anti-inflamatoria de mieles en polvo obtenidas mediante secado a vacío (VC) y secado por liofilización (FZ), utilizando maltodextrina (MD) ($n = 3$). Las barras de error representan la desviación estándar de cada punto de datos. Las diferentes letras mayúsculas (A-F) indican diferencias significativas ($p < 0,05$) entre los diferentes orígenes botánicos. Las diferentes letras minúsculas (a,b) indican diferencias significativas ($p < 0,05$) entre los procedimientos de secado. LVP: miel en polvo de lavanda; THP: miel en polvo de tomillo; VP: miel en polvo de veza; MP: miel en polvo multifloral.

3.3.4. Actividades antimicrobianas

La Figura 4 muestra los resultados de la actividad antimicrobiana de las mieles en polvo en un rango de concentración entre el 5 y el 70%, utilizando el método de microdilución en caldo. MD no mostró actividad antimicrobiana para las concentraciones ensayadas (Osés et al., 2022). Las

mieles en polvo mostraron un MBC entre el 20% y superiores al 70%. En general, *L. monocytogenes* (Figura 4C) fue el microorganismo más resistente, mientras que *St. aureus* (Figura 4A) fue el más sensible para la mayoría de las muestras. Sin embargo, para LVP1, VP1 y MP1, *L. monocytogenes* fue el microorganismo más sensible. Las actividades antimicrobianas frente a *St. aureus* y *E. coli* (Figuras 4A, B) fueron similares o menores en VC-P (57% miel) que en FZ-P (73% miel), excepto para MP2, en relación con *E. coli*, donde el MBC fue mayor para FZ-MP2 que para VC-MP2. Este hecho podría deberse al proceso de calentamiento involucrado durante el secado a vacío, con posibles pérdidas de algunos compuestos volátiles con actividad antimicrobiana y también debido a la menor concentración de miel en VC-P. Tomczyk et al. (2020) llegaron a la misma conclusión, al no haber obtenido actividad antibacteriana en mieles en polvo elaboradas mediante secado por atomización utilizando MD, en este caso debido a pérdidas de compuestos termolábiles de la miel y a la dilución del polvo en un 50% con MD. Sin embargo, las mieles en polvo mostraron un comportamiento diferente para *L. monocytogenes*, siendo los valores de MBC de VC-P y FZ-P similares, excepto para LVP2, VP1 y MP1, cuyos MBCs también fueron menores para VC-P.

Para la mayoría de las muestras, las MBC de las mieles en polvo fueron más altas que las de las mieles crudas (Tabla 2), exhibiendo así una menor actividad antimicrobiana. Las MBC para *St. aureus* y *E. coli* fueron influenciadas por el método de secado-concentración de miel. Las MBC para *L. monocytogenes* y *E. coli* fueron influenciadas por el origen botánico de las muestras

3.1. Análisis estadístico

Se realizaron dos Análisis de Componentes Principales (PCA): uno sobre los resultados físico-químicos y otro sobre las propiedades bioactivas. En cuanto al PCA sobre las propiedades físico-químicas (Figura 5A), la primera componente explicó el 49,05% de la varianza, mientras que la segunda componente explicó el 34,63%. La PC1 fue definida principalmente por la higroscopicidad y a_w , mientras que el PC2 se definió principalmente por L^* . Las muestras de mieles en polvo se separaron en dos grupos. El primero estaba compuesto por VC-P (en el lado derecho de la Figura 5A), y el segundo (en el lado izquierdo de la Figura 5A) por FZ-P. VC-P se caracterizó por una mayor densidad, higroscopicidad, a_w y a^* , así como por una menor

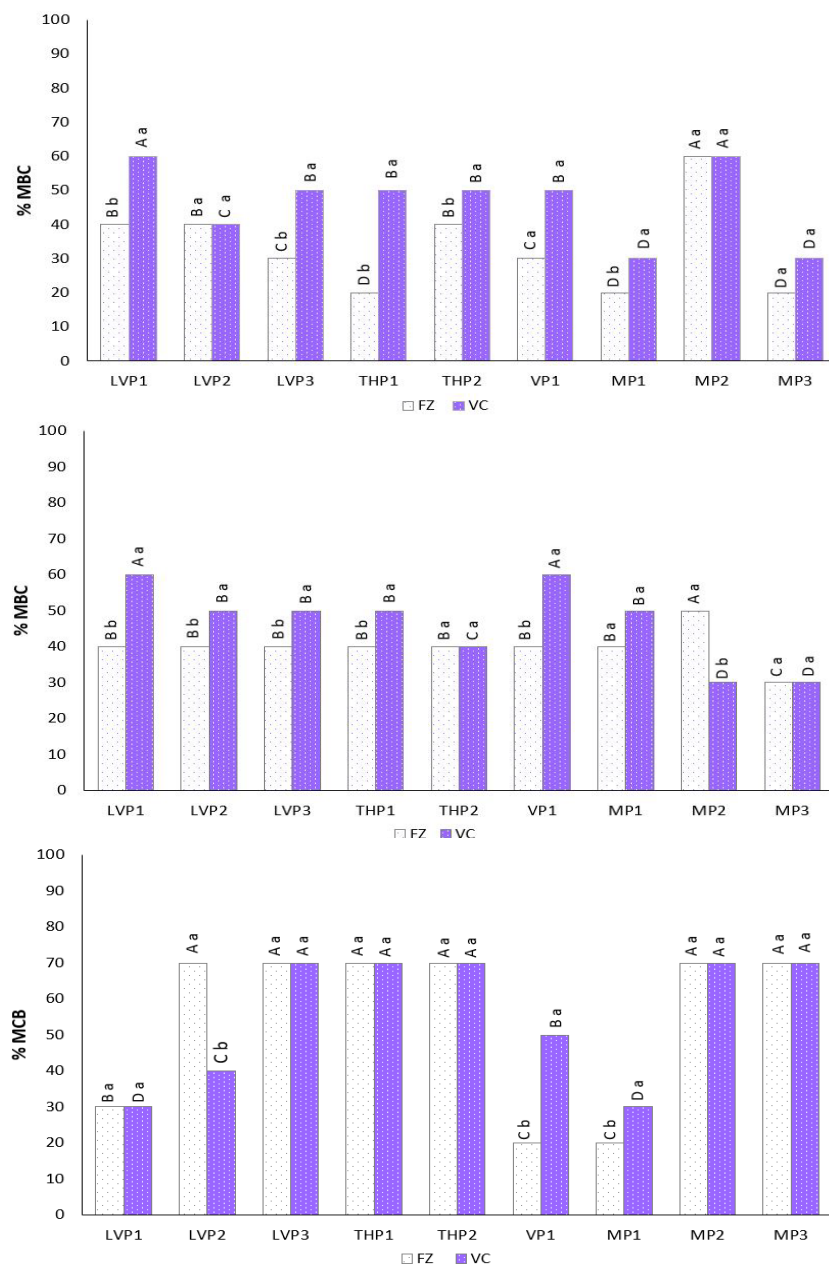


Figura 4. Concentración mínima bactericida (MBC) de las mieles en polvo obtenidas mediante secado a vacío (VC) y secado por liofilización (FZ), utilizando maltodextrina (MD), expresado como % de miel frente a *St. aureus* (A), *E. coli* (B) y *L. monocytogenes* (C) (n = 3). Los triplicados muestran MBC idénticas para cada muestra. Las letras mayúsculas diferentes (A–D) indican diferencias significativas (p < 0,05) entre los diferentes orígenes botánicos. Las letras minúsculas diferentes (a, b) indican diferencias significativas (p < 0,05) entre los procedimientos de secado. LVP: miel en polvo de lavanda; THP: miel en polvo de tomillo; VP: miel en polvo de veza; MP: miel en polvo multifloral.

solubilidad y contenido en agua en comparación con FZ-P. En cuanto al PCA sobre las propiedades bioactivas (Figura 5B), la primera componente explicó el 40,41% de la varianza y la segunda componente el 21,10%. La PC1 fue definida por TPC, TFC, SRS, TEAC y ORAC, mientras que la PC2, se definió por la actividad anti-inflamatoria, AOA y la actividad antimicrobiana frente a *St. aureus*. Nuevamente, las mieles en polvo se separaron en dos grupos. El primero (en la Figura 5B, arriba) estaba compuesto por todos los VC-P y el segundo (en la Figura 5B, abajo) estaba compuesto por la mayoría de los FZ-P, siendo estos últimos caracterizados por una mayor AOA y actividades anti-inflamatorias, así como por una mayor actividad antimicrobiana frente a *St. aureus* y *E. coli*. Aunque el análisis de PCA separó las muestras según los factores del procedimiento de secado-concentración de miel, el origen botánico también mostró una influencia (Tabla 5). Esta influencia también fue descrita por Tomczyk et al. (2020), quienes afirmaron que la calidad de la miel en polvo estaba directamente relacionada con el origen botánico de la miel utilizada para la producción de miel en polvo.

4. Conclusiones

La mayoría de las mieles en polvo mostraron menores valores de TPC, ORAC, SRS y actividades antimicrobianas en comparación con la miel cruda correspondiente, mientras que los valores de TFC y TEAC fueron mayores en las mieles en polvo. El secado por liofilización proporcionó una mayor recuperación, con una concentración final de miel en el polvo superior a la del secado a vacío. Las mieles en polvo obtenidas por liofilización mostraron mayor contenido en agua y solubilidad, así como menor densidad e higroscopicidad en comparación con los obtenidos por secado a vacío. La T_g , el contenido en agua, la higroscopicidad, la solubilidad, la densidad, el TPC, las actividades antioxidantes TEAC, ORAC, la actividad anti-inflamatoria y la actividad antimicrobiana frente a *St. aureus* y *E. coli* dependieron del método de secado (utilizando la concentración de miel-maltodextrina más adecuada para cada técnica de secado). El contenido en agua, el color, la solubilidad, la densidad, el TPC, las actividades antioxidantes TEAC, ORAC y SRS, la actividad anti-inflamatoria y la actividad antimicrobiana frente a *L. monocytogenes* y *E. coli* dependieron del origen botánico de la miel.

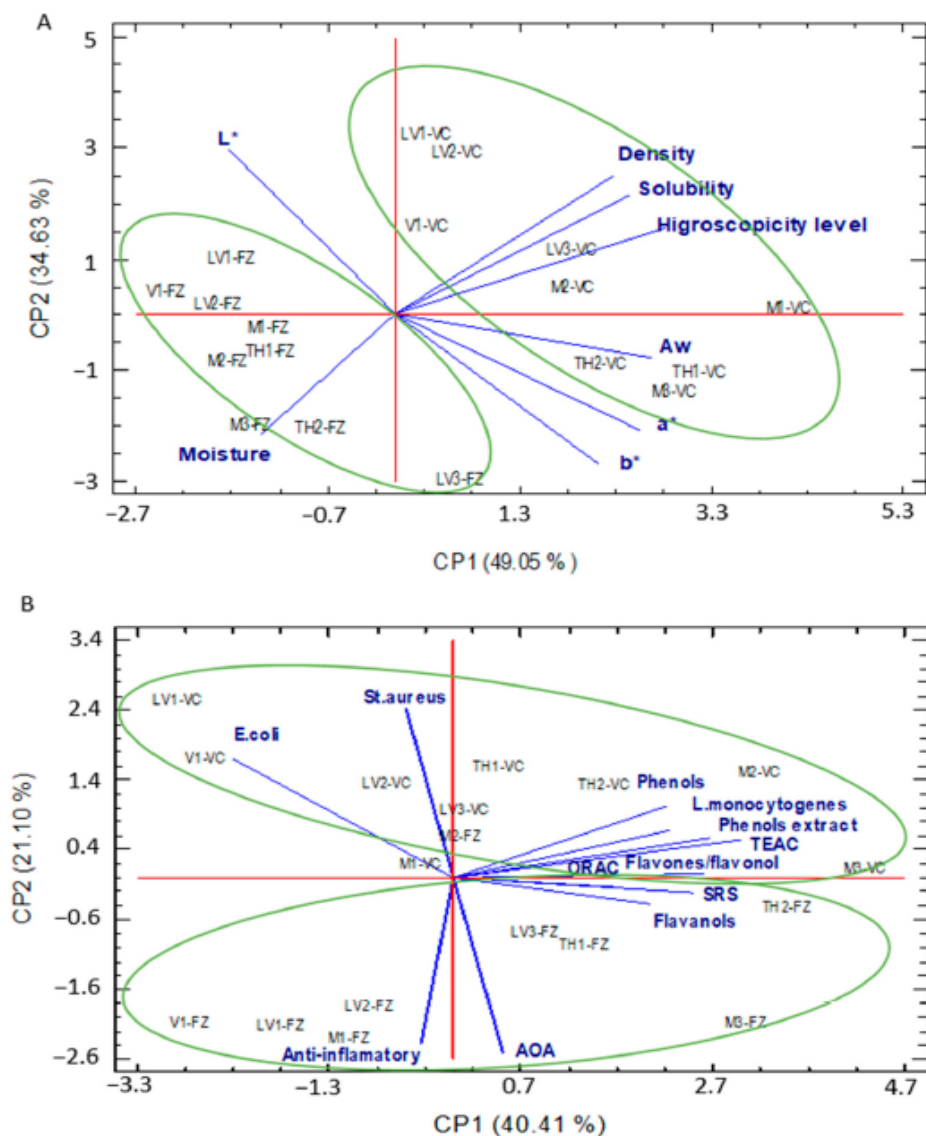


Figura 5. Análisis de componentes principales de las propiedades físico-químicas (A) y de las propiedades potencialmente bioactivas (B) de la miel en polvo obtenida mediante secado a vacío (VC) y liofilización (FZ). LVP: miel en polvo de lavanda; THP: miel en polvo de tomillo; VP: miel en polvo de veza; MP: miel en polvo multifloral.

Nuestros resultados muestran que la miel en polvo es un sustituto prometedor de la miel en su estado natural en alimentos, así como en las industrias farmacéutica y cosmética, ya que conserva las ventajas de la miel cruda, siendo más fácil de transportar, almacenar y utilizar. Además, los consumidores y los mercados son cada vez más exigentes, demandando productos naturales con la menor cantidad posible de aditivos. La miel secada mediante secado a vacío y liofilización con un ingrediente natural (maltodextrina) puede ser conservada a bajas temperaturas sin necesidad de añadir agentes antiaglomerantes adicionales, por lo que podría etiquetarse con una “Etiqueta Limpia” como “Comida Real”, ayudando a mejorar su comercialización.

Material Suplementario: La siguiente información de apoyo puede descargarse en: <https://www.mdpi.com/article/10.3390/foods12213990/s1> , Figura S1: Propiedades físicas de los polvos de miel (Nurhadi et al., 2012; Samborska & Bienkowska, 2013; Cordella et al., 2002; Samborska et al., 2015; Suhag & Nanda, 2015); Figura S2: Propiedades biológicas de los polvos de miel (Osés et al., 2022; Meda et al., 2015; Pękal & Pyrzynska, 2014; Sancho et al., 2016; Osés et al., 2020; Koracevic et al., 2001; Küçük et al., 2007; Ferreres et al., 2012); Tabla S1: Lista de abreviaturas.

Referencias

- Antony, S., Rieck, J.R., & Dawson, P.L. (2000). Effect of dry honey on oxidation in turkey breast meat. *Poultry Science*, 79, 1846–1850. <https://doi.org/10.1093/ps/79.12.1846>
- Association of Official Analytical Chemists (AOAC). (2012). In *Official Methods of Analysis of AOAC International*; Latimer, J.W. (Ed.) AOAC: Gaithersburg, MD, USA.
- Bhatta, S., Stevanovic, T., & Ratti, C. (2020). Freeze-drying of maple syrup: Efficient protocol formulation and evaluation of poder physicochemical properties. *Drying Technology*, 8, 1138–1150. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1080/07373937.2019.1616751>
- Bogdanov, S. (2009). *Harmonised Methods of the International Honey Commission*. Available online: <http://www.ihc-platform.net/ihcmethods2009.pdf> (accessed on 10 April 2023).
- Bouhlali, E.T., Bammou, M., Sellam, K., El Midaoui, A., Bourkhis, B., Ennassir, J., Alem, C., & Filali-Zegzouti, Y. (2019). Physicochemical properties of eleven monofloral honey samples produced in Morocco. *Arab Journal of Basic & Applied Sciences*, 26, 476–487. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1080/25765299.2019.1687119>
- Codex Alimentarius Standard for Honey. (2001). Codex Standard for Honey 12-1981. In *Revised Codex Standard for Honey; Standards and Standard Methods*: Roma, Italy; p. 11. Available online: https://www.fao.org/fao-who-codexalimentarius/sh-proxy/en/?lnk=1&url=https%253A%252F%252Fworkspace.fao.org%252Fsites%252Fcodex%252FStandards%252FCXS%2B12-1981%252FCXS_012e.pdf (accessed on 10 April 2023).
- Commission Internationale de L'clairage-CIE. (2004). *Technical Report*, 3rd ed.; CIE: Vienna, Austria.
- Cordella, C., Antinelli, J.F., Aurieres, C., Faucon, J.P., Cabrol-Bass, D., & Sbirrazzuoli, N. (2002). Use of differential scanning calorimetry (DSC) as a new technique for detection of adulteration in honeys. 1. Study of adulteration effect on honey thermal behavior. *Journal of Agricultura & Food Chemistry*, 50, 203–208. <https://doi.org/10.1021/jf010752s>
- Ferreres, F., Lopes, G., Gil-Izquierdo, A., Andrade, P., Sousa, C., Mouga, T., & Valentao, P. (2012). Phlorotannin extracts from fucals characterized by HPLC-DAD-ESI-MSn: Approaches to hyaluronidase inhibitory capacity and antioxidant properties. *Marine Drugs*, 10, 2766–2781. <https://doi.org/10.3390/md10122766>
- Ganaie, T.A., Masoodi, F.A., Rather, S.A., & Gani, A. (2021). Exploiting maltodextrin and whey protein isolate macromolecules as carriers for the development of freeze dried honey powder. *Carbohydrate Polymer Technologies & Applications*, 2, 100040. <https://doi.org/10.1016/j.carpta.2021.100040>
- Gonzales, A.P., Burin, L., & Buera, M.P. (1991). Color changes during storage of honeys in relation to their composition and initial color. *Food Research International*, 32, 185–191. [https://doi.org/10.1016/S0963-9969\(99\)00075-7](https://doi.org/10.1016/S0963-9969(99)00075-7)
- Jedlińska, A., Samborska, K., Wieczorek, A., Wiktor, A., Ostrowska-Ligęza, E., Jamróz, W., Skwarczyńska-Maj, K., Kielczewski, D., Błażowski, Ł., Tułodziecki, M., et al. (2019). The application of dehumidified air in rapeseed and honeydew honey spray drying—Process performance and powders properties considerations. *Journal of Food Engineering*, 245, 80–87. <https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2018.10.017>
- Keke, A., & Cinkmanis, I. (2021). Total phenolic content and antiradical activity of honey powders. *Food Science*, 36, 104–110.

- Kiliç, M., & Demir, M.K. (2017). The facilities of spray dried honey powder use as a substitute for sugar in cookie production. *Journal of Food & Health Science*, 3, 67–74. <https://doi.org/10.3153/JFHS17009>
- Koracevic, D., Koracevic, G., Djordjevic, V., Andrejevic, S., & Cosic, V. (2001). Method for the measurement of antioxidant activity in human fluids. *Journal of Clinical Pathology*, 54, 356–361. <https://jcp.bmj.com/content/54/5/356>
- Küçük, M., Kolaylı, S., Karaoğlu, Ş., Ulusoy, E., Baltacı, C., & Candan, F. (2007). Biological activities and chemical composition of three honeys of different types from Anatolia. *Food Chemistry*, 100, 526–534. <https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2005.10.010>
- López-Patiño, C., Arroqui, C., Horvitz, S., & Virseda, P. (2023). Evaluación del efecto conservante de la miel de abejas liofilizada en polvo sobre la carne molida de ternera. *Ciencia & Tecnología Agropecuaria*, 24, e2841. https://doi.org/10.21930/rcta.vol24_num1_art:2841
- Louveaux, J., Maurizio, A., & Vorwohl, G. (1978). Methods of Melissopalynology. *Bee World*, 59, 139–157. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1080/0005772X.1978.11097714>
- Marcazzan, G.L., Mucignat-Caretta, C., Marchese, C.M., & Piana, M.L. (2018). A review of methods for honey sensory analysis. *Journal of Apicultural Research*, 57, 75–87. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1080/00218839.2017.1357940>
- Meda, A., Lamien, C.E., Romito, M., Millogo, J., & Nacoulma, O.G. (2005). Determination of the phenolic, flavonoid and proline contents in Burkina Fasan honey, as well as their radical scavenging activity. *Food Chemistry*, 91, 571–577. <https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2004.10.006>
- Mutlu, C. (2023). Bee pollen usage as carrier material in the drying of honey and some properties of honey-bee pollen powders. *British Food Journal*, 125, 3734–3747. <https://www.emerald.com/insight/content/doi/10.1108/BFJ-11-2022-1029/full/html>
- Mutlu, C., & Erbas, M. (2021). Evaluating the effects of different drying methods, carrier materials and their ratios to produce bioactive honey-like powder. *Journal Apicultural Research*, 62, 364–373. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1080/00218839.2021.1885877>
- Mutlu, C., Koç, A., & Erbaş, M. (202). Some physical properties and adsorption isotherms of vacuum-dried honey powder with different carrier materials. *LWT- Food Science & Technology*, 134, 110166. <https://doi.org/10.1016/j.lwt.2020.110166>
- Nedić, N.M., Gojak, M.D., Zlatanović, I.J., Rudonja, N.R., Lazarević, K.B., Dražić, M.S., Gligorević, K.B., & Pajić, M.B. (2020). Study of vacuum and freeze drying of bee honey. *Thermal Science*, 24, 4241–4251. <https://doiserbia.nb.rs/Article.aspx?ID=0354-98362000194N>
- Nurhadi, B., & Roos, Y.H. (2016). Dynamic water sorption for the study of amorphous content of vacuum-dried honey powder. *Powder Technology*, 301, 981–988. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2016.07.055>
- Nurhadi, B., & Roos, Y.H. (2017). Influence of anti-caking agent on the water sorption isotherm and flow-ability properties of vacuum dried honey powder. *Journal of Food Engineering*, 210, 76–82. <https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2017.04.020>
- Nurhadi, B., Andoyo, R., Mahani, R., & Indarto, R. (2012). Study the properties of honey powder produced from spray drying and vacuum drying method. *International Food Research Journal*, 19, 907–912.
- Nurhadi, B., Maidannyk, V.A., Djali, M., Dwiyanti, E.H., Editha, N.P., & Febrian, M. (2022). Physical and functional properties of agglomerated coconut sugar powder and honey powder using

polyvinylpyrrolidone as a binder. *International Journal of Food Properties*, 25, 93–104. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1080/10942912.2021.2023177>

Osés, S.M., Cantero, L., Crespo, M., Puertas, G., González-Ceballos, L., Vallejos, S., Fernández-Muiño, M.A., & Sancho, M.T. (2021). Attributes of ling-heather honey powder obtained by different methods with several carriers. *LWT- Food Science & Technology*, 150, 112063. <https://doi.org/10.1016/j.lwt.2021.112063>

Osés, S.M., Cantero, L., Puertas, G., Fernández-Muiño, M.A., Sancho, M.T. (2022). Antioxidant, antimicrobial and anti-inflammatory activities of ling-heather honey powder obtained by different methods with several carriers. *LWT- Food Science & Technology*, 159, 113235. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1016/j.lwt.2022.113235>

Osés, S.M., Nieto, S., Rodrigo, S., Pérez, S., Rojo, S., Sancho, M.T., & Fernández-Muiño, M.A. (2020). Authentication of strawberry tree (*Arbutus unedo* L.) honeys from southern Europe based on compositional parameters and biological activities. *Food Bioscience*, 38, 100768. <https://doi.org/10.1016/j.fbio.2020.100768>

Pascual-Maté, A., Osés, S.M., Marcazzan, G.L., Gardini, S., Fernández Muiño, M.A., & Sancho, M.T. (2018). Sugar composition and sugar-related parameters of honeys from the northern Iberian Plateau. *Journal of Food Composition & Analysis*, 74, 34–43. <https://doi.org/10.1016/j.jfca.2018.08.005>

Pękal, A., & Pyrzynska, K. (2014). Evaluation of aluminum complexation reaction for flavonoid content assay. *Food Analytical Methods*, 7, 1776–1782. <https://link-springer-com.ubu-es.idm.oclc.org/article/10.1007/s12161-014-9814-x>

Persano Oddo, L., & Piro, R. (2004). Main European unifloral honeys: Descriptive sheets. *Apidologie*, 35, 38–81. <https://doi.org/10.1051/apido:2004049>

Piana, M.L., Persano Oddo, L., Bentabol, A., Bruneau, E., Bogdanov, S., & Guyot Declerck, C. (2004). Sensory analysis applied to honey: State of the art. *Apidologie*, 35, 26–37. <https://doi.org/10.1051/apido:2004048>

Rivero, R.C., Archaina, D.A., Busquet, C.M., Baldi Coronel, B.M., & Busch, V.M. (2021). Development of a honey-based powder ingredient using a mixture design: Botanical origin effect and hydration properties. *LWT-Food Science & Technology*, 147, 111446. <https://doi.org/10.1016/j.lwt.2021.111446>

Sahu, J.K. (2008). The effect of additives on vacuum dried honey powder properties. *International Journal of Food Engineering*, 4, 9. <https://doi.org/10.2202/1556-3758.1356>

Samborska, K., & Bieńkowska, B. (2013). Physicochemical properties of spray dried honey preparations. *Zeszyty Problemowe Postępów Nauk Rolniczych*, 575, 91–105.

Samborska, K., Barańska, A., Szulc, K., Jankowska, E., Truszkowska, M., Ostrowska-Ligeza, E., Wołosiaś, R., Szymańska, E., & Jedlińska, A. (2020). Reformulation of spray-dried apple concentrate and honey for the enhancement of drying process performance and the physicochemical properties of powders. *Journal of the Science of Food Agriculture*, 100, 2224–2235. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1002/jsfa.10247>

Samborska, K., Gajek, P., & Kamińska-Dwórznička, A. (2015). Spray drying of honey: The effect of drying agents on powder properties. *Polish Journal of Food & Nutrition Sciences*, 65, 109–118. <https://doi.org/10.2478/pjfn-2013-0012>

Samborska, K., Langa, E., Kamińska-Dwórznička, A., & Witrowa-Rajchert, D. (2014). The influence of sodium caseinate on the physical properties of spray-dried honey. *International of Journal Food Science & Technology*, 50, 256–262. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1111/ijfs.12629>

- Samborska, K., Sokolowska, P., & Szulc, K. (2017). Diafiltration and agglomeration as methods to improve the properties of honey powder obtained by spray drying. *Innovative Food Science & Emerging Technologies*, 39, 33–41. <https://doi.org/10.1016/j.ifset.2016.10.002>
- Sancho, M.T., Muniategui, S., Huidrobo, J.F., & Simal, J. (1991). Correlation between the electrical conductivity of honey in humid matter and dry matter. *Apidologie*, 22, 221–227. <https://doi.org/10.1051/apido:19910306>
- Sancho, M.T., Pascual-Maté, A., Rodríguez-Morales, E.G., Osés, S.M., Escriche, I., Periche, A., & Fernández-Muiño, M.A. (2016). Critical assessment of antioxidant-related parameters of honey. *International Journal of Food Science & Technology*, 51, 30–36. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1111/ijfs.12988>
- Santivarangkna, C., Aschenbrenner, M., Kulozik, U., & Foerst, P. (2011). Role of glassy state on stabilities of freeze-dried probiotics. *Journal of Food Science*, 76, 152–156. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1111/j.1750-3841.2011.02347.x>
- Shi, Q., Fang, Z., & Bhandari, B. (2013). Effect of addition of whey isolate on spray-drying behavior of honey with maltodextrin as a Carrier material. *Drying Technology*, 31, 13–14. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1080/07373937.2013.783593>
- Sramek, M., Woerz, B., Horn, H., Weiss, J., & Kohlus, R. (2016). Preparation of high-grade powders from honey-glucose syrup formulations by vacuum foam-drying method. *Journal of Food Processing & Preservation*, 40, 790–797. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1111/jfpp.12660>
- Suhag, Y., & Nanda, V. (2015). Optimization of process parameters to develop nutritionally rich spray-dried honey powder with vitamin C content and antioxidant properties. *International Journal of Food Science & Technology*, 50, 1771–1777. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1111/ijfs.12841>
- Suhag, Y., & Nanda, V. (2016). Evaluation of different carrier agents with respect to physico-chemical, functional and morphological characteristics of spray dried nutritionally rich honey powder. *Journal of Food Processing & Preservation*, 40, 1429–1437. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1111/jfpp.12728>
- Suhag, Y., & Nanda, V. (2017). Degradation kinetics of ascorbic acid in encapsulated spray-dried honey powder packaged in aluminium laminated polyethylene and high-density polyethylene. *International Journal of Food Properties*, 20, 645–653. <https://doi-org.ubu-es.idm.oclc.org/10.1080/10942912.2016.1174939>
- Suhag, Y., Nayik, G.A., & Nanda, V. (2016). Effect of gum Arabic concentration and inlet temperature during spray drying on physical and antioxidant properties of honey powder. *Journal of Food Measurement & Characterization*, 10, 350–356. <https://link.springer.com/article/10.1007/s11694-016-9313-4>
- Terradillos, L.A., Muniategui, S., Sancho, M.T., Huidobro, J.F., & Simal-Lozano, J. (1994). An alternative method for analysis of honey sediment. *Bee Science*, 3, 86–93.
- Tomczyk, M., Zagula, G., Tarapatskyy, M., Kačániová, M., & Džugan, M. (2020). The effect of honey variety on the quality of honey powder. *Journal of Microbiology, Biotechnology & Food Sciences*, 9, 949–954. <https://doi.org/10.15414/jmbfs.2020.9.5.949-954>
- Tong, Q., Zhang, X., Wu, F., Tong, J., Zhang, P., & Zhang, J. (2010). Effect of honey powder on dough rheology and bread quality. *Food Research International*, 43, 2284–2288. <https://doi.org/10.1016/j.foodres.2010.08.002>

Toniazzo, T., Collado-González, M., Tadini, C.C., & Mackie, A.R. (2023). Evaluation of physicochemical properties of honey powder using rice and pea proteins as carriers. *Food Research International*, 167, 112692. <https://doi.org/10.1016/j.foodres.2023.112692>

Von der Ohe, W., Persano Oddo, L., Piana, M.L., Morlot, M., Martin, P. (2004). Harmonized methods of melissopalynology. *Apidologie*, 35, 18–25. <https://doi.org/10.1051/apido:2004050>

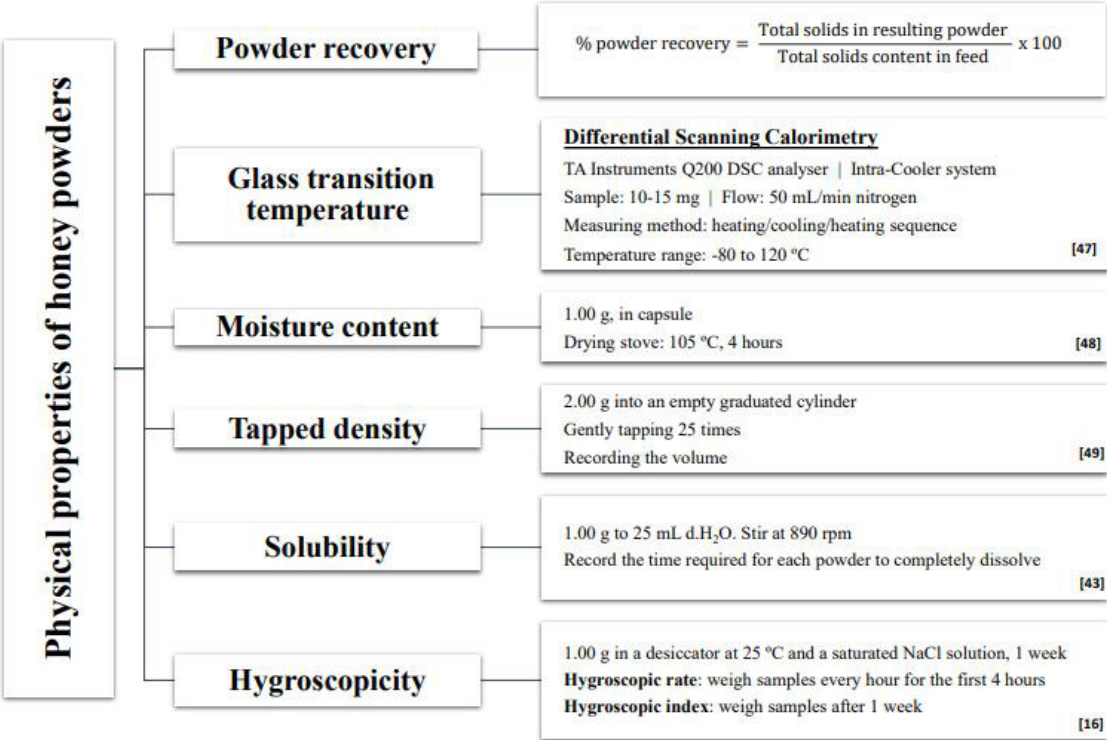


Figura S1. Propiedades físicas de la miel en polvo (Nurhadi et al., 2012; Samborska & Bieńskowska, 2013; Cordella et al., 2002; Samborska et al., 2015; Suhag & Nanda, 2015).

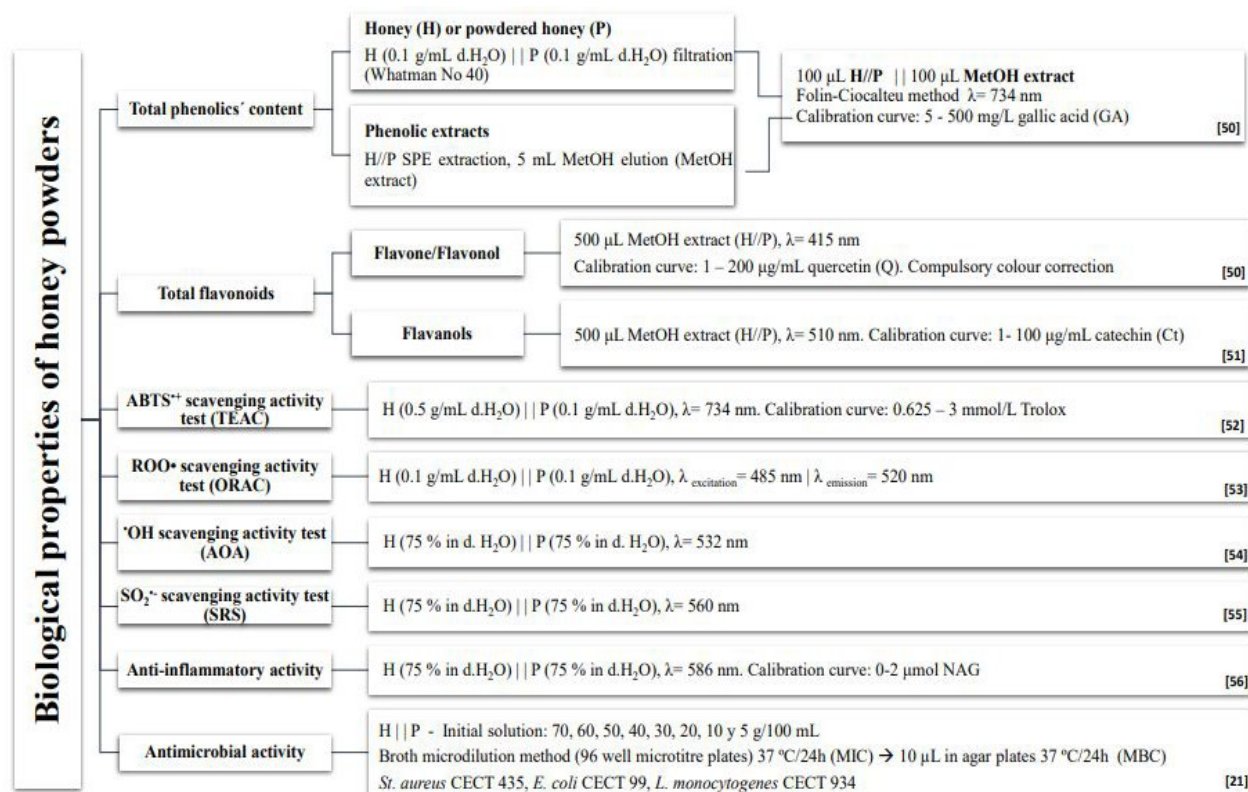
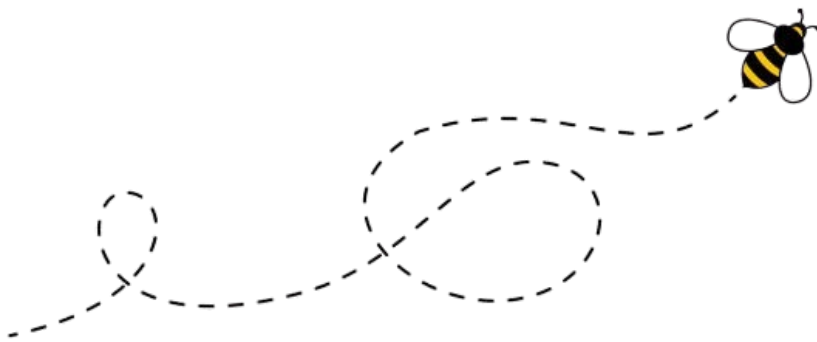


Figura S2. Propiedades biológicas de la miel en polvo (Osés et al., 2022; Meda et al., 2015; Pękal & Pyrzynska, 2014; Sancho et al., 2016; Osés et al., 2020; Koracevic et al., 2001; Küçük et al., 2007; Ferreres et al., 2012).

Conclusiones



PRIMERA. - Los métodos de secado VC y FZ demostraron ser los más adecuados para obtener miel en polvo, alcanzando las mayores tasas de recuperación y permitiendo emplear concentraciones de miel en las preparaciones de hasta un 56% y 72%, respectivamente. En estos procesos, la MD mostró ser el coadyuvante más efectivo, mientras que, en el secado por SP, la WH fue la opción más adecuada, mitigando en parte los problemas de pegajosidad asociados con la T_g .

SEGUNDA. - Las propiedades físico-químicas de los LHP se encuentran condicionadas por el método de secado (SP, VC y FZ) y por los coadyuvantes empleados (MD, AG y WH). Estos factores supeditan los valores obtenidos en algunas propiedades como el color, la humedad, la a_w , la solubilidad, la densidad compacta, la higroscopicidad, el contenido de prolina y la composición de azúcares, condicionando a su vez la calidad y posibles aplicaciones de las mieles en polvo en la industria alimentaria.

La T_g mostró que las MD-LHP, independientemente del método de secado, presentaban los valores más altos de T_g , lo que indica una mayor estabilidad a nivel de estructura. Sin embargo, debido a los bajos valores de T_g , todos los LHP requieren ser almacenados a bajas temperaturas.

Con respecto al color, los SP-LHP mostraron la mayor luminosidad en especial cuando se utilizó como coadyuvante AG y mientras que los VC-LHP mostraron las tonalidades más amarillas independientemente del coadyuvante utilizado. Por el contrario, los VC-LHP y FZ-LHP, en concreto aquellos en los que se utilizó MD y WH, mostraron la menor luminosidad y tonalidades rojizas.

La MD condicionó la solubilidad y la densidad de los LHP, siendo estas las más solubles y las de mayor densidad compacta, favoreciendo así el almacenamiento y la distribución de estos productos. Sin embargo, las VC-LHP mostraron la menor solubilidad, aunque su densidad compacta fue elevada.

Los porcentajes de agua y la actividad de agua en los LHP fueron muy variables, influyendo tanto el método de secado como el tipo de coadyuvante, siendo en general las muestras obtenidas con MD y las VC-LHP las que presentaron menor contenido en agua.

En el caso de la higroscopicidad, los MD-LHP presentaron menor capacidad de absorción de agua, lo cual es beneficioso para mantener la estabilidad del

producto. Las muestras con WH mostraron los valores más altos de prolina, mostrando los FZ-LHP los niveles más elevados de este aminoácido, mientras que los niveles de prolina más bajos se observaron en los VC-LHP, debido al tratamiento térmico aplicado en este procedimiento.

El análisis de los azúcares mostró que los LHP presentaron un contenido reducido de azúcares en comparación con las mieles crudas, viéndose así reducido el contenido de fructosa y glucosa.

Por último, en lo que respecta al análisis sensorial, los MD-LHP fueron los mejor aceptados a nivel de percepción general y en concreto los obtenidos mediante VC y FZ presentaron el mayor olor y sabor floral, el mayor dulzor, la menor viscosidad y percepción cerosa.

TERCERA. – Los LHP mostraron valores más altos de fenoles totales que las LH, especialmente cuando se empleó como coadyuvante WH debido a la interacción proteínas-reactivo de Folin Ciocalteu. Los VC-LHP mostraron los mayores valores de TPC, debido a los componentes producidos en las reacciones de Maillard.

El valor de TPC_{ex} fue inferior al valor de TPC en los LHP. Sin embargo, el valor de TPC_{ex} no se vio condicionado ni por el coadyuvante ni por el método de secado. Se obtuvieron retenciones de TPC_{ex} mayores al 90%, con respecto a la miel cruda, en la mayoría de las muestras.

Los LHP mostraron valores más altos de contenidos totales de flavonoles y de flavonas/flavonoles que las LH. Únicamente, el contenido de flavonas se vio ligeramente condicionado por el método de secado y por el coadyuvante.

CUARTA. – Los valores de las actividades antioxidantes estudiadas frente a los radicales libres $ABTS^{\bullet}$, $ROO^{\bullet}$, $\bullet OH$ y $O_2^{\bullet}$ fueron superiores en los LHP en comparación con las obtenidos en LH.

La actividad antioxidante TEAC frente al radical $ABTS^{\bullet}$, estuvo condicionada por los coadyuvantes, siendo WH el de mayor aportación debido a su capacidad para estabilizar radicales. El método de secado también tuvo relevancia, debido a que los VC-LHP presentaron los valores más altos de TEAC, debido a los compuestos de Maillard generados. Por ello se comprobó la elevada influencia de la interacción entre los coadyuvantes y los procedimientos de secado en esta actividad.

La actividad antioxidante ORAC frente al radical $\text{ROO}^\bullet$, puso de manifiesto que tanto los coadyuvantes como la concentración de miel utilizada en función del método de secado, condicionaron los resultados obtenidos en los LHP. De manera que, los WH-LHP obtenidos mediante SP y VC (75% miel) mostraron la mayor actividad que las muestras obtenidas con los mismos métodos de secado (SP y VC) pero utilizando MD como coadyuvante (con un 50% y 60% de miel, respectivamente).

La actividad antioxidante AOA frente al radical $^\bullet\text{OH}$, estuvo condicionada por el tipo de coadyuvante, MD exhibió la mayor actividad y WH la menor, a diferencia de lo que ocurrió frente a los otros radicales. El secado mediante SP mostró los valores más altos de actividad. De manera que, ambos factores influyen en esta actividad.

En la actividad antioxidante SRS frente al radical $\text{O}_2^\bullet$, el coadyuvante WH mostró el mayor porcentaje de inhibición. Con respecto al método de secado, los VC-LHP mostraron la mayor actividad mientras que los SP-LHP la menor.

QUINTA. – En lo que respecta a la actividad antimicrobiana, los LHP mostraron menor actividad antimicrobiana que los LH.

E. coli fue el microorganismo más sensible a los LHP mientras que *L. monocytogenes* fue el más resistente.

Las mieles en polvo WH-LHP y MD-LHP mostraron mayor actividad antimicrobiana frente a *St. aureus* que AG-LHP. En lo que respecta al método de secado, FZ mostró mayor actividad antimicrobiana contra *E. coli* que el secado mediante SP y VC, debido a que FZ no influye en los componentes antioxidantes termolábiles.

La interacción entre el coadyuvante y el método de secado tuvo relevancia en la inhibición del crecimiento contra *L. monocytogenes* y *E. coli*.

SEXTA. – La actividad anti-inflamatoria estuvo condicionada por los diferentes coadyuvantes a pesar de que estos no mostraron ninguna actividad de inhibición de hialuronidasa. Los AG-LHP mostraron el mayor porcentaje de inhibición mientras que los WH-LHP solo retuvieron una pequeña cantidad de los compuestos responsables de esta actividad.

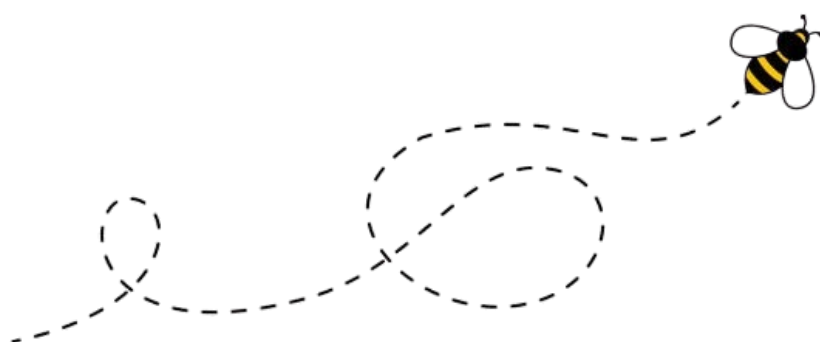
SÉPTIMA. – Al comparar miel en polvo de distintos orígenes botánicos, obtenidas por vacío y por liofilización, se obtuvo que la tasa de recuperación

de miel en polvo fue superior en los polvos obtenidos mediante secado FZ con respecto a los obtenidos por VC, no obstante, el origen botánico no influyó en dichas recuperaciones.

El contenido en agua, el color, la solubilidad, la densidad, el TPC, los TFC, las actividades antioxidantes TEAC, ORAC, SRS, la actividad anti-inflamatoria y la actividad antimicrobiana frente a *L. monocytogenes* y *E. coli* dependieron del origen botánico de la miel. A su vez todas ellas, menos el color, los TFC, la actividad antioxidante SRS y la actividad antimicrobiana frente a *L. monocytogenes*, también se vieron influenciadas por el método de secado empleado. Por el contrario, la T_g , la higroscopicidad y la actividad antimicrobiana frente a *St. aureus* fueron las únicas propiedades influenciadas por el método de secado-concentración de la miel, pero no por el origen botánico.

CONCLUSIÓN FINAL. – La miel en polvo se presenta como una alternativa prometedora a la miel natural, manteniendo sus propiedades y ofreciendo ventajas en cuanto a su manipulación y almacenamiento. Su elaboración con maltodextrina y los métodos de secado vacío y liofilización permite etiquetarlo como «alimento real», alineándose con las demandas de los consumidores por productos más naturales y facilitando su comercialización.

Anexo I



Anexo I. Estudios sobre los métodos de secado de la miel

Miel	Coady.	Auxiliares de secado	Parámetros de secado	Rto de recuperación/ secado de polvo (%)	Parámetros analizados	Referencias
SECADO POR ATOMIZACIÓN (SPRAY DRYING)						
Perhutani (Indonesia)	MD/ GA H:C= 50:50	—	$T_{IN/OUT} = 180/ 80\text{ }^{\circ}\text{C}$	9,7 – 36,6	Humedad y a_w Azúcares HMF y Diastasas Color Higroscopicidad Humectabilidad Dispersabilidad Prueba hedónica	Nurhadi et al., (2012)
Multifloral	MD (9,6 DE) H:C= 50:50 20% sólidos	—	$T_{IN/OUT} = 160\text{-}200/$ $91\text{-}106\text{ }^{\circ}\text{C}$ $V_{d.a.} = 32000 - 38000$ rpm $T_a = 0,42\text{ ml}\cdot\text{s}^{-1}$	Sin datos	Humedad y a_w D_L , D_T , D_{ap} Cohesividad Higroscopicidad Solubilidad Diastasas	Samborska & Bieñkowska (2013)
Capilano (Australia)	MD (10 DE) MD= 40 - 70% contenido de sólidos de H	WPI (0,5-40%)	$T_{IN/OUT} = 150/ 85\text{ }^{\circ}\text{C}$ $V_{d.a.} = 32000 - 38000$ rpm $T_a = 0,42\text{ ml}\cdot\text{s}^{-1}$	5 – 75	Humedad y a_w D_{ap} Tamaño partícula Higroscopicidad Composición superficial T_g	Shi et al., (2013)
Capilano (Australia)	Leche en polvo H= 5, 10, 15%	—	$T_{IN} = 180 - 200\text{ }^{\circ}\text{C}$	Sin datos	Humedad D_{ap} Activ. antioxidante	Bansal et al., (2014)

Miel	Coady.	Auxiliares de secado	Parámetros de secado	Rto de recuperación/ secado de polvo (%)	Parámetros analizados	Referencias
	10,86, 11,33 y 11,80% sólidos totales				TPC y TFC Solubilidad	
Multifloral/ Colza	GA H:C = 50:50 30% sólidos totales	—	T _{IN/OUT} = 180/ 70 °C V _{d.a.} = 36000 rpm T _a = 0,9 ml· s ⁻¹	Sin datos	Tamaño y morfología partículas Humedad HMF y Diastasas D _L , D _T	Samborska & Czelejewska (2014)
Colza/ Trigo sarraceno	GA H:C = 50:50 30% sólidos totales	Caseinato de sodio (1- 2%)	T _{IN/OUT} = 180/ 80 °C V _{d.a.} = 35000 rpm T _a = 2 ml· s ⁻¹	66,2-75,8	Humedad y a _w Higroscopicidad Color D _L , D _T Fluidez Cohesividad Morfología y tamaño partículas	Samborska et al., (2014)
Girasol	WPC = 25, 30, 35% H: H ₂ O = 1:3,5	Extracto de anola = 6 – 8% Extracto de albahaca = 6 – 8%	T _{IN/OUT} = 160-180/ 80-90 °C V _{d.a.} = 2000 rpm T _a = 0,11 ml· s ⁻¹	Sin datos	D _{ap} Higroscopicidad TPC DPPH Cont. vitamina C	Suhag & Nanda (2015)
Colza/ Trigo sarraceno	GA H:C = 50:50	Caseinato de sodio (1 o 2%)	T _{IN/OUT} = 180/ 80 °C V _{d.a.} = 35000 rpm T _a = 1 ml· s ⁻¹	66,2 - 75,8	Humedad y a _w Color D _T	Samborska et al., (2015a)

Miel	Coady.	Auxiliares de secado	Parámetros de secado	Rto de recuperación/ secado de polvo (%)	Parámetros analizados	Referencias
Higroscopicidad						
Multifloral	30% sólidos totales					
	GA/ MD (10 DE)					
	H:C _{GA} = 33:67/ 50:50 H:C _{MD} = 50:50/ 66:34	—	T _{IN} = 180 °C V _{d.a.} = 39000 rpm T _a = 1 ml· s ⁻¹	Sin datos	Humedad D _{ap} Cohesividad Higroscopicidad Humectabilidad	Samborska et al., (2015b)
20-30% sólidos						
Multifloral	MD (9 DE)					
	H:C = 50:50	—	T _{IN/OUT} = 130-180/ 75-80 °C V _{d.a.} = 30000 rpm	Sin datos	Humedad D _L , D _T Cohesividad Higroscopicidad Solubilidad HMF Tamaño partícula y estructura	Bringas-Lantihua et al., (2016)
30% sólidos secos						
Girasol	GA					
	H: H ₂ O = 1:3,5 H:C = 65:35/ 55:45	Extracto de anola= 8%/ Extracto de albahaca = 6%	T _{IN/OUT} = 160-180/ 80-90 °C V _{d.a.} = 2000 rpm T _a = 0,11 ml· s ⁻¹	58,27 – 60,21	Humedad Higroscopicidad D _T TPC DPPH T _g	Suhag et al., (2016)

Miel	Coady.	Auxiliares de secado	Parámetros de secado	Rto de recuperación/ secado de polvo (%)	Parámetros analizados	Referencias
Girasol	MD (DE 20) / GA/ WPC H: H ₂ O = 1:3,5 MD/ GA/ WPC= 50/ 45/ 35% de H	Extracto de anola= 8%/ Extracto de albahaca = 6%	T _{IN/OUT} = 170/ 90 °C V _{d.a.} = 2000 rpm T _a = 0,11 ml· s ⁻¹	53,4-65,1	Humedad D _T Higroscopicidad Cohesividad Apelmazamiento TPC DPPH Cont. vitamina C Morfología partículas Azúcares	Suhag & Nanda (2016a)
Girasol	GA= 35, 40, 45% de H H: H ₂ O= 1:3,5	Extracto de anola= 6 – 8%/ Extracto de albahaca = 6 – 8%	T _{IN/OUT} = 160-180/ 90 °C T _a = 0,08 - 0,13 ml· s ⁻¹	Sin datos	D _{ap} Higroscopicidad TPC DPPH Cont. vitamina C	Suhag & Nanda (2016b)
Girasol	MD (20 DE) / GA/ WPC H: H ₂ O= 1:3,5 MD/ GA/ WPC= 50/ 45/ 35% de H	Extracto de anola= 8%/ Extracto de albahaca= 6%	T _{IN/OUT} = 170/ 90 °C V _{d.a.} = 2000 rpm T _a = 0,11 ml· s ⁻¹	Sin datos	Higroscopicidad T _g TPC DPPH Cont. vitamina C	Suhag & Nanda (2017)
—	Leche búfala Leche vaca	—	T _{IN} = 200 °C T _a = 90 ml· h ⁻¹	Sin datos	D _{ap} , D _T Densidad partícula Porosidad	Bansal et al., (2017)

Miel	Coady.	Auxiliares de secado	Parámetros de secado	Rto de recuperación/ secado de polvo (%)	Parámetros analizados	Referencias
	H= 14% 5, 10, 15 y 20% sólidos totales				DPPH TPC y TFC Cohesividad Fluidez Apelmazamiento	
Colza	GA H:C = 50:50/ 75:25 30% sólidos	Pretratamiento por diafiltración	$T_{IN/OUT} = 180/75\text{ }^{\circ}\text{C}$ $V_{d.a.} = 36000\text{ rpm}$ $T_a = 1\text{ ml}\cdot\text{s}^{-1}$	25,3-52,5	Humedad y a_w Higroscopicidad D_L , D_T Fluidez Cohesividad Humectabilidad Microestructura partículas	Samborska et al., (2017a)
Colza/ Multifloral	GA H:C = 50:50	—	$T_{IN/OUT} = 180/75\text{ }^{\circ}\text{C}$ $V_{d.a.} = 36000\text{ rpm}$	65,4-77,1	Tamaño y morfología partículas Humedad y a_w Diastasas D_L , D_T Higroscopicidad	Samborska et al., (2017b)
Colza	MD (17-19,9 DE) / Nutriose FM06 H ₂ O y leche en polvo (disolventes)	Aire deshumidificado	$T_{IN/OUT} = 75/50\text{ }^{\circ}\text{C}$ $V_{d.a.} = 26000\text{ rpm}$ $T_a = 0,22\text{ ml}\cdot\text{s}^{-1}$	Sin datos	Humedad TPC DPPH CUPRAC Compuestos volátiles	Samborska et al., (2019a)

Miel	Coady.	Auxiliares de secado	Parámetros de secado	Rto de recuperación/ secado de polvo (%)	Parámetros analizados	Referencias
	H:C= 60:40/ 70:30/ 80:20				Espectroscopia FTIR	
	20-40% sólidos totales					
Colza	MD (17-19,9 DE) / Nutriose FM06 H:C= 60:40/ 70:30/ 80:20 60% sólidos	Aire deshumidificado	$T_{IN/OUT} = 75/ 50\text{ }^{\circ}\text{C}$ $V_{d.a.} = 26000\text{ rpm}$ $T_a = 0,22\text{ ml}\cdot\text{s}^{-1}$	115,0-43,4	Morfología partículas Viscosidad T_g Humedad y a_w D_L , D_T , D_{abs} Cohesividad Porosidad Color Higroscopicidad	Samborska et al., (2019b)
Colza/ Melaza	Nutriose FM06 H:C = 50:50/ 80:20 30-60% sólidos	Aire deshumidificado	$T_{IN/OUT} = 75-180/50-85\text{ }^{\circ}\text{C}$	95,8-52,5	Viscosidad T_g Humedad y a_w Higroscopicidad D_L , D_T , D_{abs} Porosidad Morfología partículas	Jedlińska et al., (2019)
Flor de castaño/	MD (15 DE) H:C = 75:25	Aire deshumidificado	$T_{IN/OUT} = 80/ 50\text{ }^{\circ}\text{C}$ $V_{d.a.} = 24000\text{ rpm}$	Sin datos	Humedad y a_w	Kozłowicz et al., (2020)

Miel	Coady.	Auxiliares de secado	Parámetros de secado	Rto de recuperación/ secado de polvo (%)	Parámetros analizados	Referencias
Miel con baya del Inca	60% sólidos totales		$T_a = 0,25 \text{ cm}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$		Morfología partículas Azúcares Cont. ácidos fenólicos Perfil de difracción de rayos X	
Melaza	MD (10 DE) / Nutriose/ FM06/ Kleptose/ Leche desnatada en polvo H:C = 50:50/ 75:25 30-60% sólidos	Aire deshumidificado	$T_{\text{IN/OUT}} = 180/ 80 \text{ }^{\circ}\text{C}$ $V_{\text{d.a.}} = 26000 \text{ rpm}$ $T_a = 0,25 \text{ ml} \cdot \text{s}^{-1}$	32,1-81,7	Morfología y distribución del tamaño de las partículas Humedad y a_w T_g Higroscopicidad D_{ap} Cohesividad Densidad partícula Porosidad TPC DPPH	Samborska et al., (2020)
Melaza/ Multifloral/ Acacia	MD H: H ₂ O= 30% H:C = 50:50	—	$T_{\text{IN/OUT}} = 200/ 80 \text{ }^{\circ}\text{C}$ $T_a = 1 \text{ ml} \cdot \text{min}^{-1}$	25	Humedad Acidez libre pH Conductividad Minerales Azúcares	Tomczyk et al., (2020a)

Miel	Coady.	Auxiliares de secado	Parámetros de secado	Rto de recuperación/ secado de polvo (%)	Parámetros analizados	Referencias
					TPC DPPH FRAP Activ. antibacteriana	
Multifloral	MD H: H ₂ O= 30% H:C = 50:50	Infusión de hojas secas de ortiga (2,5%) / Infusión de hojas de menta (2,5%) / Concentrado de remolacha (30%)	T _{IN/OUT} = 200/ 80 °C T _a = 1 ml· min ⁻¹	25	DPPH FRAP TPC Minerales Osmolaridad Azúcares	Tomczyk et al., (2020b)
Multifloral	MD (10,4 DE) H: H ₂ O= 20:80 H:C= 1:2	—	T _{IN/OUT} = 180/ 80 °C T _a = 15 ml· min ⁻¹	—	Activ. α-amilasa HMF Azúcares	KeKe & Cinkmanis (2020)
Trigo sarraceno	MD (15 DE) / Leche desnatada en polvo H: C _{MD} = 50:50/ 75:25 H: C _{leche} = 50:50/ 75:25	Aire deshumidificado	T _{IN/OUT} = 180/ 80 °C V _{d.a.} = 26000 rpm T _a = 0,20 ml· s ⁻¹	96,8-62,9	Morfología y distribución del tamaño de las partículas Humedad y a _w Higroscopicidad D _L y D _T Color ABTS	Barańska et al., (2021)
Colza/ Melaza	Nutriose FM06	Aire deshumidificado	T _{IN/OUT} = 180-75/85-50 °C	—	TPC CUPRAC	Jedlińska et al., (2021)

Miel	Coady.	Auxiliares de secado	Parámetros de secado	Rto de recuperación/ secado de polvo (%)	Parámetros analizados	Referencias
	H:C = 50:50		V _{d.a.} = 26000 rpm T _a = 0,22 ml·s ⁻¹		DPPH Cont. compuestos aromáticos	
	30-60% sólidos				a _w D _L , D _{abs} Porosidad Dispersabilidad Solubilidad Higroscopicidad TPC Activ. antioxidante Cont. vitamina C Distribución del tamaño de partículas Color T _g Perfil de difracción de Rayos-X Espectroscopia FTIR Medición reológica dinámica Análisis microbiológico Prueba hedónica	
Girasol	GA/ MD (20 DE) / WPC GA/MD/WPC= 45/ 50/ 35% H H: H ₂ O= 1:3,5	Extracto de anola= 8%/ Extracto de albahaca= 6%	T _{IN/OUT} = 170/90 °C V _{d.a.} = 2000 rpm T _a = 0,11 ml·s ⁻¹	53,44-65,10		Suhag et al., (2021)
Multifloral	MD (17-19,9 DE) /	—	T _{IN/OUT} = 180/ 80 °C V _{d.a.} = 26000 rpm	Sin datos	Análisis quimiométrico	Matwijczuk et al., (2022)

Miel	Coady.	Auxiliares de secado	Parámetros de secado	Rto de recuperación/ secado de polvo (%)	Parámetros analizados	Referencias
	Leche desnatada en polvo		$T_a = 0,22 \text{ ml} \cdot \text{s}^{-1}$		mediante espectroscopía infrarroja (FTIR)	
	H:C= 40:60/ 50:50/ 60:40/ 70:30					
	MD					
Multifloral	H: H ₂ O= 20%	—	$T_{\text{IN/OUT}} = 180/ 80 \text{ }^{\circ}\text{C}$ $T_a = 15 \text{ ml} \cdot \text{min}^{-1}$	Sin datos	Determinación individual de compuestos fenólicos	Keke & Cinkmanis (2022)
	H:C= 1:2					
					Tamaño y morfología partículas	
					D _L	
	MD/ GA/ WPI				Higroscopicidad	
	C: H ₂ O= 1/10	—	$T_{\text{IN/OUT}} = 120/ 64-71 \text{ }^{\circ}\text{C}$	90,95-52,63	Solubilidad	Mutlu & Erbas (2023)
Flores	H:C = 1:0,5/ 1:0,75/ 1:1		$T_a = 9 \text{ ml} \cdot \text{min}^{-1}$		Turbidez	
					Color	
					Humedad y a_w	
					pH	
					Acidez	
					HMF y Diastasas	
					Azúcares	
					Activ. antioxidante	

Miel	Coady.	Auxiliares de secado	Parámetros de secado	Rto de recuperación/ secado de polvo (%)	Parámetros analizados	Referencias
Eucalipto	RPI (78,36 g/100 g materia seca) H: H ₂ O= 15, 16 y 18% de H H:C = 12, 14 y 15 g/ 100 g 30% sólidos totales	—	T _{IN} = 130 °C T _a = 10 ml· min ⁻¹	47,94-61,47	Humedad y a _w Azúcares Proteína total Higroscopicidad Humectabilidad Distribución del tamaño de partícula D _{abs} y D _{ap} Porosidad Capacidad de retención de H ₂ O Solubilidad Perfil de difracción de Rayos-X y morfología	Toniazzo et al., (2023a)

Miel	Coady.	Auxiliares de secado	Parámetros de secado	Rto de recuperación/ secado de polvo (%)	Parámetros analizados	Referencias
Miel de Etiopía	RPI (80,6 g/100 g materia seca)					
	PPM (84 g/100 g materia seca)				Balance de masa de H ₂ O	
	H: H ₂ O= 16% de H	—	T _{IN/OUT} = 130,11/75,58 °C	45,32-64,88	Humedad y a _w	Toniazzo et al., (2023b)
	C: H ₂ O= 14% de C		T _a = 10 ml· min ⁻¹		Higroscopicidad	
	RPI: PPM= 50:50				Azúcares	
	30% sólidos totales				TPC	
					Proteína total	
					Morfología (SEM)	
SECADO A VACÍO (<i>VACUUM DRYING</i>)						
	MD					
<i>Azadirachta indica</i> (Meliáceas)	H:C = 75:25/ 63:37	Monoestearato de glicerol/ Fosfato tricálcico	Espesor capa = 3 mm	Sin datos	Higroscopicidad	Sahu (2008)
	0,35-0,6 kg/kg sólidos de miel seca		P = 710-750 mm Hg T= 70 °C		Apelmazamiento	
					Fluidez	
					T _{punto pegajosidad}	
					Color	
Perhutani	MD/ GA		T= 60 °C	73,0-73,8	Humedad y a _w	Nurhadi et al., (2012)
	H:C = 50:50	—	P= 25 Hg (P _{absoluta} = 4,921 in Hg)		Azúcares	
					HMF y Diastasas	
					Color	

Miel	Coady.	Auxiliares de secado	Parámetros de secado	Rto de recuperación/ secado de polvo (%)	Parámetros analizados	Referencias
			Tiempo= 1 h		Higroscopicidad Humectabilidad Dispersabilidad Prueba hedónica	
<i>Azadirachta indica</i> (Meliáceas)	MD= 0,6 kg/kg H	Monoestearato de glicerol/ Fosfato tricálcico	Espesor capa= 0,002-0,004 m T= 65-75 °C P= 62 Hg	—	Color Humedad Determinación de la difusividad efectiva de la humedad	Sahu & Devi 2013
<i>Azadirachta indica</i> (Meliáceas)	MD H:C= 63:37	Monoestearato de glicerol/ Fosfato tricálcico	Espesor capa = 3 mm P = 20-60 mm Hg T= 75 °C	Sin datos	Humedad Azúcares Acidez total Cenizas D _{ap} Viscosidad Higroscopicidad Apelmazamiento Fluidez T punto pegajosidad Color	Devi et al., (2016)
—	MD H:C= 60:40 43% sólidos totales	—	T= 70, 60, 50 y 40 °C durante 1,5, 3, 5 y 6 h	Sin datos	Cont. amorfo	Nurhadi & Roos (2016)

Miel	Coady.	Auxiliares de secado	Parámetros de secado	Rto de recuperación/ secado de polvo (%)	Parámetros analizados	Referencias
Miel de Irlanda	MD (10 DE) H:C= 60:40/ 40:60 43% sólidos totales	Silicato de calcio (2%) / Estearato de calcio (2%)	T= 60 °C – 3 h	Sin datos	Sorción estática y dinámica del H ₂ O D _T Fluidez	Nurhadi & Roos (2017)
Flores	MD (4-7 DE) / GA/ WPI H:C= 1:(1:10)	—	P= 25 mbar T ₁ = 45 °C – 5,5 h T ₂ = 60 °C – 7,5 h	Sin datos	Humedad y a _w D _L Cohesividad Fluidez Tamaño y microestructura partícula Isotermas de adsorción	Mutlu et al., (2020)
Miel de Indonesia de <i>Apis dorsata</i>	MD (18-20 DE) H:C= 1:1 40% sólidos totales	Polivinilpirrolidona (PVP K-30) H: PVP= 2:1 (p/p)	Espesor capa= 3 mm P= 25 in Hg (P _{absoluta} = 4921 in Hg) T= 70 °C – 6/7 h	Sin datos	Higroscopicidad Solubilidad D _L y D _T Fluidez Cohesividad Humectabilidad Microscopia de luz polarizada Color	Nurhadi et al., (2022)
Flores	Polen/ GA	Polen: GA = 25:75/ 50:50/ 75:25 (p/p) en 250 ml H ₂ O	P= 25 mbar T ₁ = 45 °C – 5,5 h T ₂ = 60 °C – 7,5 h	Sin datos	Color Tamaño partículas Pegajosidad	Mutlu (2023)

Miel	Coady.	Auxiliares de secado	Parámetros de secado	Rto de recuperación/ secado de polvo (%)	Parámetros analizados	Referencias
	H:(GA+Polen) = 35 g miel + solución (GA + Polen)				Fluidez Higroscopicidad Solubilidad Humedad y a_w TPC y TFC CUPRAC Azúcares	
Flores	MD/ GA/ WPI C: H ₂ O= 1/10 H:C = 1:0,5/ 1:0,75/ 1:1	—	Espesor capa= 0,5-1 cm P= 25 mbar T ₁ = 45 °C -5,5 h T ₂ = 60 °C -7,5 h	90,95-52,63	Tamaño y morfología partículas D _L Higroscopicidad Solubilidad Turbidez Color Humedad y a_w pH y Acidez HMF y Diastasas Azúcares Activ. antioxidante	Mutlu & Erbas (2023)

Miel	Coady.	Auxiliares de secado	Parámetros de secado	Rto de recuperación/ secado de polvo (%)	Parámetros analizados	Referencias
------	--------	----------------------	----------------------	---	-----------------------	-------------

SECADO A VACÍO CON MICROONDAS (*MICROWAVE VACUUM DRYING*)

Acacia	Sin adición	—	Espesor capa= 8, 12, 16 mm Potencia microondas= 290- 330 W P= 30-50 mbar	Sin datos	Humedad Color Azúcares Compuestos volátiles	Cui et al., (2008)
--------	-------------	---	---	-----------	---	-----------------------

SECADO POR ESPUMA A VACÍO (*VACUUM FOAM DRYING*)

Multifloral	Jarabe de glucosa (21 DE) H:C = 50:50	WPI (1%)	Espesor capa= 15 mm T= 40-60 °C P= 100 mbar	Sin datos	Activ. invertasa Humedad T_g	Sramek et al., (2016)
-------------	---	----------	--	-----------	--------------------------------------	--------------------------

Miel	Coady.	Auxiliares de secado	Parámetros de secado	Rto de recuperación/ secado de polvo (%)	Parámetros analizados	Referencias
LIOFILIZACIÓN (FREEZE DRYING)						
Multifloral	Jarabe de glucosa (21 DE) H:C =50:50	WPI (1%)	Espesor capa= 25 mm P= 0,85 mbar	Sin datos	Activ. invertasa Humedad T_g	Sramek et al., (2016)
Miel nativa irlandesa	WPI (20% sólidos) / MD (3-7 DE) (20% sólidos) H: C _{WPI} = 70:30/ 50:50/ 30:70 H: C _{MD} = 70:30/ 50:50/ 30:70	—	P= < 1 mbar	Sin datos	Sorción de agua Cristalización T_g Colapso estructural y relajación en diversas a_w por debajo de 25 °C	Fan & Roos (2019)
Multifloral	MD (10,4 DE) H: H ₂ O= 20% H:C= 1:2	—	Espesor capa= 1 cm T= -50,6 °C P= 0,036 mbar Tiempo= 72 h	—	Activ. α -amilasa HMF Azúcares	KeKe & Cinkmanis (2020)
Cítricos	GA/WPC				Humedad Solubilidad	
Eucalipto	GA/WPC= 0-40%	—	T= -50 °C P= 0,040 mbar Tiempo= 48 h	Sin datos	D _L , D _T Cohesividad	Rivero et al., (2021)
Pradera	H: H ₂ O= 60-80%				Fluidez Higroscopicidad	

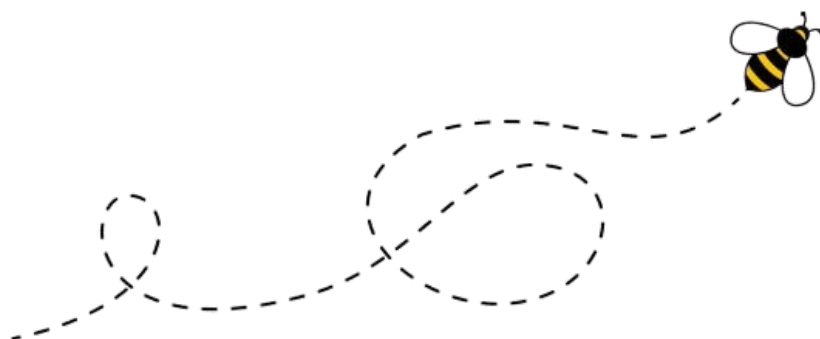
Miel	Coady.	Auxiliares de secado	Parámetros de secado	Rto de recuperación/ secado de polvo (%)	Parámetros analizados	Referencias
					Activ. antioxidante	
<i>Robina pseudoacacia</i>	WPI				Higroscopicidad	
<i>Plectranthus rugosus</i>	MD	—	T= -24 °C	Sin datos	D _L , D _{abs}	
	H:C= 60:40		Tiempo= 16 h		Porosidad	
					a _w	
					Color	
					T _g	Ganaie et al., (2021)
					Tamaño y morfología partículas	
					Perfil de difracción de rayos X	
	MD (10,4 DE) / Manitol					
Trigo sarraceno	H: H ₂ O= 30%	—	Espesor capa= 1 cm		Humedad	
			T= -50,6 °C	Sin datos	TPC	KeKe & Cinkmanis (2021)
	H:C MD= 1:1/ 1:2		P= 0,036 mbar		DPPH	
	H:C M= 1:1/ 1:2		Tiempo= 72 h			

Fuente: Elaboración propia.

MD = Maltodextrina, GA = Goma arábica; WPI = Aislado de proteína de suero; WPC = Concentrado de proteína de suero; RPI=Aislado de proteína de arroz; PPM= Proteína de guisante micronizada; H:C = contenido de sólidos miel/ coadyuvante; T_{IN} = Temperatura entrada del aire; T_{OUT} = Temperatura salida aire; V_{d.a}= Velocidad disco atomizador; T_a= Tasa alimentación; P= Presión, T= Temperatura; HMF= Hidroximetilfurfural; TPC= Contenido de fenoles totales; TFC= Contenido de flavonoides totales; DPPH= Actividad secuestrante radical DPPH; FRAP= Capacidad antioxidante reductor del ion férrico; ABTS= Actividad secuestrante radical ABTS⁺⁺ ; CUPRAC= Capacidad antioxidante reductor del ion cúprico; D_L= Densidad aparente suelta; D_T= Densidad compacta; D_{ap}= Densidad aparente; D_{abs}= Densidad absolu

Anexo II

Artículos





Contents lists available at ScienceDirect

LWT

journal homepage: www.elsevier.com/locate/lwt

Attributes of ling-heather honey powder obtained by different methods with several carriers

Sandra María Osés^a, Leire Cantero^a, Miranda Crespo^a, Guillermo Puertas^a,
Lara González-Ceballos^b, Saúl Vallejos^b, Miguel Ángel Fernández-Muñoz^{a,*}, María
Teresa Sancho^{a,*}

^a Department of Biotechnology and Food Science, Universidad de Burgos (University of Burgos), Plaza Misael Bañuelos s/n, 09001, Burgos, Spain

^b Department of Chemistry, Universidad de Burgos (University of Burgos), Plaza Misael Bañuelos s/n, 09001, Burgos, Spain

ARTICLE INFO

Keywords:

Honey powder
Freeze drying
Vacuum drying
Spray drying
Carrier agents

ABSTRACT

In order to obtain the best physicochemical and the most appealing honey powder as possible, this research assessed three procedures (spray drying, vacuum drying and freeze drying) as well as three carrier agents (Arabic gum, whey protein isolate and maltodextrin) for dehydrating ling-heather honeys (*Calluna vulgaris* (L.) Hull). Using each carrier agent, both vacuum and freeze drying were the procedures that provided higher recoveries (76%–98%) and higher honey final concentrations in the powders (56%–73%). The most suitable carrier agent was maltodextrin, because with it, lower moisture (1.90%–4.20%), higher solubility (21 s–123 s) and lower hygroscopicity (6.32%–13.68%) was achieved. Honey powders obtained with maltodextrin by vacuum and freeze drying exhibited higher recoveries (88%–98%) and the best sensory characteristics, with stronger floral odours and flavours, stronger sweetness, lower viscosity and lower waxy perceptions.

1. Introduction

Honey is the natural food made by bees, being very appreciated for its pleasant sensory attributes, excellent culinary properties, as well as health, cosmetic and technological advantages, among other benefits. The major components of honey are fructose and glucose that together with other sugars, provide high viscosity and stickiness, which can make honey difficult to handle for some culinary specialties and pharmaceutical applications. Honey powder is a good alternative that can be directly added into dry mixtures, seasonings or dry coatings, maintaining flavours, and providing ease of handling and weighing as well as better sanitary aspects (Samborska, 2019).

Making honey powder is difficult, because of the high sugar content with low glass transition temperature (T_g), which provokes a highly sticky product, extremely difficult to deal with (Jedlińska et al., 2019; Samborska et al., 2019; Shi, Fang, & Bhandari, 2013; Umesh Hebbar, Rastogi, & Subramanian, 2008). Therefore, the addition of carrier agents that provide high molecular weights is essential to make honey powder,

because they increase T_g . Among them, Arabic gum, maltodextrin, starch or glucose syrup stand out (Fan & Roos, 2019; Nurhadi, Andoyo, Mahani, & Indarto, 2012; Ram, 2011; Sramek, Woerz, Horn, Weiss, & Kohlus, 2016). Likewise, the addition of low quantities of surface-active substances, such as whey protein isolate or sodium caseinate, is common for obtaining honey powder because the proteins help encapsulate honey (Samborska, Langa, Kamińska-Dwórznička, & Witrowa-Rajchert, 2014a; Shi et al., 2013; Suhag & Nanda, 2016).

Spray drying is currently the most studied technique to obtain honey powder, having been described as more cost-effective, faster and easier to scale up option than other procedures (Samborska et al., 2014a; Shi et al., 2013; Suhag & Nanda, 2015). Some researchers improved powder recoveries (up to 90%) or/and obtained higher honey final concentrations (up to 80%) using proteins as carriers, diafiltration before spray drying or dehumidified air as a drying medium during spray drying (Jedlińska et al., 2019; Samborska, Sokolowska, & Szulc, 2017; Shi et al., 2013). Vacuum drying (Nurhadi et al., 2012; Sahu, 2008), freeze drying (Sramek et al., 2016) vacuum puffing (Sahu & Devi, 2013),

Abbreviations: SP, spray drying; VC, vacuum drying; FZ, freeze drying; MD, maltodextrin; AG, Arabic gum; WH, whey protein isolate; LH, Ling-heather honey; LHP, Ling-heather honey powder.

* Corresponding author.

** Corresponding author.

E-mail addresses: mafernand@ubu.es (M.Á. Fernández-Muñoz), mtsanch@ubu.es (M.T. Sancho).

<https://doi.org/10.1016/j.lwt.2021.112063>

Received 29 December 2020; Received in revised form 25 June 2021; Accepted 30 June 2021

Available online 1 July 2021

0023-6438/© 2021 Elsevier Ltd. All rights reserved.

microwave-vacuum (Cui, Sun, Chen, & Sun, 2008) and foam-drying (Sramek et al., 2016) have been less-investigated methods. Vacuum and freeze drying could be promising procedures to obtain honey powders. So far literature has shown no data about the highest honey concentration that could be obtained using vacuum or freeze drying methods to make honey powder.

Most studies on powdered honeys were done with multifloral, rape, buckwheat and sunflower samples. Jedlińska et al. (2019) obtained honey powder using honeydew honeys, which were more easily dried than blossom honeys, due to the higher content of oligosaccharides of honeydew honeys. Studies of the properties of honey powders obtained with other honeys are of utmost interest nowadays, because various honeys can differently react to drying procedures and drying carriers, providing different features to the powders. Ling-heather (*Calluna vulgaris* (L.) Hull) and other heather honeys are very appreciated by the consumers due to their special flavours and potential biological properties. Ling heather are non-Newtonian honeys with thixotropic behaviour, so that their apparent viscosity decreases while shear rate increases due to high molecular weight colloidal matters such as proteins or dextrans (Osés et al., 2017). Furthermore, heather honeys have higher monosaccharides (around 71%) and lower disaccharides (around 4.9%) contents than other honeys (Pascual-Maté et al., 2018), which could be a disadvantage for obtaining honey powder, because glucose and fructose generate a higher stickiness than other sugars such as sucrose, which is related to the lower T_g of the former sugars (31 °C for glucose and 5 °C for fructose), in comparison to the higher T_g (62 °C) of sucrose (Jayasundera, Adhikari, Aldred, & Ghandi, 2009).

In the last few years, several researchers studied the physicochemical properties of honey powders mainly obtained by spray drying, using Arabic gum, whey isolate proteins and maltodextrin as carrier agents (Nurhadi et al., 2012; Sahu & Nanda, 2016; Samborska, Gajek, & Kamińska-Dwórznička, 2015a; Shi et al., 2013). Despite its paramount importance for consumers, sensory analysis of honey powders was little carried out, so far (Nurhadi et al., 2012). Samborska (2019) published a review summarizing the main methods and carriers used for drying honeys, as well as the problems and physicochemical properties of honey powders, concluding that “the production of powdered honey is still a challenge both for industry as well as researchers”. Agreeing with Samborska (2019), the aim of this work was to make a ling-heather honey powder with the highest honey content, the lowest carrier amount and the highest yield as possible, also achieving pleasant sensory characteristics and good physicochemical properties. Three different drying methods (spray, vacuum and freeze) and three different carrier agents (Arabic gum, whey protein isolate and maltodextrin) were researched.

2. Materials and methods

2.1. Honey samples

This work was done with three ling-heather (*Calluna vulgaris* (L.) Hull) honeys (LH) from “Castilla-León” (Spain) supplied by beekeepers (LH1, LH2 and LH3). The botanical origins were determined by both melissopalynology (Louveau, Maurizio, & Vorwohl, 1978; Terradillos, Muniategui, Sancho, Huidobro, & Simal-Lozano, 1994; Von der Ohe, Persano Oddo, Piana, Morlot, & Martin, 2004) and sensory analyses (Marcazzan, Mucignat-Caretta, Marchese, & Piana, 2018; Persano Oddo & Piro, 2004; Piana et al., 2004). The corresponding powders (LHP) for each honey sample were named as: LHP1, LHP2 and LHP3.

2.1.1. Quality control parameters

Moisture, water activity (aw), fructose, glucose, sucrose, electrical conductivity, pH, acidity, formol number, diastase activity, hydroxymethylfurfural (HMF), proline and colour were determined by AOAC-Association of Official Analytical Chemists (2012), Bogdanov (2009), Codex Alimentarius Standard for Honey (2001), Commission Internationale de L'éclairage (2004), Hadorn and Zürcher (1963),

Pascual-Maté et al., 2018 and Sancho, Muniategui, Huidobro, and Simal (1991) procedures.

2.2. Carriers

Arabic gum (AG) (Sigma-Aldrich, 30888, spray dried, tested according to Ph Eur). Whey protein isolate (WH) with a protein content of 90% (Myprotein, Northwich, UK). Maltodextrin of dextrose equivalent 20 (MD) kindly provided by Calaf Nuances (Barcelona, Spain).

2.3. Drying methods

LHP (27 samples) were obtained from three honeys (LH1, LH2 and LH3) by three techniques: spray drying (SP), vacuum drying (VC) and freeze drying (FZ), using for each method three carriers: AG, WH and MD. In order to get the highest honey concentration for each technique with each carrier, different honey and carrier concentrations and different treatment conditions were tested for each technique before achieving the final procedure described in this work. To decide the final honey content, we chose the highest honey content, with which the final product could be properly pulverised. Table 1 shows the ratios of honey solids to carrier solids and feed solution concentration (%) obtained for each drying technique by each carrier.

SP: The feed solutions with different honey:carrier were prepared at 18% solid fraction (w/w). 300 ml of solution were spray dried for each run in a Büchi B-290 mini spray dryer (Büchi Labortechnik AG, Switzerland) in open-cycle system, at drying air inlet and outlet temperatures of 120 ± 1 °C and 67.5 ± 2.5 °C, respectively. The air flow rate was maintained at 50 mm with the aspirator rate at 70%, nozzle cleanliness of 4 times/min and pump at 5%. The honey powders (SP-LHP) were collected from the cyclone after each spray-drying process and stored in glass jars in desiccator containing silica gel until analyses.

VC: honey and carriers were first mixed with water separately. Then, they were mixed together gently stirring with a magnetic stirrer at room temperature (24 ± 1.5 °C), keeping a total solid concentration of 43–48% (w/w) and the ratios of honey solids (honey concentration) to carrier solids in feed solution as shown in Table 1. Each sample was poured into a silicon baking cup with 3–4 mm thickness and dried in a lab scale vacuum oven (Heraeus Instruments vacuotherm, Thermo Scientific) at 60 °C with absolute pressure maintained inside the chamber at 100 mbar (75 mmHg) for 24 h. Then, the samples were kept in desiccator until cooling and before analyses the samples were grounded with a mortar and the honey powders (VC-LHP) were stored in glass jars in desiccator containing silica gel.

FZ: The honey:carrier mixture was prepared in the same way as described for VC (Table 1) and was also poured in a silicon mold. The mix was frozen at -30 °C for 5 h and later at -80 °C for 24 h prior to be dehydrated by freeze drying in a Labconco Freezone 12L freeze dryer (Kansas, USA) throughout 3 day at 0.112 mbar pressure and immediately grounded. The honey powders (FZ-LHP) were stored in glass jars in desiccator containing silica gel until analyses.

2.4. Powder recovery

The powder recovery was calculated according to the following formula.

$$\% \text{ powder recovery} = \frac{\text{Total solids in resulting powder}}{\text{Total solids content in feed}} \times 100$$

2.5. Quality parameters and physical properties

Water activity (aw), proline and colour parameters L^* , a^* , b^* of LHP were determined following the same procedures described for raw honeys.

Table 1

Averages of samples LHP1, LHP2 and LHP3 corresponding to the ratios of honey solids to carrier solids and feed solution concentration (%) obtained for each drying technique with three different carriers (AG, WH and MD). Standard deviations were lower than 0.2% for all percentages.

	SP		VC		FZ	
	Honey solids to carrier solids ratio	Feed solution concentration (%)	Honey solids to carrier solids ratio	Feed solution concentration (%)	Honey solids to carrier solids ratio	Feed solution concentration (%)
AG	58:42	18.7%	73:27	43.2%	73:27	43.2%
WH	72:28	18.7%	72:28	43.2%	72:28	43.2%
MD	46:54	17.2%	56:44	48.8%	72:28	43.2%

AG: Arabic gum; MD: maltodextrin; WH: whey protein isolate; SP: spray; VC: vacuum; FZ: freeze.

2.5.1. Glass transition temperature

Thermal properties of the honey samples and powders obtained by LHP1 (as representative for all the powders obtained) were measured using differential scanning calorimetry (DSC, 10–15 mg of the sample under a constant nitrogen flow of 50 ml·min⁻¹, with a TA Instruments Q200 DSC analyser equipped with a cooling Intra-Cooler system, at 20 °C·min⁻¹). The measuring method was based on a heating/cooling/heating sequence, which started at -80 °C and goes up to no more than 120 °C, thus avoiding degradation of the sample (Cordella et al., 2002; Cordella, Faucon, Cabrol-Bass, Sbirrazzuoli, 2003). The measurements were carried out in pierced aluminium pans, and values for T_g were calculated using “TA Universal Analysis” software.

2.5.2. Moisture content

The moisture content was determined gravimetrically by drying 1 g LHP at 105 °C during 4 h (Samborska, Langa, Kamińska-Dwórznička, & Witrowa-Rajchert, 2015b).

2.5.3. Hygroscopicity

For hygroscopicity measurement, 1 g LHP was placed in low-form glass weighing bottles and placed in desiccators at room temperature and equilibrated over a saturated solution of NaCl (75% relative humidity) for one week. Samples were weighed every hour during the first 4 h to obtain the hygroscopic rate (g H₂O/min, the slope of weight change of honey powder) and the hygroscopic index that was expressed as g of absorbed moisture after one week per 100 g dry solids (g/100 g) (Nurhadi et al., 2012; Shi et al., 2013; Suhag & Nanda, 2015).

2.5.4. Tapped density

Tapped density was measured by pouring 2 g LHP into an empty graduated cylinder and gently tapping 25 times and recording the volume (Suhag & Nanda, 2015, 2016), expressing the results as g/ml.

2.5.5. Solubility

The solubility of powders was measured by adding 1 g LHP to 25 ml of distilled water in a 100 ml glass beaker at room temperature. The mixture was agitated with a magnetic stirrer at 890 rpm (stirring bar 8 mm × 25 mm), recording the time required for each powder to dissolve completely (Samborska & Bienkowska, 2013).

2.6. Sugars

Glucose, fructose and sucrose were determined following the same procedures for raw honeys by GC-chromatography after previous derivatization described by Pascual-Maté et al. (2018).

2.7. Sensory analysis

A descriptive quantitative sensory profile method was selected to obtain the sensory differences between 9 samples of LHP, performing the analysis with the powdered samples obtained with LHP1. The method was developed following the ISO standards and international procedures (ISO 4121, 2003; ISO 13299, 2016; ISO 6658, 2017; Marcuzzan et al., 2018).

The panel consisted of seven selected assessors (4 women and 3 men, ranging between 31 and 57 years old) with previous experience in honey sensory analysis (one of them registered as expert in Sensory Analysis of Honey by the Italian Government).

In the first session the panel generated descriptors individually, in order to describe the differences between carriers and honey powders, tasting different ling heater honeys, carriers dissolved in water (AG, WH and MD) and three different powdered honeys obtained in previous experiments. In the same session nineteen attributes were chosen and defined in common (Table 2). Furthermore, the intensity of each descriptor was consensual.

The second session was carried out choosing as representative of the powders, the 9 samples of LHP1 (with the three carriers and obtained by the three drying procedures), in order to prevent palate saturation with 27 tastings if LHP2 and LHP3 were additionally tasted. LHP1 samples were dissolved in water (2.5:1 [honey:water]) and then assessed. All descriptors and the global perception were quantified for each sample in a 10 cm continuous unipolar scale (10 cm continuous scale, anchored in 1 cm (minimum) and 9 cm (maximum), marked from 1 to 9, where the left side of the scale corresponding to the absence of the characteristic and the right side to the maximum intensity. The intensity of the attributes was quantified by measuring from the left-hand side on the line scale to the assessor's mark, calculating the median value for each attribute.

The 9 LHP1 samples were presented at random and anonymous way (only the three-digit code) in a glass container with a lid to prevent the contamination and dispersion of the honey odours, maintaining the sample/volume ratio near 1/4. Plastic spoons were used to stir the honey during the olfactory assessment and to taste the product. Mineral water and low-salt bread were used to clean the palate between tastings.

2.8. Statistical analysis

All the assays were carried out in triplicate except sensory analysis. The results were expressed as averages and standard deviations. A normality test was done. One-way analysis of variance (ANOVA) followed by Tukey's honestly significant difference test ($p < 0.05$) were used for parametric values, while non-parametric values were analyzed using the Kruskal-Wallis test followed by box-and-whiskers graphic interpretations. For sensory analysis, principal components analysis (PCA) and cluster analysis using Ward's linkage algorithm and Euclidean

Table 2

Attributes selected for the panel in this study for the sensory profile evaluation on powder honeys.

Olfactory characteristics	Flavour descriptors	Taste descriptors	Texture perceptions
floral	floral	sweetness	viscosity
candy	candy	sourness	crystallized
dairy	dairy	saltiness	waxy, unctuous
gum/tire	chemical	bitterness	
dried fruit	soap		
animal			
chemical			

distance were carried out. Analyses were done using software Statgraphics Centurion XVIII (Statgraphics Technologies, Inc., The Plains, VA, USA).

3. Results and discussion

3.1. Honey samples

Table 3 shows the results of honeys' quality control parameters. With regard to the composition criteria that European honeys must meet, moisture (16.04–17.54%), sum of fructose and glucose (60.05–71.69%), sucrose (0.24–2.70%), electrical conductivity (0.33–1.01 mS/cm), free acid (41.02–49.77 meq/kg) diastase activity (3.93–23.55 Schade scale) and HMF content (0.00–18.01 mg/kg) complied with the European limits for these parameters (OJEC-Official Journal of the European Communities, 2002). Aw values (0.5400–0.6243) were within the usual range for honey samples, exhibiting LH3 the lowest aw result and the lowest moisture percentage. Aw values lower than 0.6 inhibit osmophilic yeasts that can be responsible for honey fermentation (Bogdanov, 2011). Samples' pH ranged from 3.87 to 4.14, being within the usual values for blossom honeys (Bogdanov, Ruoff, & Persano-Odo, 2004). The three LH showed high free acidity (41.02–49.77 meq/kg) and very low lactone content (0.00–0.23 meq/kg). Formol number (0.61–0.93 meq/100 g), which is related to the free amino acid content (Hadorn & Zürcher, 1963), agreed with literature references (Andrade et al., 1999; Manuel Suisse des Denrées Alimentaires, 1974). Proline (73.06–107.24 mg/100 g) was higher than 18 mg/100 g, which is the minimum level proposed for authentic honeys (Bogdanov, 2016). Samples exhibited redness colour, which is typical for heather honeys. LH3 was lighter, less reddish and more yellowish compared with the other honeys. Some researchers pointed out that the darker the honeys were, the higher the phenolic contents and antioxidant activities were (Meda, Lamien, Romito, Millogo, & Nacoulma, 2005; Álvarez-Suárez et al., 2010).

3.2. Powdered honeys

3.2.1. Powder recovery

LHP showed recoveries between 59.88% and 97.90% (Fig. 1). Regardless the honey sample, VC-LHP (80.55–97.90%) and FZ-LHP (73.62–96.41%) exhibited the highest recoveries, while SP-LHP showed the lowest (59.10–78.60%). The lower yield shown by SP in comparison with VC and FZ could be likely due to the greater temperature difference between the temperature at which the powder is

obtained and its T_g (Jedlińska et al., 2019), because this fact increases the gumminess of the product, negatively affecting the yield. Anyway, our data for SP-LHP were higher than the 50% described as successful recoveries for spray drying by Shi et al. (2013). MD was the carrier, with which the highest recoveries were obtained by VC and FZ, whereas WH was the carrier agent with which the highest recovery was obtained by SP.

With regard to the carrier agents: 1) Using AG the recoveries varied between 60% and 69%, with 58% honey concentration (58:42 ratio) in SP-LHP. Similar values were described by Suhag, Nayik, & Nanda (2016) for the same carrier and the same procedure, achieving a honey powder with 65% of honey and 60% of recovery. Other researchers that also dehydrated honeys with AG by SP obtained powders with lower honey quantity (50%) and yields between 36.6% (Nurhadi et al., 2012) and 68%, increasing the recovery until 75% if caseinate (2%) was added (Samborska et al., 2014a). Samborska et al. (2017) obtained a powder with 75% honey, but with a yield of 25% by applying diafiltration previously to the SP. Dehydrating by VC, Nurhadi et al. (2012) obtained 73.8% recovery with 50% honey in the final powder. In our study, considerably higher yields (80%–89.4%) were obtained by VC with AG (VC-AG). FZ proved to be the best and most effective procedure to make powdered honeys, because using it, the highest recovery (87%–93%), and the highest concentration of honey in the powder (73%) were accomplished. 2) With WH, the same final honey concentration (72%) was obtained by the three techniques with the following recoveries: SP: 74.8–78.6%, VC: 85–95%, FZ: 75–94%. For SP, WH proved to be the most efficient carrier, because higher amounts of honey in the powder (72%) and higher recovery percentages (75%–79%) were achieved, agreeing with other studies (Shi et al., 2013; Suhag & Nanda, 2016). 3) Using MD, the yield varied from 59% to 72% and the final honey concentration in the powder was 46% in SP-LHP. Applying the same technique and employing the same carrier, other scientists showed recoveries between 9.7% (Nurhadi et al., 2012) and 74% (Samborska et al., 2020) with 50% honey in the final product. However, in order to get a higher honey concentration Shi et al. (2013) added 2.5% WH to the feed, obtaining a powder with 60% honey and a yield of 70%. Working with a rape honey, Samborska et al. (2019) obtained a powder with higher amount of honey (60–80%) and with very high yield (75–90%) after using dehumidified air throughout the spray process, being likely that rape honeys are easier to dry than heather honeys. In our study, higher yields and higher honey concentrations were obtained using VC (90–98% yield, 56% honey) and FZ (88–96% yield, 72% honey), being our results considerably better than those obtained by Nurhadi et al. (2012), using VC and MD (73% recovery, 50% honey in the powder) or by Fan and Roos (2019), who obtained a powder with 50% of honey using FZ.

3.2.2. Physical properties

3.2.2.1. Glass transition temperature (T_g). Table 4 shows a single T_g in LH (between -27.33 and -29.81 °C). Our values were higher than the results obtained for other honeys (Kántor, Pitsi, & Thoen, 1999; Nurhadi et al., 2012; Shi et al., 2013; Sramek et al., 2016), where values between -40.2 and -51 °C were described. The contrasting values could be due to the different botanical origins, or to the different T_g measuring procedure. Nurhadi et al. (2012) explained that the glass transition temperature of liquid honey is strongly affected by moisture content, since water acts as plasticizer and sample's T_g decreases considerably.

However, LHP1 showed two transitions at higher temperatures (Table 4). This fact can be explained by the dual role of water as compatibiliser and plasticizer. The observed two T_g in dried samples correspond to two different polymers. T_{g1} was likely due to dry honey polymers. T_{g2} (that was less noticeable than the first one, Fig. 1-supplementary material) was likely due to the carriers. T_{g2} seemed to be lower than T_g of pure carriers (205.5 °C for MD; 194.5 °C for AG; 132.12 °C for

Table 3
Physicochemical properties of ling-heather honeys used to obtain honey powder (n = 3, except sugars n = 1).

	LH1	LH2	LH3
Moisture (%)	16.72 ± 0.12 _b	17.54 ± 0.05 _c	16.04 ± 0.23 _a
Aw	0.624 ± 0.044 _b	0.605 ± 0.004 _b	0.540 ± 0.008 _a
Fructose (%)	37.14	34.59	32.16
Glucose (%)	34.55	33.52	27.89
Sucrose (%)	2.70	0.24	2.63
Conductivity (mS/cm)	0.647 ± 0.002 _b	1.012 ± 0.006 _c	0.332 ± 0.001 _a
pH	4.05 ± 0.01 _b	4.14 ± 0.02 _c	3.87 ± 0.03 _a
Free acidity (meq/kg)	49.77 ± 3.05 _a	49.70 ± 2.49 _a	41.02 ± 6.56 _a
Lactone acidity (meq/kg)	0.00 ± 0.00 _a	0.23 ± 0.05 _a	0.00 ± 0.00 _a
Formol index (meq/100 g)	0.61 ± 0.05 _a	0.74 ± 0.01 _a	0.93 ± 0.13 _a
Diastase (Schade scale)	3.93 ± 0.07 _a	13.55 ± 0.35 _b	23.55 ± 1.49 _c
HMF (mg/kg)	0.00 ± 0.00 _a	0.00 ± 0.00 _a	18.01 ± 0.43 _b
Proline (mg/100 g)	74.33 ± 3.72 _a	107.24 ± 4.85 _b	73.06 ± 0.75 _a
L*	24.77 ± 0.03 _a	25.66 ± 0.03 _b	44.61 ± 0.01 _c
a*	16.54 ± 0.02 _b	16.61 ± 0.03 _c	10.17 ± 0.01 _a
b*	33.15 ± 0.07 _a	34.49 ± 0.11 _b	40.42 ± 0.03 _c

a-c: different letters showed significant differences (p < 0.05) between honeys.

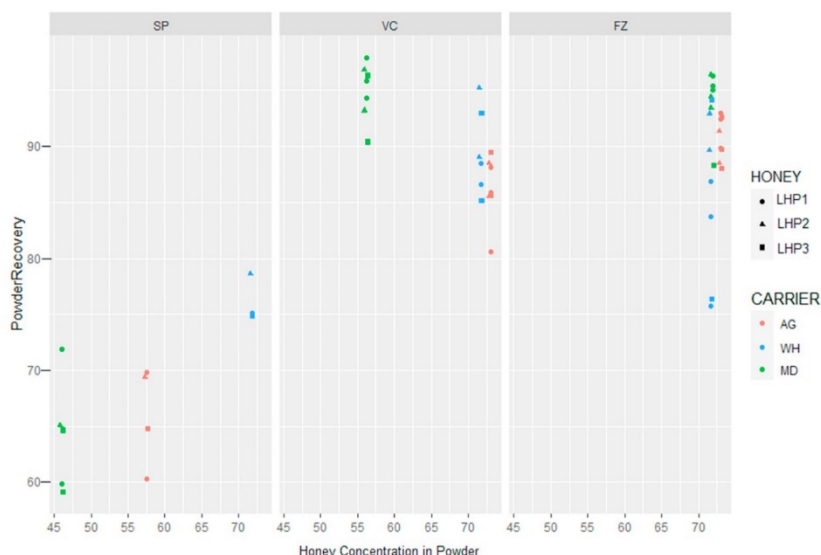


Fig. 1. Diagramme of relation between powder recovery and honey quantity of powder honey samples obtained by spray (SP), vacuum (VC) and freeze (FZ) drying, using Arabic gum (AG), whey (WH) and maltodextrin (MD). Graphical done with R-Studio.

Table 4

Glass transition temperature T_g (°C) of raw honeys (LH1, LH2, LH3) and honey powders (LHP1) obtained by spray (SP), vacuum (VC) and freeze (FZ) drying, using Arabic gum (AG), whey (WH) and maltodextrin (MD).

Sample	T_{g1} ($T_{MIDPOINT}$ °C)	T_{g2} ($T_{MIDPOINT}$ °C)
LH1	-27.66	–
LH2	-29.81	–
LH3	-27.33	–
SP-AG-LHP1	49.86	–
SP-WH-LHP1	13.31	64.54
SP-MD-LHP1	25.44	90.58
VC-AG-LHP1	13.62	80.09
VC-WH-LHP1	22.20	71.08
VC-MD-LHP1	25.99	91.34
FZ-AG-LHP1	19.34	81.26
FZ-WH-LHP1	14.32	66.52
FZ-MD-LHP1	18.47	88.82

–: Absent (there is no T_{g2}).

WH, Nurhadi et al., 2012; Shi et al., 2013), which showed a partial compatibility between honey polymers and carriers, but not a total compatibility, since in the latter case, only a single T_g would be observed. Values for T_{g2} of powders obtained with WP were lower than T_{g2} for powders obtained with MD, confirming the influence of the chemical nature of carriers in the compatibility of mixtures. Sample SP-AG-LHP1 can be highlighted, because only a single T_g was observed at 49.86 °C, meaning that the carrier and honey polymers were totally compatible in this case.

The T_{g1} for LHP1 ranged from 13.31 to 25.99 °C, except for SP-AG-LHP1. The results were lower than those obtained by other researchers who described T_g values between 42.6 and 49.7 °C in powders obtained by vacuum and T_g values between 47.5 and 82.14 °C in powders obtained by spray drying (Sahu et al., 2008; Samborska et al., 2020; Shi et al., 2013). However, we obtained similar T_g values than Jedlińska et al. (2019) and Samborska et al. (2019) for honey powders obtained by dehumidified air spray drying (T_g between 6.5 and 26.1 °C). These researchers obtained similar honey concentration (60–80%) than us in final powders, confirming that the T_g values decrease as honey

concentration increases. MD-LHP exhibited the higher T_g values for all the drying procedures, which is probably due to the lower honey:carrier ratio in these samples.

The low values of T_g for honey powders (close to room temperature), suggest that powdered honeys should be stored at refrigeration temperatures in high-barrier packaging because amorphous materials are unstable if stored at temperature close to or higher than T_g (Jedlińska et al., 2019).

3.2.2.2. Colour. LHP colour is a quality factor of paramount importance for consumers. Honey colour varies from colourless and light yellow to dark amber or nearly black, sometimes with green or reddish reflexes (Bogdanov, 2011), being related to the botanical origin. Heather honeys, together with chestnut and honeydew honeys are dark coloured with L^* values lower than 50 (González-Miret, Terrab, Hernanz, Fernández-Recales, & Heredia, 2005). Fig. 2 shows photos of the powders, where the colour of powders can be observed. Table 5 show that lightness (L^*) of LHP was significantly higher ($p < 0.05$) for SP-LHP and significantly lower ($p < 0.05$) for VC-LHP. Higher L^* values were described by Nurhadi et al. (2012) in SP and VC powders with AG and MD (94.3–98.1) and by Samborska et al. (2019) in SP powders with MD (93.9–94.3). Generally, AG-LHP showed higher lightness. As expected, LHP3 showed the highest values for lightness (see Table 5).

Regarding a^* values, all the carriers and most SP-LHP showed negative values, which meant that they had a slightly green tonality. Conversely, VC-LHP and FZ-LHP tended to red, being the VC-LHP the redder. LHP3 exhibited the lowest a^* values, which agreed with the values obtained for the LH (Table 3). In general, AG-LHP showed lower a^* values than WH-LHP and MD-LHP. VC-WH-LHP exhibited the highest a^* values ($p < 0.05$). Negative a^* values were also described in other studies for SP powdered honeys (−0.1 to −0.5) (Nurhadi et al., 2012; Samborska et al., 2019). However, in VC powders Nurhadi et al. (2012) obtained negative values (−0.2). This contrasting difference between the results of Nurhadi et al. (2012) and the results of this study is likely due to the different time of drying. The honey powders made by Nurhadi et al. (2012) were obtained in 1 h, whereas the LHP of our research were obtained in 24 h.

With regard to b^* values, all LHP tended to yellow. SP-LHP showed

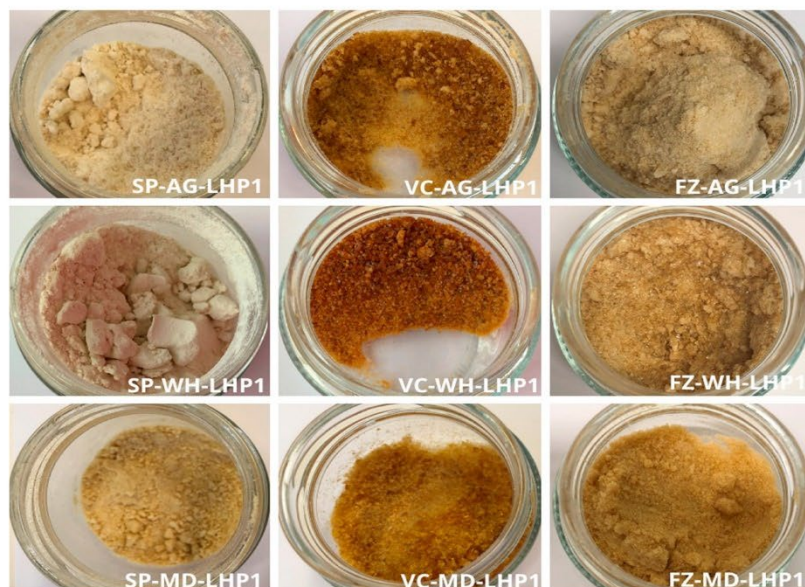


Fig. 2. Pictures of ling-heater powders (LHP) obtained by spray (SP), vacuum (VC) and freeze (FZ) drying, using Arabic gum (AG), whey (WH) and maltodextrin (MD).

Table 5

Colour parameters (L^* , a^* and b^*) of carriers and powder honeys obtained by spray (SP), vacuum (VC) and freeze (FZ) drying, using Arabic gum (AG), whey (WH) and maltodextrin (MD) ($n = 3$).

	L^*			L^*			L^*		
	LHP1			LHP2			LHP3		
	SP	VC	FZ	SP	VC	FZ	SP	VC	FZ
AG	89.52 ± 0.11	^c 88.50 ± 0.02 _b	^a 59.74 ± 0.14 _c	^b 73.29 ± 0.01 _c	^c 88.42 ± 0.02 _c	^a 63.73 ± 0.02 _c	^b 71.80 ± 0.06 _c	^c 93.79 ± 0.06 _c	^a 75.84 ± 0.04 _a
WH	58.59 ± 0.07	^c 88.31 ± 0.03 _b	^a 51.94 ± 0.35 _a	^b 67.22 ± 0.02 _a	^c 87.70 ± 0.05 _b	^a 50.48 ± 0.13 _a	^b 66.89 ± 0.12 _a	^c 93.14 ± 0.03 _b	^a 57.88 ± 0.02 _a
MD	95.50 ± 0.19	^c 79.78 ± 0.05 _a	^a 58.72 ± 0.16 _b	^b 70.99 ± 0.03 _b	^c 84.86 ± 0.03 _b	^a 63.43 ± 0.17 _b	^b 69.46 ± 0.04 _a	^c 92.31 ± 0.02 _b	^a 76.98 ± 0.03 _c
a^*									
	LHP1			LHP2			LHP3		
	SP	VC	FZ	SP	VC	FZ	SP	VC	FZ
AG	-0.68 ± 0.01	^a -0.15 ± 0.01 _b	^c 7.56 ± 0.04 _a	^b 3.87 ± 0.01 _a	^a -0.47 ± 0.02 _a	^c 6.11 ± 0.01 _a	^b 4.55 ± 0.05 _a	^a -1.31 ± 0.01 _b	^c 2.60 ± 0.01 _a
WH	-0.35 ± 0.01	^a 0.28 ± 0.01 _a	^c 13.20 ± 0.14 _c	^b 5.50 ± 0.01 _b	^a 0.26 ± 0.01 _b	^c 13.18 ± 0.05 _c	^b 5.72 ± 0.05 _b	^a 1.19 ± 0.01 _c	^c 12.55 ± 0.01 _c
MD	-1.64 ± 0.01	^a 2.43 ± 0.01 _c	^c 8.46 ± 0.10 _b	^b 5.74 ± 0.02 _c	^a 0.95 ± 0.01 _c	^c 7.84 ± 0.01 _b	^b 6.04 ± 0.09 _c	^a 1.59 ± 0.01 _a	^c 2.73 ± 0.00 _b
b^*									
	LHP1			LHP2			LHP3		
	SP	VC	FZ	SP	VC	FZ	SP	VC	FZ
AG	9.72 ± 0.00	^a 12.18 ± 0.03 _a	^c 29.26 ± 0.11 _a	^b 24.71 ± 0.00 _a	^a 11.89 ± 0.03 _a	^c 28.65 ± 0.03 _a	^b 27.20 ± 0.09 _a	^a 5.64 ± 0.02 _a	^c 22.33 ± 0.01 _a
WH	17.34 ± 0.03	^a 13.49 ± 0.01 _b	^c 34.70 ± 0.07 _c	^b 26.22 ± 0.05 _b	^a 14.13 ± 0.03 _b	^c 32.96 ± 0.22 _c	^b 27.73 ± 0.13 _b	^a 7.81 ± 0.01 _c	^c 35.56 ± 0.01 _c
MD	1.16 ± 0.02	^a 21.87 ± 0.02 _c	^c 30.99 ± 0.26 _b	^b 28.40 ± 0.03 _c	^a 18.26 ± 0.04 _c	^c 32.60 ± 0.03 _b	^b 29.05 ± 0.19 _c	^a 7.01 ± 0.02 _b	^c 27.37 ± 0.02 _b

A-C: Different letters showed significant differences ($p < 0.05$) between drying procedures for each honey and carrier.

a-c: different letters showed significant differences ($p < 0.05$) between carriers for each honey and drying procedure.

the lowest b^* values, in contrast to VC-LHP, which exhibited the highest b^* values ($p < 0.05$). In comparison to LHP1 and LHP2, LHP3 showed the lowest b^* values, conversely to the data obtained for the crude LH3 (Table 3). All AG-LHP showed the lowest b^* values and VC-WH-LHP the highest values. Nurhadi et al. (2012) obtained lower b^* values with AG and MD (2.1–10.5), also obtaining higher b^* values in VC powders in comparison with SP powders.

Comparing the colour parameters between the crude honeys and their powders it can be observed that in LHP L^* increased (tending to whitish), while a^* and b^* decreased, probably due to the use of carriers. Furthermore, the significant decrease of L^* value and the increase in a^* and b^* values of VC-LHP, particularly for the VC-WH-LHP, could be attributed to Maillard reactions and fructose and glucose caramelization. VC-LHP were dehydrated at 60 °C for a long time. Moreover, it is likely that there were deteriorative reactions of polyphenols with proteins using WH (Samborska et al., 2014a).

3.2.2.3. Moisture content and water activity. Table 6 shows the results for moisture and aw. LHP showed moisture results between 1.90% and 7.48%. In general, the lowest moisture percentages were obtained for honeys dehydrated with MD (MD-LHP) and the highest moisture percentages for honeys dehydrated with WH (WH-LHP). Similar values and the same tendency were shown for Shi et al. (2013) and Suhag and Nanda (2016) in SP honey powders, where the honeys dehydrated with WH exhibited the highest moisture (4.5–5.7%), with GA intermediate moisture (4.6%) and with MD the lowest moisture (3.1–3.6%). This behaviour could be expected since there are differences among the chemical structures of the carrier agents. Proteins showed a strong ability to bind water and coated the droplets with a thin film layer, preventing evaporation (Suhag & Nanda, 2016). However, this tendency was not observed in other studies in VC-LHP, where the final moisture percentages ranged between 1.40% and 1.92% using AG, WP and MD without significant differences among carriers (Mutlu, Koç, & Erbaş, 2020). Lower moisture values (0.9–1.6%) were obtained when dehumidified air was used for SP (Samborska et al., 2019). There was no difference among honey samples, honey concentration or drying method, although in general the VC-LHP had lower moisture percentages. Also, Nurhadi et al. (2012) showed lower moisture in VC honey powders (1.1–2%) than in SP honey powders (2.3–4.4%). Other studies concluded that the water content of the powders depended on the ratio of carrier in the powder. The higher the content of carrier, the higher the final water content (Samborska et al., 2015a, 2017, 2019). In our study, we compared the three MD-LHP, using different ratio honey:carrier for each treatment. MD-LHP1 and MD-LHP2 followed the mentioned trend,

unlike MD-LHP3. In other FZ powders, 3.10% moisture was obtained in the honey powder with 50% honey, using glucose syrups +1% of WP as drying agent (Sramek et al., 2016).

WH showed the lowest value for aw and AG the highest. LHP exhibited a great variability with aw values ranging between 0.2106 and 0.3421. Similar values were obtained by Nurhadi et al. (2012), Nurhadi and Roos (2017) and Shi et al. (2013), for SP and VC, while Samborska et al. (2014a, 2017, 2020), Samborska and Czelejewska (2014b) obtained lower water activity results (0.066–0.138) in SP powders with AG or MD. These differences could be attributed to the type of honey, the time until analysis and the storage conditions.

3.2.2.4. Solubility and tapped density. MD was the carrier with the highest solubility (10 s), while AG showed the lowest (311 s). LHP also exhibited the same tendency, being MD-LHP the most soluble (37–92 s) regardless the drying procedure. Honey dehydrated with AG (AG-LHP) were the least soluble ($p < 0.05$), taking between 83 and 286 s (Fig. 3A). FZ-LHP had the best solubility values, followed by SP-LHP, while VC-LHP showed the lowest solubility ($p < 0.05$). Samborska and Bienkowska (2013) obtained similar values for SP powders with MD (28–148 s). These authors showed that the lower the moisture content of the powders was the worst the solubility was. Nevertheless, in our research that relationship changed, because powders with lower moisture, such as MD-LHP showed the best solubility, while WH-LHP that were the samples with higher moisture, showed an intermediate solubility.

Tapped density was higher in MD (0.64 g/ml) than in the rest of carriers (0.42–0.45 g/ml). LHP did not follow any clear tendency depending on the carrier, although MD-LHP showed the highest density in most samples (0.29–0.79 g/ml) (Fig. 3B). Also, Samborska, Gajek, and Kamińska-Dwórznička (2015b) and Shi et al. (2013) concluded that tapped density was higher in powders with MD, which was related to their high degree of agglomeration and structural collapse, resulting in a decrease in volume of powder particles. MD-LHP, with different honey concentration for each drying treatment (Table 1), showed that the tapped density of SP-MD-LHP was lower than the tapped density of VC-MD-LHP and FZ-MD-LHP, being FZ-MD-LHP1 the exception. Therefore, there was an increase of tapped density when honey concentration increased (or carrier concentration decreased). Similar results were observed in other studies (Suhag et al., 2016). Lower tapped density was shown in SP-LHP (0.24–0.50 g/ml), for which it was necessary more space for storing the product in comparison with VC-LHP (0.61–0.79 g/ml) and FZ-LHP (0.37–0.78 g/ml). VC-LHP showed the highest density, except for VC-MD-LHP2 and

Table 6

Moisture (%) and water activity of carriers and powder honeys obtained by spray (SP), vacuum (VC) and freeze (FZ) drying, using Arabic gum (AG), whey (WH) and maltodextrin (MD) ($n = 3$).

	Moisture								
	LHP1			LHP2			LHP3		
	SP	VC	FZ	SP	VC	FZ	SP	VC	FZ
AG	7.51 ± 0.33	^A 4.63 ± 0.47 _a	^A 3.43 ± 0.12 _b	^A 4.09 ± 0.68 _b	^A 3.00 ± 0.11 _a	^B 4.52 ± 0.13 _b	^B 4.59 ± 0.27 _b	^B 4.87 ± 0.20 _b	^B 5.12 ± 0.36 _b
WH	1.33 ± 0.20	^B 7.27 ± 0.23 _b	^A 5.74 ± 0.28 _b	^B 7.40 ± 0.61 _c	^B 7.02 ± 0.16 _c	^A 5.35 ± 0.66 _b	^A 5.99 ± 0.19 _c	^C 7.48 ± 0.36 _c	^B 5.67 ± 0.13 _b
MD	2.34 ± 0.27	^B 4.08 ± 0.10 _a	^A 2.61 ± 0.26 _a	^A 2.21 ± 0.16 _a	^C 3.80 ± 0.01 _b	^B 2.91 ± 0.21 _a	^A 1.90 ± 0.00 _a	^A 2.12 ± 0.09 _a	^B 3.42 ± 0.09 _a
	aw								
	LHP1			LHP2			LHP3		
	SP	VC	FZ	SP	VC	FZ	SP	VC	FZ
AG	0.324 ± 0.003	^A 0.263 ± 0.001 _b	^B 0.317 ± 0.021 _{ab}	^A 0.254 ± 0.004 _b	^A 0.211 ± 0.001 _a	^B 0.250 ± 0.005 _b	^C 0.304 ± 0.002 _c	^A 0.236 ± 0.001 _a	^B 0.257 ± 0.007 _a
WH	0.120 ± 0.001	^A 0.256 ± 0.002 _a	^B 0.297 ± 0.001 _a	^A 0.253 ± 0.007 _b	^B 0.257 ± 0.001 _b	^A 0.240 ± 0.000 _a	^C 0.263 ± 0.002 _b	^B 0.260 ± 0.003 _a	^A 0.250 ± 0.002 _a
MD	0.204 ± 0.001	^C 0.342 ± 0.002 _c	^B 0.337 ± 0.001 _b	^A 0.211 ± 0.002 _a	^A 0.257 ± 0.001 _b	^B 0.271 ± 0.000 _c	^B 0.267 ± 0.001 _c	^C 0.318 ± 0.001 _b	^A 0.261 ± 0.001 _b

A-C: Different letters showed significant differences ($p < 0.05$) between drying procedures for each honey and carrier.

a-c: different letters showed significant differences ($p < 0.05$) between carries for each honey and drying procedure.

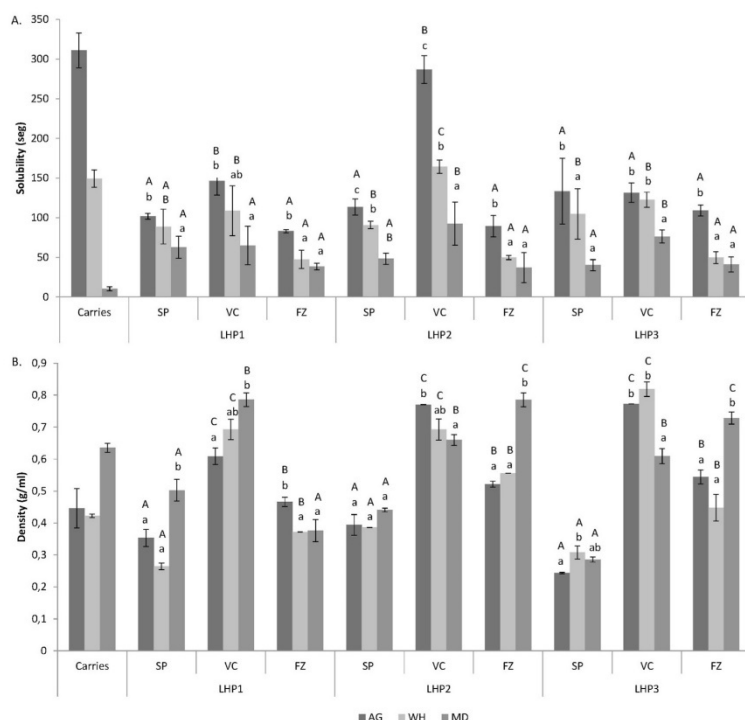


Fig. 3. Solubility (s) and density (g/ml) of ling-heather powders (LHP) obtained by spray (SP), vacuum (VC) and freeze (FZ) drying, using Arabic gum (AG), whey (WH) and maltodextrin (MD) as carriers ($n = 3$, density $n = 2$). Error bars represent the standard deviation for each data point. A–C: Different letters showed significant differences ($p < 0.05$) between drying procedures for each honey and carrier; a–c: different letters showed significant differences ($p < 0.05$) between carriers for each honey and drying procedure.

VC-MD-LHP3. Similar values were obtained by Mutlu et al. (2020) for VC powders with three different carriers (AG, WH, MD) (0.74–0.80 g/ml). A slightly negative correlation was observed between tapped density and moisture ($r = -0.3814$, $p = 0.0020$), agreeing with other researches (Samborska et al., 2015b; Shi et al., 2013). The density of a product is relevant to the storage, processing, packaging and distribution. Having higher density could be positive, because it implies a lower volume and therefore a more efficient storage, packaging and distribution. However, it could also be negative, because higher density could provoke higher cohesion between particles and form easier agglomerates.

3.2.2.5. Hygroscopicity. LHP is a product with high hygroscopicity due to its high sugar content. Fig. 4 represents the hygroscopicity of the honey powders and the carriers. Fig. 4A shows the percentage of water gained in one week (hygroscopic index). Fig. 4B exhibits the amount of water gained per minute (hygroscopic rate). The carrier WH showed the highest hygroscopicity for both measurements.

In general MD-LHP showed lower hygroscopic index (7.21–13.14%), unlike AG-LHP that showed higher percentages (10.18–16.26%), except for VC-AG-LHP3 and FZ-AG-LHP3. The hygroscopic values obtained in our study were lower than those described in other investigations of honey SP powders using the three carriers and the same analysis conditions (1 g/25 °C/75% RH/7 days), with values between 20.13% and 27.8% (Samborska et al., 2020; Shi et al., 2013; Suhag & Nanda, 2015). The divergent results could be due to the type of honey. Our results were also contradictory to those of Suhag and Nanda (2016), who observed the lowest hygroscopicity (23.1%) for honey SP powders with WH and the highest (26.4%) for powders with MD. However, our values agreed with the results of Samborska et al. (2015b), whose MD honey powders showed the lowest hygroscopicity. These researchers attributed their

values to the lower hygroscopicity of MD, as well as to a combination of factors, such as the conformation and topology of molecule and the hydrophilic/hydrophobic sites absorbed at the interface (Pérez-Alonso, Beristain, Lobato-Calleros, Rodríguez-Huezo, & Vernon Carter, 2006). SP-LHP showed hygroscopicity percentages between 8.37% and 15.58%, VC-LHP exhibited values between 7.9% and 15.43%, and FZ-LHP between 5.56% and 16.41%. Similar results were described by Nurhadi et al. (2012) in VC honey powders with AG and MD (12–13.7%). Analysis of variance revealed no significant effect of the drying method on the hygroscopic index. However, the SP-LHP showed the highest hygroscopicity rate (Fig. 4B), being lower and similar the VC-LHP and FZ-LHP. Therefore, during the first 4 h SP-LHP gained water faster than the powders obtained by the other two treatments. However, after one week, the hygroscopicity index were similar for powders obtained by all procedures. Higher hygroscopic rates were obtained by Nurhadi et al. (2012), who described values between 0.00020 and 0.00033 g H₂O/min in SP and VC powders, with lower results in powders obtained with MD than with AG.

Although some authors described a relationship between the moisture of the powder and the hygroscopicity (Shi et al., 2013), in our research that correlation was not found. However, a very weak correlation was found between the amount of honey in the final powder and the hygroscopic level ($r = 0.3$, $p = 0.017$), which was also previously observed by Samborska et al. (2019).

3.2.3. Proline

This amino acid is being used as a possible indicator of honey quality. It would be interesting to check to what extent the incorporation of additives with proline-containing proteins (e.g. whey) can increase the proline content in powdered honeys with respect to the starting honeys in order to detect in the future powdered honeys made with proline-

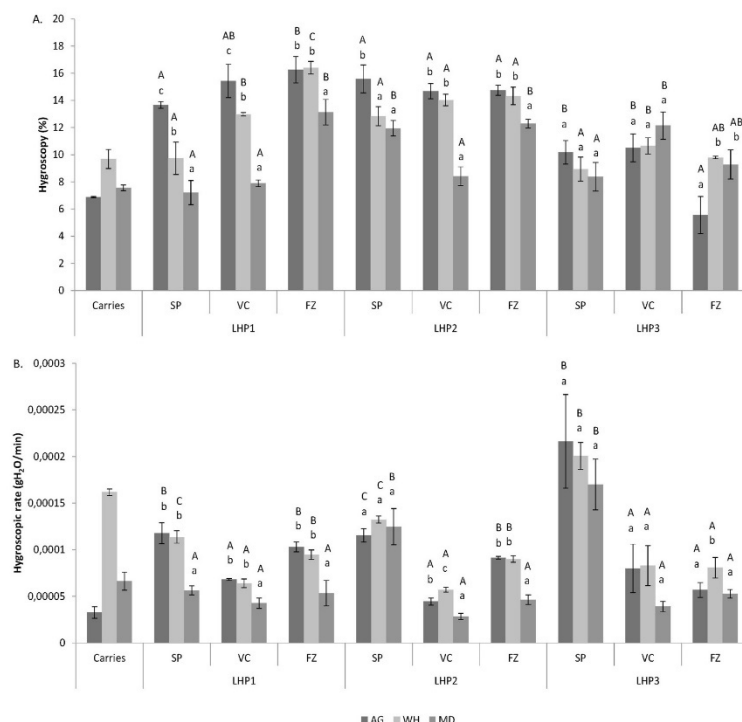


Fig. 4. Hygroscopicity (%) and hygroscopic rate ($\text{g H}_2\text{O/min}$) of ling heather powders (LHP) obtained by spray (SP), vacuum (VC) and freeze (FZ) drying, using Arabic gum (AG), whey (WH) and maltodextrin (MD) as carriers ($n = 3$). Error bars represent the standard deviation for each data point. A–C: Different letters showed significant differences ($p < 0.05$) between drying procedures for each honey and carrier; a–c: different letters showed significant differences ($p < 0.05$) between carriers for each honey and drying procedure.

containing compounds.

Regarding the carriers, as expected, WH showed the highest value, followed by AG that is composed of a mixture of polysaccharides with 10% proteinaceous material, with 50% of hydroxyproline, serine and proline (Lopera, Guzmán, Cataño, & Gallardo, 2009). LHP showed lower proline contents than the corresponding LH, showing WP-LHP the highest values, followed by AG-LHP. LHP2 showed higher proline contents, agreeing with the higher value of LH2. FZ-LHP showed the highest proline contents, probably because these powders contained the highest amount of honey and were not subjected to any thermal treatment. VC-LHP showed the lowest proline content, mainly due to the intense thermal treatments received ($60^\circ\text{C}/24\text{ h}$), where Maillard reaction between sugar and amino acid could provoke a proline decrease (Table 7).

3.2.4. Sugars

Sugars' content can be used to detect honey adulteration. Thus,

determining sugar changes after drying process is useful to verify honey powders from adulterated honeys or possible addition of sugars to the honey powder.

Fructose and glucose were the major constituents of LHP. Table 8 shows that among the carriers, only AG had a little amount of both monosaccharides. In most LHP, fructose was higher than glucose, although there were some exceptions. Sucrose was not detected in any powder. In chromatographic methods, both gas chromatography and HPLC, %RSD of around 3% are considered acceptable. A very good chromatographic method may have values around 1% RSD, being common in literature papers with values of 6%, 7% or even 8%. Assuming a method with a 1% RSD, a value lower than 1% sucrose is not analytically significant, which may explain why in our study values of 0.00 were obtained. Actually, we verified that there were small sucrose peaks in the chromatograms, but after dividing this value by the considerably higher area of mannitol (used as internal standard), and

Table 7

Proline ($\text{mg}/100\text{ g}$ of powder in dry matter) of carriers and powder honeys obtained by spray (SP), vacuum (VC) and freeze (FZ) drying, using Arabic gum (AG), whey (WH) and maltodextrin (MD) ($n = 3$).

	LHP1			LHP2			LHP3		
	SP	VC	FZ	SP	VC	FZ	SP	VC	FZ
AG	25.62 $\pm$ 2.23	^A 31.48 $\pm$ 1.75 _b	^A 29.45 $\pm$ 0.97 _b	^B 42.44 $\pm$ 0.56 _b	^B 50.73 $\pm$ 1.37 _b	^A 37.05 $\pm$ 1.05 _b	^C 65.68 $\pm$ 1.75 _a	^B 31.88 $\pm$ 2.37 _b	^C 43.53 $\pm$ 1.02 _b
WH	75.70 $\pm$ 5.04	^B 60.78 $\pm$ 0.86 _c	^A 31.16 $\pm$ 1.11 _b	^B 65.34 $\pm$ 3.65 _c	^B 88.16 $\pm$ 1.21 _c	^A 38.61 $\pm$ 1.42 _b	^C 108.99 $\pm$ 3.81 _b	^A 29.43 $\pm$ 0.72 _b	^B 56.82 $\pm$ 2.05 _c
MD	8.21 $\pm$ 0.23	^B 25.40 $\pm$ 0.11 _a	^A 21.96 $\pm$ 0.88 _a	^B 36.03 $\pm$ 3.65 _c	^B 38.16 $\pm$ 1.80 _a	^A 24.75 $\pm$ 0.50 _a	^C 67.70 $\pm$ 0.17 _a	^A 21.39 $\pm$ 1.44 _a	^B 35.73 $\pm$ 1.51 _a

A–C: Different letters showed significant differences ($p < 0.05$) between drying procedures for each honey and carrier.

a–c: different letters showed significant differences ($p < 0.05$) between carriers for each honey and drying procedure.

Table 8

Fructose and glucose obtained by CG-MS expressed in dry matter (g/100 g of dry powder) of carriers and powder honeys obtained by spray (SP), vacuum (VC) and freeze (FZ) drying, using Arabic gum (AG), whey (WH) and maltodextrin (MD) (n = 1).

Fructose		LHP1			LHP2			LHP3		
		SP	VC	FZ	SP	VC	FZ	SP	VC	FZ
AG	0.36	29.41	32.18	27.61	28.74	24.46	27.13	27.62	32.96	27.98
WH	0.00	28.99	31.82	31.15	27.97	28.76	30.21	29.71	25.57	31.68
MD	0.00	27.40	26.00	30.43	23.88	32.21	26.47	25.63	24.16	32.13

Glucose		LHP1			LHP2			LHP3		
		SP	VC	FZ	SP	VC	FZ	SP	VC	FZ
AG	0.25	24.68	27.52	21.53	25.46	29.74	21.38	23.57	29.43	21.91
WH	0.00	22.77	26.19	24.30	22.69	27.91	24.10	25.16	27.90	27.06
MD	0.00	25.38	21.83	26.50	23.26	32.93	27.15	26.58	25.13	28.36

after taking this value of the division to the calibration curve of sucrose, values of 0.00 were obtained in all cases for the powdered honeys of our study. What is clear, however, is that sucrose contents decreased after drying treatment. Therefore, if high sucrose contents were detected in a powdered honey, it is likely that sucrose was added to the powder.

We did not find a clear trend regarding sugar composition in relation with the drying procedure or with the carrier used, although LHP showed lower quantity of sugars than LH. Comparing our results with those of other studies, lower values were obtained by Nurhadi et al. (2012) in SP and VC honey powders with AG and MD, while higher values were shown by Kozłowicz et al. (2020) and Tomczyk, Zagula, Tarapatsky, Kačániová, and Džugan (2020) in SP powders with MD (fructose: 30.6–39.5%, glucose: 27.2–51.6%).

3.2.5. Sensory analysis

The first part consisted of establishing a previous descriptive quantitative sensory profile of LHP. Nineteen attributes were assessed, from which six features (floral olfactory characteristic, floral and candy flavour descriptor, sweetness, viscosity and waxy), together with the

general perception were chosen for a second step, after performing a statistical study of significant differences ($p < 0.05$). Fig. 5 shows the average for each attribute for each LHP. WH-LHP were described as very tasteless, with extremely weak odours and flavours, high viscosity and poor general perception. AG-LHP were described as having higher viscosity, being waxier and exhibiting floral odour and better flavour perception. MD-LHP were the most appreciated, obtaining the highest punctuation regarding general perception. VC-MD-LHP and FZ-MD-LHP showed the highest score for floral odour and flavour as well as for sweetness, and the lowest for viscosity and waxy perception. VC-LHP had higher candy flavour and FZ-LHP had higher floral odour. SP-LHP were the worst scored by the panel, having been described as the most viscous. Literature references show that only Nurhadi et al. (2012) performed a sensory analysis where the honey powder made by VC was more appealing than honey powder made by SP taking into consideration aroma and taste. These authors also found that the use of MD increased the sensory acceptance. With the results of the sensory analysis, a PCA was performed. The first principal component described 43.48% variance, while the second component described 29.97% (Fig. 6A and B). PC1 was mainly defined by general perception, viscosity and waxy perception, while PC2 was mainly defined by floral odour and candy flavour. The powders could be divided into three different groups: group I, where VC-MD-LHP and FZ-MD-LHP were included, being the most appealing powders in terms of general perception, higher floral sweet flavours; group II, where WH-LHP and VC-AG-LHP were included, being the less appealing powders characterized by weak floral odour and flavour; and group III, where SP-AG-LHP, SP-MD-LHP and FZ-AG-LHP, where included, being these powders characterized by lower sweetness and candy flavour. The same division of powders into clusters was observed in the dendrogram chart (Fig. 6C). Thus, it can be concluded that the drying method, the type of carrier and the honey content highly influence the powder's sensory acceptance.

4. Conclusion

For first time, three different drying procedures (SP, VC and FZ) and three different carrier agents (AG, WH and MD) were researched to make powdered honeys. Unlike SP, both VC and FZ were the procedures that provided higher recoveries and higher honey final concentrations in the powders using each carrier agent. The most suitable carrier agent was MD, because with it, lower moisture, higher solubility and lower hygroscopicity were accomplished. VC-MD-LHP and FZ-MD-LHP achieved higher recoveries and the best sensory characteristics, with stronger floral odours and flavours, stronger sweetness, lower viscosity and lower waxy perceptions.

CRediT authorship contribution statement

Sandra María Osés: Conceptualization, Data curation,

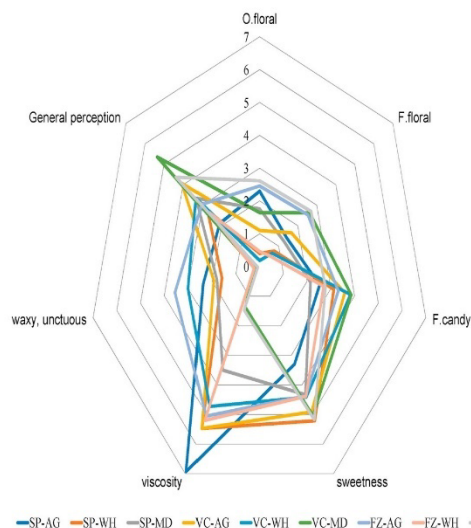


Fig. 5. Diagram that represent the mean (n = 7) of the sensorial descriptive analyses performed by experts, in LHP1 obtained by spray (SP), vacuum (VC) and freeze (FZ) drying, using Arabic gum (AG), whey (WH) and maltodextrin (MD) as carries.

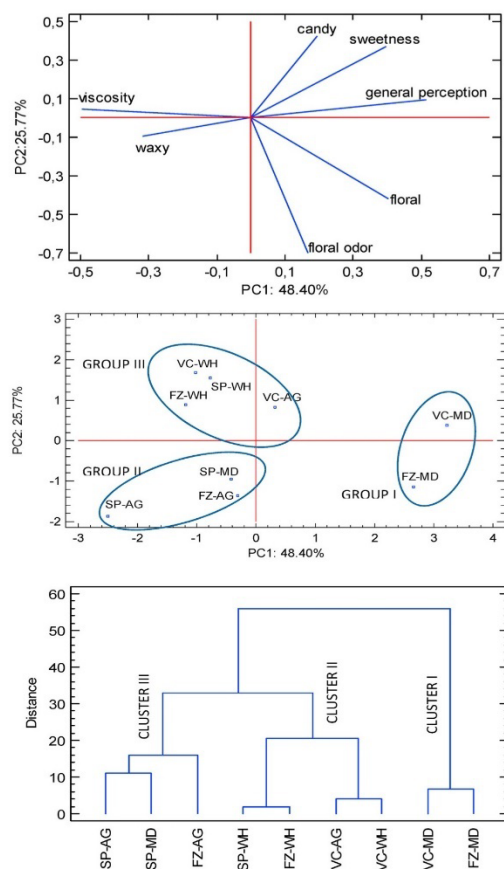


Fig. 6. PCA and dendrogram plot derived from hierarchical cluster analysis for sensorial attributes.

Investigation, Methodology, Resources, Supervision, Writing – original draft. **Leire Cantero**: Formal analysis, Investigation, Validation. **Miranda Crespo**: Formal analysis, Investigation, Validation. **Guillermo Puertas**: Formal analysis, Investigation, Validation. **Lara González-Ceballos**: Investigation, Formal analysis. **Saúl Vallejos**: Investigation, Formal analysis, Methodology, Writing – original draft. **Miguel Ángel Fernández-Muño**: Investigation, Methodology, Resources, Supervision, Visualization, Writing – original draft. **María Teresa Sancho**: Conceptualization, Funding acquisition, Investigation, Methodology, Project administration, Supervision, Visualization, Writing – review & editing.

Declaration of competing interest

The authors declare that they have no known competing financial interests or personal relationships that could have appeared to influence the work reported in this paper.

Acknowledgements

The authors would like to thank A. Colina (manager of the beekeeping company Saluberia S.L., Spain), for kindly collecting the

samples for this study; the Food Technology Division of the Universidad de Burgos (Spain), for providing their premises and facilities; and Dr. A. Pascual-Maté, for providing advice regarding sensory analyses. The authors gratefully acknowledge Junta de Castilla y León (Spain) for financial support (BU041G18), and for the research assistant contract given to Ms. Leire Cantero (Grant No. UBU-09-A).

Appendix A. Supplementary data

Supplementary data to this article can be found online at <https://doi.org/10.1016/j.lwt.2021.112063>.

References

- Álvarez-Suárez, J. M., Tulipani, A., Díaz, D., Estevez, Y., Romandini, S., Giampieri, F., et al. (2010). Antioxidant and antimicrobial capacity of several monofloral Cuban honeys and their correlation with color, polyphenol content and other chemical compounds. *Food and Chemical Toxicology*, 48(8–9), 2490–2499. <https://doi.org/10.1016/j.fct.2010.06.021>
- Andrade, P. B., Amaral, M. T., Isabel, P., Carvalho, J. C. M. F., Seabra, R. M., & Proença da Cunha, A. (1999). Physicochemical attributes and pollen spectrum of Portuguese heather honeys. *Food Chemistry*, 66(4), 503–510. [https://doi.org/10.1016/S0308-8146\(99\)00100-4](https://doi.org/10.1016/S0308-8146(99)00100-4)
- AOAC-Association of Official Analytical Chemists. (2012). In J. W. Latimer (Ed.), *Official methods of analysis of AOAC international*. Gaithersburg, Maryland, USA.
- Bogdanov, S. (2009). Harmonised methods of the international honey commission. Retrieved from <http://www.ihc-platform.net/ihcmethods2009.pdf> Accessed December 20, 2020.
- Bogdanov, S. (2011). Physical properties. In S. Bogdanov (Ed.), *The honey book* (pp. 19–27).
- Bogdanov, S. (2016). Honey composition. In S. Bogdanov (Ed.), *The Honey Book, bee product science (chapter 5)*. Retrieved from <https://www.researchgate.net/publication/304011775> Accessed December 26, 2020.
- Bogdanov, S., Ruoff, K., & Persano-Odo, L. (2004). Physico-chemical methods for the characterization of unifloral honeys: A review. *Apidologie*, 35(1), S4–S17. <https://doi.org/10.1051/apido:2004047>
- Codex Alimentarius Standard for Honey. (2001). Codex standard for honey 12-1981. In *Revised Codex standard for honey. Standards and Standard Methods*, 11. Retrieved from <http://www.codexalimentarius.net> Accessed November 25, 2020.
- Commission Internationale de L'clairage CIE. (2004). *Technical report* (3rd ed., Vol. 15). CIE, 2004.
- Cordella, C., Antinelli, J. F., Aurieres, C., Faucon, J. P., Cabrol Bass, D., & Sbirrazzuoli, N. (2002). Use of differential scanning calorimetry (DSC) as a new technique for detection of adulteration in honeys. 1. Study of adulteration effect on honey thermal behavior. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 50, 203–208.
- Cordella, C., Faucon, J. P., Cabrol Bas, D., & Sbirrazzuoli, N. (2003). Application of DSC as a tool for honey floral species characterization and adulteration detection. *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, 71, 279–290.
- Cui, Z. W., Sun, L. J., Chen, W., & Sun, D. W. (2008). Preparation of dry honey by microwave-vacuum drying. *Journal of Food Engineering*, 84, 582–590. <https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2007.06.027>
- Fan, F., & Roos, Y. H. (2019). Physicochemical properties, structural transformation, and relaxation time in strength analysis for honey powder models. *Food Research International*, 122, 137–148. <https://doi.org/10.1016/j.foodres.2019.04.003>
- González-Miret, M. L., Terrab, A., Hernanz, D., Fernández-Recanales, M. A., & Heredia, F. J. (2005). Multivariate correlation between color and mineral composition of honeys and by their botanical origin. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 53(7), 2574–2580. <https://doi.org/10.1021/jf048207p>
- Hadorn, H., & Zürcher, K. (1963). Formolzahl von Honig, Gleichzeitige Bestimmung von Formolzahl, pH, freie Säure und Lactongehalt in Honig. *Mitteilungen aus dem Gebiete der Lebensmittel untersuchung un Hygiene = Travaux de Chimie Alimentaire et D'hygiene*, 54, 304–321.
- ISO 13299. (2016). *Sensory analysis. Methodology. General guidance for establishing a sensory profile (ISO 13299:2016)*. Geneva.
- ISO 4121. (2003). *Sensory analysis. Guidelines for the use of quantitative response scales (ISO 4121:2003)*. Geneva.
- ISO 6658. (2017). *Sensory analysis, methodology, general guidance*. Geneva.
- Jayasundera, M., Adhikari, B., Aldred, P., & Ghandi, A. (2009). Surface modification of spray dried food and emulsion powders with surface active proteins: A review. *Journal of Food Engineering*, 93, 266–277. <https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2009.01.036>
- Jedlińska, A., Samborska, K., Wiecek, A., Wiktor, A., Ostrowska-Ligeza, E., Jamróz, W., et al. (2019). The application of dehumidified air in rapeseed and honeydew honey spray drying - process performance and powders properties considerations. *Journal of Food Engineering*, 245, 80–87. <https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2018.10.017>
- Küntör, Z., Pitsi, G., & Thoen, J. (1999). Glass transition temperature of honey as a function of water content as determined by differential scanning calorimetry. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 47, 2327–2330.
- Kozłowiec, K., Różyło, R., Gładyszewska, B., Matwijczuk, A., Gładyszewska, G., Chocyk, D., et al. (2020). Identification of sugars and phenolic compounds in honey powders with the use of GC/MS, FTIR spectroscopy, and X ray diffraction. *Scientific*

- Reports, 10, 16269. <https://doi.org/10.1038/s41598-020-73306-7>.
- Lopera, C., Guzmán, C., Cataño, C., & Gallardo, C. (2009). Development and characterization of folic acid microparticles formed by spray-drying with gum Arabic and maltodextrin. *Vitae, revista de la Facultad de química farmacéutica*, 16, 55–65.
- Louveau, J., Maurizio, A., & Vorwohl, G. (1978). International Commission for Bee Botany of IUBS. In *Methods of Melissopalynology*. Bee World (Vol. 59, pp. 139–157). Manuel Suisse des Denrées Alimentaires. (1974). Office Central Fédéral de imprimés et du Matériel. Suisse: Berna.
- Marcuzzan, G. L., Mucignat Caretta, C., Marchese, C. M., & Piana, M. L. (2018). A review of methods for honey sensory analysis. *Journal of Apicultural Research*, 57, 75–87. <https://doi.org/10.1080/00218839.2017.1357940>
- Meda, A., Lamien, C. E., Romito, M., Millogo, J., & Nacoulma, O. G. (2005). Determination of the total phenolic, flavonoid and proline contents in Burkina Faso honey, as well as their radical scavenging activity. *Food Chemistry*, 91, 571–577. <https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2004.10.006>
- Muthu, C., Koç, A., & Erbaş, M. (2020). Some physical properties and adsorption isotherms of vacuum dried honey powder with different carrier materials. *LWT-Food Science and Technology*, 134, 110166. <https://doi.org/10.1016/j.lwt.2020.110166>
- Nurhadi, B., Andoyo, R., Mahani, R., & Indarto, R. (2012). Study the properties of honey powder produced from spray drying and vacuum drying method. *International Food Research Journal*, 19(3), 907–912.
- Nurhadi, B., & Roos, Y. H. (2017). Influence of anti-caking agent on the water sorption isotherm and flow-ability properties of vacuum dried honey powder. *Journal of Food Engineering*, 210, 76–82. <https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2017.04.020>
- OJEC-Official Journal of the European Communities, (2002). Council directive 2001/110/EC of 20 December 2001 relating to honey.
- Osés, S. M., Ruiz, M. O., Pascual Maté, A., Bocós, A., Fernández Muñio, M. A., & Sancho, M. T. (2017). Ling-heather honey authentication by thixotropic parameters. *Food and Bioprocess Technology*, 10, 973–979. <https://doi.org/10.1007/s11947-017-1875-6>
- Pascual-Maté, A., Osés, S. M., Marcuzzan, G. L., Gardini, S., Fernández Muñio, M. A., & Sancho, M. T. (2018). Sugar composition and sugar-related parameters of honeys from the northern Iberian Plateau. *Journal of Food Composition and Analysis*, 74, 34–43. <https://doi.org/10.1016/j.jfca.2018.08.005>
- Pérez Alonso, C., Beristain, C. I., Lobato Calleros, C., Rodríguez Huezo, M. E., & Vernion Carter, E. J. (2006). Thermodynamic analysis of the sorption isotherms of pure and blended carbohydrate polymers. *Journal of Food Engineering*, 77, 753–760. <https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2005.08.002>
- Persano Oddo, L., & Piro, R. (2004). Main European unifloral honeys: Descriptive sheets. *Apidologie*, 35, 38–81. <https://doi.org/10.1051/apido:2004049>
- Piana, M. L., Persano Oddo, L., Bentabol, A., Brumau, E., Bogdanov, S., & Guyot Declercq, C. (2004). Sensory analysis applied to honey: State of the art. *Apidologie*, 35, 26–37. <https://doi.org/10.1051/apido:2004048>
- Ram, A. (2011). *Production of spray-dried honey powder and its application in bread*. PhD Thesis to the graduate Faculty of the Louisiana State University and Agricultural and Mechanical College of the degree of Master of Science.
- Sahu, J. K. (2008). The effect of additives on vacuum dried honey powder properties. *International Journal of Food Engineering*, 4(8). <https://doi.org/10.2202/1556-3758.1356>, article 9.
- Sahu, J. K., & Devi, K. D. (2013). Modeling of vacuum puffing characteristics and color change of liquid honey. *Industrial Crops and Products*, 48, 118–123. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2013.04.019>
- Samborska, K. (2019). Powdered honey drying methods and parameters, types of carriers and drying aids, physicochemical properties and storage stability. *Trends in Food Science & Technology*, 88, 133–142. <https://doi.org/10.1016/j.tifs.2019.03.019>
- Samborska, K., Barańska, A., Szulc, K., Jankowska, E., Truszkowska, M., Ostrowska-Ligeza, E., et al. (2020). Reformulation of spray dried apple concentrate and honey for the enhancement of drying process performance and the physicochemical properties of powders. *Journal of the Science of Food and Agriculture*, 100, 2224–2235. <https://doi.org/10.1002/jsfa.10247>
- Samborska, K., & Bienkowska, B. (2013). Physicochemical properties of spray dried honey preparations. *Zeszyty Problemowe Postępów Nauk Rolniczych*, 575, 91–105.
- Samborska, K., & Czelejewska, M. (2014b). The influence of thermal treatment and spray drying on the physicochemical properties of Polish honeys. *Journal of Food Processing and Preservation*, 38, 413–419. <https://doi.org/10.1111/j.1745-4549.2012.00789.x>
- Samborska, K., Gajek, P., & Kamińska Dworznicka, A. (2015a). Spray drying of honey: The effect of drying agents on powder properties. *Polish Journal of Food and Nutrition Sciences*, 65, 109–118. <https://doi.org/10.2478/pjfn-2013-0012>
- Samborska, K., Gajek, P., & Kamińska Dworznicka, A. (2015b). Spray drying of honey: The effect of drying agents on powder properties. *Polish Journal of Food and Nutrition Sciences*, 50, 256–262. <https://doi.org/10.2478/pjfn-2013-0012>
- Samborska, K., Langa, E., Kamińska Dworznicka, A., & Witrowa-Rajchert, D. (2014a). The influence of sodium caseinate on the physical properties of spray dried honey. *International Journal of Food Science and Technology*, 50(1), 256–262. <https://doi.org/10.1111/ijfs.12629>
- Samborska, K., Sokolowska, P., & Szulc, K. (2017). Diafiltration and agglomeration as methods to improve the properties of honey powder obtained by spray drying. *Innovative Food Science & Emerging Technologies*, 39, 33–41. <https://doi.org/10.1016/j.ifset.2016.10.002>
- Samborska, K., Wiktor, A., Jedlińska, A., Matwijczuk, A., Jamróz, W., Skwarczyńska-Maj, K., et al. (2019). Development and characterization of physical properties of honey rich powder. *Food and Bioprocess Technology*, 115, 78–86. <https://doi.org/10.1016/j.fbp.2019.03.004>
- Sancho, M. T., Muniategui, S., Huidobro, J. F., & Simal, J. (1991). Correlation between the electrical conductivity of honey in humid matter and dry matter. *Apidologie*, 22, 221–227. <https://doi.org/10.1051/apido:19910306>, 1991.
- Shi, Q., Fang, Z., & Bhandari, B. (2013). Effect of addition of whey protein isolate on spray-drying behaviour of honey with maltodextrin as a carrier material. *Drying Technology: An International Journal*, 31, 13–14. <https://doi.org/10.1080/07373937.2013.783593>
- Sramek, M., Woerz, B., Horn, H., Weiss, J., & Kohlus, R. (2016). Preparation of high-grade powders from honey-glucose syrup formulations by vacuum foam-drying method. *Journal of Food Processing and Preservation*, 40, 790–797. <https://doi.org/10.1111/jfpp.12660>
- Suhag, Y., & Nanda, V. (2015). Optimisation of process parameters to develop nutritionally rich spray-dried honey powder with vitamin C content and antioxidant properties. *International Journal of Food Science and Technology*, 50, 1771–1777. <https://doi.org/10.1111/ijfs.1284>
- Suhag, Y., & Nanda, V. (2016). Evaluation of different carrier agents with respect to physico-chemical, functional and morphological characteristics of spray dried nutritionally rich honey powder. *Journal of Food Processing and Preservation*, 40, 1429–1437. <https://doi.org/10.1111/jfpp.12728>
- Suhag, Y., Nayik, G. A., & Nanda, V. (2016). Effect of gum Arabic concentration and inlet temperature during spray drying on physical and antioxidant properties of honey powder. *Food Measure*, 10, 350–356. <https://doi.org/10.1007/s11694-016-9313-4>
- Terradillos, L. A., Muniategui, S., Sancho, M. T., Huidobro, J. F., & Simal Lozano, J. (1994). An alternative method for analysis of honey sediment. *Bee Science*, 3, 86–93.
- Tomczyk, M., Zagula, G., Tarapatsky, M., Kačaniová, M., & Džugan, M. (2020). The effect of honey variety on the quality of honey powder. *Journal of Microbiology, Biotechnology and Food Sciences*, 9(5), 949–954. https://doi.org/10.15414/jmbfs.2020.9.5.949_954
- Umesh Hebbar, H., Rastogi, N. K., & Subramanian, R. (2008). Properties of dried and intermediate moisture honey products: A review. *International Journal of Food Properties*, 11, 804–819. <https://doi.org/10.1080/10942910701624736>
- Von der Ohe, W., Persano Oddo, L., Piana, M. L., Morlot, M., & Martin, P. (2004). Harmonized methods of melissopalynology. *Apidologie*, 35, 18–25. <https://doi.org/10.1051/apido:2004050>



Contents lists available at ScienceDirect

LWT

journal homepage: www.elsevier.com/locate/lwt

Antioxidant, antimicrobial and anti-inflammatory activities of ling-heather honey powder obtained by different methods with several carriers

Sandra María Osés, Leire Cantero, Guillermo Puertas, Miguel Ángel Fernández-Muñoz^{**}, María Teresa Sancho^{*}

Department of Biotechnology and Food Science, Universidad de Burgos (University of Burgos), Plaza Misael Bañuelos s/n, 09001, Burgos, Spain

ARTICLE INFO

Keywords:
Honey powder
Functional activities
Freeze drying
Vacuum drying
Spray drying

ABSTRACT

Honey powder is being increasingly used in food, cosmetic and pharmaceutical industry, because it avoids inconveniences of raw honey, such as high viscosity, stickiness and formation of sugar crystals. It is of paramount importance to know if honey powders keep the features of raw honeys. This is the first study, in which total phenolics, total flavonoids, and biological properties of ling-heather (*Calluna vulgaris* (L.) Hull) honey powders obtained by different drying methods (spray drying, vacuum drying and freeze drying), using different carriers (Arabic gum, whey protein isolate and maltodextrin) were assessed. Results showed that all the drying procedures and carriers retained the honey phenolics in the honey powders. Honey powders' antioxidant activities against different free radicals (ABTS^{•+}, ROO[•], [•]OH and O₂^{•−}) were higher than those of the raw honeys, while honey powders' anti-inflammatory and antimicrobial activities against several microorganisms (*Staphylococcus aureus*, *Listeria monocytogenes* and *Escherichia coli*) were lower. Concentration of honey in the powder and type of carrier used for dehydration were the key factors for the quality of honey powders. However, the drying procedure did not strongly influence the parameters and properties studied.

1. Introduction

Nowadays, there is a high consumer demand for foods that promote health benefits, such as honey. Honey is a natural foodstuff produced by bees that has been used since ancient times as a traditional medicine for wounds, microbial infections, and burns, among other conditions (Bogdanov, 2016). Many research papers highlight a variety of potentially functional properties of honeys (Alevia et al., 2021; Molan, 1992; Seraglio et al., 2019; Álvarez-Suárez, Tulipani, Romandini, Bertoli, & Battino, 2010), mainly attributed to phenolic compounds, organic acids, amino acid, enzymes and Maillard reaction products (Álvarez-Suárez et al., 2010; Bogdanov, Jurendic, Sieber, & Gallmann, 2008). Honey is increasingly used as sugar's substitute in candies, confectionery and bakery products, being also added to different foods, such as sausages, beef patties, fish, fruits and vegetables, in order to extend their shelf life, and/or to enhance their bioactive properties (Chen, Mehta, Berenbaum, Zangerl, & Engeseth, 2000; Hakim, Tjahjaningsih, & Sudarno, 2019; Johnston, Sepe, Miano, Brannan, & Alderton, 2005; Póltorak et al., 2018). Nevertheless, the uses of honey are limited because of its high

viscosity, stickiness and the formation of glucose crystals, causing handling problems (Suhag, Nayik, & Nanda, 2016). To solve them, recent studies were focused on making honey powders appealing to the consumers, with optimal physicochemical properties that could be easily stored, transported and mixed with other food products, such as bread and turkey breast meat (Antony, Rieck, & Dawson, 2000; Ram, 2011; Rivero, Archain, Busquet, Baldi-Coronel, & Busch, 2021; Samborska, 2019; Suhag, Nayik, Karabagias, & Nanda, 2021). However, powdered honey is difficult to make, because of the growing stickiness produced as a consequence of the drying procedure. The stickiness is due to the chemical composition of honey, mainly to the low molecular weight sugars, such as glucose and fructose, which exhibit low glass transition temperatures (*T_g*) (31 and 5 °C, respectively) (Jayasundera, Adhikari, Aldred, & Ghandi, 2009). The *T_g* of honey vary between −27 and −51 °C (Osés et al., 2021; Sramek, Woerz, Horn, Weiss, & Kohlus, 2016). Honey powder is commonly obtained by different procedures, being spray drying the most researched (Jedlińska et al., 2019; Samborska, 2019; Shi, Fang, & Bhandari, 2013; Suhag & Nanda, 2015). Other procedures, such as vacuum drying (Nurhadi, Andoyo, Mahani, & Indarto, 2012; Sahu, 2008), freeze drying (Rivero et al., 2021; Sramek

^{*} Corresponding author.

^{**} Corresponding author.

E-mail addresses: mafernand@ubu.es (M.Á. Fernández-Muñoz), mtsanch@ubu.es (M.T. Sancho).

<https://doi.org/10.1016/j.lwt.2022.113235>

Received 5 October 2021; Received in revised form 7 February 2022; Accepted 11 February 2022

Available online 13 February 2022

0023-6438/© 2022 The Authors. Published by Elsevier Ltd. This is an open access article under the CC BY-NC-ND license (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/>).

Abbreviations

SP	spray drying
VC	vacuum drying
FZ	freeze drying
MD	maltodextrin
AG	Arabic gum
WH	whey protein isolate
LH	Ling-heather honey
LHP	Ling-heather honey powder

et al., 2016), microwave-vacuum (Cui, Sun, Chen, & Sun, 2008), vacuum puffing (Sahu & Devi, 2013), and foam-drying (Sramek et al., 2016) are also described as common drying techniques. To obtain honey powder avoiding the problems related to stickiness, the use of carriers that increase the T_g is of utmost importance. The carriers more frequently used to make honey powder are maltodextrin, Arabic gum, whey protein isolate or sodium caseinate (Samborska, Langa, Kamińska-Dwórnicka, & Witrowa-Rajchert, 2014; Suhag & Nanda, 2017). Nutriose or skimmed milk powder were also employed in order to increase the nutritional value of the honey powder (Samborska et al., 2020). Most research about dried honey aims attention at physico-chemical properties such as colour, T_g , hygroscopicity, solubility, tapped density, moisture, water activity, sugar composition, proline, morphological properties and sensory features (Nurhadi et al., 2012; Osés et al., 2021; Samborska, 2019; Shi et al., 2013). There are much less studies about beneficial parameters of honey powders, being limited to total phenolics and antioxidant capacities, such as FRAP, CUPRAC, DPPH and TEAC, using different polyphenols' extraction procedures. Suhag and Nanda (2016) obtained honey powders' phenolic extract with acetone 60%, stirring 30 min at 30 °C; Bansal, Premi, Sharma, and Nanda (2017) with methanol, centrifuging 10 min; Samborska et al. (2020) with 70% acetone, shaking 2 h, and then by static extraction at 4 °C during 24 h, followed by shaking 30 min and eventually filtering. The latter procedure was modified by Jedlińska et al. (2021), dissolving the powder in water and ethanol instead using acetone 70%, while Barańska, Jedlińska, and Samborska (2021) and Tomczyk, Zagula, Tarapatskyy, Kačaniová, and Džugan (2020) dissolved the honey powder only with distilled water. The use of different extraction procedures for honeys' phenolics makes it difficult the comparison of results among papers on dried honeys, as well as on both dried and raw honeys, in which phenolic extracts were mostly obtained employing amberlite or SPE (Baltrušaitytė, Venskutonis, & Čeksterytė, 2007; Sancho et al., 2016). All the mentioned research on phenolic extracts of dried honeys was done in powders obtained by spray drying. Only Rivero et al. (2021) assessed the antioxidant activity of honey powder obtained by lyophilization. Tomczyk et al. (2020) also evaluated the antimicrobial activity of honey powder obtained by spray drying using maltodextrin as carrier. Antioxidant activities of honey powders against free radicals particularly damaging to living organisms, such as peroxyl ($\text{ROO}^\bullet$), hydroxyl ($^\bullet\text{OH}$) and superoxide ($\text{O}_2^\bullet$) have not been researched, so far. Moreover, no scientific paper has been published dealing with antioxidant, antimicrobial or anti-inflammatory activities of honey powders obtained by different drying procedures using different carriers. Therefore, the aim of this study was to research to which extent the quantity of polyphenols, antioxidant, antimicrobial and anti-inflammatory activities of honeys were modified in honey powders obtained with different treatments (spray drying, vacuum drying and freeze drying) using different carriers (maltodextrin, Arabic gum and whey).

2. Materials and methods

2.1. Standards, reagents and apparatus

Arabic gum (Sigma-Aldrich, 30888). Whey protein isolate with a protein content of 90% (Myprotein, Manchester, UK). Maltodextrin of dextrose equivalent 20 (Calaf Nuances, Barcelona, Spain). Methanol, sodium carbonate, sodium chloride, sodium hydroxide, potassium hydroxide, potassium persulfate, $\text{Fe}(\text{NH}_4)_2(\text{SO}_4)_2$, EDTA, acetic acid, formic acid, *p*-dimethylaminobenzaldehyde, HCl, H_2SO_4 , H_2O_2 , Baird Parker agar (BP), Trypone bile x-glucuronide agar (TBX) and egg yolk tellurite sterile emulsion (VWR International Eurolab, part of Avantor, Llinars del Vallés, Spain). Gallic acid, NaNO_2 , Na_2SO_4 and catechin (Panreac, Barcelona, Spain). AlCl_3 and fluorescein sodium salt (Fluka Chemie GmbH, part of Sigma-Aldrich, Buchs, San Galo, Switzerland). Na_2HPO_4 , NaH_2PO_4 (Scharlab, Sentmenat, Spain). Potassium tetraborate, nitro-blue tetrazolium, sodium benzoate and uric acid (Alfa Aesar, part of Thermo Fisher, Kandel, Rheinland-Pfalz, Germany). Nutrient broth No. 2 (NB), brain heart infusion (BHI), agar technical No. 2 and Ringer solution (Oxoid, part of Thermo Fisher, Basingstoke, Hampshire, UK). Microinstant Listeria Agar Base (LAB), Listeria enrichment supplement Ottaviani & Agosti and Listeria Selective Supplement (Scharlau S.L., Senmanat, Spain). Folin-Ciocalteu phenol reagent, quercetin, dinitrophenylhydrazine, 2,2'-azino-bis (3-ethylbenzothiazoline-6-sulphonic acid) (ABTS), 6-hydroxy-2,5,7,8-tetramethylchroman-2-carboxylic acid (Trolox), thiobarbituric acid, xanthine, xanthine oxidase (10110434001), 2,2'-azobis(2-amidopropane) dihydrochloride (ABAP), *N*-acetyl-D-glucosamine (NAG), hyaluronic acid sodium salt from *Streptococcus equi* (53,747), bovine serum albumin, hyaluronidase from bovine testes type IV-S (1400 U/ml, H3884) (Sigma-Aldrich, part of Merck, Steinheim, Nordrhein-Westfalen, Germany). Water was deionized using a Milli-Q water purification system (Millipore, part of Merck, Bedford, MA, USA). Absorbances were measured with a 400Bio UV-visible spectrophotometer (Varian, Mulgrave, Vic., Australia). Fluorescence measurements were measured with a Varioskan LUX microplate reader (Thermo Fisher).

2.2. Samples

Sampling comprised three ling-heather (*Calluna vulgaris* (L.) Hull) honeys (LH), named as LH1, LH2 and LH3 and their corresponding powders (LHP) named as LHP1, LHP2 and LHP3. Honeys' botanical origins were ascertained by both melissopalinalogy (Louveaux, Maurizio, & Vorwohl, 1978; Terradillos, Muniategui, Sancho, Huidobro, & Simal-Lozano, 1994; Von der Ohe, Persano Oddo, Piana, Morlot, & Martin, 2004) and sensory analyses (Marcazzan, Mucignat-Caretta, Marchese, & Piana, 2018; Persano Oddo & Piro, 2004; Piana et al., 2004). LH1 and LH2 were heather honeys, in which the relative frequency of the sum of bell-heather (*Erica* spp.) and ling-heather pollen was higher than 45%, being the relative frequency of ling-heather pollen higher than 20%. In contrast, the relative frequency of the sum of bell-heather and ling heater pollens in LH3 did not reach 45%, being the relative frequency of ling-heater pollen higher than 15%. *Calluna vulgaris* (L.) Hull pollen can be under-represented in ling-heather honeys (Von der Ohe et al., 2004), so that samples with 10% relative frequency *Calluna* pollen can be ling-heather unifloral honeys if their attributes correspond with those of ling-heather. The three samples (LH1, LH2 and LH3) had noticeable sensory properties of ling-heather honeys, such as dark reddish tone, woody warm floral flavour, medium bitters and long aftertaste persistence (Persano Oddo & Piro, 2004), among others, so that all of them could be commercialized as unifloral ling-heather honeys. Powders (27 samples) were obtained with three drying methods: spray drying (SP), vacuum drying (VC) and freeze drying (FZ), using for each procedure three different carriers: Arabic gum (AG), whey protein isolate (WH) and maltodextrin (MD). All drying procedures were described in detail in a previous paper (Osés et al., 2021), as well as in

the supplementary file (S1).

2.3. Analysis of biological properties

In LH and LHP, total phenolics, flavonoids, antioxidant activity against four radicals, anti-inflammatory and antimicrobial activity against *Staphylococcus aureus*, *Listeria monocytogenes* and *Escherichia coli* were determined in triplicate.

2.3.1. Phenolic extracts

Phenolic compounds of LH (5.00 g) and LHP (2.00 g) samples dissolved in 20 mL acidified distilled water (pH = 2, with HCl), were extracted by solid phase extraction (SPE) with 5 mL methanol (Sancho et al., 2016), using SPE Strata-X PRO columns (200 mg/6 mL; Phenomenex, Torrance, CA, USA) and a manifold (Phenomenex). The extracts were kept frozen (−30 °C) in amber glass bottles until analysis.

2.3.2. Total phenolics' content (TPC)

TPC were determined in LH, LHP and their corresponding methanolic extracts (Meda, Lamien, Romito, Millogo, & Nacoulma, 2005). Honey (10.0 g/100 mL distilled water) and powders (0.5 g in 5 mL of distilled water) samples were filtered through a Whatman n° 40. The samples (100 µL of dissolved LH and LHP or 100 µL of methanolic extracts), were mixed with 500 µL 0.2 mol/L Folin-Ciocalteu reagent. After 5 min, 400 µL of NaCO₃ (75 g/L) were added and the samples were incubated 2 h at room temperature. Absorbance was measured at 760 nm, using gallic acid (GA) as standard for the calibration curve (5–500 mg/L). Results were expressed as mg GA/100 g dry honey or 100 g dry honey powder.

2.3.3. Total flavonoids

LH and LHP flavonoids' determinations were carried out on methanolic extracts. Two types of flavonoids were determined flavone/flavonol and flavanols.

Flavone/Flavonol content was analysed by the reaction of these flavonoids with AlCl₃ in neutral medium (Meda et al., 2005). 500 µL methanolic extracts were mixed with 500 µL AlCl₃ (2% in methanol). After 10 min the absorbance was read at 415 nm, using quercetin (Q) as standard for the calibration curve (1–200 µg/mL). For each sample colour correction was needed, replacing AlCl₃ by methanol. Results were expressed as mg Q/100 g dry honey or 100 g dry honey powder.

Flavanols were analysed by reacting with AlCl₃ in alkaline medium (Pekal & Pyrzynska, 2014). 500 µL methanolic extracts were mixed with 150 µL NaNO₂ (5 g/100 mL). After 5 min, 250 µL AlCl₃ (2 g/100 mL in methanol) was added and mixed. After 6 min, 250 µL NaOH 1 mol/L was added. After 10 min at room temperature, the absorbance was read at 510 nm, using catechin (Ct) as standard for the calibration curve (1–100 µg/mL). Results were expressed as mg Ct/100 g dry honey or 100 g dry honey powder.

2.3.4. Antioxidant activities

Antioxidant capacity by ABTS^{•+} scavenging activity test: Trolox equivalent antioxidant capacity (TEAC) of LH (0.5 g in 1 mL of water) and LHP (0.1 g in 1 mL of water) was evaluated following the steps detailed in the paper of Osés et al. (2020) based on the method of Re et al. (1999) modified by Sancho et al. (2016). ABTS^{•+} scavenging by the sample was spectrophotometrically measured at 734 nm, using Trolox (T) as standard for the calibration curve (0.625–3 mmol/L). Results were expressed as µmol T/100 g dry honey or 100 g of dry honey powder.

The concentration of aqueous LH and LHP solutions was 0.1 g/mL for the measurement of the oxygen radical absorbance capacity (ORAC), which determines antioxidant activity against ROO[•]. Antioxidant capacities as radical-scavenging effect on [•]OH (AOA) and O₂[•] (SRS) were assessed on 75% LH and 75% LHP aqueous solutions. ORAC, AOA and SRS analytical procedures were carried out following the steps detailed by Osés et al. (2020).

ORAC was determined by fluorescence (being excitation and emission wavelengths 485 nm and 520 nm, respectively). Peroxyl radicals reacted with fluoresceine disodium releasing a nonfluorescent product. In a system, in which the diluted samples LH and LHP had been added, fluorescence was measured following Osés et al. (2020) procedure. Either to 187 µL sample diluted in buffer (75 mmol/L sodium phosphate, pH 7.4), or to 187 µL buffer (75 mmol/L sodium phosphate, pH 7.4) or to a mixture of 181 µL buffer (75 mmol/L sodium phosphate, pH 7.4) and 6 µL 0.2 µmol/L T solutions, 3 µL 4.1 µmol/L fluorescein disodium was added, in a 96-well white plate (Greiner Bio-one, San Sebastian de los Reyes, Madrid, Spain) keeping the plate at 37 °C, 5 min. Then, 10 µL, 0.37 mol/L ABAP was added to the mixture and measured at 37 °C every 5 min throughout 90 min. The results were expressed as µmol T/g dry honey or g of dry honey powder using the following equation:

$$\text{ORAC } (\mu\text{mol T/g}) = [(\text{area sample} - \text{area blank}) / ((\text{area T} - \text{area blank}) / \mu\text{mol T})]$$

AOA was carried out by Koracevic, Koracevic, Djordjevic, Andrejevic, and Cosic (2001) method, which spectrophotometrically (532 nm) measured the ability of the diluted samples (75% LH and 75% LHP) for overriding the TBARS (thiobarbituric acid reactive substances), released from the reaction of [•]OH and benzoate. [•]OH were produced by a Fenton type reaction of H₂O₂ plus Fe-EDTA complex. 1 mmol/L uric acid (UA) in NaOH (5 mmol/L) was used as standard, expressing the results as mmol UA/100 g dry honey or 100 g dry powder.

SRS: O₂[•] was generated by the xanthine-xanthine oxidase system (Küçük et al., 2007). The capacity of the diluted samples LH and LHP for inhibiting O₂[•] was spectrophotometrically measured (560 nm), expressing the results as % inhibition = (A – (M-B)/A) × 100, where A was the absorbance in the positive control (in which buffer replaced sample), M was the absorbance of each sample reaction and B was the absorbance of blank samples (in which buffer replaced the enzyme).

2.3.5. Anti-inflammatory activity

Anti-inflammatory activity of LH and LHP (75% in water) was assessed by hyaluronidase inhibition assay (Ferrerres et al., 2012), based on the mechanism of the Morgan-Elson reaction with few modifications described by Osés et al. (2020). Hyaluronidase activity was defined as 1 unit (U) of hyaluronidase that catalyzes the liberation of 1 µmol NAG per min under specified conditions. NAG standard solutions (in the range between 0 and 2 µmol per test), were used as standard for calibration curves. Absorbance was read at 586 nm against a blank, in which buffer replaced hyaluronidase. With the NAG produced by each enzymatic reaction and using the linear regression equation, the percentage of enzyme inhibition was calculated as % Inhibition = (A – B/A) × 100, where A was µmol NAG in the positive control (in which buffer replaced sample), and B was µmol NAG of each sample reaction.

2.3.6. Antimicrobial activity

Antimicrobial activity of LH and LHP were assayed by broth micro-dilution method against three bacteria: *Staphylococcus aureus* CECT 435, *Escherichia coli* CECT 99 and *Listeria monocytogenes* CECT 934 (Spanish Type Culture Collection, Valencia University, Spain). Stock cultures were maintained on NB for *St. aureus* and *E. coli* or BHI for *L. monocytogenes*, with glycerol (20%) at −80 °C. Bacterial inoculum was prepared in NB or BHI at 37 °C, 24 h. Sterile Ringer was used to prepare the cell suspensions to 6 log CFU/mL (determined using plate counts). Sterile 96 well round bottomed polystyrene microtitre plates (Brand, Wertheim, Germany) were used.

For each sample, 8 different LH and LHP concentrations (70 g/100 mL, 60 g/100 mL, 50 g/100 mL, 40 g/100 mL, 30 g/100 mL, 20 g/100 mL, 10 g/100 mL and 5 g/100 mL) were studied. Each sample at each concentration was dissolved in the corresponding broth for each bacterium. Then, 20 µL of the corresponding microorganism (6 log CFU/mL) was inoculated into a final volume of 200 µL, obtaining a final 5 log CFU/

ml microorganism concentration (verified using plate counts). The 96 bottomed plates were incubated at 37 °C, 24 h. After incubation, a turbidity due to the precipitate produced by the microorganism growth was observed. The minimal inhibitory concentration (MIC) was described as the minimal LH or LHP concentration at which no bacterium growth was visible on the plate. Eventually, 10 µl from each bottomed plate was incubated at 37 °C, 24 h, in plates with specific agar for each microorganism (BP for *St. aureus*, LAB for *L. monocytogenes* and TBX for *E. coli*), thus determining the minimal bactericidal concentration (MBC), described as the minimal LH or LHP concentration at which no bacterium was visible on the plate.

2.4. Statistical analysis

One-way analysis of variance (ANOVA) and multifactor ANOVA were used followed by Tukey's honestly significant difference test ($p < 0.05$). Pearson correlations, principal components analysis (PCA) and cluster analysis (furthest neighbour method and squared Euclidean distance), were applied to the results. Statistical software Statgraphics Ceturion XVIII (Statgraphics Technologies, Inc., The Plains, VA, USA) was used.

3. Results and discussions

All data, except % inhibition (SRS and anti-inflammatory activity) and MBC were expressed on dry basis (d.b.) for a proper comparison of LH and LHP data.

3.1. Phenolics, flavonoids and biological properties of ling heather honeys

Table 1 shows averages and standard deviations of the results corresponding to LH. TPC varied between 81 and 272 mg GA/100 g d.b. TPC of methanolic extracts were quite lower (11–22.3 mg GA/100 g d.b.). These values agreed with the results obtained by other authors that ranged between 110 and 195 mg GA/100 g in heather honeys and between 15.6 and 60.3 mg GA/100 g in extracts (Kaygusuz et al., 2016; Sancho et al., 2016; Starowicz, Ostaszcz, & Zieliński, 2021). Lower TPC of methanolic extracts were expected, because Folin-Ciocalteu reagent also quantifies other reducing compounds, such as sugars (Petretto, Cossu, & Alamanni, 2015) that are present in crude samples, but not in their methanolic extracts.

Flavones and flavonols ranged between 0.71 and 1.69 mg Q/100 g d.

Table 1

Averages and standard deviations ($n = 3$) of total phenols, flavonoids, antioxidant activities against ABTS^{•+}, ROO[•], O₂^{•-} and •OH radicals, anti-inflammatory and antimicrobial activities against *St. aureus*, *L. monocytogenes* and *E. coli* of ling-heather honeys (LH1, LH2, and LH3) used to make the honey powders. All results are expressed on dry basis.

	LH1	LH2	LH3
Total phenols (mg GA/100g)	272 ± 15 ^a	169 ± 1 ^b	81 ± 3 ^c
Total phenols in methanolic extract (mg GA/100g)	22.3 ± 0.4 ^a	21.4 ± 0.1 ^b	11.0 ± 0.4 ^c
Total flavones/flavonols (mg Q/100g)	1.50 ± 0.03 ^b	1.69 ± 0.05 ^a	0.71 ± 0.01 ^c
Total flavanols (mg Ct/100 g)	4.24 ± 0.19 ^a	4.42 ± 0.05 ^a	2.08 ± 0.06 ^b
TEAC (ABTS ^{•+}) (µmol T/100g)	240 ± 23 ^b	449 ± 21 ^a	123 ± 2 ^c
ORAC (ROO [•]) (µmol T/g)	37.0 ± 4.6 ^b	44.0 ± 1.1 ^a	36.3 ± 1.4 ^b
AOA (•OH) (mmol UA/100 g)	0.047 ± 0.010 ^a	0.049 ± 0.008 ^a	0.052 ± 0.012 ^a
SRS (O ₂ ^{•-}) (%) inh)	53 ± 1 ^b	78 ± 1 ^a	25 ± 2 ^c
Anti-inflammatory activity (%) inh)	54.2 ± 0.3 ^a	46.6 ± 0.7 ^c	53.0 ± 0.3 ^b
MBC <i>St. aureus</i>	40 ± 0 ^a	5 ± 0 ^b	<5 ± 0 ^b
MBC <i>L. monocytogenes</i>	20 ± 0 ^a	10 ± 0 ^a	20 ± 0 ^a
MBC <i>E. coli</i>	40 ± 0 ^a	20 ± 0 ^b	20 ± 0 ^b

inh = inhibition; Different lowercase letters (a–c) indicate significant differences ($p < 0.05$) between honey.

b., which were lower than the ranges obtained by other researchers in heather honeys with values between 2.4 and 21 mg Q/100 g (Aazza, Lyoussi, Antunes, & Miguel, 2013; Kivima et al., 2021; Rodríguez-Flores, Escuredo, Seijo-Rodríguez, & Seijo, 2019). Flavonols ranged between 2.08 and 4.42 mg Ct/100 g d.b.

TEAC, ORAC, AOA and SRS exhibited by LH samples brought to light that TEAC (20–825 µmol T/100 g d.b.), and AOA (<0.15 mmol UA/100 g d.b.) results were similar to those obtained by other researchers (Gorjanović et al., 2013; Osés, Pascual-Maté, Fernández-Muino, López-Díaz, & Sancho, 2016) in different honeys. However, higher ORAC values than those obtained in this study were described in other papers, with results of 22.6 µmol T/g d.b. for heather honeys (Aazza et al., 2013). Regarding SRS, LH (750 mg/ml) showed a O₂^{•-} inhibition between 25% and 78%. In another study carried out on chestnut, rhododendron and heterofloral honeys, the IC₅₀ ranged between 5.2 and 7.6 mg/ml (Küçük et al., 2007).

Anti-inflammatory activity of LH ranged from 46.6 to 54.2%, being around 0.75 g/ml (75%) the IC₅₀. The results for this activity were similar to the anti-inflammatory capacities described by Osés et al. (2016) and Osés et al. (2020) for other Spanish Ericaceae honeys, but lower than the data of Kolaylı, Sahin, Can, Yildiz, and Sahin (2016) obtained in Turkish heather honeys (0.17–0.22 g/ml).

The three LH showed antimicrobial activity against the three studied pathogens. MBC varied between <5% and 40%. *St. aureus* was the most sensitive microorganism, and *E. coli* the most resistant one. For heather honeys, other researchers obtained MBC ranging from 4.7 to 37.5% against *St. aureus* (Osés et al., 2016; Salonen, Virjamo, Tammela, Fauch, & Julkunen-Tiitto, 2017).

3.2. Powdered honeys

3.2.1. Phenolics and flavonoids

Both WH and WH-LHP clearly showed the highest TCP (Fig. 1A). WH increased the values obtained for the corresponding LH between 300 and 1300%. The very high values of TPC obtained for WH-LHP were probably due to the high proteins' content of WH (>90%) that also reacted with Folin-Ciocalteu reagent (Singleton, Orthofer, & Lamuela-Raventós, 1999). AG-LHP and MD-LHP exhibited retentions between 39 and 106% compared to raw LH honeys. In comparison with MD-LHP and WH-LHP, AG-LHP showed higher TPC by SP and VC. Regarding FZ, no significant differences were found between TPC of FZ-AG-LHP and FZ-MD-LHP, probably because of the amount of honey in the powdered samples that was around 75% honey in all FZ-LHP. In contrast, the content of honey in SP-AG-LHP was around 60%, in VC-AG-LHP was around 75%, in SP-MD-LHP was around 50% and in VC-MD-LHP was around 60%. With regard to the dehydration technique, in general VC-LHP exhibited the highest TPC, probably due to the Maillard reaction compounds formed during the dehydration procedure at 60 °C/72 h. Therefore, drying procedure, carrier used and their interaction significantly influenced TPC (Table 2).

In order to eliminate the interference of sugars (from honey), and proteins (mainly from WH), in analysis of TPC, measurements of this parameter were carried out in methanolic extracts (Fig. 1B). As expected, TPC results were lower in powders' extracts than in LHP. In contrast to drying procedures, studied carriers and their interaction with drying procedures showed no influence on TPC (Table 2). LHP extracts obtained from LH3 exhibited the lowest values (5–16 mg GA/100 g d.b.), while the extracts obtained from LH1 showed the highest results (22–37 mg GA/100 g d.b.), which were in accordance with the data of LH. Similar values (28.6 mg GA/100 g) were obtained by Samborska et al. (2020) for SP honey powders obtained with MD at 50%, while Suhag and Nanda (2016) and Tomczyk et al. (2020) obtained higher TPC (29.6–51.1 mg GA/100 g) in SP powders with AG, WH or MD. These slight differences could be due to the use of different honeys, but also to different phenol's extraction procedures used by each research team. Higher TPC were obtained by other authors (Suhag et al., 2016), adding

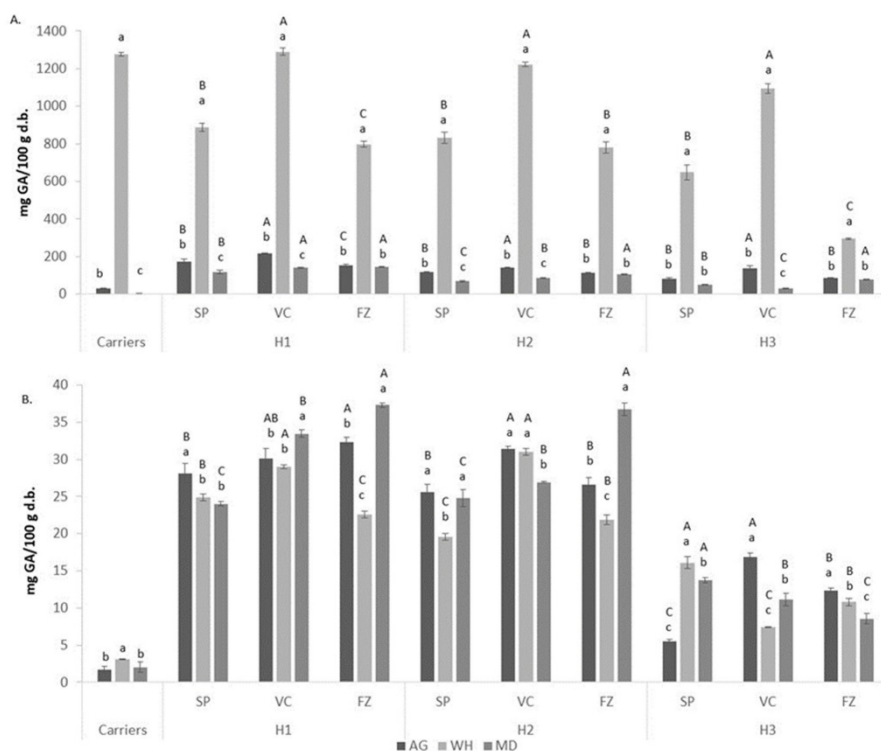


Fig. 1. Total phenols (mg of GA/100 g dry basis (d.b.)) of carriers and honey powders (A) and their methanolic extracts (B) obtained by spray (SP), vacuum (VC) and freeze (FZ) drying, using Arabic gum (AG), whey (WH) and maltodextrin (MD) ($n = 3$). Error bars represent the standard deviation for each data point. Different capitals letters (A–C) indicate significant differences ($p < 0.05$) between drying procedures for each honey and carrier. Different lowercase letters (a–c) indicate significant differences ($p < 0.05$) between carriers for each honey and drying procedure.

Table 2

Effect of interaction (Multifactor ANOVA), between drying procedures and carriers for phenols, flavonoids, antioxidant, anti-inflammatory and antimicrobial activities.

Source	TPC	TPCex	Flavon.	Flavan.	ABTS ^{•+}	ROO [•]	*OH	O ₂ ^{•−}	Anti-infl.	<i>St. aureus</i>	<i>L. mono</i>	<i>E. coli</i>
A: Drying	***	*	NS	*	***	*	***	***	NS	NS	NS	*
B: Carrier	***	NS	NS	*	***	***	***	***	***	**	NS	NS
Interaction: AB	***	NS	NS	NS	***	NS	***	*	*	NS	***	*

TPC: Total phenolics' content; TPCex: Total phenolics' content in methanolic extracts; Flavon.: Flavone/Flavonol; Flavan.: Flavanols. Anti-infl.: anti-inflammatory; *L. mono*: *L. monocytogenes*.

* p-value < 0.05.

** p-value < 0.01.

*** p-value < 0.001.

NS: non significant.

aonla and basil extracts to the honey powders (60–62 mg GA/100 g); or using skimmed milk powder (Samborska et al., 2020) as carrier (50–70 mg GA/100 g). Powders' TPC showed a retention between 50 and 172% in comparison to raw honeys, and only three LHP were below 90% retention. The results of LHP were higher than those obtained by Jedlińska et al. (2021) in SP honey powders using Nutriose as carrier in a ratio 1:1 (retention of 41–59% in SP powders, and 80–91% using dehumidified air SP), probably because of the use of different honey concentration, different carriers and different method for phenols extraction. Therefore, regardless the drying method, all the LHP

retained the TPC and none of the used drying procedure deteriorated honey phenolics compounds. Conversely, other researchers observed lower TPC in honeys dehydrated by SP at high temperature (Suhag et al., 2016).

Total flavanols in LHP ranged from 0.38 to 36.3 mg Ct/100 g d.b. Total flavone/flavonols ranged between 0 and 3.6 mg Q/100 g d.b. (Fig. 2). These results were higher than those obtained for raw honeys. Although all carriers seemed to somehow contribute or influence the flavonoids' analyses, with regard to flavanols, results were neither related to the drying method nor to the type of carrier. With regard to

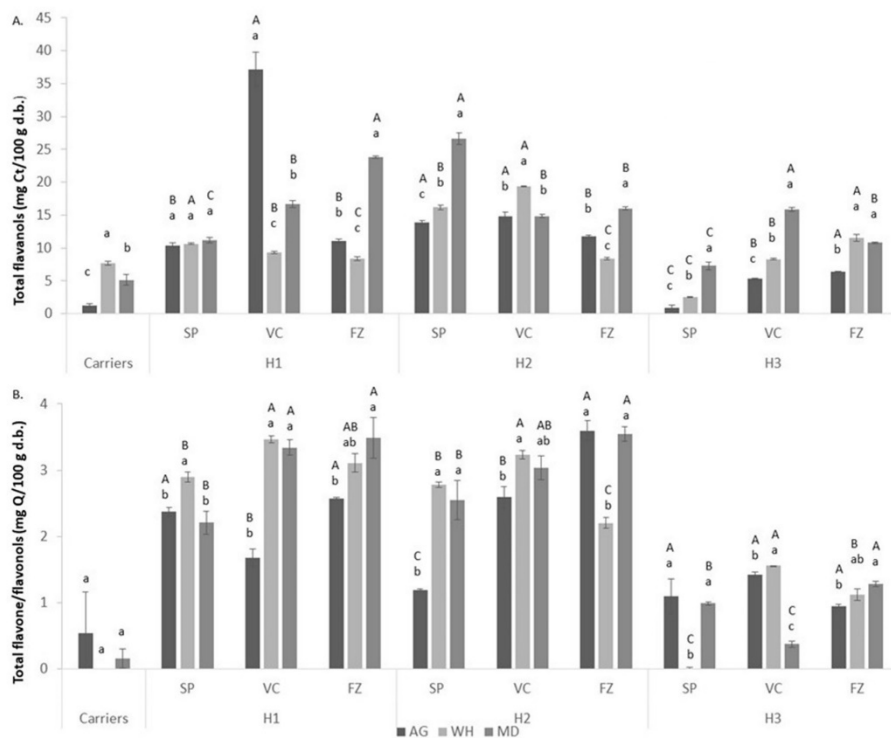


Fig. 2. Total flavanols (mg of Ct/100 g dry basis (d.b.)) and total flavone/flavonols (mg of Q/100 g dry basis (d.b.)) of carriers and honey powders obtained by spray (SP), vacuum (VC) and freeze (FZ) drying, using Arabic gum (AG), whey (WH) and maltodextrin (MD) ($n = 3$). Error bars represent the standard deviation for each data point. Different capitals letters (A–C) indicate significant differences ($p < 0.05$) between drying procedures for each honey and carrier. Different lowercase letters (a–c) indicate significant differences ($p < 0.05$) between carriers for each honey and drying procedure.

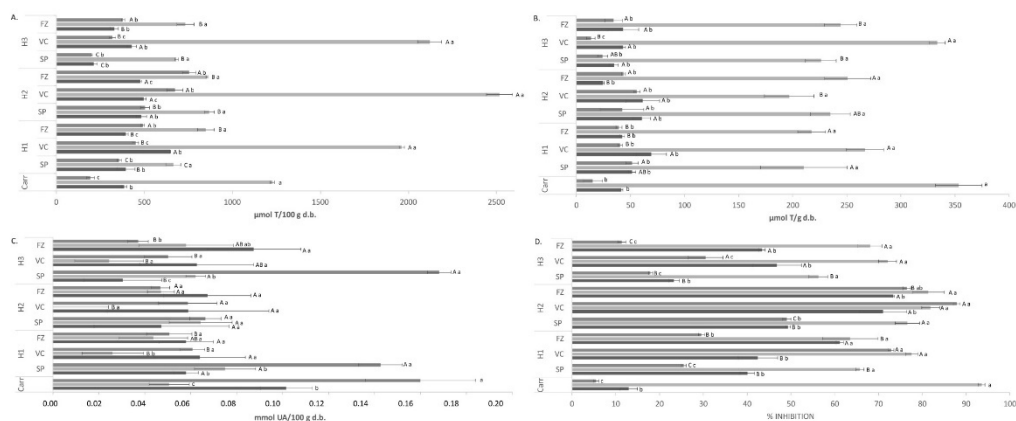


Fig. 3. Antioxidant activity of carriers (Carr) and honey powders obtained by spray (SP), vacuum (VC) and freeze (FZ) drying, using Arabic gum (AG), whey (WH) and maltodextrin (MD) against different radicals (ABTS $^{+}$ (A), ROO $^{\bullet}$ (B), $^{\bullet}\text{OH}$ (C) and $\text{O}_2^{\bullet-}$ (D)). Error bars represent the standard deviation for each data point. Different capitals letters (A–C) indicate significant differences ($p < 0.05$) between drying procedures for each honey and carrier. Different lowercase letters (a–c) indicate significant differences ($p < 0.05$) between carriers for each honey and drying procedure ($n = 3$).

flavones, results were slightly influenced by both factors, but not by their interaction (Table 2). The obtained results confirmed that the total amount of different flavonoids of honeys were completely retained in the corresponding honey powders.

3.2.2. Antioxidant activity

Fig. 3 shows the antioxidant activity of all carriers and LHP against the four studied radicals. Antioxidant activity of honey powders has not been extensively studied, so far. Only four researchers determined TEAC capacity against ABTS^{•+} (Barañska et al., 2021; Mutlu & Erbas, 2021; Rivero et al., 2021; Samborska et al., 2020), not there being any study against peroxy, hydroxyl and superoxide radicals. In this study, TEAC (Fig. 3A) ranged between 201 and 754 $\mu\text{mol T}/100\text{ g d.b.}$ for AG-LHP and MD-LHP, and between 646 and 2518 $\mu\text{mol T}/100\text{ g d.b.}$ for WH-LHP. TEAC of LHP were higher than those of LH. LHP3 showed the lowest TEAC, likewise its corresponding honey (LH3). All the carriers exhibited high TEAC results, being partly responsible for the LHP anti-ABTS^{•+} capacities (Table 2). WP-LHP exhibited the highest TEAC values, which could be attributed to the antioxidant activity of WH, due to its hydrophobic and aromatic amino acids that can stabilize electron deficient radicals by donating protons (Arranz et al., 2019). Similar results were reported by Mutlu and Erbas (2021) in honey-like powder obtained by VC and SP, with TEAC values of 251 $\mu\text{mol T}/100\text{ g}$ in powders containing MD, 787 $\mu\text{mol T}/100\text{ g}$ in powders containing AG and 3017 $\mu\text{mol T}/100\text{ g}$ in powders containing WH. Our results were also comparable to those of Samborska et al. (2020), with a TEAC of 726 mg T/kg (= 290 $\mu\text{mol T}/100\text{ g solids}$) in a honey powder obtained by SP using MD, and values from 1080 to 1245 mg T/kg (= 431–497 $\mu\text{mol T}/100\text{ g solids}$) in honey powders using skimmed milk as carrier. In honey powders obtained by FZ using different WH and AG ratios, Rivero et al. (2021) described TEAC values ranging from 5 to 10 mmol T/100 g, also observing higher antioxidant activities in honey powders than in the corresponding raw honeys (0.7–2.3 mmol T/100 g). These researchers concluded that TEAC was mostly related to the type of honey and its origin, not being much affected by the carrier ratio. In general, with regard to the dehydration technique, VC-LHP provided the highest TEAC, probably due to Maillard compounds that could contribute to increase antioxidant activities against ABTS^{•+} (Suhag & Nanda, 2017). Mutlu and Erbas (2021) also described higher TEAC values for honeys dehydrated by vacuum drying, in comparison with honey powders obtained by other methods. TEAC results showed to be highly influenced by the interaction between carriers and drying procedures (Table 2).

ORAC ranged between 197 and 333 $\mu\text{mol T/g d.b.}$ for WH-LHP, from 24.5 to 69.2 $\mu\text{mol T/g d.b.}$ for AG-LHP and from 13.4 to 55.9 $\mu\text{mol T/g d.b.}$ for MD-LHP, obtaining the following ORAC in decreasing order WH > AG > MD (Fig. 3B). This order could be related to the carrier composition, as well as to the honey concentration, because SP-WH-LHP and VC-WH-LHP samples had higher honey concentrations (75%) than SP-MD-LHP (50% honey) and VC-MD-LHP (60% honey). An ORAC value of 23000 $\mu\text{mol T}/100\text{ g}$ was reported for WH (Adjou, Doran, Torley, & Agboola, 2013).

AOA showed an enormous variability between samples and even for the same sample (Fig. 3C). AOA results varied between 0 and 0.168 mmol UA/100 g d.b., being in almost all LHP higher than in LH (Table 1). AOA seemed to be very influenced by the carrier (Table 2), because MD exhibited the highest values, followed by AG, and then, by WH. Conversely to what occurred with other antioxidant capacities, WH did not show the highest AOA results, highlighting the importance of using several methods against different free radicals to determine the antioxidant activity, because no single method is capable of properly assessing all antioxidant capacities. In general, with regard to the dehydration technique, SP-LHP showed the highest AOA values, meaning that the drying technique also influenced this activity, likewise the interaction between carriers and drying procedures (Table 2).

LHP showed an SRS between 11% and 88%, presenting LHP2 the highest radical inhibition (Fig. 3D), agreeing with the result of LH2

(Table 1). WH exhibited an inhibition of 94%, obtaining WH-LHP the highest inhibition percentage. Regarding the drying technique, SP-LHP showed the lowest inhibition, and VC-LHP the highest. Other authors assessed antioxidant activity of honey powders against other free radicals, such as DPPH or FRAP (Jedlińska et al., 2021; Suhag et al., 2021; Suhag & Nanda, 2016; Tomczyk et al., 2020), concluding that when SP was used, the more the inlet temperature increased, the lower the antioxidant activity was, because at high temperatures the phenols, which are mainly responsible for antioxidant capacity, were easily oxidized and degraded. These researchers also claimed that WH promoted an increase of the antioxidant activity due to its superior encapsulating properties.

The lower values of total phenols, flavonoids, TEAC and SRS obtained for sample LH3 and its corresponding powders could be due to the less purity in heather of LH3 in comparison with LH1 and LH2, even although all samples were ling-heather unifloral honeys.

3.2.3. Anti-inflammatory activity

Fig. 4 shows the anti-inflammatory activity of the carriers and LHP. Although, carriers did not exhibit any anti-inflammatory activity by hyaluronidase inhibition assay, the use of different carriers seemed to affect the retention of this honey activity, not there being a relation with the drying procedure, or with the percentage of honey in the powder. AG-LHP showed the highest inhibition percentage, meaning that there was a complete retention of the raw honeys anti-inflammatory activities (91–137%). However, in comparison with the corresponding LH anti-inflammatory activities, MD-LHP retained between 77 and 145% anti-inflammatory activity, and WH-LHP only between 6 and 17% anti-inflammatory activity. Therefore, WH showed the lowest retention of the components responsible for this activity. In strawberry tree honeys, Osés et al. (2020) reported that honey anti-inflammatory activity was mainly related to non-phenolic compounds, such as some volatile and semivolatile substances.

3.2.4. Antimicrobial activity

The antimicrobial activity was evaluated in carriers and LHP at concentrations between 5 and 70% using the broth microdilution method (Table 3). Carriers did not show antimicrobial activity at that concentrations, while LHP showed MBC between 10 and > 70%, which were lower antimicrobial activities than those of their corresponding LH. *E. coli* was the microorganism most sensitive to LHP, while *L. monocytogenes* was the most resistant. Likewise, to what occurred with LH, LHP1 showed the lowest antimicrobial activities, being these capacities similar in LHP2 and LHP3. WH-LHP and MD-LHP showed higher activities than AG-LHP against *St. aureus* (Tables 2 and 3). With regard to the drying procedures, FZ-LHP showed higher antimicrobial activities than SP-LHP and VC-LHP against *E. coli* (Tables 2 and 3), which could be due to the fact that during VC and SP samples are heated, in contrast to FZ, which takes place in cold. Interaction between carriers and drying procedures influenced antimicrobial activities against *L. monocytogenes* and *E. coli* (Table 2). Tomczyk et al. (2020) also assayed the antimicrobial activity by agar well diffusion of honey powders obtained by SP using MD at 50%. These researchers observed that none of the samples showed any antibacterial action against the microorganisms tested, which could be due to losses of honey antioxidant thermolabile components, to the 50% MD in the final product, or to the powder concentrations tested (12.5–50%) that were not enough to provide antibacterial activities.

4. Statistical analysis

At 95% significance, TPCs were linearly correlated to TEAC ($r = 0.8474$), ORAC ($r = 0.9136$) and SRS ($r = 0.617$), whereas methanolic extracts' TPCs were linearly correlated to flavanols ($r = 0.4823$) and flavone/flavonols ($r = 0.7190$). These results bring to light that antioxidant activities are related to phenolic compounds, as well as to other

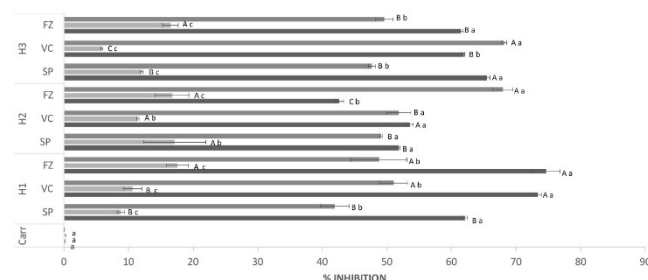


Fig. 4. Anti-inflammatory activity of carriers and powdered honeys obtained by spray (SP), vacuum (VC) and freeze (FZ) drying, using Arabic gum (AG), whey (WH) and maltodextrin (MD). Error bars represent the standard deviation for each data point. Different capitals letters (A–C) indicate significant differences ($p < 0.05$) between drying procedures for each honey and carrier. Different lowercase letters (a–c) indicate significant differences ($p < 0.05$) between carriers for each honey and drying procedure ($n = 3$).

Table 3

Minimal bactericidal concentration (MBC) of carriers and honey powders obtained by spray (SP), vacuum (VC) and freeze (FZ) drying, using Arabic gum (AG), whey (WH) and maltodextrin (MD) expressed as % honey against *St. aureus*, *L. monocytogenes* and *E. coli*. Triplicates show identical MBC for each sample. Different MBC values indicate significant differences ($p < 0.05$) among samples.

S. aureus										
		LHP1			LHP2			LHP3		
		SP	VC	FZ	SP	VC	FZ	SP	VC	FZ
AG	>70	^A 70±0 _b	^A 70±0 _b	^B 60±0 _b	^A 50±0 _a	^A 50±0 _a	^A 50±0 _a	^A 70±0 _a	^A 60±0 _a	^A 70±0 _a
WH	>70	^A >70 _a	^B 70±0 _b	^A >70 _a	^B 20±0 _c	^A 50±0 _a	^B 20±0 _b	^B 20±0 _b	^A 30±0 _c	^B 20±0 _b
MD	>70	^A >70 _a	^A >70 _a	^A 60±0 _b	^A 30±0 _b	^A 30±0 _b	^B 20±0 _b	^B 20±0 _b	^A 50±0 _b	^C 10±0 _c
L. monocytogenes										
		LHP1			LHP2			LHP3		
		SP	VC	FZ	SP	VC	FZ	SP	VC	FZ
AG	>70	^B 70±0 _b	^B 67±6 _b	^A >70 _a	^B 37±6 _b	^B 37±6 _c	^A >70 _a	^B 70±0 _a	^B 50±0 _b	^B 47±6 _b
WH	>70	^A >70 _a	^A >70 _a	^A >70 _a	^C 20±0 _c	^B 47±6 _b	^A >70 _a	^C 20±0 _c	^A >70 _a	^B 57±6 _a
MD	>70	^A 70±0 _b	^A 70±0 _b	^B 60±0 _b	^A 70±0 _a	^A 70±0 _a	^B 57±6 _b	^B 60±0 _b	^A >70 _a	^C 20±0 _c
E. coli										
		LHP1			LHP2			LHP3		
		SP	VC	FZ	SP	VC	FZ	SP	VC	FZ
AG	>70	^A 50±0 _b	^B 40±0 _b	^B 40±0 _b	^A 40±0 _a	^A 40±0 _a	^B 30±0 _a	^A 50±0 _a	^A 50±0 _a	^B 40±0 _b
WH	>70	^B 50±0 _b	^C 40±0 _b	^A >70 _a	^A 30±0 _b	^A 30±0 _b	^A 27±6 _a	^B 20±0 _c	^A 50±0 _a	^B 20±0 _b
MD	>70	^A 63±6 _a	^B 50±0 _a	^C 30±0 _c	^A 30±0 _b	^A 40±0 _a	^C 20±0 _b	^B 30±0 _b	^A 50±0 _a	^C 20±0 _b

A–C: Different letters showed significant differences ($p < 0.05$) between drying procedures for each honey and carrier.

a–c: different letters showed significant differences ($p < 0.05$) between carries for each honey and drying procedure.

non-phenolic substances, such as proteins or Maillard reaction products. With the results of all the parameters, a PCA was carried out. The first principal component explained a 34.78% of total observed variance, while the second principal component explained a 22.30% of the total observed variance (Fig. 5A and B). PC1 was mainly defined by TPC, antioxidant and anti-inflammatory activities, while PC2 was mainly defined by methanolic extracts' TPC, flavonoids and antimicrobial activities. LHP could be divided into two different groups. The first group was placed on the right side of the axis and comprised WH-LHP that were the honey powders with higher reducing components, TEAC, ORAC and SRS and lower anti-inflammatory activity. The second group was placed on the left side of the axis and comprised AG-LHP and MD-LHP that were the honey powders with higher AOA and anti-inflammatory activity. LHP1 was placed at the top, showing high flavonoids' contents and the lowest antimicrobial activity (higher MBC). Conversely, LHP3 was placed on the bottom, exhibiting the lowest flavonoids' content and the highest antimicrobial activity. PCA showed no differences among the drying procedures with regard to the studied parameters. Cluster analysis also divided the samples into two groups in a similar way as PCA (Fig. 5C). In the dendrogram chart two clusters were observed, the first one with WH-LHP and the second one with AG-LHP

and MD-LHP. LHP3 were slightly separated from the other samples in each cluster. Thus, it can be concluded that the botanical species contribution and the type of carrier influences the honey powder's biological properties.

5. Conclusions

All the drying methods and carriers retained the honeys' TPC and flavonoids, although a harmonized procedure to extract honeys' phenolics is necessary for a proper comparison of results. Antioxidant activities of honey powders were higher than those of the raw honeys. WH-LHP showed the highest TEAC, ORAC and SRS, while MD-LHP showed the highest AOA activity. Antioxidant activities of LHP depended on the honey content in the powder, on the carrier used and on the drying procedure. Anti-inflammatory activity of LH and LHP were similar when AG was used as carrier, and decreased if WH or MD were the carriers. Antimicrobial activities of LHP were lower than antimicrobial activities of LH, due to the carrier dilution factor or to the degradation of thermolabile antimicrobial compounds. In general, biological properties of honey powders were mainly influenced by the type of carrier used for dehydration, being barely influenced by the drying procedure.

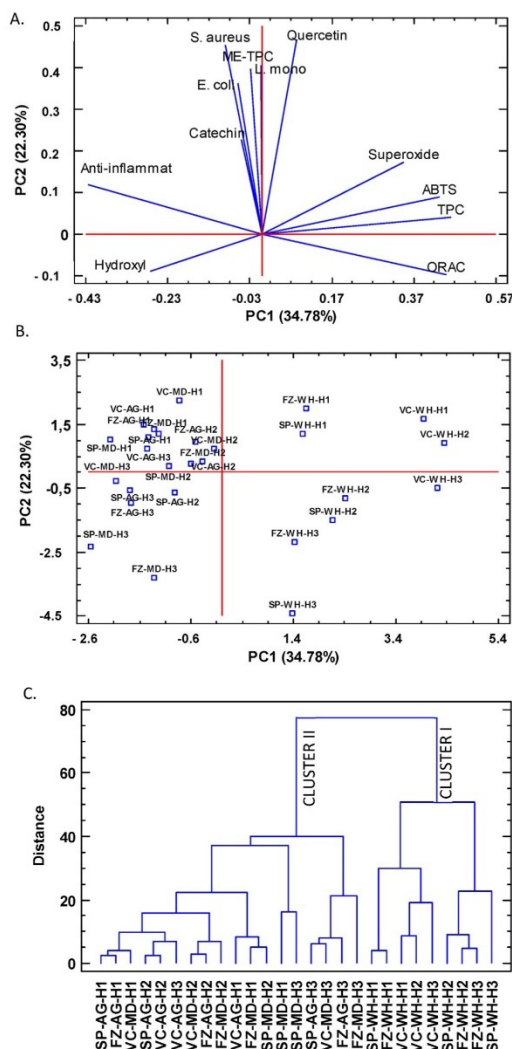


Fig. 5. Loading plot (A) and scores plot (B) of Principal Components Analysis. Dendrogram plot derived from hierarchical cluster analysis (C). ME-TPC: Total phenols compounds in methanolic extracts; SP: Spray drying; VC: vacuum drying; FZ: freeze drying; AG: Arabic gum; WH: whey; MD: maltodextrin; HE: honey.

Declaration of interests

The authors declare that they have no known competing financial interests or personal relationships that could have appeared to influence the work reported in this paper.

CRediT authorship contribution statement

Sandra María Osés: Conceptualization, Data curation, Investigation, Methodology, Resources, Supervision, Writing – original draft. **Leire Cantero:** Formal analysis, Investigation, Validation. **Guillermo**

Puertas: Formal analysis, Investigation, Validation. **Miguel Ángel Fernández-Muino:** Investigation, Methodology, Resources, Supervision, Visualization, Writing – original draft. **María Teresa Sancho:** Conceptualization, Funding acquisition, Investigation, Methodology, Project administration, Supervision, Visualization, Writing – review & editing.

Acknowledgements

The authors would like to thank A. Colina (manager of the beekeeping company Saluberia S.L., Spain), for kindly collecting the samples for this study and the Food Technology and Microbiology divisions of the Universidad de Burgos (Spain), for providing their premises and facilities. The authors gratefully acknowledge Junta de Castilla y León (Spain) for financial support (BU041G18), and for the research assistant contract given to Ms. Leire Cantero (Grant No. UBU-09-A).

Appendix A. Supplementary data

Supplementary data to this article can be found online at <https://doi.org/10.1016/j.lwt.2022.113235>.

References

Aziza, S., Lyoussi, B., Antunes, D., & Miguel, M. G. (2013). Physicochemical characterization and antioxidant activity of commercial Portuguese honeys. *Journal of Food Science*, 78(8), C1159–C1165. <https://doi.org/10.1111/1750-3841.12201>

Adjoni, R., Doran, G., Torley, P., & Agboola, S. (2013). Screening of whey protein isolate hydrolysates for their dual functionality: Influence of heat pre-treatment and enzyme specificity. *Food Chemistry*, 136(3–4), 1435–1443.

Alevia, M., Rasines, S., Cantero, L., Sancho, M. T., Fernández Muñio, M. A., & Osés, S. M. (2021). Chemical extraction and gastrointestinal digestion of honey: Influence of its antioxidant, antimicrobial and anti-inflammatory activities. *Foods*, 10, 1412. <https://doi.org/10.3390/foods10061412>

Álvarez-Suárez, J. M., Tulipani, A., Romandini, S., Bertoli, E., & Battino, M. (2010). Contribution of honey in nutrition and human health: A review. *Mediterranean Journal of Nutrition and Metabolism*, 3, 15–23. <https://doi.org/10.1007/s12349-009-0051-6>

Antony, S., Rieck, J. R., & Dawson, P. L. (2000). Effect of dry honey on oxidation in turkiet breast meat. *Poultry Science*, 79, 1846–1850.

Arranz, E., Corrochano, A. R., Shanahan, C., Villalba, M., Jaime, I., Santoyo, S., et al. (2019). Antioxidant activity and characterization of whey protein-based beverages: Effect of shelf life and gastrointestinal transit on bioactivity. *Innovative Food Science & Emerging Technologies*, 57, Article 102209. <https://doi.org/10.1016/j.ifset.2019.102209>

Baltusaitiūtė, V., Venskutonis, P. R., & Ceksterytė, V. (2007). Radical scavenging activity of different floral origin honey and beebread phenolic extracts. *Food Chemistry*, 101, 502–514. <https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2006.02.007>

Bansal, V., Premi, M., Sharma, H. K., & Nanda, V. (2017). Compositional, physical, functional attributes and flow characterization of spray dried skim milk powder enriched with honey. *Food Measure*, 11, 1474–1485. <https://doi.org/10.1007/s11694-017-9526-1>

Baranska, A., Jedlińska, A., & Samborska, K. (2021). Dehumidified air assisted spray drying of buckwheat honey with maltodextrin and skim milk powder as carriers. *Applied Sciences*, 11, 3150. <https://doi.org/10.3390/app11073150>

Bogdanov, S. (2016). Honey in medicine. In S. Bogdanov (Ed.), *Book of honey, bee product science* (chapter 9). Retrieved from https://www.researchgate.net/publication/304011973_Honey_in_Medicine. (Accessed 5 July 2021)

Bogdanov, S., Jurendic, T., Sieber, R., & Gallmaun, P. (2008). Honey for nutrition and health: A review. *Journal of the American College of Nutrition*, 27, 677–689. <https://doi.org/10.1080/07315724.2008.10719745>

Chen, L., Mehta, A., Berenbaum, M., Zangerl, A. R., & Engeseth, N. J. (2000). Honey from different floral sources as inhibitors of enzymatic browning in fruit and vegetable homogenates. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 48, 4997–5000. <https://doi.org/10.1021/jf000373j>

Cui, Z. W., Sun, L. J., Chen, W., & Sun, D. W. (2008). Preparation of dry honey by microwave vacuum drying. *Journal of Food Engineering*, 84, 582–590. <https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2007.06.027>

Ferreiras, F., Lopes, G., Gil Izquierdo, A., Andrade, P., Sousa, C., Mouta, T., et al. (2012). Phlorotannin extracts from fucals characterized by HPLC-DAD-ESI-MSn: Approaches to hyaluronidase inhibitory capacity and antioxidant properties. *Marine Drugs*, 10(12), 2766–2781.

Gorjanović, S.Ž., Álvarez-Suárez, J. M., Novaković, M. M., Pastor, F. T., Pezo, L., Battino, M., et al. (2013). Comparative analysis of antioxidant activity of honey of different floral sources using recently developed polarographic and various spectrophotometric assays. *Journal of Food Composition and Analysis*, 30, 13–18. <https://doi.org/10.1016/j.jfca.2012.12.004>

- Ilakim, D. A., Tjahjaniingsih, W. T., & Sudarmo. (2019). Antibacterial activity of honey in preserving high-pressure cooked milkfish stored at room temperature. *IOP Conference Series: Earth and Environmental Science*, 236, Article 012079. <https://doi.org/10.1088/1755-1315/236/1/012079>.
- Jayasundera, M., Adhikari, B., Aldred, P., & Ghandi, A. (2009). Surface modification of spray dried food and emulsion powders with surface-active proteins: A review. *Journal of Food Engineering*, 93, 266–277. <https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2009.01.036>.
- Jedlińska, A., Samborska, K., Wiczorek, A., Wiktor, A., Ostrowska Ligeza, E., Jamroz, W., et al. (2019). The application of dehumidified air in rapeseed and honeydew honey spray drying - process performance and powders properties considerations. *Journal of Food Engineering*, 245, 80–87. <https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2018.10.017>.
- Jedlińska, A., Wiktor, A., Witrowa-Rajchert, D., Derewiaka, D., Wolosiak, R., Matwijczuk, A., et al. (2021). Quality assessment of honey powders obtained by high- and low-temperature spray drying. *Applied Sciences*, 11, 224. <https://doi.org/10.3390/app11010224>.
- Johnston, J. E., Sepe, H. A., Miano, C. L., Brannan, R. G., & Alderton, A. L. (2005). Honey inhibits lipid oxidation in ready-to-eat ground beef patties. *Meat Science*, 70, 627–631. <https://doi.org/10.1016/j.meatsci.2005.02.011>.
- Kaygusuz, H., Tezcan, F., Erim, F. B., Yildiz, O., Sahin, H., Can, Z., et al. (2016). Characterization of Anatolian honeys based on minerals, bioactive components and principal components analysis. *LWT-Food Science and Technology*, 68, 273–279. <https://doi.org/10.1016/j.lwt.2015.12.005>.
- Kivina, E., Tamlaas, K., Martverk, K., Rosenvald, S., Timbert, L., & Laas, K. (2021). The composition, physicochemical properties, antioxidant activity and sensory properties of Estonian honeys. *Foods*, 10, 511. <https://doi.org/10.3390/foods10030511>.
- Kolayli, S., Sahin, H., Can, Z., Yildiz, O., & Sahin, K. (2016). Honey shows potent inhibitory activity against the bovine testes hyaluronidase. *Journal of Enzyme Inhibition and Medicinal Chemistry*, 31(4), 599–602. <https://doi.org/10.3109/14756366.2015.1054819>.
- Koracevic, D., Koracevic, G., Djordjevic, V., Andrejevic, S., & Cosic, V. (2001). Method for the measurement of antioxidant activity in human fluids. *Journal of Clinical Pathology*, 54(5), 356–361.
- Küçük, M., Kolayli, S., Karagözü, Ş., Ulusoy, E., Baltacı, C., & Candan, F. (2007). Biological activities and chemical composition of three honeys of different types from Anatolia. *Food Chemistry*, 100, 526–534.
- Louveau, J., Maurizio, A., & Vorwohl, G. (1978). International commission for bee botany of IUBS. *Methods of Melissopalynology*. *Bee World*, 59, 139–157.
- Marcuzzan, G. L., Mucignat-Caretta, C., Marchese, C. M., & Piana, M. L. (2018). A review of methods for honey sensory analysis. *Journal of Apicultural Research*, 57, 75–87. <https://doi.org/10.1080/00218839.2017.1357940>.
- Meda, A., Lamien, C. E., Romito, M., Millogo, J., & Nacoulma, O. G. (2005). Determination of the total phenolic, flavonoid and proline contents in Burkina Faso honey, as well as their radical scavenging activity. *Food Chemistry*, 91, 571–577. <https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2004.10.006>.
- Molan, P. C. (1992). The antibacterial activity of honey. *Bee World*, 73(2), 59–76. <https://doi.org/10.1080/0005772X.1992.11099118>.
- Mutlu, C., & Erbas, M. (2021). Evaluating the effects of different drying methods, carrier materials and their ratios to produce bioactive honey like powder. *Journal of Apicultural Research*, 1–10. <https://doi.org/10.1080/00218839.2021.1885877>.
- Nurhadi, B., Andoyo, R., Mahani, R., & Indarto, R. (2012). Study the properties of honey powder produced from spray drying and vacuum drying method. *International Food Research Journal*, 19(3), 907–912.
- Osés, S. M., Cantero, L., Crespo, M., Puertas, G., González-Ceballos, L., Vallejos, S., et al. (2021). Attributes of ling-heather honey powder obtained by different methods with several carriers. *LWT-Food Science and Technology*, 150, Article 112063. <https://doi.org/10.1016/j.lwt.2021.112063>.
- Osés, S. M., Nieto, S., Rodrigo, S., Pérez, S., Rojo, S., Sancho, M. T., et al. (2020). Authentication of strawberry tree (*Arbutus unedo* L.) honeys from southern Europe based on compositional parameters and biological activities. *Food Bioscience*, 38, Article 100768. <https://doi.org/10.1016/j.fbio.2020.100768>.
- Osés, S. M., Pascual Maté, A., Fernández Muñio, M. A., López Díaz, T. M., & Sancho, M. T. (2016). Bioactive properties of honey with propolis. *Food Chemistry*, 196, 1215–1223. <https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2015.10.050>.
- Pekal, A., & Pyrzyńska, K. (2014). Evaluation of aluminium complexation reaction for flavonoid content assay. *Food Analytical Methods*, 7, 1776–1782. <https://doi.org/10.1007/s12161-014-9814-x>.
- Persano Oddo, L., & Piro, R. (2004). Main European unifloral honeys: Descriptive sheets. *Apidologie*, 35, 38–81. <https://doi.org/10.1051/apido:2004049>.
- Petretto, G. L., Cossu, M., & Alanuami, M. C. (2015). Phenolic content, antioxidant and physico-chemical properties of Sardinian monofloral honeys. *International Journal of Food Science and Technology*, 50, 482–491. <https://doi.org/10.1111/ijfs.12652>.
- Piana, M. L., Persano Oddo, L., Bentabol, A., Brunese, E., Bogdanov, S., & Guyot Declercq, C. (2004). Sensory analysis applied to honey: State of the art. *Apidologie*, 35, 26–37. <https://doi.org/10.1051/apido:2004048>.
- Półtorak, A., Marcinkowska-Lesiak, M., Lendzion, K., Moczkowska, M., Onopiuk, A., Wojtasik Kalinowska, L., et al. (2018). Evaluation of the antioxidant, anti-inflammatory and antimicrobial effects of catuaba, galangal, roseroot, maca root, guarana and polyfloral honey in sausages during storage. *LWT-Food Science and Technology*, 96, 364–370. <https://doi.org/10.1016/j.lwt.2018.05.035>.
- Ram, K. A. (2011). *Production of spray dried honey powder and its application in bread*. PhD Thesis to the graduate Faculty of the Louisiana State University and Agricultural and Mechanical College of the degree of Master of Science. Department of Food Science Vellore Institute of Technology. Retrieved from: https://digitalcommons.lsu.edu/gradschool_theses/1743/. (Accessed 23 July 2021).
- Re, R., Pellegrini, N., Proteggente, A., Pannal, A., Yang, M., & Rice-Evans, C. (1999). Antioxidant activity applying an improved ABTS radical cation decolorization assay. *Free Radical Biology & Medicine*, 26, 1231–1237.
- Rivero, R. C., Archana, D. A., Busquet, C. M., Baldi-Coronel, B. M., & Busch, V. M. (2021). Development of a honey-based powder ingredient using a mixture design: Botanical origin effect and hydration properties. *LWT-Food Science and Technology*, 147, Article 111446. <https://doi.org/10.1016/j.lwt.2021.111446>.
- Rodríguez-Flores, M. S., Escudero, O., Seijo-Rodríguez, & Seijo, M. C. (2019). Characterization of the honey produced in Heather communities (NW Spain). *Journal of Apicultural Research*, 58(1), 84–91. <https://doi.org/10.1080/00218839.2018.1495417>.
- Sahu, J. K. (2008). The effect of additives on vacuum dried honey powder properties. *International Journal of Food Engineering*, 4(8). <https://doi.org/10.2202/1556-3758.1356>, article 9.
- Sahu, J. K., & Devi, K. D. (2013). Modeling of vacuum puffing characteristics and color change of liquid honey. *Industrial Crops and Products*, 48, 118–123. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2013.04.019>.
- Salonen, A., Virjamo, V., Tammela, P., Fauch, L., & Julkunen-Tiitto, R. (2017). Screening bioactivity and bioactive constituents of Nordic unifloral honeys. *Food Chemistry*, 237, 214–224. <https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2017.05.085>.
- Samborska, K. (2019). Powdered honey-drying methods and parameters, types of carriers and drying aids, physicochemical properties and storage stability. *Trends in Food Science & Technology*, 88, 133–142. <https://doi.org/10.1016/j.tifs.2019.03.019>.
- Samborska, K., Baranska, A., Szulc, K., Jankowska, E., Truszkowska, M., Ostrowska-Ligeza, E., et al. (2020). Reformulation of spray-dried apple concentrate and honey for the enhancement of drying process performance and the physicochemical properties of powders. *Journal of the Science of Food and Agriculture*, 100, 2224–2235. <https://doi.org/10.1002/jsfa.10247>.
- Samborska, K., Langa, E., Kamińska-Dwórnicka, A., & Witrowa-Rajchert, D. (2014). The influence of sodium caseinate on the physical properties of spray-dried honey. *International Journal of Food Science and Technology*, 50(1), 256–262. <https://doi.org/10.1111/ijfs.12629>.
- Sancho, M. T., Pascual Maté, A., Rodríguez-Morales, E. G., Osés, S. M., Escribá, I., Periche, A., et al. (2016). Critical assessment of antioxidant-related parameters of honey. *International Journal of Food Science and Technology*, 51, 30–36. <https://doi.org/10.1111/ijfs.12988>.
- Seraglio, S. K. T., Silva, B., Bergamo, G., Brugnerotto, P., Gonzaga, L. V., Fett, R., et al. (2019). An overview of physicochemical characteristics and health-promoting properties of honeydew honey. *Food Research International*, 119, 44–46. <https://doi.org/10.1016/j.foodres.2019.01.028>.
- Shi, Q., Fang, Z., & Bhandari, B. (2013). Effect of addition of whey protein isolate on spray-drying behaviour of honey with maltodextrin as a carrier material. *Drying Technology: International Journal*, 31, 13–14. <https://doi.org/10.1080/07373937.2013.783593>.
- Singleton, V. L., Orthofer, R., & Lamuela-Raventós, R. M. (1999). Analysis of total phenols and other oxidation substrates and antioxidants by means of Folin-Ciocalteu reagent. *Methods in Enzymology*, 299, 152–178. [https://doi.org/10.1016/S0076-6879\(99\)90017-1](https://doi.org/10.1016/S0076-6879(99)90017-1).
- Sramek, M., Woerz, B., Horn, H., Weiss, J., & Kohls, R. (2016). Preparation of high-grade powders from honey-glucose syrup formulations by vacuum foam-drying method. *Journal of Food Processing and Preservation*, 40, 790–797. <https://doi.org/10.1111/jfpp.12660>.
- Starowicz, M., Ostasz, A., & Zieliński, H. (2021). The relationship between the browning index, total phenolics, color, and antioxidant activity of Polish-originated honey samples. *Foods*, 10, 967. <https://doi.org/10.3390/foods10050967>.
- Suhag, Y., & Nanda, V. (2015). Optimisation of process parameters to develop nutritionally rich spray dried honey powder with vitamin C content and antioxidant properties. *International Journal of Food Science and Technology*, 50, 1771–1777. <https://doi.org/10.1111/ijfs.1284>.
- Suhag, Y., & Nanda, V. (2016). Evaluation of different carrier agents with respect to physico-chemical, functional and morphological characteristics of spray dried nutritionally rich honey powder. *Journal of Food Processing and Preservation*, 40, 1429–1437. <https://doi.org/10.1111/jfpp.12728>.
- Suhag, Y., & Nanda, V. (2017). Degradation kinetics of ascorbic acid in encapsulated spray-dried honey powder packaged in aluminium laminated polyethylene and high-density polyethylene. *International Journal of Food Properties*, 20(3), 645–653. <https://doi.org/10.1080/10942912.2016.1174939>.
- Suhag, Y., Nayik, G. A., Karabagias, I. K., & Nanda, V. (2021). Development and characterization of a nutritionally rich spray-dried honey powder. *Foods*, 10, 162. <https://doi.org/10.3390/foods10010162>.
- Suhag, Y., Nayik, G. A., & Nanda, V. (2016). Effect of gum Arabic concentration and inlet temperature during spray drying on physical and antioxidant properties of honey powder. *Food Measure*, 10, 350–356. <https://doi.org/10.1007/s11694-016-9313-4>.
- Terradillos, L. A., Muniategui, S., Sancho, M. T., Huidobro, J. F., & Simal-Lozano, J. (1994). An alternative method for analysis of honey sediment. *Bee Science*, 3, 86–93.
- Tomczyk, M., Zagula, G., Tarapatsky, M., Kačaniová, M., & Džugan, M. (2020). The effect of honey variety on the quality of honey powder. *Journal of Microbiology, Biotechnology and Food Sciences*, 9(5), 949–954. <https://doi.org/10.15141/jmbfs.2020.9.5.949-954>.
- Von der Ohe, W., Persano Oddo, L., Piana, M. L., Morlot, M., & Martin, P. (2004). Harmonized methods of melissopalynology. *Apidologie*, 35, 18–25. <https://doi.org/10.1051/apido:2004050>.

Article

Impact of the Drying Procedure and Botanical Origin on the Physico-Chemical and Potentially Bioactive Properties of Honey Powders

Leire Cantero ¹, Lara González-Ceballos ^{1,2}, Saúl Vallejos ², Guillermo Puertas ¹, Miguel A. Fernández-Muiño ^{1,*}, M. Teresa Sancho ^{3,*} and Sandra M. Osés ¹

¹ Department of Biotechnology and Food Science, University of Burgos, Plaza Misael Bañuelos s/n, 09001 Burgos, Spain; lcantero@ubu.es (L.C.); lgceballos@ubu.es (L.G.-C.); gp11001@alu.ubu.es (G.P.); smoses@ubu.es (S.M.O.)

² Department of Chemistry, University of Burgos, Plaza Misael Bañuelos s/n, 09001 Burgos, Spain; svallejos@ubu.es

³ Faculty of Sciences, University of Burgos, Plaza Misael Bañuelos s/n, 09001 Burgos, Spain

* Correspondence: mafernan@ubu.es (M.A.F.-M.); mtsancho@ubu.es (M.T.S.); Tel.: +34-947-258868 (M.A.F.-M.); +34-947-258813 (M.T.S.)



Citation: Cantero, L.; González-Ceballos, L.; Vallejos, S.; Puertas, G.; Fernández-Muiño, M.A.; Sancho, M.T.; Osés, S.M. Impact of the Drying Procedure and Botanical Origin on the Physico-Chemical and Potentially Bioactive Properties of Honey Powders. *Foods* **2023**, *12*, 3990. <https://doi.org/10.3390/foods12213990>

Academic Editor: Sakamon Devahastin

Received: 27 September 2023

Revised: 26 October 2023

Accepted: 27 October 2023

Published: 31 October 2023



Copyright: © 2023 by the authors. Licensee MDPI, Basel, Switzerland. This article is an open access article distributed under the terms and conditions of the Creative Commons Attribution (CC BY) license (<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>).

Abstract: This study was aimed at researching the impact of the drying procedure (using the most appropriate honey–maltodextrin concentration for each drying technique) and botanical origin of honey on the physicochemical and potentially bioactive properties of honey powders that were made using maltodextrin as a carrier. The research was carried out with thyme, lavender, vetch and multifloral honey dehydrated using vacuum drying and freeze drying. The analysed parameters were moisture, water activity, colour, glass transition temperature, powder recovery, hygroscopic index and rate, tapped density, solubility, and phenolics as well as antiradical (ABTS^{•+}, ROO[•], •OH and O₂^{•−}), anti-inflammatory and antimicrobial (against *Staphylococcus aureus*, *Escherichia coli* and *Listeria monocytogenes*) activities. Freeze drying provided the highest recoveries. Powders obtained using freeze drying showed higher moisture and solubility as well as lower glass transition temperature, density and hygroscopicity than those obtained using vacuum drying. Hygroscopicity, glass transition temperature and antimicrobial activity against *St. aureus* depended on the drying procedure–honey concentration. Colour, anti-O₂^{•−} activity and antimicrobial activity against *L. monocytogenes* depended on the botanical origin of the raw honey. Moisture, solubility, density, total phenolic content, anti-ABTS^{•+} and anti-ROO[•] activities as well as anti-inflammatory activity and antimicrobial activity against *E. coli* depended on the drying procedure–honey concentration and botanical origin.

Keywords: honey powder; freeze drying; vacuum drying; potentially bioactive properties

1. Introduction

Honey is a natural sweetener with a long history of use in human nutrition. Honeys from different botanical/geographical origins are highly liked by consumers for their unique flavours and nutrient compositions. In Spain, heather, thyme, vetch, lavender and some multifloral honeys are highly valued. Food packers and industries appreciate honey because of its potential health benefits that are generally related to micro components such as polyphenols, organic acids, enzymes, and amino acids, among others, that may provide antioxidant, antimicrobial, anti-inflammatory and immunostimulant actions [1–3]. Consumers associate honey with nature and ecology [4]. An important drawback regarding honey's potential use in food, pharmaceutical and cosmetic industries is the high viscosity and stickiness of this foodstuff, which creates multiple problems mainly related to honey's tendency to crystallize due to its high carbohydrate content. Therefore, alternatives to

raw honey are being researched nowadays, among which honey powder (P) is one of the most important options [5]. Honey powder has been used as an ingredient in several food products, such as bread, cookies or meat marinade [6–8]. The addition of up to 15% of honey powder to food products inhibited the development of oxidative compounds in cooked turkey meat [6]. The addition of honey powder also improved dough rheology and textural properties in bread [7]. Kiliç and Demir [8] made cookies replacing sugar with honey powder, increasing the mineral content and total phenolic compounds. López-Patiño [9] used honey powder in grilled meat, slowing down the microbial growth of enterobacteria and increasing the shelf life of the product.

P has many advantages compared to honey, such as ease of packaging, transportation, and storage operations due to volume and weight reduction, and combination with other dry products [1,10]. P is a hygroscopic powder, which is difficult to obtain because of its composition and structure. Honey fructose (38–40%) and glucose (33–35%), together with other components, are responsible for honeys' low glass transition temperatures (T_g), around -27 and -51 °C [3,11], which make it impossible to obtain P without the addition of carriers [12,13]. Arabic gum, dextrins, maltodextrins and whey protein concentrate are common carriers, acting as emulsifying agents, anti-caking agents and high-molecular-weight filling materials. Other carriers that are currently being successfully used are bee pollen together with Arabic gum [14] and rice and pea protein [15]. They increase the T_g of the mixtures, maintaining the stability of the powders with high sugar content and avoiding the transition of the material from a vitreous to a rubbery state. Carriers minimize the main problems during drying, such as stickiness and drying difficulties [16,17]. However, the use of large amounts of drying carriers increases the production costs and can alter the original flavour of raw honeys and the resulting powders, with the risk of consumer disapproval [18].

Spray drying (SP) is the most used method for making P due to its short drying contact time, which prevents the degradation of flavours, colours and nutrients. SP provides powders with effective reconstitution characteristics, storage stability and low water activity, but with decreased antioxidant activity and total phenolic content [19]. Among the various drying technologies, there are other less-used procedures, such as vacuum drying (VC), microwave vacuum drying, and freeze drying (FZ). The mentioned techniques are of great interest since they reduce changes due to the high temperature of spray drying [1,2]. VC takes place in the absence of oxygen, which reduces oxidative degradation and has a faster drying rate than SP due to the creation of a foamy or swollen structure in the powder [3,20]. As a result of the mild drying conditions (low temperature in comparison with SP, and reduced pressure), high and valuable amounts of thermosensitive nutrients are preserved [3]. FZ is slower and more expensive than other procedures [3]. However, FZ (carried out in the absence of oxygen and using low drying temperatures) shows some advantages over other drying techniques, such as a high content of volatile compounds, retention of heat-sensitive compounds and flavours, preservation of structure, low damage from non-enzymatic or oxidative reactions, and maintenance of nutritional and bioactive properties [2].

In previous studies, we verified that ling-heather honey powders (LHP) obtained via VC and FZ using only maltodextrin (MD) as a carrier showed higher recoveries (88–98%) and better sensory characteristics than the powders obtained via SP and/or using other carriers [11]. LHP also exhibited interesting antiradical, antimicrobial and anti-inflammatory activities, which could help boost the use of these powders [21]. Considering previous research on honey powders, the purpose of this work was to determine the actual impact of both the drying procedure (using the most appropriate honey–maltodextrin concentration for each drying technique) and the botanical origin of honey on the physicochemical and functional characteristics of P made with honeys from different botanical origins and dehydrated by VC and FZ, analysing physicochemical and bioactive properties, as well as antiradical activities.

2. Materials and Methods

2.1. Materials

Reagents: Maltodextrin (MD) of dextrose equivalent 20 (Calaf Nuances, Barcelona, Spain). Methanol, sodium carbonate, sodium chloride, sodium hydroxide, potassium hydroxide, potassium persulfate, $\text{Fe}(\text{NH}_4)_2(\text{SO}_4)_2$, EDTA, acetic acid, formic acid, p-dimethylaminobenzaldehyde (DMAB), HCl, H_2SO_4 , H_2O_2 , Baird Parker agar (BP), Trypone bile x-glucuronide agar (TBX) and egg yolk tellurite sterile emulsion (VWR International Eurolab, part of Avantor, Llinars del Vallés, Spain). Gallic acid, NaNO_2 , Na_2SO_4 and catechin (Panreac, Barcelona, Spain). AlCl_3 and fluorescein sodium salt (Fluka Chemie GmbH, part of Sigma-Aldrich, Buchs, San Galo, Switzerland). Na_2HPO_4 , NaH_2PO_4 (Scharlab, Sentmenat, Spain). Potassium tetraborate, nitro-blue tetrazolium, sodium benzoate and uric acid (Alfa Aesar, part of Thermo Fisher, Kandel, Rheinland-Pfalz, Germany). Nutrient broth No. 2 (NB), brain heart infusion (BHI), agar technical No.2 and Ringer solution (Oxoid, part of Thermo Fisher, Basingstoke, Hampshire, UK). Microinstant Listeria Agar Base (LAB), Listeria enrichment supplement Ottaviani & Agosti and Listeria Selective Supplement (Scharlau S.L., Senmanat, Spain). Folin–Ciocalteu phenol reagent, quercetin, dinitrophenylhydrazine, 2,2'-azino-bis(3-ethylbenzothiazoline-6-sulphonic acid) (ABTS), 6-hydroxy-2,5,7,8-tetramethylchroman-2-carboxylic acid (Trolox), thiobarbituric acid (TBA), xanthine, xanthine oxidase (10110434001), 2,2'-azobis(2-aminopropane)dihydrochloride (ABAP), N-acetyl-D-glucosamine (NAG), hyaluronic acid sodium salt from *Streptococcus equi* (53,747), bovine serum albumin (BSA), hyaluronidase from bovine testes type IV-S (1400 U/mL, H3884) (Sigma-Aldrich, part of Merck, Steinheim, Nordrhein-Westfalen, Germany). Water was deionized using a Milli-Q water purification system (Millipore, part of Merck, Bedford, MA, USA).

Equipment: Heraeus Instruments vacuotherm (ThermoFisher Scientific, Madrid, Spain); LyoQuest-55 ECO PLUS (Azbil Telstar Technologies, S.L.U., Barcelona, Spain); AquaLab Series 4 TE (Labferrer, Lleida, Spain); Hunter Lab colorimeter (ColorFlex EZ System®, Reston, VA, USA); scanning calorimetry with a Q200 DSC analysed equipped with a cooling Intra-Cooler system (TA Instruments, New Castle, DE, USA) at 20 °C/min; 400Bio UV–visible spectrophotometer (Varian, Mulgrave, Vic., Australia); Varioskan LUX microplate reader (ThermoFisher Scientific); sterile 96 well round bottomed polystyrene microtitre plates (Brand, Wertheim, Germany).

2.2. Honey Samples and Drying Procedures

Nine samples of honeys from thyme (TH), lavender (LV), vetch (V), and multifloral (M) (Table 1), collected by beekeepers from Castilla y León (Spain), were processed to obtain P. Botanical origins were determined using melissopalynology and sensory analyses [22–27].

Table 1. Botanical origins of honey samples.

Honey	Family	Scientific Name	Common Name
TH1	Labiatae	<i>Thymus</i> sp.	Thyme
TH2	Labiatae	<i>Thymus</i> sp.	Thyme
LV1	Labiatae	<i>Lavandula hybrida</i> Reverchon	Lavender
LV2	Labiatae	<i>Lavandula latifolia</i> Medik	Lavender
LV3	Labiatae	<i>Lavandula stoechas</i> Lam	Lavender
V1	Leguminosae	<i>Vicia</i> sp.	Vetch
M1	Multifloral	-	Multifloral
M2	Multifloral	-	Multifloral
M3	Multifloral	-	Multifloral

2.3. Honey Powders

The liquid honey was mixed with MD and water. Eighteen samples of P were obtained from the nine honeys and drying carrier (MD) using two drying procedures: VC and FZ. Honey and MD were first separately dissolved in water. Then, they were mixed together by gently stirring with a magnetic stirrer at room temperature. The drying methods and proportions of honey and carrier were selected according to preliminary experiments [11]. VC: mix preparation of 42% (w/w) of total solid concentration $[(\text{honey} + \text{MD})/(\text{honey} + \text{MD} + \text{H}_2\text{O}) \times 100]$ and a ratio of honey:MD of 60:40 (57% of honey in dry basis) was poured into a silicon baking cup with 3–4 mm thickness and dried in a lab-scale vacuum oven (Heraeus Instruments vacutherm) at 60 °C with a pressure at 100 mbar for two days and cooling in a desiccator before grounding with a mortar. FZ: The mixtures were prepared at a honey:MD ratio of 75:25 (73% of honey in dry basis), maintaining a total solid concentration of 45%. The mixture was frozen at −30 °C in a silicon mold (3–4 mm) for 5 h and later at −80 °C for 24 h. Later, the samples were dried by freezing in a LyoQuest-55 ECO PLUS for 3 days at 0.057 mbar pressure and immediately ground. Each drying procedure was performed three times for each honey, and the combination of the three powders (obtained using the same procedure for the same honey) was used for the analysis. VC and FZ samples were stored in glass jars in a desiccator containing silica gel until further analyses. Moisture, a_w , hygroscopicity, solubility, density and colour were analysed during the first week. Total phenols, total flavonoids, antioxidant, anti-inflammatory and antimicrobial analysis were determined within the first month after making the honey powders.

2.4. Quality Parameters and Physical Properties of Honey and P

The moisture, water activity (a_w) and colour of the honeys were determined using the AOAC (969.38 method) [28], Bogdanov [29], Codex Alimentarius Standard for honey [30], Commission Internationale de L'clairage [31], Pascual-Maté et al. [32], and Sancho et al. [33] procedures. The water activity and colour parameters L^* , a^* , and b^* of P were determined following the same procedures described for honey using an AquaLab Series 4 TE and a Hunter Lab colorimeter, respectively. Powder recovery, moisture content (gravimetry, drying at 105 °C/4 h), hygroscopic index and rate (1.00 g placed in a desiccator at 25 °C and a saturated NaCl solution during 1 week), tapped density (recording the volume of 2.00 g P in a graduated cylinder after tapping 25 times), solubility (time required for 2.00 g P to dissolve completely in 25 mL distilled water in a 100 mL glass beaker at room temperature, stirring at 890 rpm), and T_g (scanning calorimetry with a Q200 DSC analysed equipped with a cooling Intra-Cooler system at 20 °C/min) were determined following the Osés et al. [11] procedures briefly described in Supplementary Figure S1.

2.5. Analysis of Potentially Bioactive Properties of Honey and P

Phenolic compounds (total phenolic, total flavones/flavonols and total flavanols), antiradical activities against $\text{ABTS}^{+\bullet}$, $\bullet\text{OH}$ and $\text{O}_2^{\bullet-}$ and anti-inflammatory activity were measured using a 400Bio UV–visible spectrophotometer for absorbance, while fluorescence (antiradical activity against $\text{ROO}^\bullet$) was measured with a Varioskan LUX microplate reader. Antimicrobial activity against *Staphylococcus aureus* CECT 435, *Escherichia coli* CECT 99 and *Listeria monocytogenes* CECT 934 (Spanish Type Culture Collection, Valencia University, Spain) were assayed using a microdilution method (5–70 g/100 mL), determining the minimal bactericide concentration (MBC) using a sterile 96-well round-bottomed polystyrene microtitre plates. All the bioactive properties of honey and P were performed following the Osés et al. [21] procedures briefly described in Supplementary Figure S2.

2.6. Statistical Analysis

All the analyses were performed in triplicate, except T_g (just once). The results were expressed as averages and standard deviations. One-way analysis of variance (ANOVA) and multifactor ANOVA followed by Tukey's honestly significant difference test ($p < 0.05$) were used. Pearson correlations and principal component analysis (PCA) (using a data matrix of 18×7 for physicochemical properties and a matrix of 18×12 for bioactive properties, automatically scaled) were applied to the results. The statistical software Startgraphics Centurion XVIII (Statgraphics Technologies, Inc., The Plains, VA, USA) was used.

3. Results and Discussion

Bioactive properties, except % inhibition (anti- $O_2^{\bullet-}$ and anti-inflammatory activities) and minimal bactericide concentration (MBC), were expressed on dry basis (d.b.) for a proper comparison of honey and P data. Table 2 shows the results of the physicochemical and bioactive properties of the raw honeys.

3.1. Powder Recovery

P showed recoveries between 85.82% and 99.89% (Table 3). FZ-P exhibited the highest recoveries (96.60–99.89%), with a 73% honey concentration, regardless of the botanical origin of the honey. VC-P also exhibited high recoveries (85.82–94.89%) with a 57% honey concentration. These yields were similar to those described by Osés et al. [11] (56% honey, MD-VC: 93.34–96.01%; 72% honey, MD-FZ 89.87–95.57%) and Mutlu and Erbas [1] in powders obtained via VC using different carriers (90.95%), in turn being higher than those P obtained by Mutlu and Erbas [1] with MD, regardless of the extraction process (61.95%). Our P recovery was also higher than the value reported by Nurhadi et al. [16] (50% honey, MD-VC: 73%).

3.2. Physicochemical Properties

3.2.1. T_g

T_g is defined as the temperature above which amorphous food material (metastable state) transitions from a glassy solid to a rubbery state, there being significant changes in physical properties and molecular mobility (the position of molecules relative to one another is random) [34,35]. Table 4 shows T_g of honeys and P obtained using FZ and VC. Honeys' T_g ranged from -25.45 to -37.37 °C. T_g varied depending on both samples' botanical origins and moisture contents. Regardless, honeys' botanical origins T_g decreased when moisture increased, except for TH honeys. Water T_g was very low, around -138 °C, which allowed it to act as a plasticizer helping reduce the T_g of mixtures [16]. Powders were characterized by exhibiting two T_g (T_{g1} and T_{g2}), in comparison with honey, which only exhibited one T_g . The two T_g of P corresponded to two different polymers formed in the dehydrated samples, T_{g1} corresponding to the P polymer and T_{g2} corresponding to the carrier polymer [11]. The T_g values of powders were higher than the T_g values of honeys. The T_{g1} values of FZ-P (12.58 – 16.50 °C) were lower than those of VC-P (27.75 – 35.50 °C), confirming the influence of both honey concentration and drying procedure on the T_g of the final product. VC samples had a lower concentration of honey (57%) compared to FZ samples (73% honey), confirming that T_g values decrease when the concentration of honey increases and increase when the concentration of the carrier increases, in this case MD, whose T_g is 205.5 °C [16,18]. Moisture percentages (Table 3) of VC-P (0.702%–1.63%) were lower than those of FZ-P (1.3%–1.63%), corroborating the influence of moisture on T_g . Since T_{g1} of FZ-P was lower than room temperature (25 °C), FZ-P must be stored at refrigeration temperatures within high-barrier packaging [34,36].

Table 2. Physicochemical and bioactive properties (mean $\pm$ SD) of raw honeys from various botanical origins used to obtain powdered honey ($n = 3$).

	LV1	LV2	LV3	TH1	TH2	V1	M1	M2	M3
Moisture	13.85 $\pm$ 0.00 f	14.67 $\pm$ 0.00 e	18.74 $\pm$ 0.00 a	16.18 $\pm$ 0.22 b	15.63 $\pm$ 0.24 c	15.09 $\pm$ 0.02 d	16.18 $\pm$ 0.23 b	16.31 $\pm$ 0.00 b	14.67 $\pm$ 0.00 e
a _w	0.506 $\pm$ 0.028 c	0.499 $\pm$ 0.002 c	0.625 $\pm$ 0.038 ab	0.546 $\pm$ 0.007 bc	0.557 $\pm$ 0.025 bc	0.523 $\pm$ 0.044 c	0.694 $\pm$ 0.038 a	0.536 $\pm$ 0.003 c	0.542 $\pm$ 0.035 c
L*	49.87 $\pm$ 0.02 a	4.83 $\pm$ 0.02 d	25.90 $\pm$ 0.04 c	46.92 $\pm$ 2.29 a	29.48 $\pm$ 0.02 bc	44.33 $\pm$ 0.01 a	33.23 $\pm$ 0.04 b	28.43 $\pm$ 0.01 bc	12.34 $\pm$ 0.02 d
a*	0.553 $\pm$ 0.012 g	1.11 $\pm$ 0.01 f	−0.437 $\pm$ 0.031 i	7.14 $\pm$ 0.02 c	11.30 $\pm$ 0.01 a	0.477 $\pm$ 0.023 h	4.89 $\pm$ 0.02 d	7.55 $\pm$ 0.02 b	3.33 $\pm$ 0.03 e
b*	27.43 $\pm$ 0.02 e	6.71 $\pm$ 0.04 i	19.33 $\pm$ 0.06 g	38.06 $\pm$ 0.02 a	34.18 $\pm$ 0.07 b	23.98 $\pm$ 0.05 f	33.26 $\pm$ 0.11 c	31.86 $\pm$ 0.15 d	16.22 $\pm$ 0.10 h
TPC	61.41 $\pm$ 1.41 d	100.65 $\pm$ 0.65 b	61.64 $\pm$ 2.13 d	62.67 $\pm$ 0.35 d	131.50 $\pm$ 4.34 a	32.73 $\pm$ 1.73 e	60.86 $\pm$ 1.78 d	76.97 $\pm$ 0.82 c	105.50 $\pm$ 0.80 b
TPC-E	4.30 $\pm$ 0.09 e	12.08 $\pm$ 0.14 a	6.34 $\pm$ 0.19 c	11.58 $\pm$ 0.30 a	9.03 $\pm$ 0.35 b	4.48 $\pm$ 0.05 e	6.80 $\pm$ 0.13 c	8.67 $\pm$ 0.08 b	5.71 $\pm$ 0.12 d
TFC	2.07 $\pm$ 0.06 e	4.05 $\pm$ 0.06 a	2.56 $\pm$ 0.10 d	4.12 $\pm$ 0.17 a	3.05 $\pm$ 0.13 c	2.38 $\pm$ 0.06 d	1.97 $\pm$ 0.05 e	3.62 $\pm$ 0.10 b	3.15 $\pm$ 0.02 c
TFC _Q	0.340 $\pm$ 0.018 g	1.055 $\pm$ 0.012 b	0.529 $\pm$ 0.012 f	1.14 $\pm$ 0.03 a	0.715 $\pm$ 0.014 d	0.608 $\pm$ 0.018 e	0.600 $\pm$ 0.007 e	0.900 $\pm$ 0.018 c	0.367 $\pm$ 0.007 g
TEAC (ABTS ^{•+})	17.74 $\pm$ 5.13 e	106.31 $\pm$ 3.40 d	31.33 $\pm$ 8.61 e	116.13 $\pm$ 3.77 cd	277.72 $\pm$ 21.55 a	32.73 $\pm$ 0.97 e	95.18 $\pm$ 12.99 d	146.13 $\pm$ 5.76 c	234.21 $\pm$ 22.00 b
AOA (*OH)	0.056 $\pm$ 0.007 bc	0.052 $\pm$ 0.001 bc	0.054 $\pm$ 0.011 bc	0.076 $\pm$ 0.008 a	0.056 $\pm$ 0.006 bc	0.055 $\pm$ 0.000 bc	0.062 $\pm$ 0.006 ab	0.041 $\pm$ 0.002 c	0.062 $\pm$ 0.001 ab
ORAC (ROO [•])	42.76 $\pm$ 2.15 cd	34.45 $\pm$ 0.56 cd	67.85 $\pm$ 16.15 ab	32.98 $\pm$ 8.38 cd	37.84 $\pm$ 7.46 cd	24.92 $\pm$ 7.81 d	53.91 $\pm$ 5.00 bc	76.52 $\pm$ 2.71 a	31.91 $\pm$ 1.55 d
SRS (O ₂ ^{•−})	45.33 $\pm$ 3.06 cd	58.67 $\pm$ 2.08 a	25.67 $\pm$ 3.51 e	42.67 $\pm$ 2.08 d	51.33 $\pm$ 0.58 bc	12.50 $\pm$ 0.71 f	47.33 $\pm$ 1.53 cd	22.00 $\pm$ 1.41 e	56.50 $\pm$ 3.54 ab
Anti-inflammatory activity	62.60 $\pm$ 0.73 b	10.86 $\pm$ 0.75 g	64.16 $\pm$ 0.81 ab	68.61 $\pm$ 0.39 a	48.21 $\pm$ 0.71 ef	44.76 $\pm$ 5.14 f	59.79 $\pm$ 0.05 bc	53.73 $\pm$ 0.77 de	54.48 $\pm$ 1.76 cd
MBC <i>St. aureus</i>	20.00 $\pm$ 0.00 d	30.00 $\pm$ 0.00 c	30.00 $\pm$ 0.00 c	5.00 $\pm$ 0.00 e	60.00 $\pm$ 0.00 b	70.00 $\pm$ 0.00 a	20.00 $\pm$ 0.00 d	70.00 $\pm$ 0.00 a	20.00 $\pm$ 0.00 d
MBC <i>E. coli</i>	20.00 $\pm$ 0.00 c	20.00 $\pm$ 0.00 c	30.00 $\pm$ 0.00 b	20.00 $\pm$ 0.00 c	40.00 $\pm$ 0.00 a	20.00 $\pm$ 0.00 c	20.00 $\pm$ 0.00 c	40.00 $\pm$ 0.00 a	20.00 $\pm$ 0.00 c
MBC <i>L. monocytogenes</i>	20.00 $\pm$ 0.00 b	50.00 $\pm$ 0.00 b	60.00 $\pm$ 0.00 a	40.00 $\pm$ 0.00 c	50.00 $\pm$ 0.00 b	53.33 $\pm$ 5.77 ab	53.33 $\pm$ 5.77 ab	50.00 $\pm$ 0.00 b	40.00 $\pm$ 0.00 c

LV: lavender honey; TH: thyme honey; V: vetch honey; M: multifloral honey; moisture (%); TPC: total phenols (mg GA/100 g); TPC-E: total phenols in extract (mg GA/100 g); TFC: total flavanols (mg Ct/100 g); TFC_Q: total flavonols/flavonols (mg Q/100 g); TEAC (μmol T/100 g); ORAC (μmol T/g); AOA (mmol T/g); SRS (% inh); anti-inflammatory activity (% inh); MBC from *St. aureus*, *E. coli* and *L. monocytogenes* (%). a–i: different letters show significant differences ($p < 0.05$) among the different botanical origins.

Table 3. Physicochemical properties of powdered honey (mean $\pm$ SD) from various botanical origins obtained using vacuum (VC) and freeze (FZ) drying using maltodextrin (MD) ($n = 3$).

		LVP1	LVP2	LVP3	THP1	THP2	VPI	MP1	MP2	MP3
Powder recovery	VC	94.62 $\pm$ 0.20 ^{Ab}	94.89 $\pm$ 0.31 ^{Ab}	92.33 $\pm$ 0.15 ^{Bb}	92.07 $\pm$ 3.45 ^{Bb}	94.24 $\pm$ 4.00 ^{ABa}	94.20 $\pm$ 3.25 ^{ABa}	85.82 $\pm$ 9.77 ^{Bb}	93.83 $\pm$ 0.23 ^{Bb}	90.41 $\pm$ 3.97 ^{Bb}
	FZ	97.36 $\pm$ 3.53 ^{Aa}	96.60 $\pm$ 1.92 ^{Aa}	99.64 $\pm$ 3.21 ^{Aa}	99.89 $\pm$ 2.21 ^{Aa}	98.36 $\pm$ 4.46 ^{Aa}	98.57 $\pm$ 4.21 ^{Aa}	98.47 $\pm$ 3.62 ^{Aa}	99.50 $\pm$ 2.52 ^{Aa}	97.31 $\pm$ 3.07 ^{Aa}
Moisture (%)	VC	0.720 $\pm$ 0.029 ^{Bb}	0.971 $\pm$ 0.109 ^{CDb}	0.740 $\pm$ 0.041 ^{Bb}	1.01 $\pm$ 0.10 ^{CDb}	1.23 $\pm$ 0.03 ^{BCa}	1.63 $\pm$ 0.12 ^{Aa}	0.702 $\pm$ 0.108 ^{Bb}	1.61 $\pm$ 0.15 ^{Aa}	1.43 $\pm$ 0.21 ^{ABa}
	FZ	1.32 $\pm$ 0.18 ^{Aa}	1.47 $\pm$ 0.26 ^{Aa}	1.30 $\pm$ 0.16 ^{Aa}	1.36 $\pm$ 0.04 ^{Aa}	1.53 $\pm$ 0.27 ^{Aa}	1.33 $\pm$ 0.03 ^{Ab}	1.32 $\pm$ 0.08 ^{Aa}	1.48 $\pm$ 0.22 ^{Aa}	1.63 $\pm$ 0.08 ^{Aa}
a_w	VC	0.214 $\pm$ 0.001 ^{Ea}	0.207 $\pm$ 0.002 ^{Fb}	0.206 $\pm$ 0.002 ^{Fb}	0.300 $\pm$ 0.003 ^{Aa}	0.292 $\pm$ 0.002 ^{Ba}	0.258 $\pm$ 0.002 ^{Ba}	0.303 $\pm$ 0.002 ^{Aa}	0.273 $\pm$ 0.002 ^{Ca}	0.298 $\pm$ 0.001 ^{Aa}
	FZ	0.210 $\pm$ 0.002 ^{DEa}	0.224 $\pm$ 0.002 ^{Aa}	0.211 $\pm$ 0.002 ^{CDa}	0.209 $\pm$ 0.003 ^{Eb}	0.219 $\pm$ 0.001 ^{ABb}	0.214 $\pm$ 0.003 ^{BCDBb}	0.216 $\pm$ 0.002 ^{BCDBb}	0.215 $\pm$ 0.002 ^{BCDBb}	0.217 $\pm$ 0.002 ^{ABCb}
L^*	VC	89.84 $\pm$ 0.01 ^{Aa}	83.20 $\pm$ 0.01 ^{Da}	88.77 $\pm$ 0.01 ^{Ba}	77.75 $\pm$ 0.02 ^{Fb}	81.32 $\pm$ 0.03 ^{Ea}	88.69 $\pm$ 0.01 ^{Ba}	74.61 $\pm$ 0.18 ^{Hb}	84.27 $\pm$ 0.02 ^{Ca}	75.05 $\pm$ 0.01 ^{Cb}
	FZ	87.71 $\pm$ 0.08 ^{Ab}	75.88 $\pm$ 0.03 ^{Fb}	84.86 $\pm$ 0.01 ^{Bb}	81.98 $\pm$ 0.07 ^{Ca}	79.27 $\pm$ 0.01 ^{Db}	86.57 $\pm$ 0.03 ^{Ab}	84.48 $\pm$ 0.05 ^{Ba}	84.55 $\pm$ 1.76 ^{Ba}	79.16 $\pm$ 0.00 ^{Da}
a^*	VC	−1.28 $\pm$ 0.01 ^{Ia}	1.45 $\pm$ 0.01 ^{Eb}	−0.780 $\pm$ 0.000 ^{Ca}	2.22 $\pm$ 0.01 ^{Ca}	2.48 $\pm$ 0.01 ^{Ba}	−1.22 $\pm$ 0.01 ^{Ha}	1.71 $\pm$ 0.01 ^{Da}	1.13 $\pm$ 0.01 ^{Fa}	2.69 $\pm$ 0.01 ^{Aa}
	FZ	−1.67 $\pm$ 0.00 ^{Hb}	2.85 $\pm$ 0.02 ^{Aa}	−1.32 $\pm$ 0.01 ^{Cb}	−0.870 $\pm$ 0.010 ^{Eb}	0.677 $\pm$ 0.032 ^{Bb}	−1.75 $\pm$ 0.00 ^{Ib}	−1.05 $\pm$ 0.02 ^{Fb}	−0.567 $\pm$ 0.015 ^{Db}	0.457 $\pm$ 0.006 ^{Cb}
b^*	VC	11.62 $\pm$ 0.01 ^{Ib}	20.01 $\pm$ 0.01 ^{Eb}	13.21 $\pm$ 0.01 ^{Hb}	26.71 $\pm$ 0.01 ^{Aa}	21.52 $\pm$ 0.03 ^{Db}	13.69 $\pm$ 0.01 ^{Ca}	25.27 $\pm$ 0.01 ^{Ba}	19.43 $\pm$ 0.02 ^{Fa}	23.90 $\pm$ 0.01 ^{Ca}
	FZ	12.20 $\pm$ 0.05 ^{Ha}	28.73 $\pm$ 0.06 ^{Aa}	14.10 $\pm$ 0.01 ^{Ca}	18.26 $\pm$ 0.06 ^{Db}	22.30 $\pm$ 0.04 ^{Ba}	10.82 $\pm$ 0.04 ^{Ib}	17.06 $\pm$ 0.01 ^{Fb}	17.24 $\pm$ 0.02 ^{Eb}	19.24 $\pm$ 0.01 ^{Cb}
Solubility (s)	VC	22.05 $\pm$ 0.07 ^{Ea}	23.47 $\pm$ 0.10 ^{Ea}	24.41 $\pm$ 0.16 ^{Ca}	18.09 $\pm$ 0.09 ^{Ia}	20.26 $\pm$ 0.06 ^{Ha}	25.05 $\pm$ 0.07 ^{Ba}	23.97 $\pm$ 0.05 ^{Da}	27.44 $\pm$ 0.20 ^{Aa}	21.25 $\pm$ 0.07 ^{Ca}
	FZ	14.62 $\pm$ 0.53 ^{Ab}	11.60 $\pm$ 0.52 ^{Bb}	10.09 $\pm$ 0.01 ^{Cb}	11.36 $\pm$ 0.37 ^{Ib}	7.27 $\pm$ 0.05 ^{Eb}	7.10 $\pm$ 0.07 ^{Eb}	10.52 $\pm$ 0.16 ^{BCb}	8.75 $\pm$ 0.05 ^{Db}	5.28 $\pm$ 0.04 ^{Fb}
Density (g/mL)	VC	0.844 $\pm$ 0.000 ^{Aa}	0.785 $\pm$ 0.000 ^{Aa}	0.838 $\pm$ 0.000 ^{Ba}	0.628 $\pm$ 0.000 ^{Ha}	0.677 $\pm$ 0.000 ^{Ca}	0.727 $\pm$ 0.000 ^{Fa}	0.836 $\pm$ 0.001 ^{Ca}	0.771 $\pm$ 0.000 ^{Ea}	0.770 $\pm$ 0.000 ^{Ea}
	FZ	0.626 $\pm$ 0.000 ^{Ab}	0.544 $\pm$ 0.021 ^{Ib}	0.501 $\pm$ 0.002 ^{BCb}	0.514 $\pm$ 0.018 ^{BCb}	0.498 $\pm$ 0.008 ^{CDb}	0.537 $\pm$ 0.018 ^{BCb}	0.627 $\pm$ 0.000 ^{Ab}	0.456 $\pm$ 0.000 ^{Db}	0.455 $\pm$ 0.000 ^{Db}
Hygroscopticity index (%)	VC	9.88 $\pm$ 0.74 ^{Ca}	12.80 $\pm$ 0.62 ^{ABa}	10.33 $\pm$ 0.83 ^{BCa}	13.81 $\pm$ 1.06 ^{Aa}	8.24 $\pm$ 1.94 ^{Ca}	9.54 $\pm$ 0.65 ^{Ca}	13.51 $\pm$ 0.66 ^{Aa}	10.66 $\pm$ 0.28 ^{BCa}	8.83 $\pm$ 0.22 ^{Ca}
	FZ	3.32 $\pm$ 0.39 ^{ABb}	2.92 $\pm$ 0.03 ^{Bb}	3.46 $\pm$ 0.17 ^{ABb}	3.35 $\pm$ 0.23 ^{ABb}	3.57 $\pm$ 0.29 ^{ABb}	3.10 $\pm$ 0.19 ^{ABb}	3.15 $\pm$ 0.15 ^{ABb}	3.57 $\pm$ 0.29 ^{ABb}	3.66 $\pm$ 0.22 ^{Ab}

LVP: lavender honey powder; THP: thyme honey powder; VP: vetch honey powder; MP: multifloral honey powder; VC: vacuum drying; FZ: freeze drying. ^{A–I}: different letters show significant differences ($p < 0.05$) among the different botanical origins. ^{a,b}: different letters show significant differences ($p < 0.05$) between drying procedures.

Table 4. Glass transition temperature T_g (midpoint temperature °C) of raw honeys (thymus, lavender, multifloral, vetch) and honey powders obtained with freeze (FZ) and vacuum (VC) drying using maltodextrin (MD) ($n = 1$).

	LV1	LV2	LV3	TH1	TH2	V1	M1	M2	M3
T_{g1}	−26.00	−28.51	−29.51	−25.81	−29.37	−25.45	−31.31	−37.37	−25.98
T_{g2}	---	---	---	---	---	---	---	---	---
	FZ-LVP1	FZ-LVP2	FZ-LVP3	FZ-THP1	FZ-THP2	FZ-VP1	FZ-MP1	FZ-MP2	FZ-MP3
T_{g1}	12.58	16.50	15.28	14.36	15.89	14.26	14.41	15.92	15.97
T_{g2}	85.75	85.80	85.43	83.03	81.69	92.00	78.34	85.10	83.22
	VC-LVP1	VC-LVP2	FZ-LVP3	FZ-THP1	FZ-THP2	VC-VP1	VC-MP1	VC-MP2	VC-MP3
T_{g1}	28.09	27.75	34.12	31.39	35.50	31.50	34.27	34.70	34.77
T_{g2}	85.39	81.87	91.84	---	92.02	94.84	94.51	94.56	87.88

LV: lavender honey; TH: thyme honey; V: vetch honey; M: multifloral honey; LVP: lavender honey powder; THP: thyme honey powder; VP: vetch honey powder; MP: multifloral honey powder; VC: vacuum drying; FZ: freeze drying. ---: absent (there is no T_{g2}).

3.2.2. Moisture and Water Activity (a_w)

Table 3 shows the results of moisture and a_w . Moisture was lower in VC-P (57% honey) than in FZ-P (73%), unlike the data described by Samborska et al. [13], where P with higher honey concentrations exhibited the lowest moisture percentages. Our values were similar to those of Nurhadi et al. [16] for VC-P (1.1%) in samples of 50% honey obtained with VC using MD, and lower than the results obtained in buckwheat honey powders at 50% (MD-FZ) by Keke and Cinkmanis [37] (5.6%). Mutlu and Erbas [1] obtained a mean moisture value of 3.15% in MD-P regardless of the process used (VC or SP) or the honey content (50, 57 or 67%), this percentage being considerably higher than the percentages in our research. Differences with other studies could be mainly due to the honey concentration. Among the FZ-P, no significant differences ($p \geq 0.05$) were observed considering the different botanical origins. However, regarding VC-P, significant differences were observed considering the origins of honeys, LVP1, LVP2, LVP3, THP1 and MP1 being the powders with the lowest moisture percentages. Therefore, botanical origins, drying procedures and their interaction have an influence on moisture, as shown by multifactor ANOVA (Table 5A). The reduction in moisture during the drying processes when making P significantly contributed to a greater stability of honey during storage [4].

Table 5. Effect of interaction (multifactor ANOVA) between drying procedures (using the most appropriate honey–maltodextrin concentration for each drying technique) and botanical origin for physicochemical (A) and bioactive (B) properties of powdered honeys.

(A)	Source	Moisture	Hygroscopicity Level	a_w	L^*	a^*	b^*	Solubility	Tapped Density	T_g 1			
	A: Drying-honey concentration	**	***	NS	NS	***	NS	***	***	***			
	B: Bot. orig.	**	NS	NS	***	***	***	**	***	NS			
	Interaction: AB	**	NS	NS	**	**	*	**	*	NS			
(B)	Source	TPC	TPC-E	TFC _C	TFC _Q	ABTS**	ROO*	•OH	O ₂ • ⁻	Anti-infl.	<i>St. aureus</i>	<i>L. mono</i>	<i>E. coli</i>
	A: Drying-honey concentration	**	NS	NS	NS	**	**	NS	NS	***	**	NS	***
	B: Bot. Orig.	***	***	***	***	***	***	NS	**	***	NS	**	***
	Interaction: AB	NS	NS	**	**	NS	***	NS	NS	***	NS	NS	***

Bot. orig.: botanical origin; TPC: total phenolic content; TPC-E: total phenolic content in methanolic extracts; TFC_C: flavanols; TFC_Q: flavone/flavonol; Anti-infl.: anti-inflammatory; *L. mono*: *L. monocytogenes*. * p -value < 0.05; ** p -value < 0.01; *** p -value < 0.001; NS: non-significant.

Our VC-P a_w values were similar to those obtained by Mutlu and Erbas [1], regardless of the carrier used (0.32), also being similar to a_w obtained with MD, regardless of the drying procedure (0.24). Our FZ-P a_w values were similar to the value obtained in multifloral honey P obtained using FZ (0.215) by Ganaie et al. [36]. In general, a_w was somewhat higher in VC-P, depending on the type of honey, the time elapsed until the analysis and the storage conditions [11]. As for the thermal desorption graphs of P, it was expected that the higher the moisture content, the higher the water activity [38,39], but according to Nurhadi et al. [38], this increase is minimal and not very significant with values of a_w below 0.35 (limit value). This fact, together with the differences in composition, might explain that, regarding the same drying process, samples with lower moisture show higher water activities. The discordant results of the same sample subjected to different drying methods could be due to the different proportions of honey:maltodextrin or to different steric effects in the powdered honeys obtained using both methods. Nevertheless, a_w did not depend on the drying procedure and honey concentration or the botanical origin of honeys (Table 5A). VC reduced the water activity between 56% and 67% and FZ between 55% and 62%, these percentages being higher than the value obtained by Nedić et al. [4] (28%). Consequently, our P could be less susceptible to microbial growth, avoiding the possibility of fermentation, since most microorganisms cannot multiply below 0.900 a_w and cell division of extremophile species is prevented below 0.61 a_w [40].

3.2.3. Colour

Table 3 shows the CieLAB colour space tristimulus values of the P obtained using FZ and VC.

For VC and FZ drying methods, the highest L^* value was obtained in sample LVP1, which showed the lightest colour intensity in comparison with the samples from other botanical origins. After drying, all L^* values of P were higher than L^* values of the raw honeys because, during the drying process, samples were lightened, tending towards a whitish colour, probably related to MD addition.

All a^* values of P were lower than those of raw honeys (Table 2), except in LVP2. In general, VC-P exhibited higher a^* values than FZ-P, tending to show reddish colours, probably due to Maillard reactions, fructose caramelization and polyphenol deterioration reactions at 60 °C [41].

All b^* values of P tended towards yellow. As occurred for a^* , the b^* values of P were also lower than those of the raw honeys (Table 2), mainly because of the addition of MD (dilution factor), except for LVP2 and MP3 made using VC and FZ. LV2 and M3 were the honeys with the lowest b^* values (Table 2), so the drying procedure affected the final b^* values of their powders.

Values obtained for L^* , a^* , b^* of VC-P were similar to those obtained by Nurhadi et al. [42] in samples obtained with VC using MD ($L^* = 90.39$; $a^* = 0.06$; $b^* = 14.29$). In contrast, our results obtained for FZ-P were slightly different from those of Ganaie et al. [36] ($L^* = 90.84$; $a^* = 0.01$; $b^* = 12.52$).

The botanical origin of honeys and its interaction with the drying procedure–honey concentration were the factors that demonstrated an influence on L^* , a^* and b^* values. The drying method–honey concentration only influenced a^* values (Table 5A). The final colour of honey powder depended on the initial colour of the honey, clearly influenced by the botanical origin. The influence of the interaction of the drying procedure–honey concentration and the botanical origin could be explained by the fact that the final colour also depended on the content of Maillard compounds, which was related to the temperature of the procedure, the content of the honey in the original sample (which, in turn, depended on the drying procedure–honey concentration) and the sugar's composition in the original sample (which, in turn, depended on the botanical origin). The influence of the three factors was observed more intensely in the value of a^* (red colour) since Maillard compounds are brownish with an intense influence of red. The colour of the raw honey proved to be the main factor that influenced the parameters L^* and b^* , being related to the botanical origin

and the amount of honey, which explained the influence of the interaction between the botanical origin and drying procedure–honey concentration.

3.2.4. Solubility and Tapped Density

Our solubility times were lower than those described by Nurhadi et al. [16] (MD-VC: 1.08 min) and slightly higher than those (15.74 s) obtained by Nurhadi et al. [42] in another trial using the same conditions. FZ-P showed higher solubility values in comparison with VC-P and the solubility data of other researchers. Therefore, the drying method–honey concentration demonstrated a great influence on the dissolution of samples in water, as well as the botanical origin of samples, and the interaction between both factors (Table 5A). Unlike what other authors such as Samborska and Bięskowska [43] indicated, in this study, the moisture content did not influence the solubility behaviour of samples, because our results showed that even although most assessed honeys had a similar moisture percentage, their solubility was different ($r = -0.3089$; $p = 0.0676$).

The tapped density was higher in VC-P than in FZ-P, with a positive strong correlation with solubility ($r = 0.8824$; $p = 0.000$), which was also described by Mutlu and Erbas [1] in P obtained using VC and SP. Similar values were described by Ganaie et al. [36] in P obtained with FZ using MD (0.52 g/mL), and Nurhadi et al. [42] in P obtained with VC using MD (0.80 g/mL). Mutlu and Erbas [1] also obtained similar values for P made with VC (0.72 g/mL). Within the VC-P, LV-P presented the highest tapped density, followed by M-P, V-P and finally TH-P. In the case of honey powders obtained with FZ, there was no clear trend based on botanical origin. In previous studies comparing the same drying procedure, it was observed that the tapped density increased as the concentration of honey increased or the concentration of carrier decreased [44]. However, the results of this study demonstrated that the tapped density was more influenced by the drying procedure than by the honey concentration, since instead of FZ-P (73% honey), VC-P (57% honey) were the honey powders that showed the highest tapped density values. This influence of the drying procedure on tapped density can be explained due to differences in the porosity of the powder particles formed by each procedure. Furthermore, Shi et al. [18] and Mutlu et al. [39] claimed that the higher the moisture content in food, the lower the tapped bulk density. The claim agrees with our results because, in our case, FZ samples were the samples with the highest moisture content, shown by Pearson correlation ($r = -0.5534$; $p = 0.0011$). Thus, greater spaces for storing, packaging and distributing were necessary for FZ-P, although FZ-P could be less susceptible to phenomena of cohesion and agglomeration [11]. The botanical origin and the drying methods were factors that influenced the density of P and, to a lesser extent, the interaction of these two factors (Table 5A).

3.2.5. Hygroscopicity

P is highly hygroscopic in nature due to the high moisture absorption capacity of fructose [5]. FZ-P showed a lower ($p < 0.05$) hygroscopic index (2.92–3.66%) than VC-P (8.24–13.81%) (Table 4). The drying method–honey concentration proved to influence hygroscopicity (Table 5A). VC-P results were similar to those obtained by Nurhadi et al. [16] (12.0%) and lower than the values obtained by Mutlu and Erbas [1] in honey powders dehydrated by VC (14.56%). In multifloral honey powders dried with FZ using MD, Ganaie et al. [36] described a 28.67% hygroscopic index, which was considerably higher than our values. The hygroscopic rate (amount of water gained per minute) ranged in VC-P from 2×10^{-5} to 1.9×10^{-4} g H₂O/min and in FZ-P from 4×10^{-5} to 6×10^{-5} g H₂O/min. During the first 4 h, VC-P gained water faster than the FZ-P. Nurhadi et al. [16] obtained a value of 2.4×10^{-4} g H₂O/min for P made with VC using MD.

Shi et al. [18] observed an inverse correlation between moisture and P hygroscopicity. The same correlation was observed in this study, although it was very weak ($r = -0.4522$, $p = 0.001$). A moderate correlation was noticed between hygroscopicity and density ($r = 0.6584$, $p = 0.0001$) and between hygroscopicity and solubility time ($r = 0.6775$, $p = 0.0001$).

Thus, samples with higher hygroscopicity levels exhibited higher compactibility and lower solubility.

3.3. Potentially Bioactive Properties of Honey Powders

3.3.1. Total Phenolic Content (TPC) and Total Flavonoid Content (TFC)

Figure 1A shows the TPC of P. VP1 showed the lowest TPC values for both VC-P (37.37 mg GA/100 g d.b.) and FZ-P (17.19 mg GA/100 g d.b.). THP2 exhibited the highest values for both VC (97.54 mg GA/100 g d.b.) and FZ (78.67 mg GA/100 g d.b.), although FZ-THP2 did not show significant differences in comparison with FZ-MP3. On the other hand, a higher TPC was observed in VC-P than in FZ-P (except for MP3), although the honey content was higher in FZ-P (73% honey) compared to VC-P (57% honey). This higher TPC was possibly due to the Maillard compounds formed during the heating process (60 °C/48 h), which could have an influence on the colour measured at 734 nm. Although no clear trend based on the botanical origin of the honeys was observed, both the drying procedure–honey concentration and the botanical origin of the honey significantly influenced the TPC (Table 5B). Keke and Cinkmanis [37] obtained higher TPC in powdered buckwheat honeys made with MD using FZ (92–130 mg GA/100 g d.b.), and Osés et al. [21] also obtained higher values in powdered heather honeys (LHP) with MD made using VC (29.64 to 143.95 mg GA/100 g d.b.) and FZ (74.35 to 149.72 mg GA/100 g d.b.). The TPC of P was lower than the TPC of the raw honeys, with the exception of VC-VP1 (Table 2). P demonstrated to be able to retain between 49.7 and 114.2% of the phenolic compounds, keeping the polyphenols present in the honeys. Methanolic extracts' TPC (TPC-E) was assayed in order to remove the interference of other reducing substances (i.e., sugars) that react with Folin–Ciocalteu reagent in honey TPCs. As was expected, TPC-E was lower than TPC (Figure 1B). The VC-P methanolic extracts showed the highest TPC (3.45–16.86 mg GA/100 g d.b.) in respect of the FZ-P extracts (0.411–15.30 mg GA/100 g d.b.), with the exception of sample THP1. As expected, the VP1 sample showed the lowest TPC-E. MP3 was the powder with the highest TPC-E regarding VC, whereas THP1 was the powder with the highest TPC-E regarding FZ. TPC-E was influenced by the botanical origin of honeys (Table 5B).

Flavanols (TFCC) ranged (Figure 1C) from 5.39 to 20.45 mg Ct/100 g d.b., while flavone/flavonols (TFCQ) (Figure 1D) ranged from 0.757 to 2.90 mg Q/100 g d.b., the values being higher than those obtained for the raw honeys (Table 2). VC-VP1 and FZ-VP1 exhibited the lowest TFC (both for TFCC and TFCQ). In general, there were no significant differences in TFCC considering the drying method–honey concentration. However, concerning TFCQ, VC-MP showed higher contents, while for the rest of the honey powders, FZ samples exhibited higher contents. Multifactor ANOVA showed that, unlike the drying method, the botanical origin influenced TFC (Table 5B). The ranges of both TFCC and TFCQ were lower than those obtained by Osés et al. [21] in LHP (0.38–36.3 mg Ct/100 g b.d. and 0–3.6 mg Q/100 g b.d.). In comparison with the raw honeys (Table 2), the TFCC values of the honey powders were higher, probably due to the interference of MD.

3.3.2. Antiradical Activities

Figure 2 shows the antiradical activities of P. TEAC (Trolox equivalent antioxidant capacity) (Figure 2A), against ABTS^{•+}, ranged between 230.83 and 365.58 µmol T/100 g d.b. for VC-P, and between 194.18 and 332.25 µmol T/100 g d.b. for FZ-P. The lowest TEAC values were observed in VC-LVP1 and FZ-VP1. No significant differences ($p < 0.05$) were found for samples VC-THP1- and VC-VP1 and for samples FZ-LVP1 and FZ-LVP3. VC-MP2 and FZ-MP3 exhibited the highest TEAC. Generally, VC-P obtained higher TEAC than FZ-P, probably due to Maillard compounds, which could contribute to an increase antioxidant activities [45]. The TEAC values of P were higher than TEAC values of raw honeys (Table 2). MD exhibited a high TEAC value (193.43 µmol T/100 g d.b.) [11], contributing to the anti-ABTS^{•+} radical of P. Our TEAC values were similar to those reported by Mutlu and Erbas [1] for blossom honey powders obtained with MD by both VC and SP techniques

(251 $\mu\text{mol T}/100\text{ g}$), and by Samborska et al. [19] for powders obtained using spray drying, also using MD (726 $\text{mg T}/\text{Kg} = 290\text{ }\mu\text{mol T}/100\text{ g solids}$). Our TEAC values were lower than those of VC-LHP and FZ-LHP obtained by Osés et al. [21] (317–673 $\mu\text{mol T}/100\text{ g d.b.}$), using MD. TEAC was shown to be influenced by the drying method–honey concentration and the botanical origin of the honeys (Table 5B), the latter influence also being described by Rivero et al. [2]. The oxygen radical absorbance capacity (ORAC) against $\text{ROO}^\bullet$ (Figure 2B) ranged from 12.05 to 30.77 $\mu\text{mol T}/100\text{ g d.b.}$ for VC-P, while for FZ-P, it ranged from 13.15 to 63.47 $\mu\text{mol T}/100\text{ g d.b.}$ An ORAC value of 15.21 $\mu\text{mol T}/100\text{ g}$ was obtained for MD [11]. ORAC was higher for most of the honeys in comparison with P (Table 2). Our ORACs were similar to the capacities obtained by Osés et al. [21] in VC-LHP and FZ-LHP using MD (13.40–55.88 $\mu\text{mol T}/100\text{ g d.b.}$). ORAC was demonstrated to be highly influenced by the botanical origin of the honeys, the drying method–honey concentration, and the interaction of both factors (Table 5B).

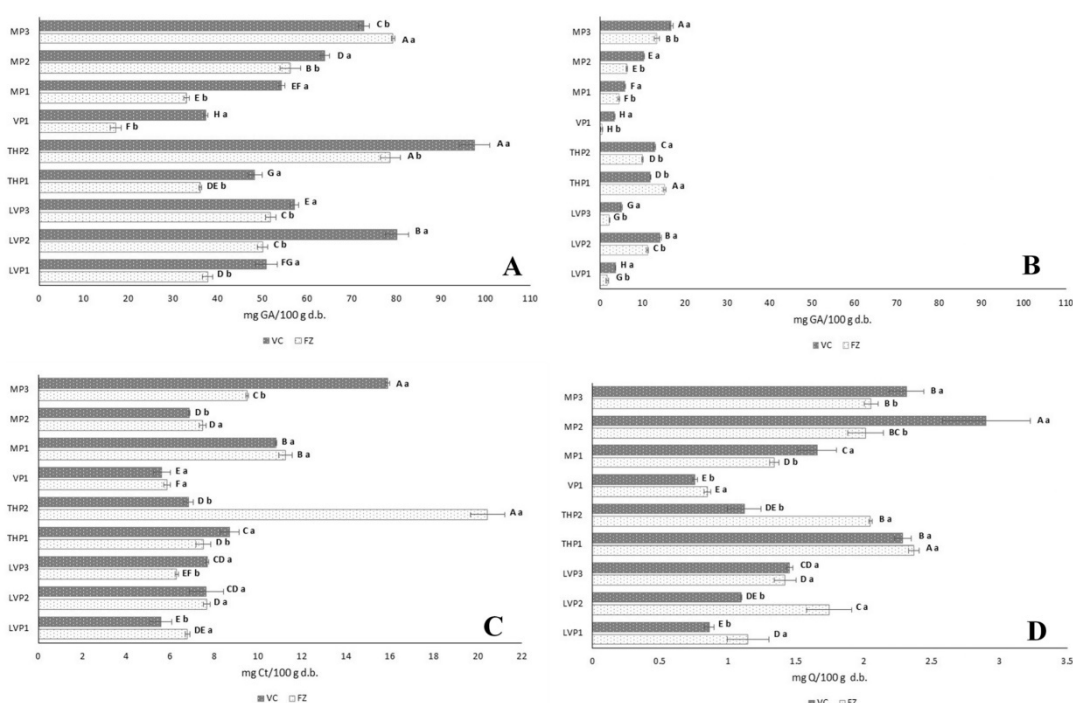


Figure 1. Total phenols (mg of GA/100 g dry basis (d.b.)) of honey powders (A) and their methanolic extracts (B), total flavanols (mg of Ct/100 g dry basis (d.b.)) (C) and total flavone/flavonols (mg of Q/100 g dry basis (d.b.)) (D) obtained with vacuum (VC) and freeze (FZ) drying using maltodextrin (MD) ($n = 3$). Error bars represent the standard deviation for each data point. Different capital letters (A–H) indicate significant differences ($p < 0.05$) among different honeys. Different lowercase letters (a,b) indicate significant differences ($p < 0.05$) between drying procedure. Ct: catechin; Q: quercetin; LVP: lavender honey powder; THP: thyme honey powder; VP: vetch honey powder; MP: multifloral honey powder.

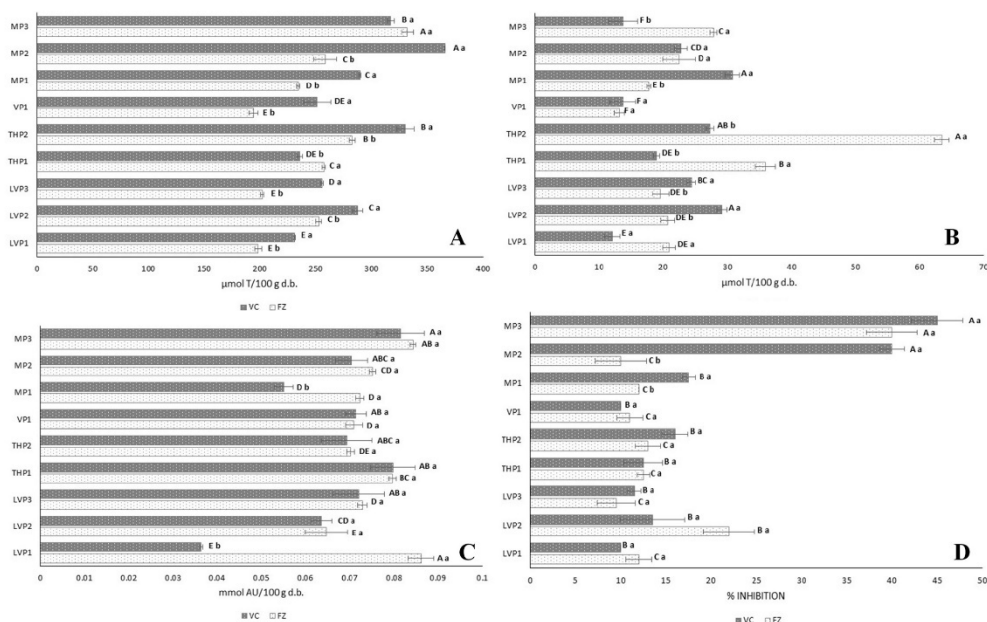


Figure 2. Antioxidant activity of honey powders obtained with freeze (FZ) and vacuum (VC) drying, using maltodextrin (MD) against different radicals (ABTS^{•+} (A), ROO[•] (B), •OH (C) and O₂^{•−} (D)) (*n* = 3). Error bars represent the standard deviation for each data point. Different capital letters (A–F) indicate significant differences (*p* < 0.05) between the different botanical origins. Different lowercase letters (a,b) indicate significant differences (*p* < 0.05) between drying procedures. LVP: lavender honey powder; THP: thyme honey powder; VP: vetch honey powder; MP: multifloral honey powder.

The hydroxyl radical-scavenging activity (AOA) (Figure 2C) ranged between 0.036 and 0.082 mmol AU/100 g d.b. for VC-P and between 0.065 and 0.086 mmol AU/100 g d.b. for FZ-P. MD showed an AOA of 0.160 mmol AU/100 g [21], thus influencing the activity of the samples. Neither the botanical origin nor the drying procedure significantly influenced the AOA (Table 5B). In this work, the AOA results were higher than those of the LHP obtained with VC and FZ using MD (0.037–0.061 mmol AU/100 g d.b.) [21].

The superoxide radical-scavenging activity (SRS) (Figure 2D) ranged between 7 and 45% for VC samples and between 9.5 and 40% for FZ samples, the inhibition percentage of MD being 5.5%. For both VC and FZ, the highest inhibition was shown by MP3. No differences were found between the SRS of P obtained with VC and FZ (*p* ≥ 0.05), except for the samples MP1 and MP2, whose SRS results were higher in VC samples. The SRSs were lower in P than in the raw honeys (Table 2). In general, the SRSs were also lower than the anti-O₂^{•−} activity of LHP obtained with VC and FZ using MD (11–88%) [21]. SRS was influenced by the botanical origin of honeys, but not by the drying method (Table 5B).

These results show that the antiradical activity of P against different radicals is different and depends on different compounds in the honey, which may vary quantitatively or qualitatively from one honey to another and which may or may not be modified by the drying process. Statistical analysis shows a positive correlation between the activities against ABTS^{•+}, ROO[•] and O₂^{•−} radicals with the total phenols and flavonoids (*r* between 0.329 and 0.6298; *p* < 0.05), while there is no correlation between these compounds and the activity against the •OH radical (*p* > 0.05).

3.3.3. Anti-Inflammatory Activity

The anti-inflammatory activity of P (Figure 3) varied between 28.53 and 51.72% (VC) and between 35.69 and 72.81% (FZ). MD showed no hyaluronidase inhibition [11]. The % inhibition rates were higher in FZ samples (73% honey) than in VC samples (57% honey), except for THP2. In comparison with the raw honeys (Table 2), the anti-inflammatory activity was similar for FZ-P and lower for VC-P. The anti-inflammatory activity was affected by the drying method–honey concentration, the botanical origin of honeys and the interaction of both factors (Table 5B), appearing to be strongly affected by the honey concentration. However, this activity was not correlated with total phenols or total flavonoids ($p > 0.05$).

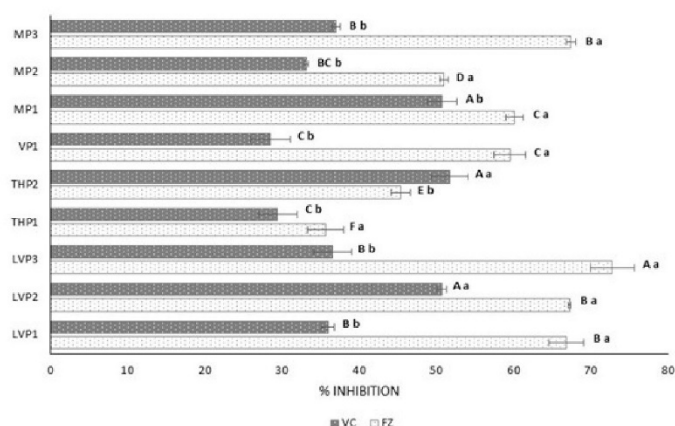


Figure 3. Anti-inflammatory activity of powdered honeys obtained with vacuum (VC) and freeze (FZ) drying, using maltodextrin (MD) ($n = 3$). Error bars represent the standard deviation for each data point. Different capital letters (A–F) indicate significant differences ($p < 0.05$) among the different botanical origins. Different lowercase letters (a,b) indicate significant differences ($p < 0.05$) between drying procedures. LVP: lavender honey powder; THP: thyme honey powder; VP: vetch honey powder; MP: multifloral honey powder.

3.3.4. Antimicrobial Activities

Figure 4 shows the results of the antimicrobial activity of P at a concentration range between 5 and 70%, after using the broth microdilution method. MD showed no antimicrobial activity for the tested concentrations [21]. P showed an MBC between 20 and >70%. Overall, *L. monocytogenes* (Figure 4C) was the most resistant microorganism, while *St. aureus* (Figure 4A) was the most sensitive for most samples. However, for LVP1, VP1 and MP1, *L. monocytogenes* was the most sensitive microorganism. The antimicrobial activities against *St. aureus* and *E. coli* (Figure 4A,B) were similar or lower in VC-P (57% honey) than in FZ-P (73% honey), except for MP2, regarding *E. coli*, in which MBC was higher for FZ-MP2 than for VC-MP2. This fact could be due to the heating process involved during VC, with possible losses of some volatile compounds with antimicrobial activity and also due to the lower concentration of honey in VC-P. Tomczyk et al. [46] led to the same conclusion, not having obtained antibacterial activity in honey powders made with SP using MD, in this case due to losses of honey thermolabile compounds, and to the 50% powder dilution with MD. However, P showed different behaviour for *L. monocytogenes*, the MBC values of VC-P and FZ-P being similar, except for LVP2, VP1 and MP1, whose MBCs were also lower for VC-P.

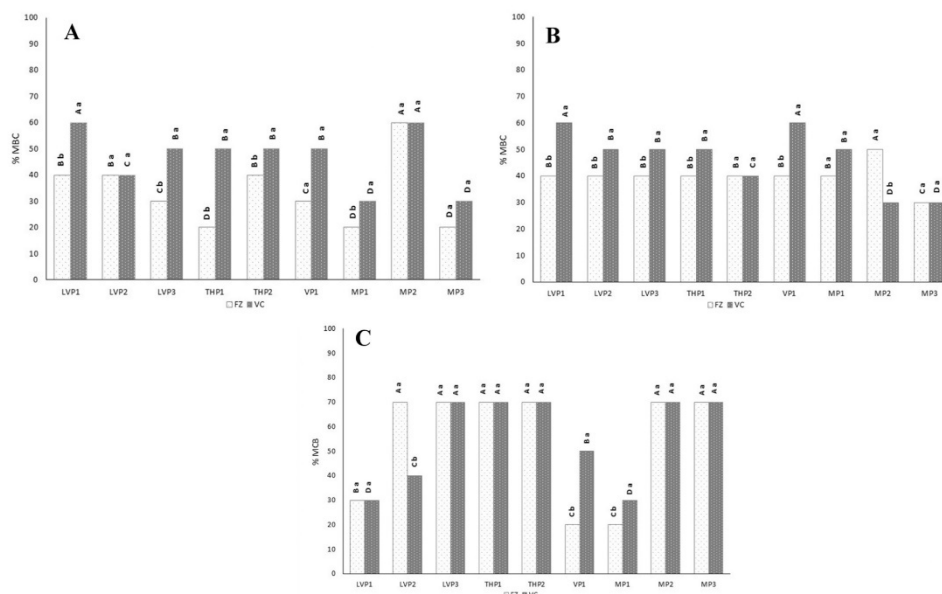


Figure 4. Minimal bactericidal concentration (MBC) of honey powders obtained with vacuum (VC) and freeze (FZ) drying, using maltodextrin (MD) expressed as % honey against *St. aureus* (A), *E. coli* (B) and *L. monocytogenes* (C) ($n = 3$). Triplicates show identical MBCs for each sample. Different capital letters (A–D) indicate significant differences ($p < 0.05$) among the different botanical origins. Different lowercase letters (a,b) indicate significant differences ($p < 0.05$) between drying procedure. LVP: lavender honey powder; THP: thyme honey powder; VP: vetch honey powder; MP: multifloral honey powder.

For most samples, the MBCs of P were higher than those of the raw honeys (Table 2), thus exhibiting lower antimicrobial activity. The MBCs for *St. aureus* and *E. coli* were influenced by the drying method–honey concentration. The MBCs for *L. monocytogenes* and *E. coli* were influenced by the botanical origin of samples.

3.4. Statistical Analysis

Two PCAs were carried out: one on the physico-chemical results and the other one on the bioactive properties. Regarding the PCA on the physico-chemical properties (Figure 5A), the first component explained 49.05% of the variance, while the second component explained 34.63%. PC1 was mainly defined by hygroscopicity and a_w , while PC2 was mainly defined by L^* . P were separated into two groups. The first one was composed by VC-P (on the right side of Figure 5A), and the second one (on the left side of Figure 5A) by FZ-P. VC-P was characterized by higher density, hygroscopicity a_w and a^* , as well as lower solubility and moisture than FZ-P. With regard to the PCA about bioactive properties (Figure 5B), the first component explained 40.41% of the variance and the second component 21.10%. PC1 was defined by TPC, TFC, SRS, TEAC and ORAC, in contrast to PC2, which was defined by anti-inflammatory activity, AOA and antimicrobial activity against *St. aureus*. Again, the powders were separated into two groups. The first one (in Figure 5B, above) was composed of all VC-P and the second one (in Figure 5B, below) was composed of most FZ-P, the latter being characterized by higher AOA and anti-inflammatory activities, as well as by higher antimicrobial activity against *St. aureus* and *E. coli*. Although PCA separated the samples by the drying procedure–honey concentration

factors, the botanical origin also showed an influence (Table 5). This influence was also described by Tomczyk et al. [46], who stated that the quality of honey powder was directly related to the botanical origin of the honey used for honey powder production.

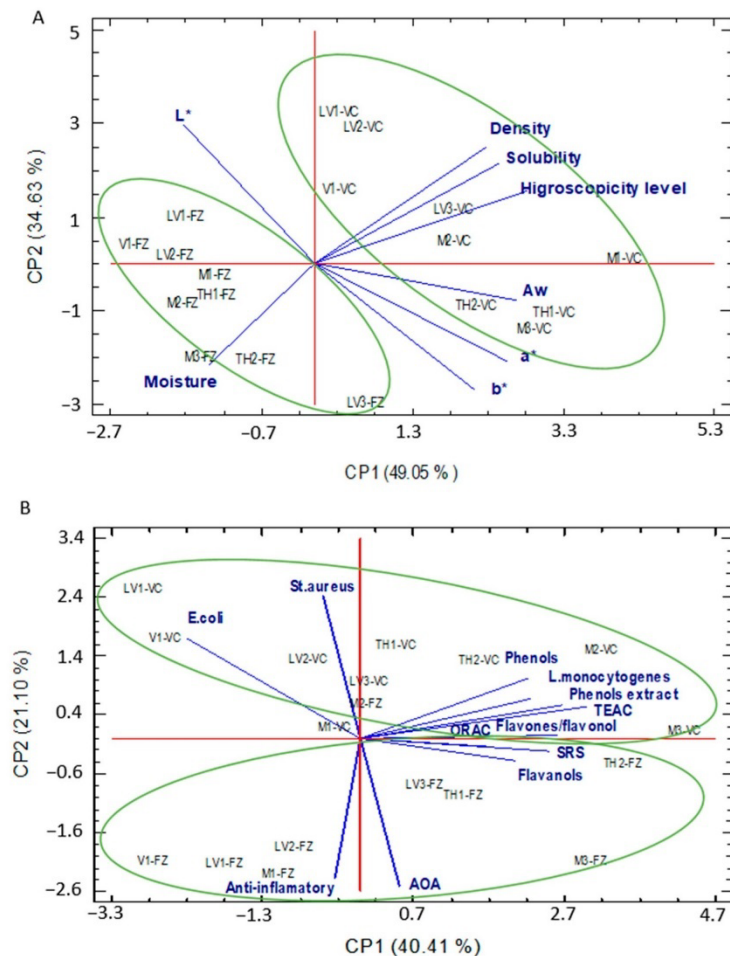


Figure 5. Principal component analysis of physicochemical properties (A) and potentially bioactive properties (B) of honey powder obtained with vacuum drying (VC) and freeze drying (FZ). LVP: lavender honey powder; THP: thyme honey powder; VP: vetch honey powder; MP: multifloral honey powder.

4. Conclusions

Most P showed lower TPC, ORAC, SRS and antimicrobial activities than their corresponding raw honey, whereas TFC and TEAC were higher in P. FZ provided the highest recovery, with a higher final honey concentration in P than VC. FZ-P showed higher moisture and solubility and lower density and hygroscopicity than VC-P. The T_g , moisture, hygroscopicity, solubility, density, TPC, TEAC, ORAC, anti-inflammatory and antimicrobial activities against *St. aureus* and *E. coli* depended on the drying method (using the

most appropriate honey–maltodextrin concentration for each drying technique). Moisture, colour, solubility, density, TPC, TEAC, ORAC, SRS, and anti-inflammatory and antimicrobial activities against *L. monocytogenes* and *E. coli* depended on the botanical origin of the honey. Our results show that honey powder is a promising substitute for honey in food as well as in the pharmaceutical and cosmetic industries because it keeps the advantages of the raw honey, being easier to transport, store and use. In addition, consumers and markets are increasingly hard to please, demanding natural products with the minimum possible quantity of additives. Honey dried using vacuum drying and freeze drying with a natural ingredient (maltodextrin) can be kept at low temperatures without the need to further add anti-caking agents, so they could be labelled with a “Clean Label” as “Real Food”, helping to improve their commercialization.

Supplementary Materials: The following supporting information can be downloaded at: <https://www.mdpi.com/article/10.3390/foods12213990/s1>, Figure S1: Physical properties of honey powders [16,43,47–49]; Figure S2: Biological properties of honey powders [21,50–56]; Table S1: Abbreviation list.

Author Contributions: Conceptualization, S.M.O. and M.T.S.; methodology, S.M.O., M.T.S. and M.A.F.-M.; software, L.C. and S.M.O.; validation, L.C. and G.P.; formal analysis, L.C., L.G.-C., S.V. and G.P.; investigation, L.C., L.G.-C., S.V., G.P., M.T.S., M.A.F.-M. and S.M.O.; resources, M.T.S. and S.M.O.; data curation, L.C. and S.M.O.; writing—original draft preparation, L.C., S.M.O. and M.T.S.; writing—review and editing, M.A.F.-M., M.T.S. and S.M.O.; visualization, M.A.F.-M.; supervision, S.M.O. and M.T.S.; project administration, S.M.O. and M.T.S.; funding acquisition, M.T.S. All authors have read and agreed to the published version of the manuscript.

Funding: The authors gratefully acknowledge Junta de Castilla y León (Spain) for financial support (BU041G18) and for the research assistant contract given to Leire Cantero (Grant No. UBU09-A).

Data Availability Statement: The data presented in this study are available on request from the corresponding authors.

Acknowledgments: The authors would like to thank A. Colina (Saluberia S.L., Spain) for kindly collecting the samples for this study, and the Food Technology and Microbiology divisions of the Universidad de Burgos (Spain) for providing their premises and facilities.

Conflicts of Interest: The authors declare that they have no known competing financial interest or personal relationships that could have appeared to influence the work reported in this paper.

References

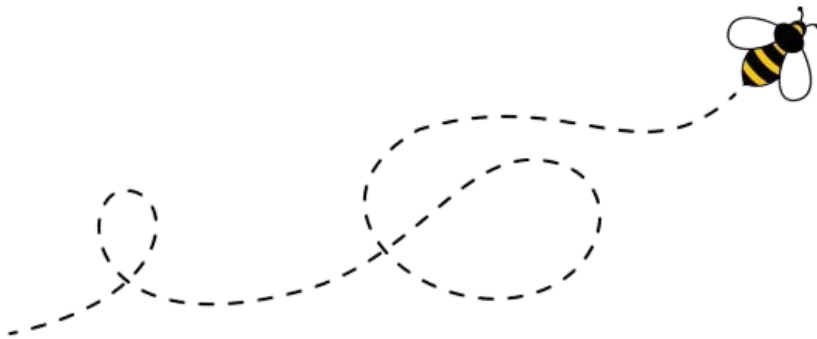
- Mutlu, C.; Erbas, M. Evaluating the effects of different drying methods, carrier materials and their ratios to produce bioactive honey-like powder. *J. Apic. Res.* **2021**, *62*, 364–373. [\[CrossRef\]](#)
- Rivero, R.C.; Archaina, D.A.; Busquet, C.M.; Baldi Coronel, B.M.; Busch, V.M. Development of a honey-based powder ingredient using a mixture design: Botanical origin effect and hydration properties. *LWT-Food Sci. Technol.* **2021**, *147*, 111446. [\[CrossRef\]](#)
- Sramek, M.; Woerz, B.; Horn, H.; Weiss, J.; Kohlus, R. Preparation of high-grade powders from honey-glucose syrup formulations by vacuum foam-drying method. *J. Food Process Preserv.* **2016**, *40*, 790–797. [\[CrossRef\]](#)
- Nedić, N.M.; Gojak, M.D.; Zlatanović, I.J.; Rudonja, N.R.; Lazarević, K.B.; Džajić, M.S.; Gligorević, K.B.; Pajić, M.B. Study of vacuum and freeze drying of bee honey. *Therm. Sci.* **2020**, *24*, 4241–4251. [\[CrossRef\]](#)
- Suhag, Y.; Nanda, V. Evaluation of different carrier agents with respect to physico-chemical, functional and morphological characteristics of spray dried nutritionally rich honey powder. *J. Food Process Preserv.* **2016**, *40*, 1429–1437. [\[CrossRef\]](#)
- Antony, S.; Rieck, J.R.; Dawson, P.L. Effect of dry honey on oxidation in turkey breast meat. *Poult. Sci.* **2000**, *79*, 1846–1850. [\[CrossRef\]](#)
- Tong, Q.; Zhang, X.; Wu, F.; Tong, J.; Zhang, P.; Zhang, J. Effect of honey powder on dough rheology and bread quality. *Food Res. Int.* **2010**, *43*, 2284–2288. [\[CrossRef\]](#)
- Kilinc, M.; Demir, M.K. The facilities of spray dried honey powder use as a substitute for sugar in cookie production. *J. Food Health Sci.* **2017**, *3*, 67–74. [\[CrossRef\]](#)
- López-Patiño, C.; Arroqui, C.; Horvitz, S.; Virseda, P. Evaluación del efecto conservante de la miel de abejas liofilizada en polvo sobre la carne molida de ternera. *Cienc. y Tecnol. Agropecu.* **2023**, *24*, e2841. [\[CrossRef\]](#)
- Jedlińska, A.; Samborska, K.; Wiczorek, A.; Wiktor, A.; Ostrowska-Ligeza, E.; Jamróz, W.; Skwarczyńska-Maj, K.; Kielczewski, D.; Błażowski, L.; Tułodziecki, M.; et al. The application of dehumidified air in rapeseed and honeydew honey spray drying—Process performance and powders properties considerations. *J. Food Eng.* **2019**, *245*, 80–87. [\[CrossRef\]](#)

11. Osés, S.M.; Cantero, L.; Crespo, M.; Puertas, G.; González-Ceballos, L.; Vallejos, S.; Fernández-Muiño, M.A.; Sancho, M.T. Attributes of ling-heather honey powder obtained by different methods with several carriers. *LWT-Food Sci. Technol.* **2021**, *150*, 112063. [\[CrossRef\]](#)
12. Nurhadi, B.; Roos, Y.H. Dynamic water sorption for the study of amorphous content of vacuum-dried honey powder. *Powder Technol.* **2016**, *301*, 981–988. [\[CrossRef\]](#)
13. Samborska, K.; Sokolowska, P.; Szulc, K. Diafiltration and agglomeration as methods to improve the properties of honey powder obtained by spray drying. *Innov. Food Sci. Emerg. Technol.* **2017**, *39*, 33–41. [\[CrossRef\]](#)
14. Mutlu, C. Bee pollen usage as carrier material in the drying of honey and some properties of honey-bee pollen powders. *Br. Food J.* **2023**, *125*, 3734–3747. [\[CrossRef\]](#)
15. Toniazzo, T.; Collado-González, M.; Tadini, C.C.; Mackie, A.R. Evaluation of physicochemical properties of honey powder using rice and pea proteins as carriers. *Food Res. Int.* **2023**, *167*, 112692. [\[CrossRef\]](#)
16. Nurhadi, B.; Andoyo, R.; Mahani, R.; Indarto, R. Study the properties of honey powder produced from spray drying and vacuum drying method. *Int. Food Res. J.* **2012**, *19*, 907–912.
17. Samborska, K.; Langa, E.; Kamińska-Dwórznička, A.; Witrowa-Rajchert, D. The influence of sodium caseinate on the physical properties of spray-dried honey. *Int. J. Food Sci. Technol.* **2014**, *50*, 256–262. [\[CrossRef\]](#)
18. Shi, Q.; Fang, Z.; Bhandari, B. Effect of addition of whey isolate on spray-drying behavior of honey with maltodextrin as a carrier material. *Dry. Technol.* **2013**, *31*, 13–14. [\[CrossRef\]](#)
19. Samborska, K.; Barańska, A.; Szulc, K.; Jankowska, E.; Truszkowska, M.; Ostrowska-Ligeza, E.; Wołoskiak, R.; Szymańska, E.; Jedlińska, A. Reformulation of spray-dried apple concentrate and honey for the enhancement of drying process performance and the physicochemical properties of powders. *J. Sci. Food Agric.* **2020**, *100*, 2224–2235. [\[CrossRef\]](#)
20. Sahu, J.K. The effect of additives on vacuum dried honey powder properties. *Int. J. Food Eng.* **2008**, *4*, 9. [\[CrossRef\]](#)
21. Osés, S.M.; Cantero, L.; Puertas, G.; Fernández-Muiño, M.A.; Sancho, M.T. Antioxidant, antimicrobial and anti-inflammatory activities of ling-heather honey powder obtained by different methods with several carriers. *LWT-Food Sci. Technol.* **2022**, *159*, 113235. [\[CrossRef\]](#)
22. Louveaux, J.; Maurizio, A.; Vorwohl, G. Methods of Melissopalynology. *Bee World* **1978**, *59*, 139–157. [\[CrossRef\]](#)
23. Marazzan, G.L.; Mucignat-Caretta, C.; Marchese, C.M.; Piana, M.L. A review of methods for honey sensory analysis. *J. Apic. Res.* **2018**, *57*, 75–87. [\[CrossRef\]](#)
24. Persano Oddo, L.; Piro, R. Main European unifloral honeys: Descriptive sheets. *Apidologie* **2004**, *35*, 38–81. [\[CrossRef\]](#)
25. Piana, M.L.; Persano Oddo, L.; Bentabol, A.; Bruneau, E.; Bogdanov, S.; Guyot Declerck, C. Sensory analysis applied to honey: State of the art. *Apidologie* **2004**, *35*, 26–37. [\[CrossRef\]](#)
26. Terradillos, L.A.; Muniategui, S.; Sancho, M.T.; Huidobro, J.F.; Simal-Lozano, J. An alternative method for analysis of honey sediment. *Bee Sci.* **1994**, *3*, 86–93.
27. Von der Ohe, W.; Persano Oddo, L.; Piana, M.L.; Morlot, M.; Martin, P. Harmonized methods of melissopalynology. *Apidologie* **2004**, *35*, 18–25. [\[CrossRef\]](#)
28. Association of Official Analytical Chemists (AOAC). In *Official Methods of Analysis of AOAC International*; Latimer, J.W. (Ed.) AOAC: Gaithersburg, MD, USA, 2012.
29. Bogdanov, S. Harmonised Methods of the International Honey Commission 2009. Available online: <http://www.ihc-platform.net/ihcmethods2009.pdf> (accessed on 10 April 2023).
30. Codex Alimentarius Standard for Honey. Codex Standard for Honey 12-1981. In *Revised Codex Standard for Honey*; Standards and Standard Methods: Roma, Italy, 2001; p. 11. Available online: https://www.fao.org/fao-who-codexalimentarius/sh-proxy/en/?lnk=1&url=https%253A%252F%252Fworkspace.fao.org%252Fsites%252Fcodex%252Fstandards%252FCXS%2B12-1981%252FCXS_012e.pdf (accessed on 10 April 2023).
31. Commission Internationale de L'elairage-CIE. *Technical Report*, 3rd ed.; CIE: Vienna, Austria, 2004.
32. Pascual-Maté, A.; Osés, S.M.; Marazzan, G.L.; Gardini, S.; Fernández Muiño, M.A.; Sancho, M.T. Sugar composition and sugar-related parameters of honeys from the northern Iberian Plateau. *J. Food Compos. Anal.* **2018**, *74*, 34–43. [\[CrossRef\]](#)
33. Sancho, M.T.; Muniategui, S.; Huidobro, J.F.; Simal, J. Correlation between the electrical conductivity of honey in humid matter and dry matter. *Apidologie* **1991**, *22*, 221–227. [\[CrossRef\]](#)
34. Bhatta, S.; Stevanovic, T.; Ratti, C. Freeze-drying of maple syrup: Efficient protocol formulation and evaluation of powder physicochemical properties. *Dry Technol.* **2020**, *8*, 1138–1150. [\[CrossRef\]](#)
35. Santivarangkna, C.; Aschenbrenner, M.; Kulozik, U.; Foerst, P. Role of glassy state on stabilities of freeze-dried probiotics. *J. Food Sci.* **2011**, *76*, 152–156. [\[CrossRef\]](#)
36. Ganaie, T.A.; Masoodi, F.A.; Rather, S.A.; Gani, A. Exploiting maltodextrin and whey protein isolate macromolecules as carriers for the development of freeze dried honey powder. *Carbohydr. Polym. Technol. Appl.* **2021**, *2*, 100040. [\[CrossRef\]](#)
37. Keke, A.; Cinkmanis, I. Total phenolic content and antiradical activity of honey powders. *Food Sci.* **2021**, *36*, 104–110.
38. Nurhadi, B.; Roos, Y.H. Influence of anti-caking agent on the water sorption isotherm and flow-ability properties of vacuum dried honey powder. *J. Food Eng.* **2017**, *210*, 76–82. [\[CrossRef\]](#)
39. Mutlu, C.; Koc, A.; Erbaş, M. Some physical properties and adsorption isotherms of vacuum-dried honey powder with different carrier materials. *LWT-Food Sci. Technol.* **2020**, *134*, 110166. [\[CrossRef\]](#)

40. Bouhlali, E.T.; Bammou, M.; Sellam, K.; El Midaoui, A.; Bourkhis, B.; Ennassir, J.; Alem, C.; Filali-Zegzouti, Y. Physicochemical properties of eleven monofloral honey samples produced in Morocco. *Arab. J. Basic. Appl. Sci.* **2019**, *26*, 476–487. [\[CrossRef\]](#)
41. Gonzales, A.P.; Burin, L.; Buera, M.P. Color changes during storage of honeys in relation to their composition and initial color. *Food Res. Int.* **1991**, *32*, 185–191. [\[CrossRef\]](#)
42. Nurhadi, B.; Maidannyk, V.A.; Djali, M.; Dwiyantri, E.H.; Editha, N.P.; Febrian, M. Physical and functional properties of agglomerated coconut sugar powder and honey powder using polyvinylpyrrolidone as a binder. *Int. J. Food Prop.* **2022**, *25*, 93–104. [\[CrossRef\]](#)
43. Samborska, K.; Bieńkowska, B. Physicochemical properties of spray dried honey preparations. *Zesz. Probl. Postępów Nauk. Roln.* **2013**, *575*, 91–105.
44. Suhag, Y.; Nayik, G.A.; Nanda, V. Effect of gum Arabic concentration and inlet temperature during spray drying on physical and antioxidant properties of honey powder. *Food Meas.* **2016**, *10*, 350–356. [\[CrossRef\]](#)
45. Suhag, Y.; Nanda, V. Degradation kinetics of ascorbic acid in encapsulated spray-dried honey powder packaged in aluminium laminated polyethylene and high-density polyethylene. *Int. J. Food Prop.* **2017**, *20*, 645–653. [\[CrossRef\]](#)
46. Tomczyk, M.; Zagula, G.; Tarapatsky, M.; Kačániová, M.; Džugan, M. The effect of honey variety on the quality of honey powder. *J. Microbiol. Biotechnol. Food Sci.* **2020**, *9*, 949–954. [\[CrossRef\]](#)
47. Cordella, C.; Antinelli, J.F.; Aurieres, C.; Faucon, J.P.; Cabrol-Bass, D.; Sbirrazzuoli, N. Use of differential scanning calorimetry (DSC) as a new technique for detection of adulteration in honeys. 1. Study of adulteration effect on honey thermal behavior. *J. Agric. Food Chem.* **2002**, *50*, 203–208. [\[CrossRef\]](#) [\[PubMed\]](#)
48. Samborska, K.; Gajek, P.; Kamińska-Dwórznińska, A. Spray drying of honey: The effect of drying agents on powder properties. *Pol. J. Food Nutr. Sci.* **2015**, *65*, 109–118. [\[CrossRef\]](#)
49. Suhag, Y.; Nanda, V. Optimization of process parameters to develop nutritionally rich spray-dried honey powder with vitamin C content and antioxidant properties. *Int. J. Food Sci. Technol.* **2015**, *50*, 1771–1777. [\[CrossRef\]](#)
50. Meda, A.; Lamien, C.E.; Romito, M.; Millogo, J.; Nacoulma, O.G. Determination of the phenolic, flavonoid and proline contents in Burkina Faso honey, as well as their radical scavenging activity. *Food Chem.* **2005**, *91*, 571–577. [\[CrossRef\]](#)
51. Pekal, A.; Pyrzynska, K. Evaluation of aluminum complexation reaction for flavonoid content assay. *Food Anal. Methods* **2014**, *7*, 1776–1782. [\[CrossRef\]](#)
52. Sancho, M.T.; Pascual-Maté, A.; Rodríguez-Morales, E.G.; Osés, S.M.; Escriche, I.; Periche, A.; Fernández-Muñoz, M.A. Critical assessment of antioxidant-related parameters of honey. *Int. J. Food Sci. Technol.* **2016**, *51*, 30–36. [\[CrossRef\]](#)
53. Osés, S.M.; Nieto, S.; Rodrigo, S.; Pérez, S.; Rojo, S.; Sancho, M.T.; Fernández-Muñoz, M.A. Authentication of strawberry tree (*Arbutus unedo* L.) honeys from southern Europe based on compositional parameters and biological activities. *Food Biosci.* **2020**, *38*, 100768. [\[CrossRef\]](#)
54. Koracevic, D.; Koracevic, G.; Djordjevic, V.; Andrejevic, S.; Cosic, V. Method for the measurement of antioxidant activity in human fluids. *J. Clin. Pathol.* **2001**, *54*, 356–361. [\[CrossRef\]](#)
55. Küçük, M.; Kolaylı, S.; Karaoglu, Ş.; Ulusoy, E.; Baltacı, C.; Candan, F. Biological activities and chemical composition of three honeys of different types from Anatolia. *Food Chem.* **2007**, *100*, 526–534. [\[CrossRef\]](#)
56. Ferreres, F.; Lopes, G.; Gil-Izquierdo, A.; Andrade, P.; Sousa, C.; Mouga, T.; Valentao, P. Phlorotannin extracts from fucalae characterized by HPLC-DAD-ESI-MSn: Approaches to hyaluronidase inhibitory capacity and antioxidant properties. *Mar. Drugs* **2012**, *10*, 2766–2781. [\[CrossRef\]](#) [\[PubMed\]](#)

Disclaimer/Publisher's Note: The statements, opinions and data contained in all publications are solely those of the individual author(s) and contributor(s) and not of MDPI and/or the editor(s). MDPI and/or the editor(s) disclaim responsibility for any injury to people or property resulting from any ideas, methods, instructions or products referred to in the content.

Acrónimos



LH: miel de brecina

LHP: miel de brecina en polvo

SP-LHP: miel de brecina en polvo obtenida mediante atomización

VC-LHP: miel de brecina en polvo obtenida mediante secado a vacío

FZ-LHP: miel de brecina en polvo obtenida mediante liofilización

SP-AG-LHP: miel de brecina en polvo obtenida mediante atomización con goma arábica

SP-WH-LHP: miel de brecina en polvo obtenida mediante atomización con aislado de proteína de suero

SP-MD-LHP: miel de brecina en polvo obtenida mediante atomización con maltodextrina

VC-AG-LHP: miel de brecina en polvo obtenida mediante secado a vacío con goma arábica

VC-WH-LHP: miel de brecina en polvo obtenida mediante secado a vacío con aislado de proteína de suero

VC-MD-LHP: miel de brecina en polvo obtenida mediante secado a vacío con maltodextrina

FZ-AG-LHP: miel de brecina en polvo obtenida mediante liofilización con goma arábica

FZ-WH-LHP: miel de brecina en polvo obtenida mediante liofilización con aislado de proteína de suero

FZ-MD-LHP: miel de brecina en polvo obtenida mediante liofilización con maltodextrina

MD-P: mieles en polvo obtenidas con maltodextrina

SP: secado mediante atomización

VC: secado a vacío

FZ: secado mediante liofilización

LHP: mieles de brecina en polvo

MD: maltodextrina

TH: miel de tomillo

LV: miel de lavanda

V: miel de veza

M: miel multifloral

TH-P: miel de tomillo en polvo

LV-P: miel de lavanda en polvo

V-P: miel de veza en polvo

M-P: miel multifloral en polvo

FZ-P: miel en polvo obtenida mediante liofilización

VC-P: miel en polvo obtenida mediante secado a vacío

MD-VC: miel en polvo obtenida mediante secado a vacío con maltodextrina

MD-FZ: miel en polvo obtenida mediante liofilización con maltodextrina