

## تولید هیدروژل برپایه کیتوزان و موسیلاژ دانه بارهنگ شهری به روش توده‌ای شدن مرکب

سعید حمدی پور<sup>۱</sup>، میرخلیل پیروزی فرد<sup>۲\*</sup>، هادی الماسی<sup>۲</sup>، حامد همیشه کار<sup>۳</sup>

۱- دانشجوی دکتری تخصصی تکنولوژی مواد غذایی، دانشگاه ارومیه

۲- دانشیار گروه علوم و صنایع غذایی دانشگاه ارومیه

۳- دانشیار مرکز تحقیقات کاربردی دارویی، دانشگاه علوم پزشکی تبریز

(تاریخ دریافت: ۹۸/۰۶/۲۵ تاریخ پذیرش: ۹۸/۰۸/۱۹)

### چکیده

در این مطالعه کوآسرواسیون مرکب میان محلول کیتوزان و محلول موسیلاژ دانه بارهنگ شهری به عنوان دو پلی ساکارید با بار الکتریکی متفاوت تحت تاثیر پی اچ از ۲ تا ۸ مورد مطالعه قرار گرفت، غلظت بیوپلیمرها و نسبت بین آنها از ۱۰ تا ۹۰ و ۹۰ تا ۱۰ توسط هدایت الکتریکی و سنجش کدورت مورد ارزیابی قرار گرفت. محلول ۱ درصد بیوپلیمرها بالاترین میزان توده‌ای شدن در پی اچ حدود ۳/۷ و نسبت موسیلاژ دانه بارهنگ شهری به کیتوزان ۸۵ به ۱۵ را داشتند هدایت الکتریکی محلول ها با کاهش پی اچ در حال افزایش بود در شرایط ذکر شده برای تشکیل هیدروژل ماکزیمم اندازه ذرات حدود ۷ میکرومتر و پتانسیل زتا حدود ۵/۵ میلی ولت گزارش شد و بازده کوآسرواسیون در همین شرایط حدود ۸۷ درصد بود. هیدروژل تهیه شده برای انکپسولاسیون داروها و مواد بیواکتیو غذایی می تواند مفید باشد.

**کلید واژگان:** دانه بارهنگ شهری، کیتوزان، موسیلاژ، توده‌ای شدن مرکب، هیدروژل

\*مسئول مکاتبات: K.pirouzi.fard@yahoo.com

## ۱- مقدمه

میوه‌ای پوستینه که به صورت کپسول تخم مرغی بوده و دارای ۲ خانه و محتوی ۸-۴ دانه است قرار دارند [۳]. در آنالیز موسیلاژ بارهنگ شهری ترکیباتی همچون گلوکز، فروکتوز، گزیلور و رامنوز، پلاننتوز (C18H32O16)، آرابینوز و گالاکتورونیک اسید و گلوکورونیک اسید دیده می‌شود موسیلاژ دانه بارهنگ حدود ۸۲ درصد کربوهیدرات و ۷-۶ درصد پروتئین و ۷-۶ درصد خاکستر دارد همچنین پیکربندی پیوندها را باندهای گلیکوزیدی، گروه‌های کربوکسیل و هیدروکسیل و متیل تشکیل می‌دهد [۴]. کیتوزان یک پلی مر داستیل شده طبیعی پلی کاتیونی است که از واحدهای N-استیل-D-گلوکز آمین-D-گلوکز آمین تشکیل شده است. کیتوزان در وزن‌های ملکولی مختلف وجود دارد و دارای ویژگی‌های جالب توجهی است که به موجب آن می‌تواند کاربردهای زیادی در صنعت و به ویژه انتقال دارو داشته باشد پلی ساکارید کیتوزان در آب محلول و دارای بار مثبت است و این ویژگی از نقطه نظر تکنیکی اهمیت بسیاری دارد چراکه بسپار را قادر می‌سازد تا با بسپارهای دارای بار منفی، درشت مولکول‌ها و حتی با برخی پلی آنیون‌ها در محیط آبی برهمکنش داشته باشد. از این برهمکنش‌ها و حالت‌های گذار محلول-ژل ایجاد شده برای اهداف نانوکپسوله کردن استفاده می‌شود. از سوی دیگر کیتوزان امکان چسبیدن به سطوح مخاطی درون بدن را دارد و این سبب می‌گردد تا در دارورسانی مخاطی مورد توجه قرار گیرد [۵]. در این تحقیق بهترین حالت برای تشکیل هیدروژل بین کیتوزان و موسیلاژ دانه بارهنگ شهری و ساختار بیوپلیمر ایجاد شده مورد بررسی قرار می‌گیرد و در مطالعات بعدی هیدروژل‌های پر شده همین بیوپلیمرها مورد بحث قرار خواهند گرفت.

## ۲- مواد و روش‌ها

### ۲-۱- مواد مورد استفاده

دانه بارهنگ شهری از مرکز خرید بذور کشاورزی وابسته به جهاد کشاورزی در تبریز خریداری شد کیتوزان با وزن مولکولی متوسط، اسید استیک، هیدروکسید سدیم و هیدروکلریک اسید و سایر مواد شیمیایی از شرکت سیگما آلد ریچ خریداری شده توسط مرکز تحقیقات دارویی کاربردی تبریز تهیه شد.

هیدروژل‌ها شبکه‌های پلیمری سه بعدی با اتصالات عرضی هستند که قابلیت جذب بسیار زیاد آب یا سیالات زیستی را حتی زیر فشار دارند. این ترکیبات بدون انحلال می‌توانند مقدار زیادی آب جذب کنند. هیدروژل‌ها به روش شیمیایی یا فیزیکی شبکه‌ای می‌شوند [۱]. توجه روزافزون به هیدروژل‌های طبیعی به دلیل راحتی نسبی فرایند و نبود شبکه‌ساز در سنتز آن‌هاست، در حالی که انواع شیمیایی آن به دلیل استحکام مکانیکی خوب مورد توجه هستند. همچنین، هیدروژل‌های طبیعی به دلیل تنوع، فراوانی، ارزانی، تجدیدپذیری، سمی نبودن و نیز زیست‌تخریب‌پذیری و زیست‌سازگاری نسبت به هیدروژل‌های سنتزی بسیار جالب توجه هستند هیدروژل‌ها پرکاربردترین حامل‌های زیست‌فعال می‌باشند درون پوشانی ترکیبات غذا-دارو توسط حامل‌های لیپیدی مانند لیپوزوم‌ها، یک روش مؤثر برای حفاظت و ویژگی‌های ذاتی آنها در طی دوره نگهداری است [۱]. مفهوم کواسرواسیون توده‌ای شدن رشته‌های بیوپلیمر با هم و در مرحله بعد ادغام توده‌ها است طوری که ترکیبات زیست‌فعال مورد نظر را درون خود به دام می‌اندازند. کواسرواسیون بر دو نوع ساده و پیچیده است. در نوع ساده فقط یک بیوپلیمر شرکت دارد که معمولاً با فرایند آب‌زدایی توده‌ای می‌شود؛ اما در نوع پیچیده معمولاً دو بیوپلیمر با بار الکتریکی مختلف حضور دارد. در فرایند کواسرواسیون پیچیده در یک شرایط محیطی خاص یکی از پلیمرها بار مثبت و دیگری بار منفی پیدا می‌کند و برهمکنش الکترواستاتیکی بین آن‌ها منجر به شکل‌گیری توده‌ها می‌شود [۲]. بارهنگ (*plantago major L*) گیاه چندساله‌ای از فرمانرو نعنای سانان، تیره بارهنگیان است. بارهنگ گیاهی پایا، ظاهراً بی‌کرک یا کمی کرکپوش با بن و ریشه‌ای کوتاه است. ساقه آن به طول ۷۰-۱۰ سانتی‌متر، ایستاده یا خیزان، فاقد شیار، مساوی یا کمی بلندتر از برگ‌ها است. برگ‌های آن تماماً طوقه‌ای، تخم‌مرغی پهن با ۹-۳ رگبرگ قوی و برجسته، کامل یا در حاشیه سینوسی، بی‌کرک یا کرکپوش، دارای دم‌برگ نسبتاً بلند. گل‌ها سبز متمایل به قهوه‌ای، کوچک مجتمع در خوشه‌های دراز استوانه‌ای. موسم گلدهی گیاه اردیبهشت تا شهریورماه است. دانه‌های این گیاه تیره رنگ، کوچک و تخم‌مرغی شکل و در

## ۲-۲-۲- روش ها

## ۲-۲-۱- تهیه موسیلاژ از دانه بارهنگ شهری

جهت تمیز کردن دانه های بارهنگ، این دانه ها به صورت کامل در آب مقطر غوطه ور گشته و به مدت ۱۰ دقیقه در دمای ۴۰ درجه سانتیگراد هم زده شدند. سپس دانه های تمیز شده، به نسبت ۱ به ۲۰ با آب مقطر مخلوط شدند. دما ۶۰ درجه سانتیگراد زمان ۴۸ ساعت استفاده شد. پس از مخلوط شدن کامل دانه ها و آب مقطر در دما و زمان مشخص، از یک اکستراکتور مجهز به صفحه چرخنده (پارس خزر، ایران) جهت جدا سازی موسیلاژ از دانه ها استفاده و سپس عمل فیلتراسیون صورت گرفت. در مرحله بعد، از اتانول ۹۶ درصد به نسبت ۱ به ۳ برای رسوب دادن صمغ استخراج شده استفاده شد. موسیلاژ رسوب داده شده با پارچه کنانی فیلتر و سپس دو بار با اتانول ۷۰٪/و دو بار با اتانول ۹۶٪ در دمای ۲۵ درجه سانتیگراد به مدت ۱۰ دقیقه در هر بار شستشو داده شد. این فرآیند شست و شو جهت حذف کامل باقی مانده های احتمالی دانه ها، بهبود هر چه بیشتر رنگ موسیلاژ تولیدی و خروج مواد معدنی صورت گرفت. بعد از شستشو، صمغ استحصال شده به مدت ۱۶ ساعت در آون (فن آزما گستر، ایران) با دمای ۴۵ درجه سانتیگراد قرار داده شد. موسیلاژ خشک شده، آسیاب و پس از بسته بندی در جای خشک و خنک جهت آزمایشات بعدی نگهداری شد [۳].

## ۲-۲-۲- آماده سازی محلول کیتوزان و موسیلاژ بارهنگ شهری

کیتوزانهای با وزن ملکولی متوسط تحت شرایط استیر ملایم در ۸۰۰ rpm در محلول ۰/۵ درصد استیک اسید به مدت ۲۴ ساعت حل شد غلظت نهایی کیتوزان به یک درصد رسید غلظت نهایی برای محلول موسیلاژ بارهنگ نیز به یک درصد رسانده شد. سپس اثر pH ۲ تا ۸ روی این محلولها بررسی می شود و هدایت الکتریکی و پتانسیل زتا محلول ها اندازه گیری می شود و بیشترین تفاوت بین بارالکتریکی که در پی اچ خاصی نمایان خواهد شد به عنوان بهترین شرایط برای تشکیل بیو پلیمر مورد نظر محسوب می شود [۶].

## ۲-۲-۳- تهیه محلول بیوپلیمرها

محلولهای تهیه شده در مرحله قبلی با نسبتهای متفاوت با نسبت ۹۰ تا ۱۰ و ۹۰ تا ۱۰ مخلوط شدند. سپس تحت تاثیر پی اچ مورد نظر بدست آمده از مرحله قبل قرار گرفتند که بهترین شرایط برای کواکراسیون می باشد. در این شرایط کدورت و میزان توده ای شدن هم بررسی شد همچنین اندازه و بار الکتریکی ذرات توسط دستگاه زتاسایزر اندازه گیری شد تا بهترین شرایط برای انجام کواکراسیون مشخص شود [۶].

## ۲-۲-۴- جداسازی کواکراسیون ها

تفکیک بیوپلیمر ها بعد از ۲ ساعت پایدارسازی در دمای پایین توسط سانتریفوژ انجام شد و توسط خشک کن انجمادی خشک شد دلیل استفاده از این نوع خشک کن حفظ کیفیت بیوپلیمرها بود [۶].

## ۲-۲-۵- اندازه گیری هدایت الکتریکی

یکی از راه های ساده تعیین غلظت املاح محلول ها اندازه گیری هدایت الکتریکی است. هر چه مقدار املاح حل شده در یک محلول بیشتر باشد قابلیت هدایت الکتریکی نیز افزایش می یابد؛ به عبادت دیگر مقاومت الکتریکی آن کاهش می یابد. برای اندازه گیری هدایت بیوپلیمرها در این تحقیق از دستگاه هدایت سنج WTW استفاده شد واحد اندازه گیری بر حسب ms/cm بیان شد.

## ۲-۲-۶- تعیین اندازه ذرات و پتانسیل زتا

اندازه و توزیع اندازه ذرات و پتانسیل زتای نمونه ها در دستگاه آنالیز کننده اندازه ذرات ZS - Nano ساخت شرکت Malvern انگلستان در دمای ۲۵ درجه اندازه گیری شد. متوسط اندازه ذرات بر اساس میانگین قطر حجمی تعیین شد.

## ۲-۲-۷- کدورت

کدورت نمونه ها توسط دستگاه اسپکتروفتومتر مدل ۲۰۰۰ Ultrospec، ساخت انگلستان انجام گرفت که جذب نمونه در طول موج ۶۰۰ نانومتر اندازه گیری شد و آب دو بار تقطیر به عنوان نمونه شاهد در نظر گرفته شد.

## ۲-۲-۸- مورفولوژی هیدروژل تشکیل شده

مورفولوژی سطح نمونه های تولید شده به وسیله میکروسکوپ نوری EM3200-KYKY مورد بررسی واقع شد و آماده سازی نمونه ها با آب مقطر صورت گرفته و روی لامل تا خشک

عموما می‌توان خصوصیات یک سوسپانسیون را با درک چگونگی برهم‌کنش کلوئیدها با یکدیگر شناسایی نمود [۸]. همانطور که در شکل ۱ مشاهده شد بیشترین اختلاف بین بار در دو بیوپلیمر در پی اچ ۴ دیده شد و این پی اچ به عنوان نقطه احتمالی تشکیل کواسرواسیون تخمین زده شد که در آن بار الکتریکی موسیلاژ دانه بارهنگ شهری ۶- و محلول کیتوزان ۲۶/۶ + اندازه‌گیری بود.

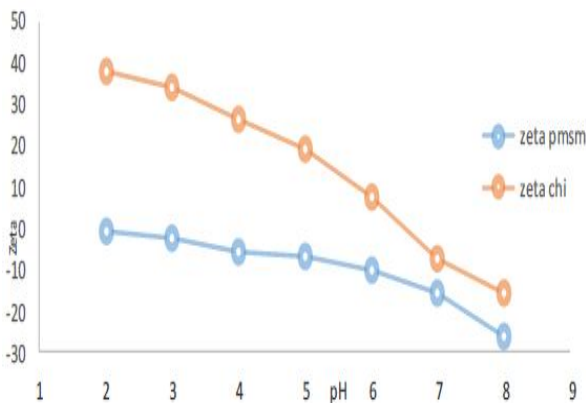


Fig 1 Zeta potential behavior against PH changes

### ۲-۳- هدایت الکتریکی و تعیین پی اچ نهایی

#### بیوپلیمرها در تشکیل هیدروژل

هدایت الکتریکی توانایی انتقال جریان الکتریکی توسط محلول را نشان می‌دهد هدایت الکتریکی معمولاً با تغییرات پی اچ تغییر می‌کند و در این آزمایش با تغییرات پی اچ بار الکتریکی و هدایت الکتریکی همزمان اندازه‌گیری شد (شکل ۲) زمانی که پی اچ محلول کیتوزان توسط محلول اسید کلریدریک به ۲ رسانده شد با توجه به آزاد شدن یونهای هیدرونیوم از ساختار کیتوزان شاهد بالاترین بار مثبت بودیم بنابراین بیشترین هدایت الکتریکی نیز در این شرایط ملاحظه شد در واقع هنگامی که کیتوزان در محلول اسید استیک حل می‌شود، گروه‌های آمینه ابتدا یون هیدروژن را از مولکول‌های اسید کربوکسیلیک جدا می‌کنند و پرتون دار شدن گروه‌های آمینه ادامه پیدا می‌کند این حالت در پی اچ بین ۷ تا ۴ ادامه می‌یابد و باعث کاهش نسبی هدایت الکتریکی می‌شود از پی اچ ۴ تا ۲/۸ تقریباً پرتون دار شدن گروه‌های آمینه تقریباً به حد اکثر مقدار خود میرسد و به طبع آن هدایت الکتریکی محلول به کمترین حد خود در پی اچ حدود

شدن کامل قرار داده شدند. تصویر برداری از نمونه‌ها با میکروسکوپ نوری صورت گرفت. از میکروسکوپ الکترونی نیز برای تصویربرداری و مشخص کردن اندازه ذرات استفاده گردید.

#### ۲-۲-۹- بازده کوآسرویت ها

بعد از تشکیل کوآسرواسیون و جداسازی سطح رویی مواد باقیمانده در بیوپلیمر را در درجه حرارت ۱۰۳ درجه سانتیگراد تا رسیدن به وزن ثابت خشک شد و از معادله زیر برای تعیین بازدهی کوآسرواسیون استفاده شد.

$$\%CY = \frac{C2}{C1} \times 100$$

که در آن CY, C2, C1 به ترتیب بازدهی کواسرواسیون، جرم هیدروژل خشک شده و جرم بیوپلیمرهای استفاده شده برای تشکیل هیدروژل می‌باشد [۷].

#### ۲-۲-۱۰- آنالیز آماری

تمامی آزمایش‌های حداقل در سه تکرار انجام می‌شود. از آنالیز واریانس یک طرفه و آزمون چند دامنه‌ای دانکن برای مقایسه میانگین‌ها در نرم افزار SPSS 2016 استفاده خواهد شد. مقایسه میانگین‌ها در سطح احتمال ۹۵٪ ( $\alpha = 0/05$ ) انجام می‌شود.

### ۳- نتایج و بحث

#### ۳-۱- رفتار بیوپلیمرها در محیط بازی و اسیدی

برای تعیین رفتار بیوپلیمرها در پی اچ‌های مختلف بار الکتریکی یا پتانسیل زتا برای هر یک از محلول‌های کیتوزان و موسیلاژ دانه بارهنگ شهری مورد سنجش قرار گرفت. پتانسیل زتا به عنوان یک پتانسیل الکتریکی در پیرامون ذرات و همچنین سلولها وجود دارد که تحقیقات زیادی در مورد این پتانسیل الکتریکی اطراف غشاء انجام شده است، سلولها در محلول به علت وجود خاصیت‌های یونی، همچنین ترکیبات سازنده غشاء (مانند پروتئینها، چربی‌ها و قندها) و پخش بار در سطح غشاء آنها دارای یک بار الکتریکی در سطح غشاء می‌باشند [۶]. گسترش بار در اطراف غشاء باعث تأثیر بر روی یونهای مجاور شده که نتیجه آن افزایش غلظت تعداد یونها (یونهای با بار الکتریکی مخالف) در فاصله نزدیک غشاء می‌شود. پتانسیل زتا برای درک و کنترل خواص سوسپانسیون‌های کلوئیدی بسیار حائز اهمیت است.

جذب که نسبت مستقیم با کدورت دارد در نسبت ۸۵ به ۱۵ مشاهده شد و در نسبت ۹۰ به ۱۰ محلول موسیلاژ بارهنگ شهری به محلول کیتوزان روند نزولی پیش گرفت. افزایش اولیه با افزایش نسبت محلول بارهنگ شهری به کیتوزان به این دلیل است که میزان کوآسرواسیون افزایش پیدا می کند اما با افزایش بیش از حد این نسبت دوباره شاهد کاهش میزان کدورت و جذب هستیم که این مساله مربوط به واکنش گروه های عاملی دو محلول است که در این شرایط توان جذب و واکنش با یکدیگر را با توجه به نوع بار الکتریکی ندارند [۸ و ۲].

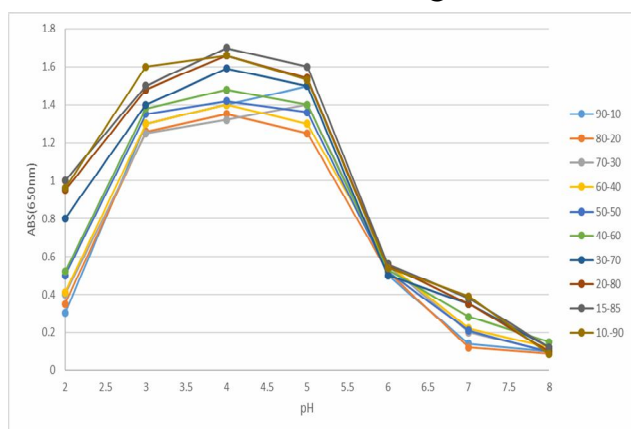


Fig 3 Turbidity variations against PH and different ratios of solutions

### ۴-۳- تصاویر میکروسکوب نوری از هیدروژل

شکل ۴ نشان دهنده تصاویر میکروسکوب نوری از هیدروژل تشکیل شده از نسبت های مختلف محلول های بارهنگ به کیتوزان هست همانطوریکه مشاهده می شود زمانیکه نسبت محلول موسیلاژ بارهنگ شهری به کیتوزان در حال افزایش هست شاهد افزایش واکنش میان این دو محلول هستیم در شکل ۴-الف نسبت موسیلاژ به کیتوزان ۸۵ به ۱۵ و در شکل ۴-ب نسبت موسیلاژ به کیتوزان ۸۰ به ۲۰ و در شکل ۴-ج نسبت این دو محلول برابر هست این تصاویر موبد این مساله هست که بهترین حالت کوآسرواسیون در نسبت ۸۵ به ۱۵ موسیلاژ دانه بارهنگ شهری به محلول کیتوزان در غلظت ثابت ۱ درصد می باشد.

۳/۷ می رسد از پی اچ ۲/۸ به طرف پی اچ های پایین تر یونهای محلول بیشتر شده و هدایت الکتریکی بیشتر می شود در مورد موسیلاژ بارهنگ شهری با توجه به اینکه یک محلول آنیونیک است هدایت الکتریکی در بالای pka محلول تقریباً ثابت و در کمتر از آن هدایت الکتریکی با افزایش یونها افزایش می یابد. با توجه به اینکه بیشترین بار در محلول کیتوزان در ۲/۸ تا ۴ دیده شد و محلول موسیلاژ بارهنگ شهری در پی اچ بالای ۲ به صورت کامل دارای بار منفی است پی اچ تقریبی ۳/۷ به عنوان بهترین شرایط برای تشکیل هیدروژل انتخاب شد.

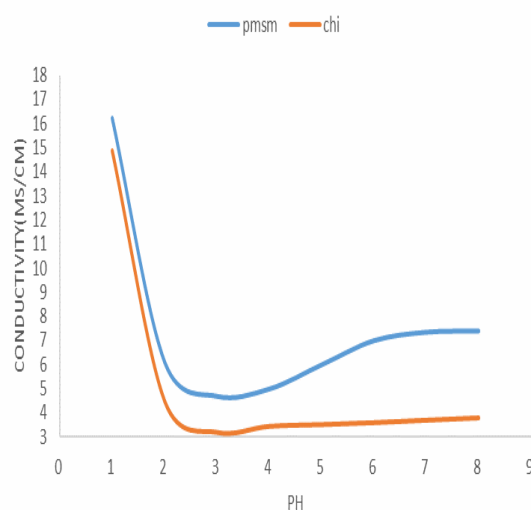


Fig 2 Electrical conductivity behavior against pH changes

### ۳-۳- سنجش کدورت و تعیین نسبت محلول ها

#### در هیدروژل

کدورت یک ویژگی فیزیکی اصلی محلول ها و بیانگر توانایی آنها در عبور دادن نور و یا معیاری برای میزان جذب نور و یا پراکندگی نور توسط مواد معلق در آنهاست [۹ و ۱۰]. نسبت بین پلی ساکاریدها یکی از فاکتورهای مهم و موثر در تعادل بار الکتریکی و واکنش الکترواستاتیک مابین آنهاست [۱۱] شکل ۳ نشان دهنده کدورت در نسبت های مختلف دو پلیمر از ۹۰ تا ۱۰ و ۱۰ تا ۹۰ است همانطوریکه ملاحظه می شود بالاترین میزان

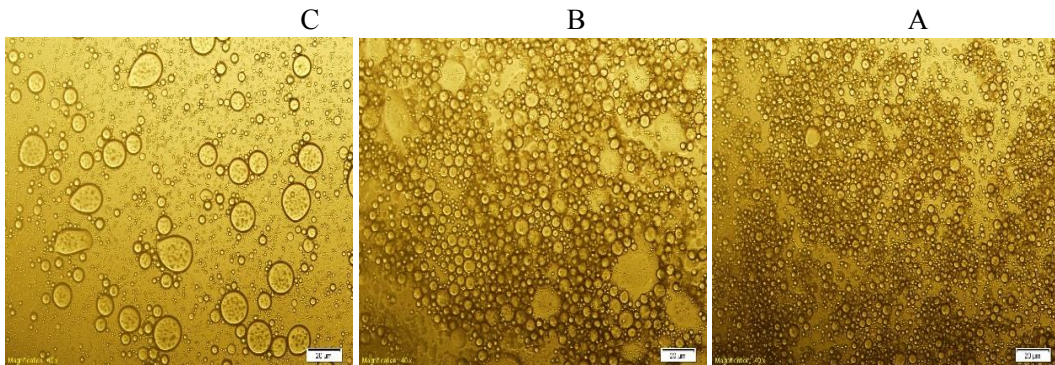
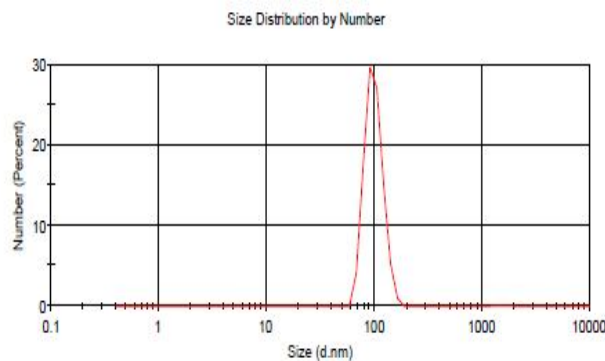


Fig 4 Optical microscope images of hydrogel formation

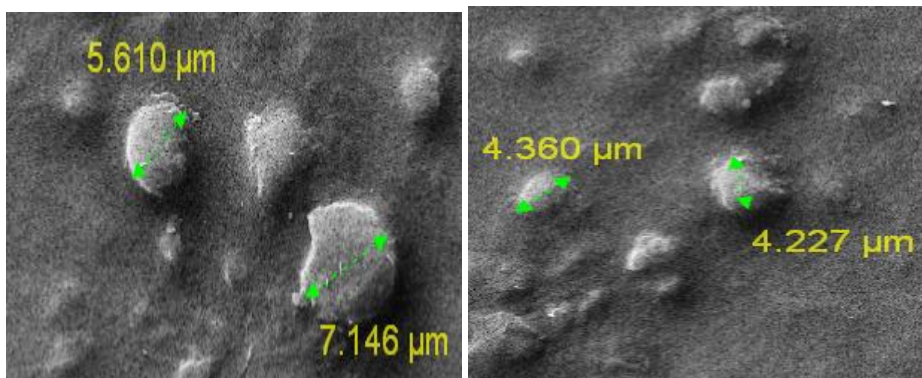
### ۳-۵- اندازه ذرات هیدروژل

در خصوص اندازه نمونه ها، با توجه به اینکه در تهیه نمونه ها از اولتراسوند پروب یا هیچ دستگاه قدرتمند هموژن کننده به دلیل اینکه ساختار هیدروژل بهم می ریخت استفاده نشد بنابراین انتظار می رفت که اندازه ذرات هیدروژل تشکیل شده بزرگ باشد و از مقیاس نانو خارج شده باشد اندازه هیدروژل تشکیل شده حدود ۹۸۷ نانومتر و بالاتر تا حدود ۷ میکرومتر گزارش شد که

این مساله با بسیاری از کارهای تحقیقاتی که در این زمینه انجام شد مطابقت داشت توزیع اندازه ذرات نمونه ها کمتر از ۰,۳ می باشد. که این مساله از جنبه های مختلفی حائز اهمیت می باشد که از مهم ترین آنها می توان به زیست دسترسی بالاتر، پایداری کلونیدی بیشتر اشاره کرد. شکل ۵-الف نشان دهنده نتایج دستگاه اندازه گیری ذرات می باشد و ۵-ب تصویر مرتبط با میکروسکوپ الکترونی روبشی می باشد.



A



B

Fig 5 Hydrogel particle size chart and scanning electron microscopy image

جمله کاربرد های آن می توان به حامل ریزمغذی ها در صنعت غذا و حامل مواد موثر دارویی در صنعت دارو اشاره کرد.

### ۵- منابع

- [1] Zhang, Z., Zhang, R., Chen, L., Tong, Q., & McClements, D. J. (2015). Designing hydrogel particles for controlled or targeted release of lipophilic bioactive agents in the gastrointestinal tract. *European Polymer Journal*, 72, 698–716.
- [2] Zhang, Z., Zhang, R., Tong, Q., Decker, E. A., & McClements, D. J. (2015). Food-grade filled hydrogels for oral delivery of lipophilic active ingredients: Temperature-triggered release microgels. *Food Research International*, 69, 274–280.
- [3] Alizadeh Behbahani, B., Shahidi, F., Yazdi, F. T., Hesarinejad, M. A., Mohebbi, M., & Mortazavi, S. A. (2017). Plantago major seed mucilage: Optimization of extraction and some physicochemical and rheological aspects. *Carbohydrate Polymers*.
- [4] Samuelsen, A. B. (2000). The traditional uses, chemical constituents and biological activities of Plantago major L. A review. *Journal of Ethnopharmacology*, 71(1–2), 1–21.
- [5] Liang, J., Yan, H., Wang, X., Zhou, Y., Gao, X., Puligundla, P., & Wan, X. (2017). Encapsulation of epigallocatechin gallate in zein/chitosan nanoparticles for controlled applications in food systems. *Food Chemistry*, 231, 19–24.
- [6] Ghadermazi, R., Asl, A. Khosrowshahi., & Tamjidi, F. (2019). Optimization of whey protein isolate-quince seed mucilage complex coacervation. *International Journal of Biological Macromolecules*, 131, 368–377.
- [7] Xu, L., Zhang, X., Zhu, C., Zhang, Y., Fu, C., Yang, B., ... Wei, Y. (2013). Nonionic polymer cross-linked chitosan hydrogel: preparation and bioevaluation. *Journal of Biomaterials Science, Polymer Edition*, 24(13), 1564–1574.
- [8] H. Espinosa-Andrews, O. Sandoval-Castilla, H. Vázquez-Torres, E.J. Vernon-Carter, C. Lobato-Calleros, Determination of the gum Arabic-chitosan interactions by Fourier

### ۳-۶- بازدهی کوآسرواسیون

جدول ۱ میزان کوآسرواسیون را در نسبت های مختلف کیتوزان نسبت به موسیلاژ دانه بارهنگ شهری را نشان می دهد و همچنین تفاوت بین درصد های مختلف در یک غلظت ثابت قابل بررسی می باشد. همانطور که در این جدول ملاحظه می شود بهترین میزان کوآسرواسیون در نسبت ۸۵ به ۱۵ محلول بارهنگ شهری به کیتوزان بدست آمد پایینتر از این نسبت و بالاتر از آن نیز واکنش بین دو پلی ساکارید و گروه های عاملی آنها رخ میدهد ولی میزان آنها متفاوت ولی کمتر از شرایط بهینه می باشد. این نتایج با نتایج تحقیقات قبلی در ارتباط با کیتوزان و صمغ عربی و همچنین کیتوزان و کربوکسی متیل سلولوز مطابقت داشت [۸ و ۱۳ و ۱۴].

**Table 1** Coacervation efficiency in different ratios of two polymers (CHI/PMSM) means with the same letter are not significantly different

CHI/PMSM Ratio	COA%
90/10	7.5 <sup>a</sup>
80/20	10 <sup>a</sup>
70/30	15.15 <sup>a</sup>
60/40	22.20 <sup>b</sup>
50/50	35 <sup>b</sup>
40/60	52.55 <sup>c</sup>
30/70	69.67 <sup>d</sup>
20/80	74.75 <sup>e</sup>
15/85	87 <sup>e</sup>
10/90	68.70 <sup>f</sup>

### ۴- نتیجه گیری کلی

با توجه به نتایج آزمایش های صورت گرفته در این تحقیق بهترین پی اچ برای تشکیل هیدروژل مابین محلول کیتوزان یک درصد و محلول موسیلاژ دانه بارهنگ شهری یک درصد حدود ۳/۷ بود که پتانسیل زتا و هدایت الکتریکی دو محلول تاییدی بر این مساله بود و بهترین نسبت بین دو محلول در غلظت ثابت نسبت ۸۵ به ۱۵ موسیلاژ به محلول کیتوزان می باشد که کدورت و بازده کوآسرواسیون این مساله را تایید کرد. همچنین بهترین بازده کوآسرواسیون حدود ۸۷ درصد و اندازه ذرات حدود ۱ میکرومتر بود. هیدروژل تولیدی می تواند مصارف مختلفی داشته باشد از

- medium, *Food Hydrocolloids*, 13 (1999), pp. 483-496.
- [12] Y.P. Timilsena, B. Wang, R. Adhikari, B. Adhikari, Preparation and characterization of chia seed protein isolate–chia seed gum complex coacervates, *Food Hydrocolloids*, 52 (2016), pp. 554-563.
- [13] Huang, G.Q., Xiao, J.X., Jia, L. and Yang, J., 2015. Complex coacervation of O-carboxymethylated chitosan and gum arabic. *International Journal of Polymeric Materials and Polymeric Biomaterials*, 64(4).198-204.
- [14] Butstraen, C. and Salaün, F., 2014. Preparation of microcapsules by complex coacervation of gum Arabic and chitosan. *Carbohydrate polymers*, 99, pp.608-616.
- Transform Infrared Spectroscopy and characterization of the microstructure and rheological features of their coacervates, *Carbohydr. Polym.*, 79 (2010), pp. 541-546.
- [9] Henley, W. F., Patterson, M. A., Neves, R. J., & Lemly, A. D. (2000). Effects of Sedimentation and Turbidity on Lotic Food Webs: A Concise Review for Natural Resource Managers. *Reviews in Fisheries Science*, 8(2), 125-139.
- [10] Madon, S. P., Schneider, D. W., Stoeckel, J. A., & Sparks, R. E. (1998). Effects of inorganic sediment and food concentrations on energetic processes of the zebra mussel, *Dreissena polymorpha*: implications for growth in turbid rivers. *Canadian Journal of Fisheries and Aquatic Sciences*, 55(2), 401-413.
- [11] C. Schmitt, C. Sanchez, F. Thomas, J. Hardy, Complex coacervation between b-lactoglobulin and acacia gum in aqueous



## Preparation of hydrogel by complex coacervation of chitosan and plantago major seed mucilage

Hamdipour, S.<sup>1</sup>, Pyrouzifard, M.<sup>2\*</sup>, Almasi, H.<sup>2</sup>, Hamishehkar, H.<sup>3</sup>

1. ph.D.student Department of Food Science and Technology, Faculty of Agriculture, Urmia university

2. Department of Food Science and Technology, Faculty of Agriculture, Urmia University, Urmia, Iran

3. Drug Applied Research Center, Tabriz University of Medical Sciences, Tabriz, Iran

(Received: 2019/09/16 Accepted:2019/11/10)

In this study, the complex coacervation of plantago major seed mucilage (PSM) and chitosan (CHI), two oppositely charged polysaccharides, was studied as a function of pH (8.0-2.0). Biopolymers concentration 1% and PSM:CHI ratio (10:90 to 90:10), according to electrical conductivity (EC) and turbidity analyses. The solution containing 1% biopolymers with PSM:CHI ratio of 85:15 resulted in maximum complex coacervation at the pH<sub>opt</sub> 3.7. The EC of biopolymers solutions increased by decreasing pH. The aforementioned optimum condition resulted coacervates with maximum particles size (7 μm) and minimum ζ-potential (+5.5 mV), which were observed as densely agglomerated macro-complexes with highest coacervation yield (87%).

These hydrogels be useful for encapsulation and delivery of drugs and (bio-) active compounds.

**Keywords:** Plantago major seed, Chitosan, Mucilage, Complex coacervation, Hydrogel

---

\* Corresponding Author E-mail address: K.pirouzifard@yahoo.com