

ارزیابی فیلم‌های هوشمند زیست‌تخریب‌پذیر حاصل از ژل میکرو فیبریل سلولز و عصاره گیاه یربامات

چکیده

به دلیل اهمیت بسته‌بندی ایمن مواد غذایی، محققین و تولیدکنندگان به دنبال راه کارهای مناسب برای این نوع بسته‌بندی هستند. بسته‌بندی هوشمند مواد غذایی نشان‌دهنده سلامت یا فساد ماده غذایی داخل بسته‌بندی است. استفاده از مواد زیست‌تخریب‌پذیر در بسته‌بندی مواد غذایی نیز به دلیل عدم تولید آلودگی در محیط‌زیست، از اهمیت زیادی برخوردار می‌باشد. در این تحقیق در ابتدا خمیر کاغذ خشک اکالیپتوس با استفاده از آسیاب دیسکی ماسکو به میکرو فیبریل سلولز تبدیل گردید. برای تهیه ژل میکرو فیبریل سلولز / عصاره گیاهی، محلول عصاره یربامات به میزان ۱۰ و ۲۰ درصد (حجمی / حجمی) به جای آب به خمیر خشک اکالیپتوس افزوده و از آسیاب ماسکو عبور داده شد. از گلیسرول نیز به عنوان عامل نرم‌کننده به میزان ۳۷ درصد وزن خشک خمیر استفاده گردید. سپس، فیلم‌ها با ترکیبات مختلف با استفاده از روش قالب‌گیری تهیه شدند و با طیف‌سنجی تبدیل فوریه مادون قرمز (FTIR) مورد بررسی قرار گرفتند. همچنین، مقاومت کششی فیلم‌ها نیز مورد ارزیابی قرار گرفت. آزمون زیست‌تخریب‌پذیری نیز با استفاده از روش دفن در خاک انجام شد. در پایان، هوشمندی فیلم‌ها با استفاده از محلول بافر از pH یک تا سیزده مورد سنجش قرار گرفت. نتایج این تحقیق نشان داد که فیلم‌های حاصل کاملاً دوستدار محیط‌زیست هستند و پس از حدود یک ماه تقریباً به طور کامل از بین می‌روند. فیلم‌های حاوی عصاره به دلیل وجود مواد ضد میکروب در آن، کمی دیرتر تخریب شدند. نتایج آزمون هوشمندی فیلم‌ها نیز نشان داد که می‌توان از عصاره یربامات به عنوان یک عامل در تعیین فساد مواد غذایی در بسته‌بندی استفاده نمود.

واژگان کلیدی: میکرو فیبریل سلولز، عصاره یربامات، زیست‌تخریب‌پذیر، فیلم هوشمند، بسته‌بندی مواد غذایی.

میثم علی‌آبادی^۱

محمدرضا دهقانی فیروزآبادی^{۲*}

الیاس افرا^۲

واشینگتون لوئیز استیوز ماگالس^۳

گابریل گوتن د لیما^۴

^۱ دانشجوی دکتری صنایع خمیر و کاغذ، دانشکده مهندسی چوب و کاغذ، دانشگاه علوم کشاورزی و منابع طبیعی گرگان، گرگان، ایران

^۲ دانشیار گروه علوم و مهندسی کاغذ، دانشکده مهندسی چوب و کاغذ، دانشگاه علوم کشاورزی و منابع طبیعی گرگان، گرگان، ایران

^۳ مؤسسه تحقیقات کشاورزی برزیل، مرکز ملی تحقیقات جنگل، دانشگاه پارانا، کورینتیا، برزیل

^۴ دانش‌آموخته دکتری علوم و مهندسی مواد، دانشگاه پارانا، کورینتیا، برزیل

مسئول مکاتبات:

mdeghani@gau.ac.ir

تاریخ دریافت: ۱۴۰۲/۰۹/۱۸

تاریخ پذیرش: ۱۴۰۲/۱۱/۱۳

مقدمه

بسته‌بندی مواد غذایی به معنی ساخت یا تهیه ظرف یا محافظی است که سلامتی مواد غذایی را در زمان حمل‌ونقل، انبارداری، توزیع و مصرف حفظ کند. بسته بندی پلاستیکی تقریباً ۴۰ درصد بازار پلاستیک اروپا را تشکیل می‌دهد و برای ذخیره‌سازی، حمل و نقل، محافظت و نگهداری از مواد غذایی ضروری است. در

حقیقت، بیش از ۵۰ درصد از تمام کالاهای اروپایی در بسته‌های پلاستیکی بسته‌بندی شده‌اند و این موفقیت تجاری به دلیل ویژگی‌هایی مانند انعطاف‌پذیری، مقاومت مناسب، سبک بودن، پایداری و نفوذناپذیری است. مهم-ترین مشکل استفاده از این نوع پلاستیک‌ها، پسماندهای پس از مصرف و زباله‌های پلاستیکی است. بر اساس گزارش‌ها حدود ۱۴ درصد مواد پلاستیکی بسته‌بندی

بسته‌بندی هوشمند، یک فناوری نوظهور در زمینه بسته‌بندی مواد غذایی است. این سیستم، پتانسیل بسیار خوبی را برای بهبود قابلیت ردیابی، ایمنی و کیفیت غذا دارد. این فناوری موجب تسهیل تصمیم‌گیری و افزایش ایمنی می‌شود و با ارائه اطلاعات و هشدار به بهبود کیفیت مواد غذایی کمک می‌کند. در هنگام تولید و حمل‌ونقل، احتمال تماس یک ماده غذایی با عوامل فیزیکی، شیمیایی و بیولوژیکی وجود دارد [۶]. فناوری جدید بسته‌بندی هوشمند، استفاده از برخی از مواد است که می‌تواند به آسانی کیفیت محصول را با نشان دادن برخی علائم مانند تغییر رنگ به مصرف‌کننده اطلاع دهد. اطلاع از وضعیت مواد غذایی داخل بسته رضایت مصرف‌کننده را به دنبال دارد [۷].

شاخص‌های تازگی که بر اساس رویکردهای رنگ-سنجی عمل می‌کنند، افزایش pH ناشی از فساد مربوط به آمین‌های فرار کل ۲ را تشخیص می‌دهند. مطابق با نتایج گزارش شده، ثابت شده است که عصاره‌های طبیعی زیستی به‌عنوان عامل تغییر رنگ در شاخص‌های تازه بودن مواد غذایی مبتنی بر pH می‌توانند به طور مؤثری در سیستم‌های بسته‌بندی هوشمند استفاده شوند. یکی از موادی که به‌عنوان نشانگر pH می‌تواند در بسته‌بندی گنجانده شود، عصاره گیاهان است. علاوه بر این، گنجاندن این ترکیبات پلی‌فنولی طبیعی به‌عنوان شاخص‌های pH مزایای اضافی مانند خواص آنتی‌اکسیدانی و ضد میکروبی را نیز به همراه دارند که کاربردهای چندمنظوره را نشان می‌دهد (بسته‌بندی فعال و هوشمند) [۸]. در حقیقت اجزایی مانند کلروفیل و کارتنوئیدها در عصاره برخی گیاهان وجود دارند که در مقادیر pH مختلف (محیط بازی و اسیدی) تغییر رنگ می‌دهند [۹].

مطالعات نشان داده است که عصاره گیاه *Ilex paraguariensis*، معروف به یربامات دارای ترکیبات فنلی زیاد با فعالیت آنتی‌اکسیدانی است [۱۰]. یربامات گیاهی از تیره خاسیان (Aquifoliaceae) که به طور طبیعی در آمریکای جنوبی می‌روید. بیش‌ترین درصد ترکیبات شیمیایی این گیاه، پلی‌فنول‌ها (کلروژنیک اسید) و زانتین‌ها

قابلیت بازیافت و استفاده مجدد را دارند. از آنجا که اغلب مواد استفاده شده قابلیت تجزیه بیولوژیکی ندارند، برای مدت طولانی در محیط باقی می‌مانند و تهدیدی برای سلامتی انسان و همچنین محیط زیست هستند. سوزاندن آن‌ها نیز باعث به‌وجود آمدن گازهای مضر و گلخانه‌ای و ذرات ریز و معلق در هوا می‌شود که اثرات بسیار بدی بر محیط زیست دارد. با در نظر گرفتن این موارد، یکی از گزینه‌های موجود برای غلبه بر این مشکل زیست‌محیطی، استفاده از بسپارهای زیستی از منابع تجدیدپذیر است. ماده زیست‌تخریب‌پذیر مطابق با استاندارد ASTM D-5488-94-d به ماده‌ای اطلاق می‌شود که قابل تجزیه به دی‌اکسید کربن، متان، آب و ترکیبات غیر آلی و یا زیست‌توده باشد که با فرآیند تجزیه بیولوژیکی اثری از آن باقی نماند [۱]. در سال‌های اخیر توجه بیشتری به استفاده از زیست‌توده به‌عنوان ماده اولیه در بسته‌بندی مواد غذایی شده است. در میان بسپارهای طبیعی، سلولز فراوان‌ترین ماده با ویژگی‌های مناسب در علوم مهندسی است [۲]. استفاده از میکروفیبریل سلولز به دلیل ویژگی‌های مطلوبی مانند مقاومت کششی زیاد، نفوذپذیری کم در برابر اکسیژن، زیست‌تخریب‌پذیری، زیست‌سازگاری، عدم سمیت و نیز قابلیت دسترسی زیاد به‌طور گسترده‌ای در صنایع مختلف نظیر صنایع بسته‌بندی مواد غذایی افزایش داشته است [۳]. الیاف سلولزی با اندازه نانومتری، یعنی نانوفیبر سلولز و یا میکروفیبریل سلولز، از طریق روش‌های آسیاب مکانیکی ساده قابل تولیدند. زنجیرهای نانوسلولز با قطر متغیر ۱۰-۵ نانومتر و با طول چند میکرومتر می‌توانند یک شبکه انعطاف‌پذیر و محکم را تشکیل دهند. از این نانوسلولزها می‌توان در تهیه فیلم‌های با مدول الاستیسیته و ویژگی‌های ممانعتی عالی استفاده کرد [۴]. Zhao و همکاران (۲۰۱۹) فیلم‌های سلولزی شفاف و زیست‌تخریب‌پذیر دوستدار طبیعت را از پوست دورین ۱ برای بسته‌بندی مواد غذایی تهیه کردند. بر اساس نتایج آزمون زیست‌تخریب‌پذیری ایشان، فیلم سلولزی تهیه شده، بعد از دو و چهار هفته دچار تخریب ۸۲ و ۱۰۰ درصدی گردید [۵].

² Total volatile amines

¹ Durian

مواد و روش‌ها

خمیر کاغذ کرافت رنگ‌بری شده اکالیپتوس از کارخانه Suzano Papel e Celulose, São Paulo, Brazil تهیه گردید. گلیسرول از شرکت برزیلی (Dinâmica Química Contemporânea Ltda. Brazil) تهیه شد. برگ‌های گیاه یربامات (*Ilex paraguariensis* A. St. Hil) نیز از چند درخت موجود در محوطه مرکز تحقیقات کشاورزی برزیل (بخش جنگل) جمع‌آوری گردید.

تهیه عصاره گیاه یربامات

برگ‌های تهیه شده گیاه یربامات با مایکروویو (Electrolux MEF41, power 1150 W, frequency 2450 MHz) به مدت ۳ دقیقه خشک گردید. به منظور خشک شدن یکسان برگ‌ها، هر یک دقیقه درب مایکروویو باز و برگ‌ها جابه‌جا شدند. عصاره‌گیری به مدت حدود چهار ساعت با استفاده از سوکسوله (شکل ۱) و بر روی ۲۰ گرم پودر برگ خشک‌شده یربامات انجام گردید. در این عصاره‌گیری از ۳۰۰ میلی‌لیتر آب مقطر (حدود دوسوم بالن پر گردید) به‌عنوان حلال استفاده شد. درصد مواد جامد محلول عصاره ۳/۳۶ درصد بود.



شکل ۱- تهیه عصاره گیاه یربامات

(کافئین و تیوبرومین) هستند [۱۱]. Yoshida و همکاران (۲۰۱۳) تغییرات pH را در فیلم‌های زیست‌تخریب‌پذیر تهیه‌شده از کیتوزان و عصاره انگور مورد بررسی قرار دادند. نتایج این تحقیق نشان داد که افزودن آنتوسیانین عصاره انگور به کیتوزان موجب کاهش مقاومت کششی فیلم‌ها می‌گردد. آن‌ها برای ثبت تغییرات pH، از محلول بافر (محدوده pH بین ۲ تا ۱۳) استفاده کردند و روند تغییر رنگ را با دوربین عکاسی ثبت نمودند. تغییر رنگ در محلول‌های مختلف بسیار مشهود بود و در محلول قلیایی، فیلم‌ها به رنگ زرد تغییر کردند [۱۲].

نظر به زیان‌های جبران‌ناپذیر مواد پلاستیکی فسیلی به محیط‌زیست و رویکرد کاهشی استفاده از این مواد در دنیا، تحقیقات بسیاری در زمینه مواد زیست‌تخریب‌پذیر و با ویژگی‌های مطلوب بسته‌بندی مواد غذایی انجام گردیده یا در حال انجام است. هدف از این مطالعه، استفاده از مواد دوستدار محیط‌زیست موجود در طبیعت برای تهیه فیلم‌های بسته‌بندی مواد غذایی بوده است. در این تحقیق، استفاده از عصاره گیاهان به‌عنوان نشانگر تخریب مواد غذایی نیز مورد ارزیابی قرار گرفته است.

این خمیر با ۲۰۰۰ میلی‌لیتر آب، چندین بار از دستگاه آسیاب دیسکی ماسوکو (Masuko Sangyo Co. Ltd., Kawaguchi, Japan) تا اطمینان از حصول ابعاد میکرو عبور داده شد (شکل ۲). آنالیز دستگاهی، تولید

تهیه میکروفیبریل سلولز

ابتدا خمیر کرافت رنگ‌بری شده اکالیپتوس توسط مخلوط‌کن به قطعات کوچکی تبدیل شد. سپس برای تهیه میکروفیبریل سلولز با درصد خشکی ۳ درصد، ۶۰ گرم از

های بعدی در یخچال (دمای ۴ درجه سانتی‌گراد) نگهداری شد.

میکروفیبریل سلولز را تأیید نمود که ابعاد و ویژگی‌های آن‌ها در گزارش قبلی این نویسندگان [۱۳] منتشر شده است. میکروفیبریل سلولز تهیه شده جهت انجام آزمایش-



شکل ۲- تهیه میکروفیبریل سلولز با آسیاب دیسکی

میلی‌لیتر از هر ژل داخل یک پتری دیش پلی‌پروپیلنی ریخته و در داخل یک آون (Quimis, Diadema, Brazil) به مدت ۲۴ ساعت و در دمای ۴۰ درجه سانتی‌گراد قرار داده شد (شکل ۳). پس از این مدت پتری‌دیش‌ها از داخل آون خارج و فیلم‌ها از آن‌ها جدا شدند و برای انجام آزمایش‌های بعدی در داخل یک کیسه پلاستیکی در بسته و دور از نور قرار گرفتند.

ارزیابی ویژگی‌های فیلم‌ها

ساختار فیلم‌ها با استفاده از روش FTIR و توسط دستگاه (FT-IR/NIR Frontier, PerkinElmer, Waltham, UK) مورد بررسی قرار گرفت.

آماده‌سازی فیلم‌ها

محلول عصاره یربامات به میزان ۱۰ و ۲۰ درصد (حجمی/حجمی) به‌جای آب به ۶۰ گرم خمیرکاغذ رنگ‌بری شده اکالیپتوس خرد شده اضافه و از دستگاه سوپر آسیاب عبور داده شد. بدین صورت که برای تهیه ژل حاوی ۱۰ و ۲۰ درصد عصاره یربامات، به ترتیب ۲۰۰ و ۴۰۰ میلی‌لیتر از عصاره به ۱۸۰۰ و ۱۶۰۰ میلی‌لیتر آب اضافه شد. همچنین، از گلیسرول نیز به‌عنوان عامل نرم‌کننده [۲] و به میزان ۳۷ درصد وزن خشک خمیرکاغذ در تهیه فیلم‌ها استفاده گردید. گلیسرول قبل از قالب‌گیری با ژل‌های مختلف مخلوط و سپس فیلم‌های مورد نظر از آن‌ها تهیه گردید. برای تهیه فیلم‌ها مقدار ۴۰



شکل ۳- آماده‌سازی فیلم‌ها در آون

که در برخی از طول موج‌ها مقدار عبور آن کاهش یافته و یا به عبارت بهتر، توسط مولکول‌های ماده جذب شده است؛ بنابراین، با بررسی فرکانس جذب هر طیف می‌توان به پیوندهای موجود در آن ماده پی برد. طیف‌های FT-IR مربوط به نمونه‌های میکروفیبریل سلولز و همچنین میکروفیبریل سلولز حاوی عصاره گیاه یربامات و گلیسرول در شکل ۴ مشاهده می‌شود. در این شکل، پیک واقع شده در عدد موج 874 cm^{-1} به ارتعاش گهواره‌ای (چرخش لرزان)^۱ پیوندهای C-H و پیک‌های واقع شده در عدد موج‌های 1352 cm^{-1} ، 1376 cm^{-1} و 1438 cm^{-1} نیز به ارتعاش خمشی^۲ و ارتعاش تغییر شکل^۳ پیوندهای C-H موجود در ترکیبات CH_2 و CH_3 در ساختارهای شیمیایی مختلف مربوط دانسته شده است [۱۴ و ۱۵] با توجه به اینکه ترکیبات متیلی و متیلنی عمدتاً در ساختار شیمیایی میکروفیبریل سلولز وجود داشته و در ترکیبات موجود در عصاره یربامات این ترکیبات کمتر است، بنابراین مشاهده می‌شود که با افزودن عصاره گیاه در ساختار میکروفیبریل-سلولز شدت این پیک‌ها کمتر شده است. در این طیف‌ها، پیک‌های چندگانه واقع شده در عدد موج‌های 1025 cm^{-1} ، 1101 cm^{-1} و 1159 cm^{-1} به ترتیب به ارتعاش کششی پیوندهای C-O، C-OH و C-O-C مربوط هستند [۱۶ و ۱۷] با توجه به اینکه عمده ترکیبات حاوی پیوندهای کربن - اکسیژن نیز در سلولز وجود دارد، منطقی است که با اضافه کردن مقدار عصاره گیاه در این فیلم، شدت پیک‌های مربوط به این دسته از پیوندها کاهش یابد. پیک واقع شده در عدد موج 1549 cm^{-1} به ارتعاش کششی پیوندهای C-N و یا ارتعاش خمشی پیوندهای N-H مربوط است [۱۴ و ۱۵] ترکیب شیمیایی میکروفیبریل سلولز فاقد این پیوندها است و پیوندهای نیتروژن دار تنها در عصاره گیاه وجود دارد. پیک قرار گرفته در عدد موج 1645 cm^{-1} نیز به ارتعاش خمشی پیوندهای هیدروکسیل (O-H) در ساختار شیمیایی ترکیبات و یا آب جذب سطحی شده به فیلم مربوط است [۱۸].

مقاومت کششی فیلم‌ها با استفاده از دستگاه آزمون (Zwisch/Roell, Model FR0110, Germany) و بر اساس استاندارد ASTM D882-10 اندازه‌گیری شد. ۵ تکرار از هر نمونه فیلم اندازه‌گیری و میانگین آن‌ها درج شد. برای بررسی آزمون زیست‌تخریب‌پذیری، مطابق با استاندارد ASTM D5988 و از روش دفن در خاک استفاده شد. بدین منظور، نمونه‌ها به اندازه 2×2 سانتی‌متر برش خوردند و پس از توزین در یک سینی حاوی خاک طبیعی و کمپوست با نسبت ۶۰ به ۴۰ (تهیه شده از چند محل متفاوت از جنگل‌های برزیل، منطقه کوریتیبیا) قرار گرفتند. برای حفظ رطوبت خاک، روزی دو بار بر روی سطح سینی اسپری آب انجام شد. نمونه‌ها در فواصل مختلف زمانی از زیر خاک خارج، به‌دقت تمیز و پس از توزین دوباره در زیر خاک (عمق سه سانتی‌متری) دفن شدند.

ارزیابی هوشمندی فیلم‌ها با استفاده از محلول‌های بافر از pH یک تا سیزده (اسیدی تا قلیایی) انجام شد. برای این منظور فیلم‌های با قطر ۱۲ میلی‌متر در یک پتری دیش حاوی ۱۰ میلی‌لیتر محلول بافر قرار گرفتند. سپس تغییر رنگ نمونه‌ها با یک دوربین عکاسی در pHهای مختلف ثبت شد.

تجزیه و تحلیل آماری

آنالیز آماری این تحقیق با استفاده از نرم‌افزار SPSS انجام گردید و از طرح کاملاً تصادفی و آنالیز واریانس یک-طرفه استفاده شد. گروه‌بندی میانگین‌ها به کمک آزمون دانکن و در سطح اطمینان ۹۵ درصد انجام گردید.

نتایج و بحث

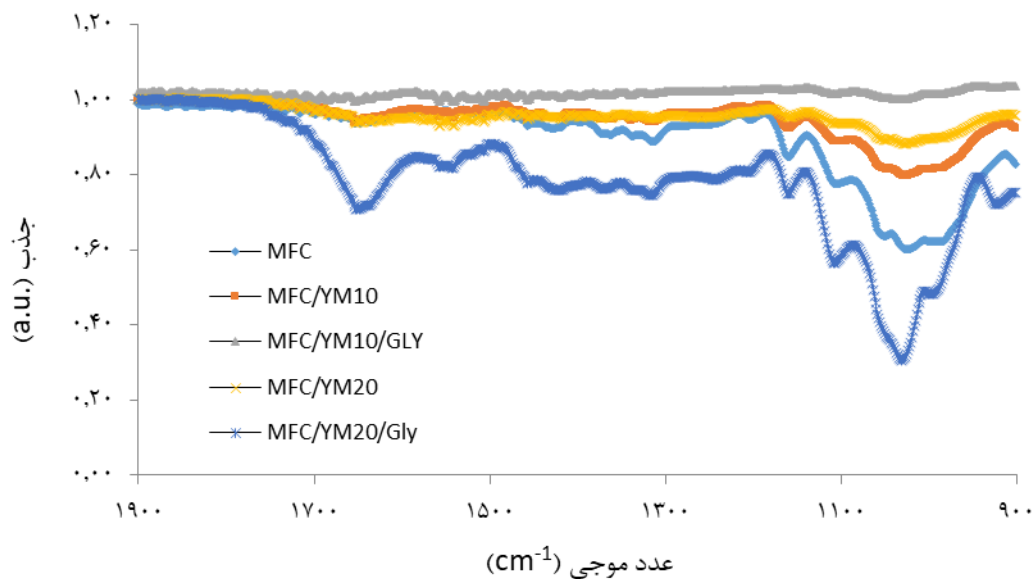
آزمون FTIR

در طیف‌سنجی FT-IR انرژی‌های نور مادون قرمز با انرژی‌های ارتعاشی مولکول‌ها منطبق می‌شوند و این انطباق باعث جذب انرژی اشعه الکترومغناطیس توسط نمونه می‌گردد؛ بنابراین، با تغییر فرکانس اشعه در محدوده‌ای مشخص (مادون قرمز) طیفی به دست می‌آید

¹ Rocking vibration

² Bending vibration

³ Deformation vibration

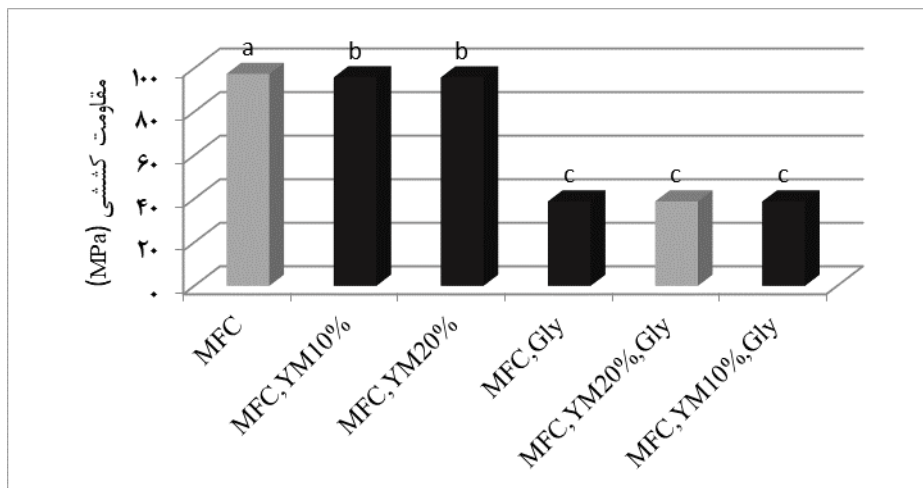


شکل ۴- طیف‌های FT-IR مربوط به نمونه‌های میکروفیبریل سلولز (MFC) / عصاره یربامات (YM) / گلیسرول (Gly).

مقاومت کششی

مقاومت کششی فیلم‌های تهیه شده از میکروفیبریل-سلولز، عصاره یربامات و گلیسرول در شکل ۵ نشان داده شده است. همان‌طور که مشاهده می‌شود فیلم میکروفیبریل سلولز خالص بیشترین مقدار مقاومت کششی (۹۷/۳۵ مگاپاسکال) و فیلم میکروفیبریل سلولز، عصاره یربامات و گلیسرول کمترین مقدار مقاومت کششی (۳۸/۷۳ مگاپاسکال) را دارا است. نتایج آزمون دانکن نشان داد که بین مقاومت کششی فیلم‌های میکروفیبریل سلولز و میکروفیبریل سلولز/ عصاره یربامات تفاوت معنی‌دار آماری وجود دارد. اما بین فیلم‌های حاوی ۱۰ و ۲۰ درصد عصاره تفاوت معنی‌داری وجود ندارد. فیلم‌های دارای گلیسرول نیز به صورت جداگانه در یک گروه دیگر قرار گرفتند. نتایج پژوهش Knapp و همکاران (۲۰۱۹) نشان داد که استفاده از عصاره یربامات در فیلم‌های نشاسته باعث کاهش مقاومت کششی نسبت به فیلم نشاسته خالص شده است. علت این پدیده نیز به خاصیت نرم‌کنندگی عصاره مربوط

است که باعث کاهش جاذبه بین مولکولی بین مولکول‌های زنجیره می‌شود. همچنین این مواد مقاومت، سختی، دانسیته، ویسکوزیته و بار الکترواستاتیکی بسیار را کاهش می‌دهند، درحالی‌که انعطاف‌پذیری زنجیره پلیمر و ثابت دی‌الکتریک را افزایش می‌دهند [۱۱ و ۱۹]. Mallick و همکاران (۲۰۲۰) با بررسی اثر چند نوع نرم‌کننده به این نتیجه رسیدند که فیلم‌های حاوی نرم‌کننده، مقاومت کششی کمتری نسبت به فیلم‌های بدون نرم‌کننده دارند [۲۰]. Mohammed و همکاران (۲۰۲۲) نیز با بررسی چند نوع نرم‌کننده به نتیجه مشابهی دست یافتند. به طوری که مقاومت کششی فیلم‌ها از ۳۷/۸۱ مگاپاسکال در فیلم نشاسته بدون گلیسرول به ۶/۳۵ مگاپاسکال در فیلم نشاسته حاوی ۳۰ درصد گلیسرول رسید. در واقع، گلیسرول با اشغال فضای بین سلولی، باعث کاهش پیوندهای بین الیاف شد و در نتیجه مقاومت کششی فیلم‌ها کاهش یافت [۲۱].

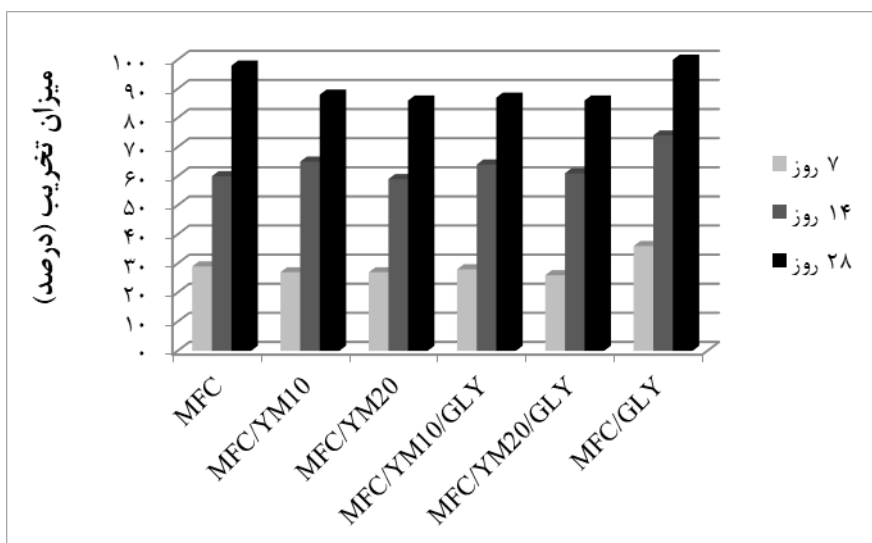


شکل ۵- مقاومت کششی فیلم‌های تهیه شده از میکروفیبریل سلولوز (MFC) / عصاره یربامات (YM) / گلیسرول (Gly).

طور که مشاهده می‌شود میزان تخریب فیلم میکروفیبریل سلولوز / گلیسرول پس از ۷ و ۱۴ روز به ترتیب با مقدار ۳۶ و ۷۴ درصد از دیگر فیلم‌ها بیش‌تر است و پس از آن فیلم‌های میکروفیبریل سلولوز خالص و میکروفیبریل سلولوز / عصاره یربامات ۱۰ و ۲۰ درصد قرار دارند.

آزمون زیست تخریب پذیری

زیست تخریب پذیری یکی از ویژگی‌های مهم مواد بسته بندی در کشورهای پیشرفته است. شکل ۶ میزان زیست تخریب پذیری فیلم‌های تهیه شده از میکروفیبریل سلولوز، عصاره یربامات و گلیسرول را نشان می‌دهد. همان-



شکل ۶- میزان زیست تخریب پذیری فیلم‌های تهیه شده از میکروفیبریل سلولوز (MFC) / عصاره یربامات (YM) / گلیسرول (Gly) در زمان‌های مختلف.

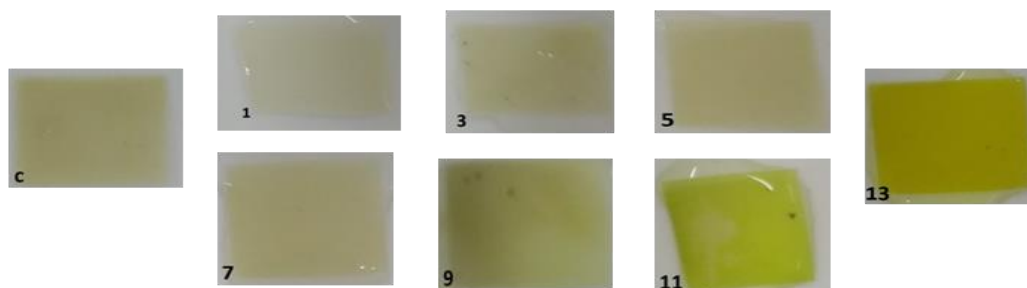
به صورت کامل تخریب نشدند. نتایج آنالیز آماری نیز نشان داد که بین فیلم‌های با ۱۰ و ۲۰ درصد عصاره نیز تفاوت معنی دار وجود ندارد. گزارش Malekzadeh و همکاران (۲۰۲۳) و Babaei و همکاران (۲۰۱۴) نشان داد که فیلم نشاسته / نانوسلولوز زودتر از فیلم سلولزی از بین می-

پس از گذشت ۲۸ روز از قرار گرفتن فیلم‌ها در خاک، فیلم میکروفیبریل سلولوز / گلیسرول به صورت کامل و فیلم میکروفیبریل سلولوز خالص به میزان ۹۸ درصد تخریب شدند. فیلم‌های حاوی عصاره یربامات به دلیل وجود مواد موثر ضد میکروب عصاره یربامات، پس از گذشت ۲۸ روز

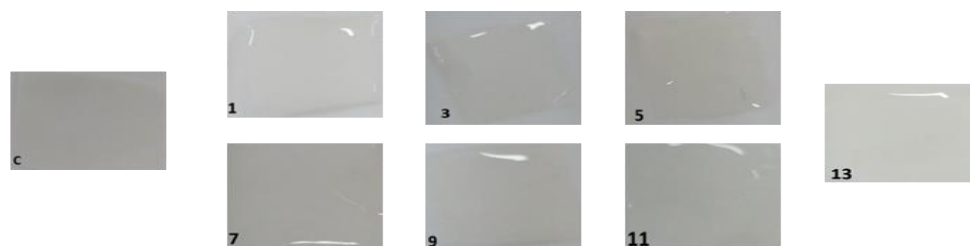
مدت زمان بین ۳۰ تا ۶۰ روز به‌طور کامل از بین رفت [۲۱ و ۲۶].

آزمون نمایشگر pH (بررسی هوشمندی فیلم‌های تهیه شده)

این آزمون بر اساس تغییر رنگ فیلم‌ها در محیط‌های مختلف اسیدی و بازی انجام شد (شکل ۷). همان‌طور که در این شکل مشاهده می‌شود فیلم‌های حاوی عصاره یربامات از محیط اسیدی به محیط بازی دچار تغییر رنگ می‌شوند که این نتیجه نشان می‌دهد این فیلم‌ها در pHهای مختلف، رنگ‌های متفاوتی دارند و می‌توان از آن‌ها در بسته‌بندی‌هایی که مواد غذایی به pH حساس هستند استفاده نمود. مواد غذایی مانند گوشت هنگامی که دچار فساد می‌شوند، محیط آن‌ها بازی می‌شود و تغییر رنگ فیلم بسته‌بندی نشان‌دهنده فسادپذیری ماده غذایی است. شکل ۸، فیلم میکروفیبریل سلولز خالص را در محیط اسیدی تا بازی نشان می‌دهد. همان‌طور که مشاهده می‌شود این فیلم‌ها در pHهای مختلف هیچ تغییر رنگی ندارند.



شکل ۷- روند تغییر رنگ فیلم میکروفیبریل سلولز / عصاره یربامات ۱۰٪ در محیط اسیدی تا قلیایی (pH ۱ تا ۱۳، c: نمونه شاهد).



شکل ۸- فیلم میکروفیبریل سلولز خالص در محیط اسیدی تا قلیایی (بدون تغییر رنگ در pH ۱ تا ۱۳، c: نمونه شاهد).

به آنتوسیانین موجود در عصاره انگور نسبت داده شد [۱۲]. Pourjavaher و همکاران فیلم نانوسلولز باکتریایی و عصاره کلم قرمز را تهیه نمودند و استفاده از این فیلم را

رود. همچنین استفاده از عصاره بلوط در فیلم کیتوزان باعث شد تا این فیلم در مدت زمان حدود دو برابر نسبت به فیلم کیتوزان به‌طور کامل تخریب شود [۲۲ و ۲۳]. نتایج پژوهش Zhao و همکاران (۲۰۱۹) اثبات کرد که فیلم سلولزی تهیه‌شده از پوست دورین و فیلم تهیه‌شده از پودر سلولز تجاری در مدت زمان ۴ هفته به‌طور کامل تخریب می‌شوند که با نتایج این تحقیق هم‌خوانی دارد [۵]. Dey و همکاران (۲۰۲۰) به این نتیجه رسیدند که فیلم‌های کیتوزان و پلی‌وینیل‌الکل زودتر از فیلم‌های نانوسلولزی تخریب می‌شوند [۲۴]. نتایج آزمون زیست-تخریب‌پذیری فیلم‌های تهیه‌شده از نانوالیاف بامبو و نانوالیاف کیتین توسط Hai و همکاران (۲۰۱۹) نشان داد که این فیلم‌ها کاملاً زیست‌تخریب‌پذیر هستند [۲۵]. گزارش منتشر شده توسط Mohammed و همکاران (۲۰۲۳) مشخص نمودند که فیلم‌های تهیه‌شده از نشاسته و گلیسرول ظرف مدت ۱۴ روز به‌طور کامل تخریب شدند، در حالی که بر اساس نتایج تحقیق Paudel و همکاران (۲۰۲۳) فیلم سلولزی حاوی گلیسرول در

در مطالعه Yoshida و همکاران (۲۰۱۴) نشان داده شد که فیلم کیتوزان حاوی عصاره انگور در pHهای اسیدی تا بازی دچار تغییر رنگ می‌شود. این تغییر رنگ

استفاده کرد. از طرف دیگر، بسته‌بندی هوشمند مواد غذایی به نوعی بسته‌بندی اطلاق می‌شود که توانایی نمایش کیفیت مواد غذایی داخل بسته‌بندی را در طول حمل‌ونقل و ذخیره‌سازی آن داشته باشد. مواد مورد استفاده در این نوع بسته‌بندی شامل سنسورها، نمایشگرها، نمایش‌دهنده زمان - دما، بارکدها و... است. تغییرات pH یکی از نشانگرهای حالت و کیفیت محصول غذایی است. در بسیاری از موارد، هنگام فساد و یا خراب‌شدن مواد غذایی، تغییر pH مشاهده می‌شود و در نتیجه، ارزیابی pH قبل از خرید و مصرف ماده غذایی ضروری است. برای این منظور، از عصاره گیاهان می‌توان به‌عنوان یکی از موادی که در pHهای مختلف دچار تغییر رنگ می‌شوند، استفاده نمود. در این تحقیق از میکروفیبریل سلولز به‌عنوان یک ماده دوستدار محیط زیست در تولید فیلم بسته‌بندی زیست‌تخریب‌پذیر مواد غذایی استفاده شد. نتایج نشان داد که می‌توان از فیلم میکروفیبریل سلولز به همراه عصاره گیاه یربامات در فیلم بسته‌بندی مواد غذایی استفاده کرد. زیرا این فیلم‌ها کاملاً زیست‌تخریب‌پذیرند و در مدت زمان ۲۸ روز تقریباً به طور کامل (۹۸ درصد) از بین می‌روند. بین مقاومت کششی فیلم‌های میکروفیبریل سلولز و میکروفیبریل سلولز/ عصاره یربامات تفاوت معنی‌دار آماری وجود داشت، اما تفاوت بین فیلم‌های حاوی ۱۰ و ۲۰ درصد عصاره معنی‌داری نبود. نتیجه استفاده از عصاره یربامات در این فیلم‌ها نشان داد که می‌توان آن را در تشخیص خرابی مواد غذایی به کار گرفت.

برای تشخیص فساد مواد غذایی مورد بررسی قرار دادند. نتایج مطالعه محققین نشان داد که عصاره کلم قرمز در محیط‌های اسیدی و بازی به رنگ‌های مختلفی تبدیل می‌شود. بنابراین، فیلم‌های حاوی عصاره کلم قرمز به دلیل وجود آنتوسیانین، پتانسیل استفاده به‌عنوان یک شاخص تغییرات pH در طول نگهداری مواد غذایی بسته‌بندی شده را دارد [۲۷]. استفاده از عصاره گلبرگ زعفران در فیلم کیتوزان / متیل سلولز نیز نتیجه مشابهی را به‌همراه داشت. فیلم‌های حاوی عصاره گلبرگ زعفران در محیط اسیدی و بازی رنگ متفاوتی پیدا کردند. آنتوسیانین موجود در عصاره گلبرگ زعفران باعث تغییر رنگ گردید [۲۸].

نتیجه‌گیری

استفاده از مواد زیست‌تخریب‌پذیر به دلیل افزایش توجه انسان به محیط‌زیست در صنعت بسته‌بندی مواد غذایی روبه‌افزایش است. در حال حاضر، تولید مواد مورد استفاده در صنعت بسته‌بندی از مواد فسیلی، ارزان‌تر از مواد زیست‌تخریب‌پذیر بوده و تولید این مواد نیز آسان‌تر است. اما به دلیل ایجاد آلودگی برای زیست‌انسان، استفاده از مواد فسیلی در کشورهای جهان به‌ویژه کشورهای پیشرفته روبه‌کاهش است. استفاده از مواد سلولزی به‌عنوان فراوان‌ترین بسپار زیستی طبیعی در کره زمین، در این صنعت رو به گسترش است. در صورت تبدیل سلولز با استفاده از روش‌های مختلف به نانو و یا میکروفیبریل سلولز، می‌توان از آن در تهیه فیلم‌های بسته‌بندی مواد غذایی با خواص ممانعتی و مقاومتی خوب

منابع

- [1] Ferreira, A. R. V., Alves, V. D., and Coelho, I. M., 2016. Polysaccharide-based membranes in food packaging applications. *Membranes*, 6(2): 1-17.
- [2] Ghaffari, M., Ghasemian, A., Dehghani Firouzabadi, M. R., and Yousefi, H., 2019. Evaluation of the starch films containing cellulose and lignocellulose for food packaging. *Iranian Journal of Wood and Paper Industries*, 10(1): 35-47. (In Persian)
- [3] Motie, N., Jonoobi, M., Fazei Pour, M., Mahboobian, M. M., and Borzacchiello, S., 2019. Nanocellulose based biohydrogel: Preparation and characterization of some properties. *Iranian Journal of Wood and Paper Industries*, 9(4), 497-509. (In Persian)

- [4] Tatari, A. and Shekarian, E., 2014. The Importance of cellulose derivatives in producing biodegradable films for food packaging, packaging. *Iranian Journal of Packaging Science and Technologies*, 5(19): 22-31. (In Persian).
- [5] Zhao, G., Lyu, X., Lee, J., Cui, X., and Chen, W. N., 2019. Biodegradable and transparent cellulose film prepared eco-friendly from durian rind for packaging application. *Food Packaging and Shelf Life*, 21: 100345.
- [6] Soltani Firouz, M., Mohi-Alden, K., and Omid, M., 2021. A critical review on intelligent and active packaging in the food industry: Research and development. *Food Research International*, 141: 110113.
- [7] Lin, L., Abdel-Samie, M. A. S., and Cui, H., 2019. Novel packaging systems in food. In *Encyclopedia of Food Security and Sustainability*. Elsevier.
- [8] Kalpana, S., Priyadarshini, S. R., Maria Leena, M., Moses, J. A., and Anandharamakrishnan, C., 2019. Intelligent packaging: Trends and applications in food systems. *Trends in Food Science and Technology*, 93: 145–157.
- [9] Medina-Jaramillo, C., Ochoa-Yepes, O., Bernal, C., and Famá, L., 2017. Active and smart biodegradable packaging based on starch and natural extracts. *Carbohydrate Polymers*, 176: 187–194.
- [10] Farias, N. S. de, Silva, B., de Oliveira Costa, A. C., and Müller, C. M. O., 2021. Alginate based antioxidant films with yerba mate (*Ilex paraguariensis* St. Hil.): Characterization and kinetics of phenolic compounds release. *Food Packaging and Shelf Life*, 28(February).
- [11] Knapp, M. A., dos Santos, D. F., Pilatti-Riccio, D., Deon, V. G., dos Santos, G. H. F., and Pinto, V. Z., 2019. Yerba mate extract in active starch films: Mechanical and antioxidant properties. *Journal of Food Processing and Preservation*, 43(3): 1–12.
- [12] Yoshida, C. M. P., Maciel, V. B. V., Mendonça, M. E. D., and Franco, T. T., 2014. Chitosan biobased and intelligent films: Monitoring pH variations. *LWT-food science and technology*, 55(1): 83–89.
- [13] Aliabadi, M., Dehghani Firouzabadi, M., Afra, E., Luiz Estives Magalhaes, W., and Goetten De Lima, G., 2023. The effect of chitosan on the properties of microfibrillated cellulose (MFC) film used in food packaging. *Journal of Wood and Forest Science and Technology*, 30(2), 109-123.
- [14] Jung, M. R., Horgen, F. D., Orski, S. V., Rodriguez C., V., Beers, K. L., Balazs, G. H., Jones, T. T., Work, T. M., Brignac, K. C., Royer, S. J., Hyrenbach, K. D., Jensen, B. A., and Lynch, J. M., 2018. Validation of ATR FT-IR to identify polymers of plastic marine debris, including those ingested by marine organisms. *Marine Pollution Bulletin*, 127: 704–716.
- [15] Nandiyanto, A. B. D., Oktiani, R., and Ragadhita, R., 2019. How to read and interpret ftir spectroscopy of organic material. *Indonesian Journal of Science and Technology*, 4(1): 97–118.
- [16] Shahmoradi, A. R., Talebibahmanbigloo, N., Javidparvar, A. A., Bahlakeh, G., and Ramezanzadeh, B., 2020. Studying the adsorption/inhibition impact of the cellulose and lignin compounds extracted from agricultural waste on the mild steel corrosion in HCl solution. *Journal of Molecular Liquids*, 304: 112751.
- [17] Wang, Y., Wei, X., Li, J., Wang, F., Wang, Q., Chen, J., and Kong, L., 2015. Study on nanocellulose by high pressure homogenization in homogeneous isolation. *Fibers and Polymers*, 16(3): 572–578.
- [18] Farhadian, A., Assar Kashani, S., Rahimi, A., Oguzie, E. E., Javidparvar, A. A., Nwanonyi, S. C., Yousefzadeh, S., and Nabid, M. R., 2021. Modified hydroxyethyl cellulose as a highly efficient eco-friendly inhibitor for suppression of mild steel corrosion in a 15% HCl solution at elevated temperatures. *Journal of Molecular Liquids*, 338: 116607.

- [19] Vieira, M. G. A., Da Silva, M. A., Dos Santos, L. O., and Beppu, M. M., 2011. Natural-based plasticizers and biopolymer films: A review. *European Polymer Journal*, 47(3): 254–263.
- [20] Mallick, N., Pal, D., Agrawal, M., and Soni, A. B., 2020. Effect of different plasticizers on mechanical, thermal, and barrier properties of corn starch/polyvinyl alcohol/rice husk flour based bio-composite films. *Journal of the Indian Chemical Society*, 97(7): 1094–1098.
- [21] Mohammed, A. A. B. A., Hasan, Z., Omran, A. A. B., Elfaghi, A. M., Khattak, M. A., Ilyas, R. A., and Sapuan, S. M., 2023. Effect of various plasticizers in different concentrations on physical, thermal, mechanical, and structural properties of wheat starch-based films. *Polymers*, 15(1): 63.
- [22] Malekzadeh, E., Tatari, A., and Dehghani Firouzabadi, M., 2023. Preparation, characteristics, and soil-biodegradable analysis of corn starch/nanofibrillated cellulose (CS/NFC) and corn starch/nanofibrillated lignocellulose (CS/NFLC) films. *Carbohydrate Polymers*, 309: 120699.
- [23] Babaee, M., Jonoobi, M., Hamzeh, Y., and Ashori, A., 2015. Biodegradability and mechanical properties of reinforced starch nanocomposites using cellulose nanofibers. *Carbohydrate Polymers*, 132, 1–8.
- [24] Dey, D., Dharini, V., Selvam, S. P., Sadiku, E. R., Kumar, M. M., Jayaramudu, J., and Gupta, U. N., 2021. Physical, antifungal, and biodegradable properties of cellulose nanocrystals and chitosan nanoparticles for food packaging application. *Materials Today: Proceedings*, 38: 860–869.
- [25] Hai, L. Van, Choi, E. S., Zhai, L., Panicker, P. S., and Kim, J., 2020. Green nanocomposite made with chitin and bamboo nanofibers and its mechanical, thermal and biodegradable properties for food packaging. *International Journal of Biological Macromolecules*, 144: 491–499.
- [26] Paudel, S., Regmi, S., and Janaswamy, S., 2023. Effect of glycerol and sorbitol on cellulose-based biodegradable films. *Food Packaging and Shelf Life*, 37: 101090..
- [27] Pourjavaher, S., Almasi, H., Meshkini, S., Pirs, S., and Parandi, E., 2017. Development of a colorimetric pH indicator based on bacterial cellulose nanofibers and red cabbage (*Brassica oleracea*) extract. *Carbohydrate Polymers*, 156: 193–201.
- [28] Alizadeh-Sani, M., Tavassoli, M., McClements, D. J., and Hamishehkar, H., 2021. Multifunctional halochromic packaging materials: Saffron petal anthocyanin loaded-chitosan nanofiber/methyl cellulose matrices. *Food Hydrocolloids*, 111: 106237.

Evaluation of Biodegradable Smart Films Obtained from Cellulose Microfibril Gels and Yerba Mate Plant Extract

Abstract

The importance of safe packaging for food products has prompted researchers and manufacturers to seek suitable solutions in this area. Smart food packaging plays a crucial role in indicating the freshness or spoilage of the contents, while the use of biodegradable materials helps mitigate environmental pollution. In this study, eucalyptus pulp was initially processed into microfibrillated cellulose using a Masuko disk mill. Subsequently, a gum arabic solution at 10% and 20% (v/v) was introduced to the eucalyptus pulp instead of water, and the mixture was passed through the Masuko mill to prepare the microfibrillated cellulose/gum arabic gel. Glycerol, serving as a plasticizing agent, was added at 37% of the dry weight of the pulp. Films with various compositions were then prepared using a molding method and subjected to analysis using Fourier-transform infrared spectroscopy (FTIR). Additionally, the tensile strength of the films was evaluated using ASTM standard methods. Biodegradability testing was conducted using a soil burial method. Finally, the functionality of the films was assessed by immersing them in a buffer solution with a pH range of one to thirteen. The research findings demonstrated that the resulting films were completely environmentally friendly and decomposed almost entirely after approximately one month. Films containing gum arabic extract decomposed slightly later due to the presence of antimicrobial substances. Moreover, performance testing results indicated that gum arabic extract could serve as an indicator of food spoilage in packaging.

Keywords: Cellulose microfibrils, Yerba mate extract, Biodegradable, Smart film, Food packaging.

M. Aliabadi^{1*}
M. Dehghani Firouzabadi^{2*}
E. Afra²
W. L. E. Magalhaes³
G. Goetten de Lima⁴

¹ Ph.D. Candidate in Pulp and Paper Technology, Gorgan University of Agricultural Sciences and Natural Resources, Gorgan, Iran

² Associate Prof., Dept. of Paper Science and Engineering, Gorgan University of Agricultural Sciences and Natural Resources, Gorgan, Iran

³ Brazilian Agricultural Research Corporation, National Center for Forest Research, Curitiba, Parana, Brazil

⁴ Ph.D. Graduate in Engineering and Science of Materials - PIPE, Federal University of Paraná, Curitiba, Paraná, Brazil

Corresponding author:
mdehghani@gau.ac.ir

Received: 2023/12/09
Accepted: 2024/02/02