

بهینه‌سازی تولید فیلم زیست‌تخریب‌پذیر بر پایه کربوکسی متیل سلولز و صمغ فارسی به روش سطح پاسخ

محمد مالکی¹، محمد محسن زاده^{2*}

1- دانشجوی دکتری تخصصی بهداشت مواد غذایی، دانشکده دامپزشکی، دانشگاه فردوسی مشهد، مشهد، ایران.

2- دانشیار گروه بهداشت مواد غذایی و آبزیان، دانشکده دامپزشکی، دانشگاه فردوسی مشهد، مشهد، ایران.

(تاریخ دریافت: 98/11/29 تاریخ پذیرش: 99/01/28)

چکیده

امروزه استفاده از بسته‌بندی‌های زیست‌تخریب‌پذیر بر پایه ترکیبات طبیعی بسیار مورد توجه محققان قرار گرفته است. در این پژوهش غلظت‌های مختلف صمغ فارسی (صفر، 0/25، 0/5، 0/75 و 1 درصد) با غلظت‌های مختلف کربوکسی متیل سلولز (1 و 1/5 درصد) برای بهینه‌سازی تولید فیلم زیست‌تخریب‌پذیر مورد استفاده قرار گرفت. تمام مدل‌های رگرسیونی برازش شده برای پاسخ‌های آزمون از نظر آماری در سطح 99% اطمینان معنی‌دار بودند. برای بهینه‌سازی تولید فیلم بیشترین میزان شفافیت، زاویه تماس، مقاومت کششی، میزان کشش تا نقطه پارگی و کمترین حلالیت، تورم و نفوذپذیری به بخار محاسبه گردید. نتایج حاصل از مدل نشان داد که تأثیر کربوکسی متیل سلولز و صمغ فارسی بر تمام پاسخ‌ها معنی‌دار ($P < 0.05$) بود. افزایش درصد کربوکسی متیل سلولز و صمغ فارسی باعث افزایش حلالیت، تورم، مقاومت کششی و زاویه تماس و کاهش محتوای رطوبتی، نفوذپذیری به بخار، شفافیت و میزان کشش تا نقطه پارگی گردید. بر اساس نتایج حاصل از پیش‌بینی مدل و مقایسه آن با مقادیر تجربی، کربوکسی متیل سلولز در غلظت 1/5 درصد و صمغ فارسی با غلظت 0/65 درصد بهترین نتیجه حاصل از بهینه‌سازی می‌باشد.

کلید واژگان: کربوکسی متیل سلولز، صمغ فارسی، فیلم زیست‌تخریب‌پذیر

* مسئول مکاتبات: mohsenzadeh@um.ac.ir

1- مقدمه

مواد غذایی همیشه در معرض انواع فسادهای شیمیایی، میکروبی و فیزیکی قرار دارند. بسته‌بندی مواد غذایی نقش مهمی در کنترل تغییرات نامطلوب در طول دوره نگهداری ایفا می‌کند [1] که منجر به افزایش زمان ماندگاری و حفظ خصوصیات کمی و کیفی محصولات می‌شود. برای به تعویق انداختن فساد میکروبی و شیمیایی در غذا و کاهش خطر ابتلا به بیماری‌های با منشأ غذایی، استفاده از فیلم‌های زیست‌تخریب‌پذیر موردعلاقه محققان قرار گرفته است [2].

مواد بسته‌بندی بر پایه مواد نفتی به دلیل ارزان بودن، مقاومت کششی خوب و در دسترس بودن از دیرباز به مقدار زیادی مورداستفاده قرار می‌گرفته است. همچنین عدم زیبایی ناشی از انباشت مواد پلاستیکی و عدم زیست‌تخریب‌پذیر بودن آن‌ها یک معضل جهانی می‌باشد [3]. افزایش تقاضای مردم برای استفاده از مواد دوست دار طبیعت و زیست‌تخریب‌پذیر در دهه اخیر منجر به تولید فیلم‌های زیست‌تخریب‌پذیر گردید. مهم‌ترین این مواد پلی ساکاریدها، پروتئین‌ها و لیپیدها هستند که می‌توانند به صورت تکی یا در ترکیب با یکدیگر به کار روند [4]. این مواد دارای خصوصیات حسی خوب، قابلیت زیست‌تخریب‌پذیری و عدم نفوذپذیری به بخار آب می‌باشند [5]. در میان پلیمرهای طبیعی، پلی ساکاریدها به دلیل خصوصیات حرارتی خوب، فراوانی و قیمت مطلوب یکی از بهترین جایگزین‌ها برای مواد پلاستیکی در نظر گرفته می‌شوند [5, 6]. فیلم‌های مختلفی بر پایه‌های پلی ساکاریدی مانند ذرت [7] برنج [8] و کاساوا [9] تولید شده است. کربوکسی متیل سلولز¹ (CMC) پلی ساکارید آنیونی و از مشتقات سلولز است که دارای خصوصیات فیلم دهنده خوبی می‌باشد [10]. CMC بدون رنگ، غیر سمی و از مواد گرس² محلول در آب و دارای محلول تشکیل‌دهنده فیلم پایدار و یکنواخت است ولی خصوصیات مکانیکی ضعیفی دارد ولی در صنایع غذایی و دارویی بسیار مورداستفاده قرار می‌گیرد [11, 12].

صمغ فارسی³ (PG) یا زدو صمغی شفاف از تراوش‌های درخت

بادام‌کوهی (*Amygdalus scoparia spach*) می‌باشد [13, 14]. در ایران به‌طور طبیعی و خودرو رشد می‌کند. دارای 3 تا 13 درصد رطوبت است و خاصیت فعالیت سطحی و امولسیفایری بسیار مطلوبی نسبت به سایر صمغ‌ها دارد. صمغ زدو یک هیدرو کلئوئید آنیونی با مقدار پروتئین کم و ظرفیت جذب آب بالا می‌باشد. دارای دو منوساکارید اصلی آرابینوز و گالاکتوز می‌باشد. خواص عملکردی صمغ فارسی وابسته به وزن مولکولی و ساختار آن است [13]. در سال‌های اخیر استفاده از روش سطح پاسخ به‌طور گسترده‌ای برای توسعه، بهبود و بهینه‌سازی فرایندهای غذایی استفاده می‌شود [15]. رویکرد اصلی و چهارچوب استفاده از این طرح بهینه‌سازی پاسخ‌های متعدد می‌باشد. روش سطح پاسخ یکی از مدل‌های آماری است که اثرات چندین متغیر را بر پاسخ‌های مختلف بررسی می‌کند [16]. هدف از انجام این پژوهش بهینه‌سازی تولید فیلم زیست‌تخریب‌پذیر با غلظت‌های مختلف CMC و صمغ فارسی با استفاده از روش سطح پاسخ و تولید فیلم با بهترین خصوصیات فیزیکی و مکانیکی می‌باشد.

2- مواد و روش‌ها**2-1- مواد**

نمک سدیم کربوکسی متیل سلولز ویسکوزیته متوسط (مرک، آلمان)، صمغ فارسی (ریحان گام پارسیان، اصفهان، ایران)، گلیسرول و سایر مواد مصرفی از شرکت مرک آلمان تهیه گردید.

2-2- آماده‌سازی صمغ فارسی

روشن‌ترین و سفیدترین صمغ‌های فارسی بدون رطوبت و مواد خارجی انتخاب شدند و توسط آسیاب مکانیکی کاملاً پودر گردید. سپس توسط الک با مش 100 الک گردید و ذرات کمتر از 150 میکرون جدا شدند.

2-3- طراحی آزمون

طرح‌ریزی تیمارهای پژوهش توسط نرم‌افزار دیزاین اکسپرت ورژن (8,0,7,1) و روش سطح پاسخ طرح باکس-بنکن⁴ انجام پذیرفت. متغیرهای مستقل شامل غلظت کربوکسی متیل سلولز

1. Carboxymethyl Cellulose

2. Gras

3. Persian Gum

4. Box-Behnken

میلی‌متر در ابعاد 2×2 سانتی‌متر برش خورد و در آن 105 درجه سانتی‌گراد به مدت 24 ساعت برای محاسبه وزن خشک نگهداری گردید (W_i). فیلم‌ها در 50 میلی‌لیتر آب به مدت 6 ساعت در انکوباتور شیکر در 25 درجه سانتی‌گراد نگهداری شد. در مرحله بعد فیلم در آن 105 درجه به مدت 24 ساعت به طور کامل خشک گردید (W_f) و بر اساس فرمول (1) درصد حلالیت در آب ($S(\%)$) تعیین گردید [18].

$$S(\%) = \frac{W_i - W_f}{W_i} \times 100 \quad (1)$$

2-6- ضخامت

ضخامت کلیه فیلم‌ها با میکرومتر دیجیتال در 5 نقطه فیلم به طور تصادفی گرفته شد و میانگین ضخامت گزارش گردید.

2-7- میزان تورم فیلم⁶

فیلم‌ها در ابعاد 2×2 سانتی‌متر برش خورد و به مدت 24 ساعت در آن دارای گردش هوا در دمای 105 درجه سانتی‌گراد خشک گردید (W_i). سپس به مدت 6 ساعت در 50 میلی‌لیتر آب در دمای اتاق غوطه‌ور گردید. در مرحله بعد فیلم از آب بیرون آورده شد و با کاغذ جاذب رطوبت، آب سطحی گرفته شد و میزان وزن مرطوب تعیین گردید (W_f). بر اساس فرمول (2) میزان حلالیت در آب ($SW(\%)$) محاسبه شد [18].

$$SW(\%) = \frac{W_f - W_i}{W_i} \times 100 \quad (2)$$

2-8- نفوذپذیری به بخار آب (WVP^7)

این پارامتر طبق روش استاندارد ASTM E96 - 95 انجام گرفت. در این روش فنجانک‌هایی به قطر یک سانتی‌متر و عمق 3/5 سانتی‌متر تهیه گردید. تمام نمونه‌ها در رطوبت نسبی 65 ± 2 درصد برای 48 ساعت در دمای 25 درجه سانتی‌گراد نگهداری شدند. سپس 2/5 گرم سلیکاژل آنهیدروز (رطوبت نسبی صفر درصد) در هر فنجانک ریخته شد و با فیلم‌های تیمار به‌طور کامل پوشانیده شد. فنجانک‌ها در دسیکاتور حاوی یک لیوان محلول اشباع K_2SO_4 نگهداری گردید. محلول اشباع K_2SO_4 در داخل دسیکاتور رطوبت نسبی 98 درصد را ایجاد کرد. تغییرات وزن ظرف هر 8 ساعت به‌طور متمادی اندازه‌گیری شد و سپس شیب با استفاده از معادله رگرسیون خطی (تغییرات وزن در مقابل

1 و 1/5 درصد) و غلظت صمغ فارسی (صفر، 0/25، 0/5، 0/75 و 1 درصد) در نظر گرفته شد. متغیرهای وابسته‌ی شفافیت، حلالیت، نفوذپذیری به بخار، مقاومت کششی، میزان کشش تا نقطه پارگی، تورم و زاویه تماس مورد ارزیابی قرار گرفتند. برای بهینه‌سازی تولید فیلم، بیشترین شفافیت، زاویه تماس، مقاومت کششی، میزان کشش تا نقطه پارگی و کمترین حلالیت، تورم و نفوذپذیری به بخار محاسبه گردید.

2-4- تهیه فیلم

تهیه فیلم طبق روش محمدی و همکاران (2019) با کمی تغییر انجام شد. ابتدا صمغ فارسی پودر شده در غلظت‌های مختلف با 100 میلی‌لیتر آب در دمای 50 درجه سانتی‌گراد به مدت یک ساعت به طور کامل مخلوط گردید و سپس برای 24 ساعت در دمای 4 درجه سانتی‌گراد جهت کامل شده عمل جذب آب قرار داده شد [17]. بر اساس مقادیر به‌دست‌آمده در پیش تیمار مقدار 1 و 1/5 گرم CMC به 100 میلی‌لیتر آب در دمای 60 درجه سانتی‌گراد اضافه شد و به مدت 15 دقیقه توسط همزن مخلوط گردید. بر اساس تیمار بندی توسط نرم‌افزار دیزاین اکسپرت دو محلول صمغ فارسی و CMC با هم مخلوط شدند و به مدت 15 دقیقه در دمای 50 درجه سانتی‌گراد هم زده شدند. گلیسرول به میزان 40 درصد وزن ماده خشک اضافه گردید و به مدت 20 دقیقه برای مخلوط شدن مناسب پلاستی سائزر در دمای 50 درجه سانتی‌گراد هم زده شد. برای خروج حباب هوا از حمام اولتراسوند مدل (Schaper Unique USC 25KHz) با فرکانس 25KHz و شدت میدان 100w به مدت 15 دقیقه استفاده گردید. پس از خروج حباب‌های هوا محلول فیلم در پلیت‌های 10 سانتی‌متری ریخته شد و به مدت 24 ساعت در 37 درجه سانتی‌گراد در خشک‌کن هوای داغ (سروش طب، تهران، ایران) خشک گردید. فیلم‌ها در دسیکاتور با دمای 25 درجه سانتی‌گراد و رطوبت نسبی 58 درصد برای 2 روز جهت مشروط شدن قبل از انجام آزمون‌ها قرار گرفت.

2-5- حلالیت فیلم در آب⁵

درصد حلالیت فیلم‌ها طبق روش آذری فر و همکاران 2019 با کمی تغییر انجام شد. در این روش فیلم‌ها با ضخامت 0/1

6. Swelling

7. Water Vapor Permeability (WVP)

5. Water Solubility

استفاده شد. سپس فیلم‌ها در دیواره شفاف سل قرار داده شدند. شفافیت از رابطه 6 محاسبه شد که در آن A_{600} میزان جذب در طول موج 600 نانومتر و X ضخامت فیلم برحسب میلی‌متر می‌باشد.

$$\text{Transparency} = \frac{A_{600}}{X} \quad (6)$$

12-2- بهینه‌سازی فیلم

پس انجام آزمون‌ها، تعیین بهترین شرایط تولید فیلم و تعیین نقطه بهینه طبق جدول شماره 1 انجام گرفت.

Table 1 Selected points for biodegradable film optimization

Factor Name	Goal	Importance
CMC	In range	
PG	In range	
WVP (g/mhPa)	Minimize	4
Transparency	Maximize	3
Solubility in water (%)	Minimize	3
TS (MPa)	Maximize	3
EB (%)	Maximize	3
Contact angle (Θ)	Maximize	1
Swelling (%)	Minimize	2

13-2- آزمون صحت مدل

بر اساس نتایج به‌دست‌آمده در نرم‌افزار دیزاین اکسپرت فیلم بهینه‌شده تولید گردید و نتایج آزمون‌ها با مدل پیش‌بینی‌شده موردسنجش قرار گرفت.

14-2- آنالیز آماری

تجزیه و تحلیل آماری با استفاده از نرم‌افزار آماری دیزاین اکسپرت ورژن (8,0,7,1) در سطح معنی‌داری 5 درصد ($P < 0.05$) در سه تکرار انجام شد. پس از برازش مدل چند جمله‌ای درجه دوم، تمام رابطه‌های بدست‌آمده در معرض الگوریتم حذف پس‌خور قرار گرفتند و جمله‌هایی که از نظر آماری معنی‌دار نبودند حذف شدند، در نتیجه تعداد جملات مدل کاهش یافت که این مدل را مدل درجه دوم کاسته شده گویند.

3- نتایج و بحث

1-3- ضخامت

ضخامت فیلم با افزایش درصد صمغ فارسی و نسبت به نمونه کنترل به‌طور معنی‌داری ($P < 0.05$) افزایش یافت (شکل 1) که

زمان محاسبه گردید و در انتها میزان نفوذپذیری به بخار (g/mhPa) بر اساس فرمول (3) محاسبه شد [19].

$$WVP = \frac{WVTR}{P(R_1 - R_2) \times X} \times 100 \quad (3)$$

که در آن سرعت عبور بخار آب (WVTR) به عنوان شیب

(g/h) تقسیم بر مساحت سطح فیلم (m^2) تعریف می‌شود. P

فشار بخار اشباع آب (Pa) در دمای آزمایش (25 درجه

سانتی‌گراد) و R_1 رطوبت نسبی در دسیکاتور، R_2 رطوبت نسبی

نفوذ کرده به ظرف و X ضخامت فیلم (m) می‌باشد.

9-2- زاویه تماس Θ

زاویه تماس آب مقطر روی سطح فیلم با استفاده از دستگاه گونیومتر (مدل Kruss G10 ساخت آلمان) تعیین شد. برای این منظور مقدار 5 میکرو لیتر آب مقطر وارد سرنگ شد و سپس روی سطح فیلم قرار گرفت. اندازه‌گیری زاویه تماس در دمای 25 درجه سانتی‌گراد با حداقل 6 تکرار برای هر نمونه صورت گرفت [20].

10-2- بررسی ویژگی‌های مکانیکی فیلم

آزمون‌های مکانیکی شامل مقاومت کششی (TS) (فرمول 4) و میزان کشش تا نقطه پارگی (EB) (فرمول 5) بر اساس روش استاندارد ASTM D882-91 با استفاده از دستگاه بافت سنج (Lloyd Instruments Texture Analyser, Plus T) انجام گرفت. فیلم‌ها به ابعاد 1×10 سانتی‌متر بریده شد و بین دو فک دستگاه به فاصله 5 سانتی‌متر قرار گرفتند. میزان نیروی اولیه 5 کیلونیوتون و سرعت 5 میلی‌متر بر دقیقه تا نقطه پارگی تعیین شد. آزمون در سه تکرار انجام شد.

$$100 \times \frac{\text{نیروی لازم برای پاره شدن (N)}}{\text{مقاومت کشش فیلم (MPa)}} = \text{عرض فیلم (m)} - \text{ضخامت فیلم (m)}$$

$$100 \times \frac{\text{میزان ازدیاد فیلم تا نقطه پارگی فیلم (mm)}}{\text{میزان کشسانی (\%)}} = \text{فاصله بین دو فک دستگاه (mm)}$$

11-2- مقدار شفافیت فیلم

میزان ممانعت‌کنندگی فیلم‌ها در برابر نور مرئی با استفاده از اسپکتروفوتومتر (CAMSPEC M550- آلمان) در طول موج 600 نانومتر تعیین شد. در این روش فیلم‌ها در اندازه 1×4 سانتی‌متر بریده شدند. برای کالیبر کردن دستگاه از سل خالی

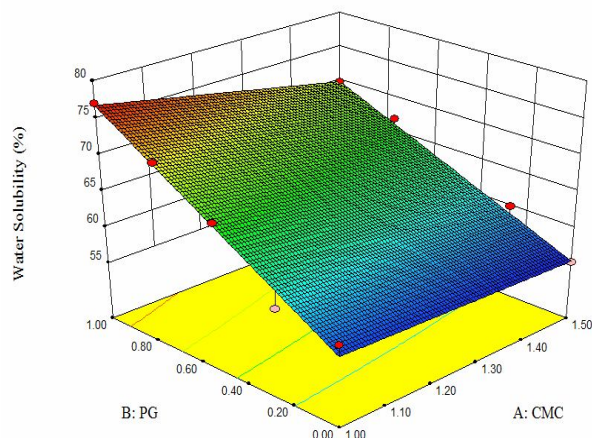


Fig 2 Response surface and contour plots for Water Solubility

3-3- محتوای رطوبتی و تورم

میزان تورم فیلم یکی از پارامترهای مهم برای پیش‌بینی ثبات و پایداری فیلم در طول دوره نگهداری می‌باشد [5, 24]. نتایج نشان داد که اثر کربوکسی متیل سلولز و صمغ فارسی بر نسبت تورم و محتوای رطوبتی معنی ($P < 0.05$) دارد بود و با افزایش درصد صمغ فارسی نسبت تورم افزایش (شکل 3) و محتوای رطوبتی (شکل 4) کاهش یافت. طبق پیشنهاد اختر و همکاران (2018) پلی ساکارید ممکن است باعث ایجاد برهمکنش با مولکول‌های کربوکسی متیل سلولز از طریق پیوند هیدروژنی شود که این باعث کاهش تعامل بین مولکول‌های آب و گروه‌های هیدروفیل CMC می‌شود و موجب کاهش محتوای رطوبتی و افزایش درصد تورم می‌شود که با نتایج قنبرزاده و همکاران (2011) و ریاز و همکاران (2018) مطابقت دارد [5, 7, 25].

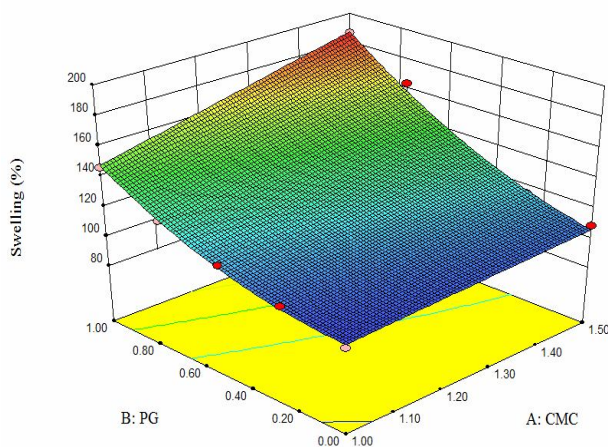


Fig 3 Response surface and contour plots for Swelling

با مطالعات کارنیو و همکاران (2009) مطابقت داشت [21]. این افزایش ضخامت احتمالاً به خاطر افزایش میزان رطوبت موجود در فیلم ناشی از طبیعت آب‌دوست صمغ می‌باشد، که باعث تورم فیلم، و افزایش ضخامت می‌گردد. افزایش ضخامت فیلم ناشی از برهمکنش صمغ فارسی و CMC (نیروهای هیدروفوب و پیوندهای هیدروژنی) است که موجب اتصالات محکم‌تر صمغ فارسی و CMC می‌شود [5].

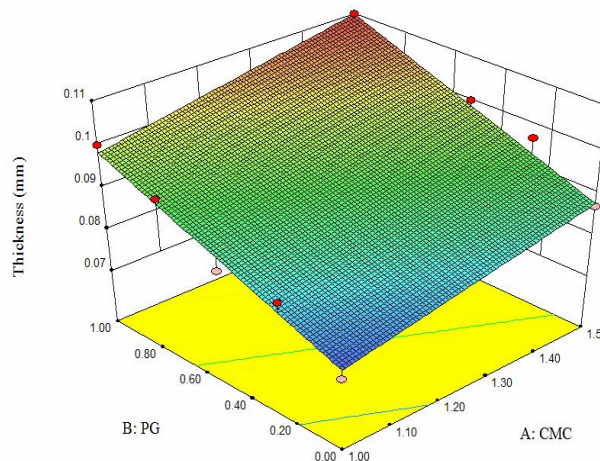


Fig 1 Response surface and contour plots for Thickness

3-2- حلالیت

حلالیت از پارامترهای فیزیکی مهم فیلم‌های بسته‌بندی زیست‌تخریب‌پذیر برای حفظ ماده غذایی در طول دوره نگهداری می‌باشد. هرچه میزان حلالیت فیلم کمتر باشد نشان‌دهنده خصوصیات بهتر فیلم می‌باشد. نتایج نشان داد که با افزایش درصد صمغ فارسی میزان حلالیت به‌طور معنی‌داری ($P < 0.05$) افزایش یافت. افزایش غلظت صمغ فارسی موجب افزایش مصرف گلیسرول می‌شود و گلیسرول فعل و انفعالات بین مولکول‌های پلیمر را کم می‌کند و به دلیل خاصیت هیدروفیلی حلالیت افزایش می‌یابد [22]. کربوکسی متیل سلولز و صمغ فارسی به دلیل داشتن گروه‌های هیدروفیل فراوان در ساختار شیمیایی و زنجیره‌های پلیمری به‌راحتی باعث افزایش درصد حلالیت می‌شوند که با نتایج خضولو و همکاران (2019) برای صمغ فارسی و بالستروس و همکاران (2018) برای پلی ساکارید گرانول‌های قهوه مطابقت دارد [5, 12, 23].

5-3- مقدار شفافیت

شفافیت از پارامترهای مهم و تأثیرگذار برای استفاده از فیلم‌های زیست‌تخریب‌پذیر می‌باشد. افزودن صمغ فارسی و افزایش غلظت CMC به فیلم زیست‌تخریب‌پذیر به طور معنی‌داری ($P < 0.05$) باعث کاهش مقدار شفافیت فیلم‌ها شد که با نتایج هزینه و همکاران (2016) مطابقت داشت [29] (شکل 6). طبق پیشنهاد خضولو و همکاران (2019) افزایش ماده جامد ناشی از افزایش صمغ فارسی به دلیل حضور گروه‌های آنیونی آرابینوگالاتان و واکنش‌های بین پروتئین-پلی‌ساکارید صمغ فارسی می‌باشد، همچنین ایجاد شبکه بین صمغ فارسی و CMC باعث کاهش عبور نور و در نتیجه کاهش شفافیت می‌شود [23].

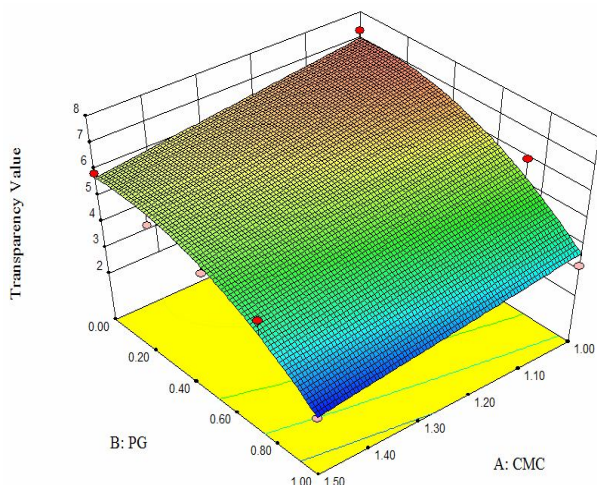


Fig 6 Response surface and contour plots for Transparency Value

6-3- ویژگی‌های مکانیکی

حداکثر استحکام کششی (TS) و میزان کشش تا نقطه پارگی (EB) از پارامترهای مهم فیلم‌های بسته‌بندی می‌باشد که تضمین‌کننده محافظت از محصول در طول دوره نگهداری تا مصرف می‌باشد. اثر صمغ فارسی و کربوکسی متیل سلولز بر این دو پارامتر معنی‌دار ($P < 0.05$) بود و با افزایش درصد صمغ فارسی حداکثر استحکام کششی افزایش (شکل 7) و میزان کشش تا نقطه پارگی کاهش (شکل 8) یافت. خصوصیات مکانیکی فیلم‌ها مرتبط با میکرو ساختار، شبکه فیلم و نیروهای بین‌مولکولی می‌باشد. این تغییرات ناشی از برهمکنش بین

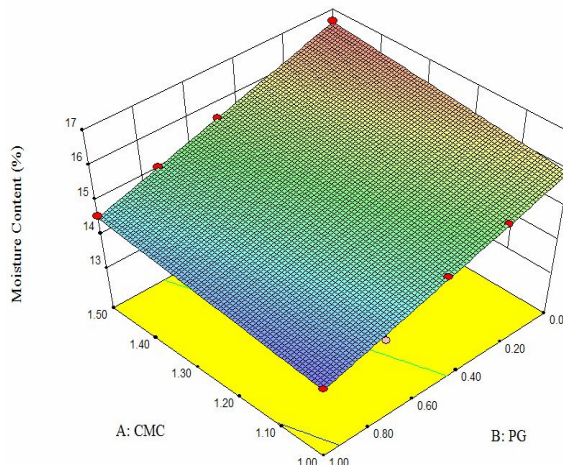


Fig 4 Response surface and contour plots for Moisture Content

4-3- نفوذپذیری به بخار آب

مهم‌ترین نقش فیلم محافظت ماده غذایی از اتمسفر اطراف آن می‌باشد. فیلم مناسب فیلمی است که انتقال رطوبت بین محیط اطراف و ماده غذایی را به حداقل کاهش دهد. نتایج نشان داد که افزودن و افزایش درصد صمغ فارسی به فیلم CMC به طور معنی‌داری ($P < 0.05$) باعث کاهش نفوذپذیری به بخار فیلم می‌شود (شکل 5) که با نتایج حسینی و همکاران (2013) و جوکی و همکاران (2013) مطابقت دارد [26, 27]. وجود صمغ فارسی و گلیسرول باعث ایجاد پیوندهای عرضی زیادی می‌شود و موجب ایجاد برهمکنش‌های جدیدی بین ماتریکس فیلم و مولکول‌های آب می‌شود. همچنین افزایش ضخامت ناشی از افزودن صمغ فارسی باعث افزایش مدت‌زمان عبور آب از فیلم می‌شود [28].

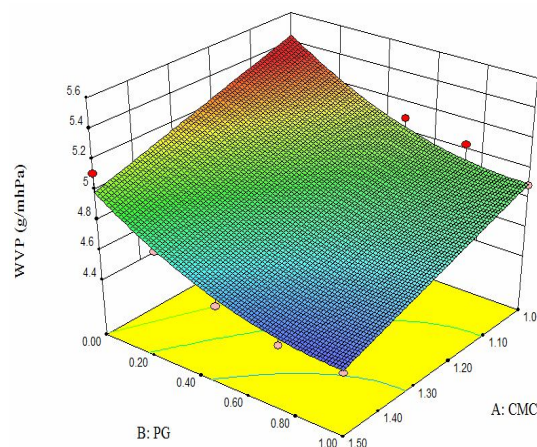


Fig 5 Response surface and contour plots for Water Vapor Permeability

پذیری سطح خواهد بود. فرایند نمودار شدن توسط اندازه‌گیری زاویه تماس که نقطه مجزا با سطح جامد می‌سازد ارزیابی می‌گردد. زاویه تماس با افزودن صمغ فارسی به‌طور معنی‌داری ($P < 0.05$) افزایش پیدا کرد (شکل 9) که نشان‌دهنده خواص بهتر فیلم حاوی صمغ فارسی است. وجود درصد بیشتر صمغ فارسی و در نتیجه مقدار بیشتر گلیسرول باعث افزایش زاویه تماس شد که با نتایج بالستروس و همکاران (2018) مطابقت داشت [12].

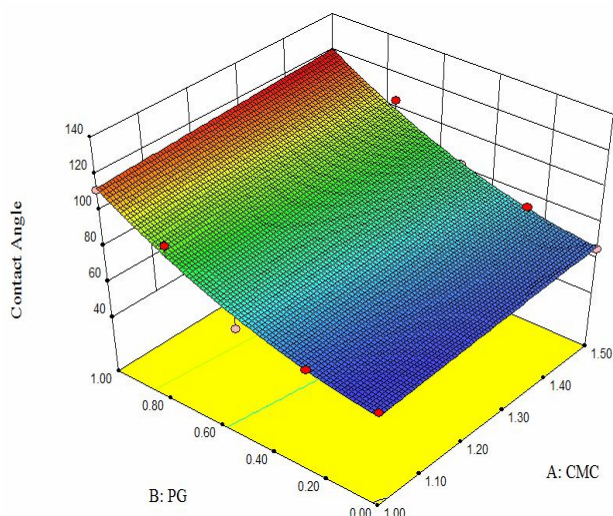


Fig 9 Response surface and contour plots for Contact Angle

3-8- بهینه‌سازی تولید فیلم

بر اساس روش‌های آذری فر و همکاران (2019) و خضرلو و همکاران (2019) و مطابق جدول شماره 1، فیلم تولیدی بهینه‌سازی شد و نتایج نشان داد که بهترین شرایط برای تولید فیلم کربوکسی متیل سلولز به همراه صمغ فارسی، میزان 1/5 درصد کربوکسی متیل سلولز و 0/65 درصد صمغ فارسی می‌باشد [23, 18].

3-9- آزمون صحت مدل

برای تعیین مناسب بودن مدل‌های پیش‌بینی‌شده برای هر پاسخ، آزمون صحت طبق شرایط بهینه انجام شد. بهترین مدل، مدلی است که مقادیر پیش‌بینی‌شده (توسط مدل) به مقادیر تجربی به‌دست‌آمده در آزمون صحت نزدیک باشد. نزدیک بودن این اعداد به هم نشان‌دهنده مناسب و قابل‌قبول بودن مدل می‌باشد. نتایج آزمون (جدول 2) نشان داد که مدل از قابلیت بالایی برای پیش‌بینی برخوردار است.

گروه‌های کربوکسیل CMC و گروه‌های هیدروکسیل صمغ فارسی می‌باشد همچنین با افزایش غلظت صمغ فارسی، میزان استفاده از گلیسرول نیز به همان نسبت افزایش یافت که بر اساس نفوذ ریز مولکول‌های گلیسرول به ساختمان پلیمر و کاهش اتصالات بین زنجیره‌ای، میزان کشش افزایش و میزان کشش تا نقطه پارگی کاهش یافت که با نتایج هو و همکاران (2016) و ابراهیم‌زاده و همکاران (2016) مطابقت دارد [30, 31].

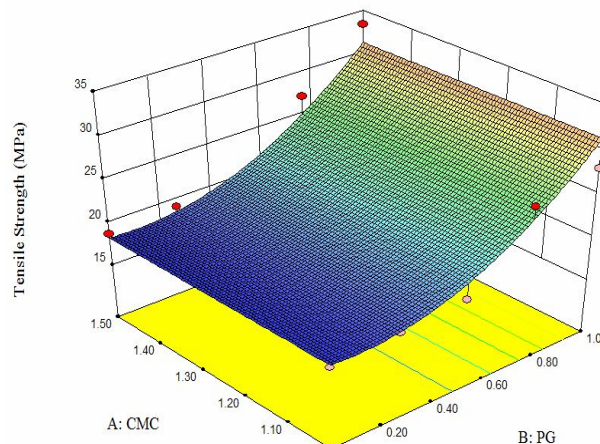


Fig 7 Response surface and contour plots for Water Tensile Strength

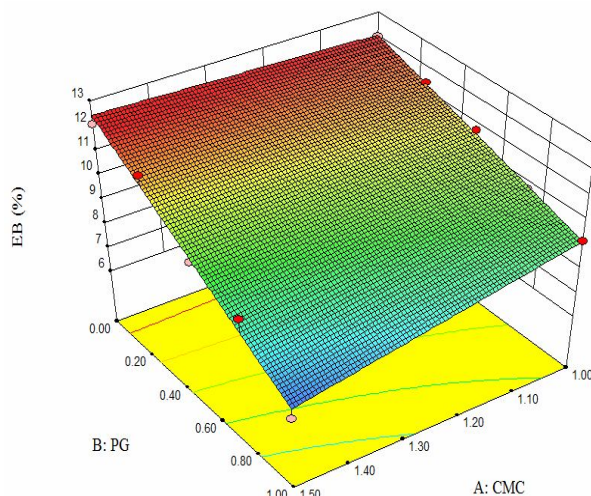


Fig 8 Response surface and contour plots for Elongation at Brake

3-7- زاویه تماس

زاویه تماس عبارت است از زاویه‌ای که از تقاطع دو خط مورب به سطح مایع و جامد در محل تماس با فاز سوم (بخار یا هوا) تشکیل می‌شود. شرایط نهایی مایع روی سطح نشان‌دهنده نم

Table 2 Predicted and experimental data for the responses at optimum point.

Responses	Predicted value	Experimental value
WVP (g/mhPa)	4.51	4.64
Transparency	4.7	4.5
Solubility in water (%)	68.85	65.2
TS (MPa)	23	22
EB (%)	8.9	9
Contact angle (Θ)	93.44	97
Swelling (%)	148	145

food-grade biopolymers. *Journal of Food Science and Technology*, 55(11): p. 4369-4383.

- [4] de Léis, C.M., et al., (2017). Environmental and energy analysis of biopolymer film based on cassava starch in Brazil. *Journal of Cleaner Production*, 143: p. 76-89.
- [5] Akhtar, H.M.S., et al. (2018), Production and characterization of CMC-based antioxidant and antimicrobial films enriched with chickpea hull polysaccharides. *Int J Biol Macromol*, 118(Pt A): p. 469-477.
- [6] Suriyatem, R., R.A. Auras, and P. Rachtanapun, (2019). Utilization of Carboxymethyl Cellulose from Durian Rind Agricultural Waste to Improve Physical Properties and Stability of Rice Starch-Based Film. *Journal of Polymers and the Environment*, 27(2): p. 286-298.
- [7] Ghanbarzadeh, B., H. Almasi, and A.A. Entezami, (2011). Improving the barrier and mechanical properties of corn starch-based edible films: Effect of citric acid and carboxymethyl cellulose. *Industrial Crops and Products*, 33(1): p. 229-235.
- [8] Bourtoom, T. and M.S. Chinnan, (2008). Preparation and properties of rice starch-chitosan blend biodegradable film. *LWT-Food Science and Technology*, 41(9): p. 1633-1641.
- [9] Tongdeesontorn, W., et al. (2011), Effect of carboxymethyl cellulose concentration on physical properties of biodegradable cassava starch-based films. *Chemistry Central Journal*, 5(1): p. 6.
- [10] Muppalla, S.R., et al. (2014), Carboxymethyl cellulose-polyvinyl alcohol films with clove oil for active packaging of ground chicken meat. *Food Packaging and Shelf Life*, 2(2): p. 51-58.
- [11] Gregorová, A., et al. (2015), Hydrothermal effect and mechanical stress properties of carboxymethylcellulose based hydrogel food packaging. *Carbohydrate Polymers*, 117: p.

4- نتیجه‌گیری کلی

در این پژوهش اثر صمغ فارسی در چهار سطح و درصد کربوکسی متیل سلولز در دو سطح بر برخی خصوصیات فیلم تولیدی از این دو ماده مورد بررسی قرار گرفت. نتایج حاصل از آزمون‌های مختلف و بهینه‌سازی با استفاده از نرم‌افزار دیزاین اکسپرت نشان داد که افزایش درصد کربوکسی متیل سلولز و صمغ فارسی باعث افزایش حلالیت، تورم، مقاومت کششی و زاویه تماس و کاهش محتوای رطوبتی، نفوذپذیری به بخار، شفافیت و میزان کشش تا نقطه پارگی می‌گردد و بهترین نقطه مقدار 1/5 درصد کربوکسی متیل سلولز و 0/65 درصد صمغ فارسی می‌باشد. با مقایسه نتایج حاصل از مدل پیش‌بینی شده و آزمون‌های تجربی، فیلم تولید شده بهینه‌شده کارایی مناسبی برای استفاده در مواد غذایی مختلف دارد؛ و به‌عنوان پیشنهاد مرحله بعد از این استفاده از ترکیبات ضد میکروبی در ساختار فیلم بهینه‌شده و بررسی کارایی آن برای نگه‌داری مواد غذایی مختلف می‌باشد.

5- منابع

- [1] Samsi, M.S., et al. (2019), Synthesis, characterization and application of gelatin-carboxymethyl cellulose blend films for preservation of cherry tomatoes and grapes. *Journal of Food Science and Technology*, 56(6): p. 3099-3108.
- [2] Hasheminya, S.-M., et al. (2019), Development and characterization of biocomposite films made from kefiran, carboxymethyl cellulose and Satureja Khuzestanica essential oil. *Food Chemistry*, 289: p. 443-452.
- [3] Dhumal, C.V. and P. Sarkar, (2018). Composite edible films and coatings from

- [22] Sánchez-González, L., et al.,(2010). Physical properties of edible chitosan films containing bergamot essential oil and their inhibitory action on *Penicillium italicum*. *Carbohydrate Polymers*,. 82(2): p. 277-283.
- [23] Khezerlou, A., et al.,(2019). Development and characterization of a Persian gum-sodium caseinate biocomposite film accompanied by *Zingiber officinale* extract. *Journal of Applied Polymer Science*,. 136(1).
- [24] Srinivasa, P., M. Ramesh, and R. Tharanathan,(2007). Effect of plasticizers and fatty acids on mechanical and permeability characteristics of chitosan films. *Food Hydrocolloids*,. 21(7): p. 1113-1122.
- [25] Riaz, A., et al.,(2018). Preparation and characterization of chitosan-based antimicrobial active food packaging film incorporated with apple peel polyphenols. *International Journal of Biological Macromolecules*,. 114: p. 547-555.
- [26] Hosseini, S.F., et al.,(2013). Preparation and functional properties of fish gelatin-chitosan blend edible films. *Food Chemistry*,. 136(3-4): p. 149-1495-1.
- [27] Jouki, M., et al.,(2013). Physical, barrier and antioxidant properties of a novel plasticized edible film from quince seed mucilage. *International Journal of Biological Macromolecules*,. 62: p. 500-507.
- [28] Mali, S., et al.,(2005). Water sorption and mechanical properties of cassava starch films and their relation to plasticizing effect. *Carbohydrate Polymers*,. 60(3): p. 283-289.
- [29] Hazirah, M.N., M. Isa, and N. Sarbon,(2016). Effect of xanthan gum on the physical and mechanical properties of gelatin-carboxymethyl cellulose film blends. *Food Packaging and Shelf Life*,. 9: p. 55-63.
- [30] Hu, D., H. Wang, and L.(2016). Wang, Physical properties and antibacterial activity of quaternized chitosan/carboxymethyl cellulose blend films. *LWT-Food Science and Technology*,. 65: p. 398-405.
- [31] Ebrahimzadeh, S., B.(2016). Ghanbarzadeh, and H. Hamishehkar, Physical properties of carboxymethyl cellulose based nano-biocomposites with Graphene nanoplatelets. *International Journal of Biological Macromolecules*,. 84: p. 16-23.
- [12] Ballesteros, L.F., et al.(2018), Production and physicochemical properties of carboxymethyl cellulose films enriched with spent coffee grounds polysaccharides. *International Journal of Biological Macromolecules*,. 106: p. 647-655.
- [13] Fadavi, G., et al.(2014), Composition and physicochemical properties of Zedo gum exudates from *Amygdalus scoparia*. *Carbohydrate Polymers*,. 101: p. 1074-1080.
- [14] Hadian, M., et al.(2016), Isothermal titration calorimetric and spectroscopic studies of β -lactoglobulin-water-soluble fraction of Persian gum interaction in aqueous solution. *Food Hydrocolloids*, .55 :p. 108-118.
- [15] Yolmeh, M., M.B.H. Najafi, and R. Farhoosh,(2014). Optimisation of ultrasound-assisted extraction of natural pigment from annatto seeds by response surface methodology (RSM). *Food Chemistry*, 2014. 155: p. 319-324.
- [16] Bezerra, M.A., et al.,(2008). Response surface methodology (RSM) as a tool for optimization in analytical chemistry. *Talanta*,. 76(5): p. 965-977.
- [17] Mohammadi, H., A. Kamkar, and A. Misaghi,(2018). Nanocomposite films based on CMC, okra mucilage and ZnO nanoparticles: Physico mechanical and antibacterial properties. *Carbohydrate Polymers*,. 181: p. 351-357.
- [18] Azarifar, M., et al.,(2019). The optimization of gelatin-CMC based active films containing chitin nanofiber and *Trachyspermum ammi* essential oil by response surface methodology. *Carbohydrate Polymers*,. 208: p. 457-468.
- [19] ASTM,(1989). Standard test methods for water vapor transmission of materials E 96-80. Annual book of ASTM standards,.
- [20] Ojagh, S.M., et al.,(2010). Effect of chitosan coatings enriched with cinnamon oil on the quality of refrigerated rainbow trout. *Food Chemistry*,. 120(1): p. 193-198.
- [21] Carneiro-da-Cunha, M.G., et al.,(2009). Physical properties of edible coatings and films made with a polysaccharide from *Anacardium occidentale* L. *Journal of Food Engineering*, .95)3 :(p. 379-385.

Optimization of Biodegradable Film Production Based on Carboxymethyl Cellulose and Persian Gum by Response Surface Methodology

Maleki, M. ¹, Mohsenzadeh, M. ^{2*}

1. Ph.D. student, Department of Food Hygiene and Aquaculture, Faculty of Veterinary Medicine, Ferdowsi University of Mashhad, Mashhad, Iran
2. Associate Professor, Department of Food Hygiene and Aquaculture, Faculty of Veterinary Medicine, Ferdowsi University of Mashhad, Mashhad, Iran

(Received: 2020/02/17 Accepted: 2020/04/16)

Biodegradable packaging based on natural ingredients has recently attracted an increasing interest from researchers. In this research different concentrations of persian gum (PG) (0, 0.25, 0.5, 0.75 and 1%) with different concentrations of carboxymethyl cellulose (CMC) (1 and 1.5%) were used to optimize biodegradable film production. For optimization of film production, maximum transparency value, contact angle, tensile strength, strain at break and minimum solubility, swelling and water vapor permeability were calculated. The results of the model showed that the effect of carboxymethyl cellulose and persian gum on all responses were significant ($P < 0.05$) and increasing the percentage of carboxymethyl cellulose and persian gum increased solubility, swelling, tensile strength and contact angle and decreased moisture content, water vapor permeability and transparency value. Both the predictive modelling and experimental results confirmed the carboxymethyl cellulose at 1.5% and the persian gum at 0.65% may provide the best result.

Keyword: Carboxymethyl Cellulose, Persian Gum, Biodegradable Film

* Corresponding Author E-Mail Address: mohsenzadeh@um.ac.ir