

NGHIÊN CỨU SỰ ẢNH HƯỞNG CỦA CÁC THÔNG SỐ ĐẾN QUÁ TRÌNH CHIẾT XUẤT DỊCH CHIẾT TINH DẦU TRÀM BẰNG SÓNG SIÊU ÂM

Lê Anh Đức¹, Nguyễn Thị Lệ Hằng²

TÓM TẮT

Nghiên cứu đã thực nghiệm chiết xuất dịch chiết tinh dầu tràm bằng sóng siêu âm nhằm xác định ảnh hưởng của các thông số chiết xuất đến tỷ lệ tinh dầu thu hồi trong quá trình chiết xuất tinh dầu tràm và xác định chế độ chiết xuất hợp lý. Các thực nghiệm được tiến hành tại các mức thay đổi về tỉ lệ nguyên liệu: nước từ 1:0,6 - 1:0,9, thời gian chiết xuất thay đổi từ 45 - 90 phút, nhiệt độ thay đổi từ 50 - 80°C, công suất siêu âm thay đổi từ 0 - 40 W. Kết quả đã xác định được ảnh hưởng của các thông số đến tỷ lệ tinh dầu thu hồi và xác định được chế độ chiết xuất hợp lý với tỉ lệ tràm: nước là 1:0,75, thời gian 75 phút, nhiệt độ 80°C, công suất siêu âm 30 W, tỷ lệ tinh dầu thu hồi đạt 0,376%.

Từ khóa: Tràm gió, tinh dầu, chiết xuất, nhiệt độ, công suất siêu âm.

1. BẶT VẤN ĐỀ

Tinh dầu tràm được sử dụng rất rộng rãi trong cộng đồng ở Việt Nam, sản phẩm tinh dầu tràm được biết đến với rất nhiều công dụng trong việc bảo vệ và chăm sóc hệ hô hấp, cơ xương khớp,... Tinh dầu tràm có hương thơm dễ chịu nên được dùng trong nhiều loại thuốc ho, nước súc miệng, thuốc sát khuẩn,...

Hiện nay tinh dầu tràm được chiết xuất chủ yếu theo phương pháp thủ công như phương pháp chưng cất trực tiếp bằng nước và bằng phương pháp chưng cất lôi cuốn hơi nước, vì vậy còn tồn tại một số nhược điểm như mất rất nhiều thời gian, tiêu hao nhiều năng lượng, nhiệt độ chiết xuất cao,... Tinh dầu tràm cũng như các loại tinh dầu khác, khi nhiệt độ chiết xuất cao sẽ làm giảm chất lượng tinh dầu. Để khắc phục những tồn tại trong các phương pháp chiết xuất này, các phương pháp chiết xuất ở nhiệt độ thấp đã được áp dụng, trong đó, sóng siêu âm đã được ứng dụng vào quá trình chiết xuất và cho thấy đã đem lại hiệu quả chiết xuất cao, giảm thời gian chiết xuất, nâng cao chất lượng tinh dầu.

Khi ứng dụng sóng siêu âm đã cho thấy tăng chất lượng tinh dầu so với phương pháp không dùng sóng siêu âm, chất lượng tinh dầu thu được sẽ tăng các chất có hoạt tính sinh học nhạy cảm với nhiệt độ so với chưng cất bằng nước [1], hiệu suất trích ly tăng 30% so với khi không ứng dụng siêu âm trích ly

các hợp chất cay từ gừng [2], tăng gấp 3 lần so với phương pháp truyền thống khi trích ly chất màu từ củ nghệ [3], lượng dầu tăng từ 30 - 50% khi có hỗ trợ của sóng siêu âm khi trích từ hạt hương dương, đậu nành [4].

Thời gian chiết xuất, nhiệt độ chiết xuất, tỷ lệ dung môi và công suất siêu âm khi ứng dụng sóng siêu âm cũng được nghiên cứu. Các kết quả cho thấy thời gian khi dùng siêu âm là nhanh hơn khi không có siêu âm, thời gian chiết xuất là 15 phút khi trích ly màu từ củ nghệ [3], 80 phút khi trích ly nhóm chất màu anthraquinone từ ruột gỗ và vỏ cây xu sung [5]. Nhiệt độ chiết xuất cũng thấp hơn so với khi chiết xuất theo phương pháp thông thường, tùy theo loại sản phẩm mà nhiệt độ chiết xuất khi dùng siêu âm thay đổi từ 49 - 61,5°C [5], [6], [7]. Tỷ lệ nguyên liệu/dung môi: công trình [7], [8] cho thấy tỷ lệ nguyên liệu/dung môi từ 1/10 - 1/20 [8], [9] làm tăng hiệu suất trích ly. Công suất siêu âm thích hợp là 15,4 W khi ứng dụng cho nước ép chuối [10], 59,2 W khi chiết xuất chất chống oxy hóa từ vỏ quả lựu [11].

Như vậy có thể thấy sóng siêu âm có nhiều ưu điểm khi ứng dụng trong chiết xuất. Vì vậy mục tiêu của nghiên cứu này là ứng dụng sóng siêu âm vào chiết xuất tinh dầu tràm nhằm xác định sự ảnh hưởng của các thông số tỷ lệ nguyên liệu/dung môi, thời gian chiết xuất, nhiệt độ chiết xuất, công suất siêu âm đến quá trình chiết xuất dịch chiết tinh dầu tràm và xác định chế độ chiết xuất tinh dầu tràm hợp lý.

¹ Trường Đại học Nông Lâm TP. Hồ Chí Minh

² Trường Đại học Sư phạm Kỹ thuật TP. Hồ Chí Minh

Email: leanhduc@hcmuaf.edu.vn

2. VẬT LIỆU VÀ PHƯƠNG PHÁP NGHIÊN CỨU

2.1. Nguyên liệu chiết xuất

Lá trà gió, tên latin là *Melaleuca Cajuputi*, được thu hoạch ở quận Thủ Đức, thành phố Hồ Chí Minh. Sau khi thu hoạch, lá trà được tách ra khỏi cọng, chỉ lấy phần lá và đem rửa sạch, cắt nhỏ thành từng đoạn với chiều dài 1 - 2 cm.

2.2. Phương pháp thí nghiệm

Bố trí thí nghiệm:

Các thí nghiệm được thực hiện trên thiết bị chiết xuất bằng siêu âm model 150V/T Ultrasonic homogenizer của Mỹ. Thiết bị có khả năng điều chỉnh công suất siêu âm thay đổi từ 0 - 100 W với khoảng chia 10 W; tần số siêu âm 20 kHz; điều chỉnh thời gian siêu âm thông qua bộ timer của thiết bị.

Nhiệt độ chiết xuất được điều chỉnh bằng thiết bị khuấy từ gia nhiệt Dlab model MS-H-S của Mỹ, điều khiển tốc độ khuấy và nhiệt độ thông qua các núm vặn chia vạch với độ hiển thị nhiệt độ chính xác nhiệt là $\pm 0,5^{\circ}\text{C}$ và tốc độ khuấy là 1 vòng/phút.

Cài đặt nhiệt độ chiết xuất theo các giá trị thí nghiệm, khi nhiệt độ của hỗn hợp (trà và nước) đạt giá trị cài đặt thì mở sóng siêu âm.

Tỉ lệ thể tích trà : nước được xác định bằng cốc thủy tinh đo dung lượng có vạch chia, dung tích 500 ml với độ chia nhỏ nhất là 20 ml.

Sau khi thử nghiệm thu được dịch chiết tinh dầu trà, dịch chiết được tiến hành thu hồi tinh dầu. Đem cân lại khối lượng tinh dầu trà thu hồi được và so với khối lượng nguyên liệu lá trà để tính tỷ lệ tinh dầu thu hồi

Hàm lượng tỷ lệ tinh dầu thu hồi được xác định theo công thức:

$$\eta = \frac{m_{td}}{m_{nl}} \times 100 \%$$

Trong đó: η : tỷ lệ tinh dầu thu hồi, (%). m_{td} : khối lượng tinh dầu trà nguyên chất thu được, (g). m_{nl} : khối lượng nguyên liệu ban đầu, (g).

Khối lượng tinh dầu trà nguyên chất được xác định bằng cân điện tử Ohaus PA413, khoảng đo 410 gram, độ chính xác 0,001 gram.

Tỷ lệ % tinh dầu sau thu hồi được khi chiết xuất được sử dụng làm cơ sở để xác định chế độ chiết xuất phù hợp, bao gồm các thông số: tỉ lệ trà:nước,

thời gian chiết xuất, nhiệt độ chiết xuất và công suất siêu âm.

Phương pháp xử lý số liệu: sử dụng phương pháp LSD (Least Significant Difference - Giới hạn sai khác nhỏ nhất) để phân tích đánh giá sự khác biệt của các số liệu về mặt thống kê.

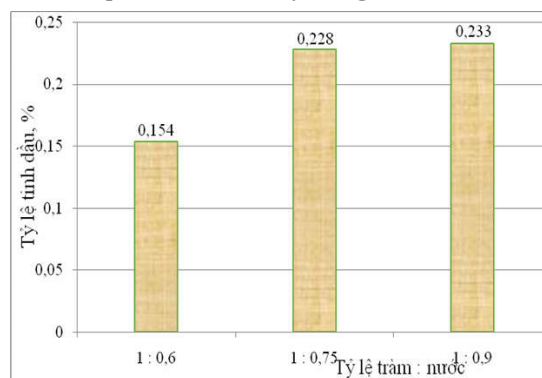
3. KẾT QUẢ NGHIÊN CỨU

Các công trình nghiên cứu đã công bố cho thấy khi ứng dụng sóng siêu âm vào chiết xuất thì các yếu tố có ảnh hưởng đến hiệu quả của quá trình chiết xuất là tỷ lệ dung môi : nguyên liệu, thời gian chiết xuất, nhiệt độ chiết xuất, công suất siêu âm. Trên cơ sở đó, tiến hành thay đổi các giá trị của các thông số trên nhằm xác định ảnh hưởng của các thông số chiết xuất đến tỷ lệ tinh dầu thu hồi trong quá trình chiết xuất tinh dầu trà.

Các thí nghiệm được thực hiện theo phương pháp dùng nhiệt với sự hỗ trợ của sóng siêu âm khi thay đổi các thông số chiết xuất như sau: tỉ lệ trà:nước: 1:0,6; 1:0,75 và 1:0,9; thời gian chiết xuất: 45, 60, 75 và 90 phút; nhiệt độ chiết xuất: 50, 60, 70 và 80 $^{\circ}\text{C}$; công suất siêu âm: 10, 20, 30 và 40W.

3.1. Ảnh hưởng của tỉ lệ nguyên liệu/nước đến hàm lượng tinh dầu trà

Các mức tỷ lệ nguyên liệu: nước được khảo sát là 1:0,6; 1:0,75; 1:0,9. Các thí nghiệm được tiến hành tại công suất siêu âm là 20 W và nhiệt độ hỗn hợp là 70 $^{\circ}\text{C}$. Kết quả được trình bày trong hình 1.



Hình 1. Tỷ lệ tinh dầu thu hồi tương ứng với tỷ lệ trà: nước

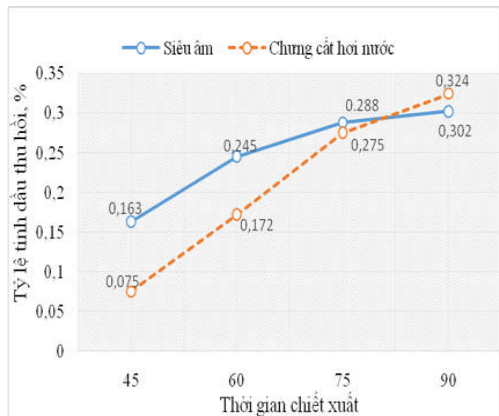
Kết quả cho thấy khi tăng tỉ lệ trà: nước thì tỷ lệ thu hồi tinh dầu trà cũng tăng. Tại giá trị tỷ lệ 1:0,6 thì tỷ lệ tinh dầu thu được là 0,154%, khi tăng lên tỷ lệ 1:0,75 thì tỷ lệ tinh dầu thu được tăng lên 0,228%, khi tăng tỷ lệ 1:0,9 thì tỷ lệ tinh dầu tiếp tục

tăng lên 0,233%. Tuy nhiên tỷ lệ tinh dầu thu hồi tăng không đáng kể khi tăng tỷ lệ trà: nước từ 1:0,75 lên 1:0,9. Vì vậy, chọn tỷ lệ trà: nước theo thể tích là 1:0,75.

3.2. Ảnh hưởng của thời gian chiết xuất đến hàm lượng tinh dầu

Thời gian chiết xuất thay đổi tại 4 mức: 45, 60, 75 và 90 phút, công suất siêu âm cố định tại 20 W và nhiệt độ hỗn hợp 70°C. Tiến hành so sánh với phương pháp chiết xuất truyền thống là sử dụng phương pháp chưng cất hơi nước. Kết quả được trình bày trong hình 2.

Kết quả cho thấy quá trình chiết xuất không có hỗ trợ siêu âm thì tỉ lệ tinh dầu thu hồi rất thấp ở các mức thời gian chiết xuất: 45 phút, 60 phút, 75 phút, tại thời gian 90 phút thì tỉ lệ tinh dầu tăng cao nhất. Tại thời gian 90 phút, tỷ lệ tinh dầu thu hồi của mẫu không hỗ trợ siêu âm cao hơn mẫu sử dụng sóng siêu âm có thể là do nhiệt độ của phương pháp siêu âm còn thấp. Khi có hỗ trợ của sóng siêu âm thì tỉ lệ tinh dầu thu hồi cao hơn nhiều ở các thời gian chiết xuất 45 phút, 60 phút. đặc biệt ở thời gian 75 phút thì tỉ lệ tinh dầu đạt 0,288%, thời gian 90 phút thì tỷ lệ tinh dầu tăng không tăng đáng kể, đạt 0,324%.



Hình 2. Tỷ lệ tinh dầu thu hồi bằng phương pháp chưng cất hơi nước và siêu âm theo thời gian

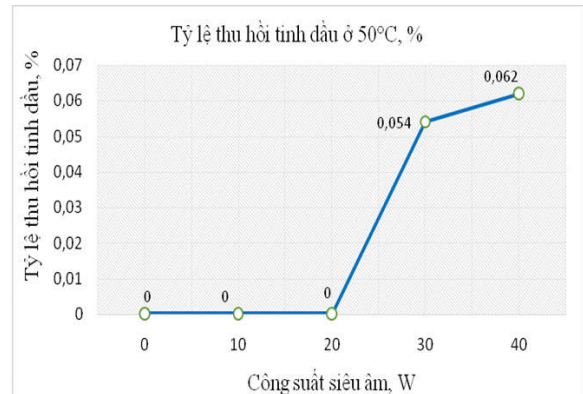
Trên cơ sở này, chọn thời gian chiết xuất tinh dầu trà là 75 phút khi có sự hỗ trợ của sóng siêu âm nhằm đảm bảo hài hòa giữa tiêu chí thời gian và tỷ lệ chiết xuất.

3.3. Ảnh hưởng của nhiệt độ và công suất sóng siêu âm đến hàm lượng tinh dầu

Trên cơ sở xác định thời gian chiết xuất tinh dầu 75 phút, để xác định được ảnh hưởng của sóng siêu

âm đến hàm lượng tinh dầu, thực hiện thử nghiệm tại 4 mức công suất siêu âm: 10, 20, 30 và 40 W theo 4 mức nhiệt độ chiết xuất là 50, 60, 70 và 80°C. So sánh tỷ lệ thu hồi tinh dầu tại các chế độ chiết xuất này.

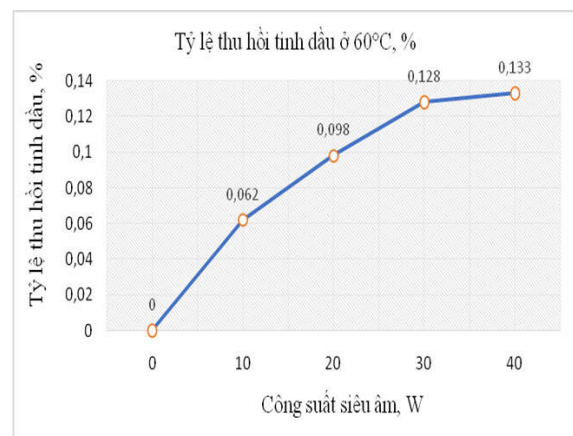
Kết quả chiết xuất khi thay đổi các mức công suất siêu âm với nhiệt độ chiết xuất tại 50°C được trình bày trong hình 3.



Hình 3. Tỷ lệ tinh dầu trà thu hồi tại nhiệt độ 50°C

Kết quả thử nghiệm cho thấy ở nhiệt độ chiết xuất 50°C, công suất siêu âm 0W, 10W, 20W không thu được tinh dầu, nhưng khi tăng công suất siêu âm lên 30W thì tỉ lệ tinh dầu thu được là 0,054%, công suất siêu âm lên 40W thì tỉ lệ tinh dầu thu được tăng lên 0,062%, nhưng tỉ lệ tăng này không đáng kể.

Kết quả chiết xuất khi thay đổi các mức công suất siêu âm với nhiệt độ chiết xuất tại 60°C được trình bày trong hình 4.

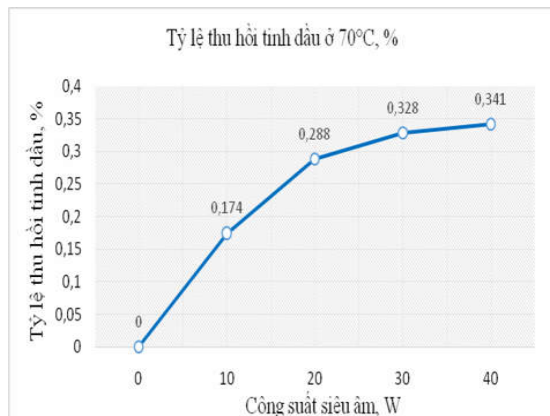


Hình 4. Tỷ lệ tinh dầu trà thu hồi ở nhiệt độ 60°C

Kết quả thử nghiệm cho thấy, khi chiết xuất tinh dầu ở nhiệt độ 60°C không có siêu âm thì không thu được tinh dầu, điều này có thể giải thích là tại nhiệt độ thấp sẽ không thể phá vỡ các mô chứa tinh

dầu và nếu không có sóng siêu âm hỗ trợ thì cũng không xảy ra hiện tượng nổ bóng khí siêu âm (cavitation) nhằm phá vỡ các mô chứa tinh dầu. Khi tăng công suất siêu âm lên 10W, 20W thì hiện tượng nổ bóng khí siêu âm xảy ra nên thu hồi được tinh dầu. Ở công suất siêu âm 30W thì tỉ lệ tinh dầu thu được là 0,128%, công suất siêu âm 40W thì tỉ lệ tinh dầu thu được là 0,133%, nhưng tỉ lệ tăng không đáng kể.

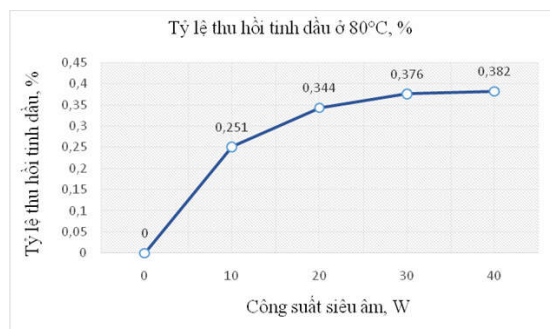
Kết quả chiết xuất khi thay đổi các mức công suất siêu âm với nhiệt độ chiết xuất tại 70°C được trình bày trong hình 5.



Hình 5. Biểu đồ thể hiện tỷ lệ tinh dầu trầm thu hồi ở nhiệt độ 70°C

Kết quả thử nghiệm cho thấy khi chiết xuất tinh dầu ở nhiệt độ 70°C không có siêu âm thì không thu được tinh dầu. Khi tăng công suất siêu âm lên 10W, 20W thì thu hồi được tinh dầu. Ở công suất siêu âm 30W, tỉ lệ tinh dầu thu được là 0,328%, công suất siêu âm 40W có tỉ lệ tinh dầu thu được là 0,341% nhưng tỉ lệ tăng không đáng kể.

Kết quả chiết xuất khi thay đổi các mức công suất siêu âm với nhiệt độ chiết xuất tại 80°C được trình bày trong hình 6.



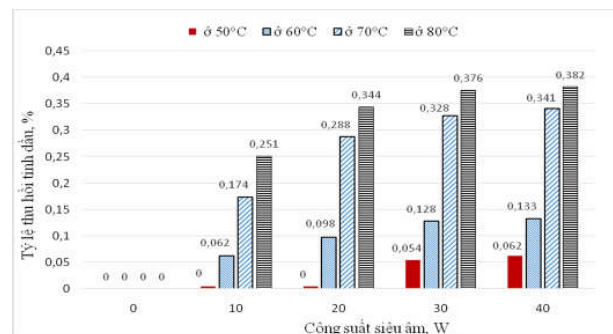
Hình 6. Tỷ lệ tinh dầu trầm thu hồi ở nhiệt độ 80°C

Kết quả thử nghiệm cho thấy khi chiết xuất tinh dầu ở nhiệt độ 80°C mà không có siêu âm thì không thu được tinh dầu. Khi tăng công suất siêu âm lên 10W, 20W thì thu hồi được tinh dầu. Ở công suất siêu âm 30W thì tỉ lệ tinh dầu thu được là 0,376%, công suất siêu âm 40W thì tỉ lệ tinh dầu thu được là 0,382% nhưng tỉ lệ tăng không đáng kể.

Kết quả so sánh thử nghiệm 4 mức công suất siêu âm: 10, 20, 30 và 40 W, tại các nhiệt độ chiết xuất: 50, 60, 70, 80°C với thời gian chiết xuất 75 phút được trình bày trong bảng 1 và so sánh bằng biểu đồ như hình 7.

Bảng 1. Tỷ lệ tinh dầu trầm thu hồi khi chiết xuất tinh dầu trầm tại các mức nhiệt độ và công suất

Nhiệt độ, °C	Công suất siêu âm, W	Tỷ lệ thu hồi tinh dầu, %
50	0	0
	10	0
	20	0
	30	0,054
	40	0,062
60	0	0
	10	0,062
	20	0,098
	30	0,128
	40	0,133
70	0	0
	10	0,174
	20	0,288
	30	0,328
	40	0,341
80	0	0
	10	0,251
	20	0,344
	30	0,376
	40	0,382



Hình 7. Tỷ lệ tinh dầu trầm thu hồi tại các chế độ chiết xuất

Khi hỗn hợp chiết xuất được gia nhiệt ở các mức nhiệt độ 50, 60, 70 và 80°C thì không thu được tinh dầu nếu không có siêu âm. Mặt khác, ở nhiệt độ thấp là 50°C thì cần công suất siêu âm từ 30W trở lên thì mới thu được tinh dầu. Do đó, khi chiết xuất dịch chiết tinh dầu trầm bằng sóng siêu âm cũng cần phải có sự gia nhiệt cho hỗn hợp.

Tại các nhiệt độ 50, 60, 70 và 80°C, lượng tinh dầu thu hồi là cao nhất ở công suất 40W nhưng so với ở công suất 30 W thì lượng tinh dầu thu hồi này chênh lệch không đáng kể, điều này có thể giải thích do ở mức năng lượng 30W đã đủ để phá vỡ các mô tế bào chứa tinh dầu cũng như các liên kết phân tử trong mô tế bào của lá trầm, chất tan trong lá trầm được thoát ra. Vì vậy, để tiết kiệm năng lượng cho quá trình chiết xuất, chọn công suất siêu âm 30W là phù hợp.

Bên cạnh đó, kết quả so sánh trên hình 7 cũng cho thấy khi cùng công suất siêu âm là 30 W thì giữa các mức nhiệt độ, lượng tinh dầu thu hồi chênh lệch khá nhiều, tinh dầu thu được cao nhất là ở nhiệt độ 80°C. Vì vậy, chọn nhiệt độ 80°C là nhiệt độ thích hợp để chiết xuất tinh dầu trầm.

Với các kết quả như trên, chế độ chiết xuất cho tinh dầu trầm được xác định là tỉ lệ trầm : nước là 1:0,75, thời gian chiết xuất 75 phút, nhiệt độ chiết xuất 80°C, công suất siêu âm 30 W.

4. KẾT LUẬN

Các thí nghiệm được thực hiện với các thông số của quá trình chiết xuất thay đổi nhằm xác định ảnh hưởng của các thông số chiết xuất đến tỷ lệ tinh dầu trầm thu hồi trong quá trình chiết xuất. Tỷ lệ trầm : nước thay đổi tại các mức 1:0,6; 1:0,75 và 1:0,9; thời gian chiết xuất: 45 phút, 60 phút, 75 phút, 90 phút; nhiệt độ thay đổi từ 50, 60, 70 và 80°C; công suất siêu âm thay đổi từ 10, 20, 30 và 40 W. Kết quả cho thấy sóng siêu âm đã đem lại hiệu quả chiết xuất cao khi ứng dụng cho chiết xuất dịch chiết tinh dầu trầm.

Đã xác định được chế độ chiết xuất hợp lý cho chiết xuất dịch chiết tinh dầu trầm bằng sóng siêu âm là tỉ lệ thể tích trầm:nước là 1:0,75, thời gian chiết xuất 75 phút, nhiệt độ chiết xuất 80°C và công suất siêu âm là 30W, tỷ lệ tinh dầu thu hồi đạt 0,376%.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

1. Kimbaris A. C., Nikolaos G. S., Dimitra J. D., Petros A. T., Christos S. P. and Moschos G. P., 2006. Comparison of distillation and ultrasound-assisted

extraction methods for the isolation of sensitive aroma compounds from garlic (*Allium sativum*). *Ultrasonics Sonochemistry* 13 (1): 54–60.

2. Balachandran S., Kentish S., Mawson R., and Ashokkumar M., 2006. Ultrasonic enhancement of the supercritical extraction from ginger. *Ultrasonics Sonochemistry*, 13(6): 471–479.

3. Rouhani S., Alizadeh N., Salimi S., and Haji-Ghasemi T., 2009. Ultrasonic Assisted Extraction of Natural Pigments from Rhizomes of *Curcuma Longa* L. extraction, 6, 7.

4. Chemat F., Khan M. K., 2011. Applications of ultrasound in food technology: processing, preservation and extraction. *Ultrasonics sonochemistry*, 18(4), 813–835.

5. Rahman N. A. A., Tumin S. M., and Tajuddin R., 2013. Optimization of ultrasonic extraction method of natural dyes from *Xylocarpus moluccensis*. *International Journal of Bioscience, Biochemistry and Bioinformatics*, 3(1), 53.

6. Ghitescu E. R., Volf I., Carausu C., Buhlman M. A., Gilca A. I. and Popa I. V., 2015. Optimization of ultrasound-assisted extraction of polyphenols from spruce wood bark. *Ultrasonics Sonochemistry*, 22: 535–554.

7. Feng S., LUO Z., Tao B. and Chen C., 2015. Ultrasonic-assisted extraction and purification of phenolic compounds from sugarcane (*Saccharum officinarum* L.) rinds. *LWT-Food Science and Technology*, 60(2), 970–976.

8. Maran, J. P., Manikandan, S., Nivetha, C. V., and Dinesh, R., 2017. Ultrasound assisted extraction of bioactive compounds from *Nephelium lappaceum* L. fruit peel using central composite face centered response surface design. *Arabian Journal of Chemistry*, 10, S1145-S1157.

9. Goula A. M., 2013. Ultrasound-assisted extraction of pomegranate seed oil–Kinetic modeling. *Journal of Food Engineering*, 117(4): 492–498.

10. Tran Thi Hong Hanh, Le Van Viet Man, 2015. Effects of technological parameters of the ultrasonic treatment on the extraction yield and quality of banana (*Musa Paradisiaca* L.) juice. *Ho Chi Minh city University of Technology, VNU-HCM Science and Technology development*, Vol.18, No.K5.

11. Pan Z., Wenjuan Q., Haile M., Griffiths G.A. and Tara H. M., 2012. Continuous and pulsed ultrasound-assisted extraction of antioxidants from pomegranate peel. *Ultrasonics Sonochemistry* 19(2): 365–372.

STUDY ON THE EFFECT OF PARAMETERS TO CAJEPUT ESSENTIAL OIL EXTRACTION PROCESS BY ULTRASONIC

Le Anh Duc¹, Nguyen Thi Le Hang²

¹*Nong Lam University Ho Chi Minh city*

²*Ho Chi Minh city University of Technology and Education*

Summary

The study experimentally extracted Cajeput essential oil by ultrasonic in order to determine the effect of extraction parameters on the ratio of recovered essential oil in the Cajeput essential oil extraction process and determine an appropriate extraction regime. The experiments were conducted at varying levels of material: water ratio from 1:0.6 to 1:0.9, the extraction time varies from 45 - 90 minutes, the temperature varies from 50 - 80°C, and the ultrasonic power varies from 0 - 40 W. The results have determined the effects of the parameters on the ratio of recovered essential oils and determined an appropriate extraction regime with the ratio of Cajeput : water is 1:0.75, extraction time is 75 minutes, extraction temperature is 80°C and ultrasonic power is 30 W, the ratio of recovered essential oil is 0.376%.

Keywords: *Cajeput, essential oil, extraction, temperature, ultrasonic power.*

Người phản biện: TS. Trần Thị Mai

Ngày nhận bài: 6/10/2020

Ngày thông qua phản biện: 6/11/2020

Ngày duyệt đăng: 13/11/2020