



بررسی خصوصیات فیزیکی، آنتی اکسیدانی و ساختاری فیلم‌های خوراکی تولید شده بر پایه کربوکسی متیل سلولز حاوی موسیلاژ بامیه و روغن سیاه دانه

فریبا شکار^۱ - افشین جوادی^{۲*} - صدیف آزادمرد دمیرچی^۳ - حامد همیشه‌کار^۴

۱- دانشجوی دکتری، گروه علوم و صنایع غذایی، واحد ممقان، دانشگاه آزاد اسلامی، ممقان، ایران

۲- دانشیار، گروه بهداشت مواد غذایی، دانشکده دامپزشکی، علوم پزشکی تبریز، دانشگاه آزاد اسلامی، تبریز، ایران

۳- استاد، گروه علوم و صنایع غذایی، دانشکده کشاورزی، دانشگاه تبریز، تبریز، ایران

۴- استاد، مرکز تحقیقات کاربردی دارویی، دانشگاه علوم پزشکی تبریز، تبریز، ایران

چکیده

اطلاعات مقاله

هدف از این تحقیق تهیه فیلم خوراکی بر پایه کربوکسی متیل سلولز (۱ W/V)، موسیلاژ بامیه (۳/۱-۳) و روغن سیاه دانه (۵ V/V - ۰) بود. تأثیر غلظت‌های مختلف موسیلاژ بامیه و روغن سیاه دانه بر ویژگی‌های فیلم خوراکی تهیه شده شامل ضخامت، چگالی، انحلال‌پذیری، نفوذپذیری به بخار آب، فعالیت آنتی‌اکسیدانی، خصوصیات رنگی و ساختاری به روش سطح پاسخ (RSM) مورد بررسی قرار گرفت. نتایج نشان داد که پارامترهای انحلال‌پذیری و نفوذپذیری به بخار آب با افزایش غلظت موسیلاژ بامیه افزایش یافتند، در صورتیکه با افزایش غلظت روغن سیاه دانه کاهش در این پارامترها مشاهده شد. پارامترهای قرمزی (a^*)، اختلاف رنگ کل (ΔE) و شاخص زردی (YI) با گنجاندن غلظت‌های بالاتر موسیلاژ بامیه و روغن سیاه دانه روند افزایشی داشتند، درحالیکه پارامترهای روشنایی (L^*) و شاخص سفیدی (WI) روند کاهشی نشان دادند. همچنین فعالیت آنتی‌اکسدانی (DPPH) و محتوای فنل کل (TPC) در نمونه‌های فیلم با افزایش غلظت موسیلاژ بامیه افزایش یافتند، در مقابل گنجاندن غلظت‌های بالاتر روغن سیاه دانه باعث کاهش فعالیت آنتی‌اکسیدانی و ترکیبات فنلی فیلم‌ها شد. ضمن اینکه تصاویر AFM نشان داد که با افزایش غلظت موسیلاژ بامیه و روغن سیاه دانه پارامترهای زبری (Ra و Rq) افزایش یافتند. مطابق با آنالیز واریانس مدل پیشنهادی برای همه پارامترها معنی‌دار بود ($p < 0.05$) به جز پارامتر زردی (b^*) که هیچ یک از مدل‌ها معنی‌دار نبود ($p > 0.05$). بر اساس بهینه‌سازی، ترکیب بهینه موسیلاژ بامیه و روغن سیاه دانه به ترتیب ۱٪ و ۰/۵٪ با مطلوبیت ۰/۷۵ به دست آمد. تصاویر SEM ثبت شده از میکروساختار مقطع عرضی فیلم‌ها نشان داد که با افزایش غلظت موسیلاژ بامیه تخلخل در مقطع عرضی فیلم‌ها افزایش یافت، در مقابل افزایش غلظت روغن سیاه دانه منجر به کاهش تخلخل در مقطع عرضی فیلم‌ها شد. علاوه بر این آنالیز FTIR وقوع واکنش‌های درون مولکولی در ماتریس فیلم را تأیید نمود.

تاریخ‌های مقاله :

تاریخ دریافت: ۱۴۰۲/۱۰/۱۶

تاریخ داوری: ۱۴۰۳/۰۶/۰۳

تاریخ پذیرش: ۱۴۰۳/۰۶/۱۷

کلمات کلیدی:

فیلم بیوکامپوزیت، موسیلاژ بامیه، روغن سیاه دانه، خصوصیات ساختاری، ماهیت آبرگریزی، ماهیت آبدوستی

DOI:10.48311/fsct.2026.83677.0

* مسئول مکاتبات:

javadi@iaut.ac.ir

۱-مقدمه

در سال‌های اخیر بسته‌بندی‌های زیست تخریب‌پذیر به عنوان جایگزین برای بسته‌بندی‌های پلاستیکی توجه‌های زیادی را به سمت خود جلب کرده‌اند. آلودگی محیط زیست توسط پلاستیک‌ها و مشکل بازیافت ضایعات یکی از بزرگترین بحران‌های جوامع امروزی می‌باشد. بر اساس آمار گزارش شده بیش از ۳۴۰ میلیون تن زباله پلاستیکی در جهان تولید شده است که حدود ۴۶٪ آن از بخش بسته‌بندی منشا می‌گیرد. مواد بسته‌بندی تا حد زیادی غیرقابل بازیافت هستند و تقریباً ۹۵٪ از مواد بسته‌بندی پلاستیکی ساخته شده از پلی‌الین‌ها و پلی‌اتیلن ترفتالات بازیافت نمی‌شوند و پس از یک بار مصرف به محل‌های دفن زباله می‌روند و در نتیجه سالانه ۸۰ تا ۱۲۰ میلیارد دلار ضرر به اقتصاد جهانی وارد می‌کنند [۱ و ۲]. محققان به دلایلی همچون مشکلات زیست محیطی، وابستگی مواد پلاستیکی به محصولات نفتی و تقاضای مشتریان برای مواد غذایی ایمن و سالم، به دنبال یافتن بیوپلیمرهای زیستی تجدیدپذیر و کاربرد آنها در بسته‌بندی مواد غذایی هستند. در تهیه فیلم‌های خوراکی از ترکیباتی همچون کربوهیدرات، پروتئین، لیپید و یا مخلوطی از اینها استفاده می‌شود. فیلم‌های خوراکی از کاهش منابع نفتی جلوگیری نموده و در عین حال آلودگی زیست محیطی ایجاد نمی‌کنند [۳ و ۴]. علاوه بر این با گنجاندن ترکیبات فعال نظیر آنتی اکسیدان‌های طبیعی درون فیلم‌های خوراکی، کیفیت و ماندگاری مواد غذایی بسته‌بندی شده ارتقاء می‌یابد [۵ و ۶].

کربوکسی متیل سلولز (CMC) به عنوان یکی از مشتقات مهم سلولز دارای تعدادی گروه‌های هیدروکسیل و کربوکسیل است و به دلیل دارا بودن ساختار پلیمری و وزن مولکولی بالا، ویسکوزیته بالا، قابلیت فیلم‌سازی خوب، قیمت پایین و دسترسی آسان در فرمولاسیون فیلم‌های خوراکی به طور گسترده استفاده شده است. همچنین جهت بهبود خصوصیات

مکانیکی و بازدارندگی فیلم‌ها، CMC با سایر بیوپلیمرها همچون نشاسته کاساوا، نشاسته برنج و کیتوزان ترکیب شده است [۷]. گیاه بامیه با نام علمی *Hibiscus esculentus* متعلق به خانواده *Malvaceae* می‌باشد. گیاه بامیه دارای ماده غلیظ و لزجی است که در غلاف میوه وجود دارد و موسیلاژ نامیده می‌شود. عمده‌ترین ترکیبات موسیلاژ بامیه پلی‌ساکاریدها هستند که شامل رامنوز، گالاکتوز، گالاکتورونیک اسید می‌باشد و پلی‌ساکاریدهای استخراج شده از بامیه به عنوان بهبود دهنده بافت، قوام‌دهنده و تثبیت‌کننده امولسیون استفاده می‌شوند. موسیلاژ بامیه دارای ترکیبات آنتی‌اکسیدانی از جمله فلاونوئیدها و کوئرستین‌ها می‌باشد [۸ و ۹]. سیاه دانه با نام علمی *Nigella sativa* گیاهی از خانواده *Ranunculaceae* است. سیاه دانه در طب سنتی به طور گسترده بکار رفته است و مطالعات زیادی اثرات درمانی آن را برای بسیاری از بیماری‌ها ثابت کرده‌اند. ترکیبات فعال مختلفی از سیاه دانه شامل تیموکینون، تیمول، دی‌تیموکینون، تیموئیدروکینون، کارواکرول، لیمونن شناسایی شدند. همچنین فراوان‌ترین اسیدهای چرب اشباع در روغن سیاه دانه شامل پالمیتیک، استئاریک و مرستیک می‌باشد، درحالی‌که عمده‌ترین اسیدهای چرب غیراشباع را لینولئیک، اولئیک و آلفا لینولئیک تشکیل می‌دهند [۱۰ و ۱۱].

علی‌رغم تحقیقات متعدد جهت توسعه کاربرد پلیمرهای زیست تخریب‌پذیر در بسته‌بندی، به علت مشکلات نفوذپذیری به اکسیژن، بخار آب و خصوصیات مکانیکی کاربرد فیلم‌های زیست تخریب‌پذیر محدود می‌باشند. از این‌رو تحقیقات گسترده‌تری در ارتباط با روش‌های تشکیل فیلم‌ها و بهبود ویژگی‌های آنها به منظور استفاده بالقوه فیلم‌های خوراکی در بسته‌بندی مواد غذایی ضروری است [۲]. تولید فیلم مستلزم وجود دست کم یک ترکیب پلیمری است که قادر به ایجاد ساختار شبکه‌ای با استحکام و پیوستگی

برخوردار نیستند، در این شرایط با اضافه کردن لیپیدها به فیلم‌های پلی‌ساکاریدی، با توجه به ماهیت آگریز بودن لیپیدها می‌توان خواص ممانعتی فیلم‌ها را نسبت به رطوبت بهبود بخشید [۳، ۴ و ۶]. در نتیجه ترکیب این مواد با یکدیگر به برقراری تعادل در ماهیت آگریزی و آبدوستی در بستر فیلم کمک می‌کند و از این طریق ضعف‌های هر یک از مواد همپوشانی شده و خصوصیات فیلم تهیه شده ارتقاء می‌یابد [۴]. با وجود تحقیقاتی که در زمینه ترکیب CMC با پلی‌ساکاریدها و روغن‌ها انجام شده است، اما تاکنون تأثیر گنجاندن روغن سیاه دانه و موسیلاژ بامیه بر روی خواص فیلم بر پایه CMC بررسی نشده است. هدف از این تحقیق معرفی یک فیلم خوراکی جدید توسعه یافته بر پایه CMC حاوی موسیلاژ بامیه و روغن سیاه دانه است که اثر غلظت‌های مختلف موسیلاژ بامیه و روغن سیاه دانه بر روی خصوصیات فیزیکی، رنگی، آنتی‌اکسیدانی و ساختاری فیلم‌های تهیه شده مورد مطالعه قرار گرفت.

۲- مواد و روش‌ها

۲-۱- مواد

بامیه تازه و سیاه دانه از بازار محلی (مهاباد، ایران) خریداری شدند. کربوکسی متیل سلولز (۱۵۰۰-۳۰۰۰ cp)، توپین ۸۰، فولین سیو کالتیو^۱ و ۲-دی فنیل-۱-پیکریل هیدرازیل (DPPH)^۲ از شرکت سیگما آلدریج آلمان خریداری گردید. سایر ترکیبات شامل گلسیرول، سدیم کربنات، سولفات پتاسیم و نیترات کلسیم از شرکت مرک آلمان تهیه شدند.

کافی باشد. مخلوط کردن دو یا چند بیوپلیمر یک روش معمول برای بهبود ویژگی‌های فیلم‌های بیوکامپوزیت می‌باشد [۲ و ۴]. در رابطه با ترکیب روغن با فیلم‌های خوراکی بر پایه پلی‌ساکارید پژوهش‌هایی انجام شده است از جمله Almasi و Ghanbarzadeh [۱۲] فیلم بر پایه CMC حاوی اسید اولئیک، Akyuz و همکاران [۱۳] فیلم با بستر کیتوزان حاوی روغن‌های گیاهی و حیوانی و Cerqueira و همکاران [۱۴] فیلم گالاکتومانان آمیخته شده با روغن ذرت را مورد بررسی قرار دادند. تحقیقاتی نیز در زمینه افزودن پلی‌ساکاریدها به فیلم خوراکی بر پایه CMC صورت گرفته است که می‌توان به فیلم خوراکی بر پایه CMC غنی شده با پلی‌ساکاریدهای پوست نخود و فیلم با بستر CMC حاوی پلی‌ساکاریدهای تغاله قهوه اشاره کرد که به ترتیب توسط Akhtar و همکاران [۱۵] و Ballesteros و همکاران [۱۶] مورد مطالعه قرار گرفتند. همچنین در سال‌های اخیر صمغ دانه‌ها و گیاهان در تهیه فیلم‌های خوراکی مورد توجه محققان قرار گرفته است که از جمله می‌توان به موسیلاژ دانه بارهنگ و دانه ریحان اشاره کرد که به ترتیب توسط Niknam و همکاران [۱۷] و Mohammad Amini و همکاران [۱۸] در تهیه فیلم خوراکی بکار گرفته شدند.

موسیلاژ بامیه منبع غنی از پلی‌ساکاریدها است و به دلیل دارا بودن ماهیت آبدوستی باعث می‌شود که موسیلاژ بامیه توانایی حفظ رطوبت را داشته باشد و از این جهت می‌تواند به عنوان نرم‌کننده طبیعی در نظر گرفته شود. بنابراین کاربرد موسیلاژ بامیه در تهیه فیلم‌ها علاوه بر ارتقاء خاصیت آنتی‌اکسیدانی می‌تواند در بهبود خصوصیت انعطاف‌پذیری فیلم نقش داشته باشد [۱۹ و ۲۰]. از طرف دیگر فیلم‌های پلی‌ساکاریدی به دلیل ماهیت آبدوستی از ممانعت مطلوب نسبت به بخار آب

۲-۲-۲- روش‌ها

دمای ۲۵°C با قرار دادن آنها در دسیکاتور حاوی محلول اشباع نیترات کلسیم انجام گرفت.

۲-۲-۱- استخراج موسیلاژ بامیه

۲-۲-۴- خصوصیات فیلم بیوکامپوزیتی تهیه شده

۲-۲-۴-۱- ضخامت و چگالی فیلم

ضخامت هر یک از نمونه‌های فیلم با استفاده از میکرومتر دستی (Alton M820-25, China) با دقت ۰/۰۱ میلی‌متر در ۱۰ نقطه متفاوت اندازه‌گیری شد و میانگین آن گزارش گردید. جهت تعیین چگالی، نمونه‌های فیلم در ابعاد ۲ cm × ۲ cm برش داده شدند و چگالی مطابق فرمول زیر محاسبه شد:

$$\rho = \frac{m}{A \times d}$$

به طوریکه A سطح فیلم (cm²)، d ضخامت فیلم (cm)، m جرم فیلم (g) و ρ چگالی فیلم (g/cm³) می‌باشند.

۲-۲-۴-۲- انحلال‌پذیری

انحلال‌پذیری فیلم‌ها از روش ارائه شده توسط Riaz و همکاران [۲۳] تعیین شد. نمونه‌های فیلم در ابعاد ۲×۲ cm در دمای ۱۰۵°C به مدت ۲۴ ساعت برای رسیدن به وزن ثابت خشک شده و وزن اولیه آنها (M₁) اندازه‌گیری شد. نمونه‌های فیلم خشک شده در بشرهای حاوی ۵۰ میلی‌لیتر آب مقطر به مدت ۲۴ ساعت قرار داده شدند. بعد از این مدت قطعات فیلم را از بشر خارج کرده و پس از خشک شدن در آون با دمای ۱۰۵°C به مدت ۲۴ ساعت توزین شدند (M₂). میزان انحلال‌پذیری فیلم‌ها از رابطه زیر محاسبه گردید:

$$\text{Solubility (\%)} = \frac{W_1 - W_2}{W_1}$$

W_f و W_i به ترتیب وزن اولیه و وزن نهایی فیلم‌ها به گرم می‌باشند.

استخراج موسیلاژ بامیه مطابق با روش Lee و همکاران [۲۱] انجام شد. ابتدا دانه‌ها از بامیه تازه جداسازی شده و سپس غلاف‌ها در آب مقطر به مدت ۱۲ ساعت غوطه‌ور شدند. قسمت نامحلول توسط صافی پارچه‌ای فیلتر شد و عصاره به دست آمده توسط انکوباتور (Memmert, Germany) در دمای ۵۵°C خشک و آسیاب شد.

۲-۲-۲- استخراج روغن سیاه دانه

استخراج روغن سیاه دانه توسط پرس حلزونی (Cold Oil Press PR 500, Germany) در دمای ۴۵°C انجام شد. روغن بعد از صاف شدن تا زمان استفاده در بطری‌های شیشه‌ای تیره در دمای ۴°C نگهداری شد.

۲-۲-۳- تهیه فیلم

فیلم‌ها به روش قالب‌گیری مطابق با روش Taqi و همکاران [۲۲] تهیه شدند. در ابتدا پودر موسیلاژ بامیه در محدوده غلظت‌های (۱-۳٪ w/v) و کربوکسی متیل سلولوز به نسبت (۱٪ w/v) در بشر جداگانه با ۳۰ میلی‌لیتر آب مقطر روی همزن مغناطیسی در دمای ۶۰°C و به مدت ۳۰ دقیقه حل شدند. محلول‌های تهیه شده با هم مخلوط و ۳۰٪ گیسرویل به نسبت کربوکسی متیل سلولوز اضافه شد و به مدت ۲۰ دقیقه عمل همزن توسط همزن مغناطیسی ادامه یافت. سپس روغن سیاه دانه در محدوده غلظت‌های (۰-۰/۵٪ v/v) با ۴۰ میلی‌لیتر آب مقطر مخلوط و ۰/۱٪ وزن روغن، توین ۸۰ اضافه شد و مخلوط به مدت ۲ دقیقه در ۵۰۰۰ دور بر دقیقه توسط هموژنیزاتور (IKAT25-Digital Ultra Turrax, Germany) هموژن شد و به محلول آماده شده قبلی اضافه گردید. محلول امولسیون‌های تهیه شده در ظروف پلاستیکی پخش شده و جهت خشک شدن در آون با دمای ۵۰°C قرار گرفتند. پس از خشک شدن، نمونه‌های فیلم از سطح ظروف جدا شدند و مشروط کردن فیلم‌ها در رطوبت نسبی ۵۰٪ و

۲-۲-۳- نفوذپذیری به بخار آب (WVP)^۱

$$\Delta E = \sqrt{(L^* - L)^2 + (a^* - a)^2 + (b^* - b)^2}$$

$$WI = 100 - \sqrt{(100 - L)^2 + a^2 + b^2}$$

$$YI = (142.86 \times b) / L$$

به طوریکه a ، b و L فاکتورهای رنگی نمونه و a^* ، b^* و L^* فاکتورهای رنگی صفحه استاندارد سفید است.

۲-۲-۴- ارزیابی فعالیت مهار رادیکال آزاد

بررسی خاصیت آنتی رادیکالی به روش بی‌رنگ کردن محلول بنفش ۲و۲-دی فنیل-۱-پیکریل هیدرازیل (DPPH) در متانول مورد سنجش قرار گرفت. مطابق با روش Shojae-Aliabadi و همکاران [۲۴] در ابتدا ۲۵ میلی‌گرم از نمونه فیلم در ۵ میلی‌لیتر از آب مقطر حل شد، سپس ۰/۱ میلی‌لیتر از محلول عصاره فیلم به ۳/۹ میلی‌لیتر از محلول DPPH (۰/۱ میلی‌مول متانول) اضافه شد. نمونه‌های مورد نظر به مدت ۶۰ دقیقه در جایی تاریک در دمای محیط نگهداری شدند. میزان جذب توسط اسپکتروفتومتر (Perkin-Elmer, model Lambda 25, USA) در مقابل متانول خالص در طول موج ۵۱۷ نانومتر خوانده شده و درصد فعالیت مهار رادیکال توسط فرمول زیر محاسبه گردید:

$$\text{Radical scavenging activity (\%)} = \left(\frac{\text{Abs reference} - \text{Abs sample}}{\text{Abs reference}} \right) \times 100$$

به طوریکه $A_{\text{reference}}$ و A_{sample} به ترتیب بیانگر جذب محلول DPPH حاوی عصاره فیلم و جذب محلول DPPH بدون فیلم هستند.

۲-۲-۴-۶- محتوای ترکیبات فنلی (TPC)^۲

محتوای ترکیبات فنلی فیلم با استفاده از روش Shojae-Aliabadi و همکاران [۲۴] اندازه‌گیری شد. ۲۵ میلی‌گرم از فیلم در ۳ میلی‌لیتر آب مقطر دیونیزه قرار داده و به مدت ۵

میزان نفوذپذیری فیلم‌ها به بخار آب مطابق با روش Ghanbarzadeh و Almasi [۱۲] تعیین شد. در این آزمون از سل شیشه‌ای به قطر ۱ cm و عمق ۴ cm استفاده شد و سل‌ها حاوی ۳ گرم سلیکاژل به منظور ایجاد رطوبت ۰٪ بودند. سپس فیلم‌ها به صورت مدور به اندازه دهانه سل بریده شدند و بعد از قرار گرفتن روی دهانه سل‌ها به کمک پارافیلیم درزبندی شدند. وزن اولیه سل‌ها با ترازو با دقت ۰/۰۰۰۱ اندازه‌گیری شد و سپس درون دسیکاتور حاوی سولفات پتاسیم جهت فراهم کردن رطوبت ۹۷٪ در دمای ۲۵°C قرار گرفتند. تغییرات وزن سل‌ها در فواصل زمانی معین برای مدت ۷ روز اندازه‌گیری شد. منحنی تغییرات افزایش وزن سل‌ها بر حسب زمان رسم شده و شیب خط توسط رگرسیون خطی تعیین شد. نفوذپذیری به بخار آب توسط فرمول زیر محاسبه شد:

$$WVP = \frac{\Delta m \times x}{\Delta t \times A \times \Delta p}$$

به نحوی که A سطح فیلم در معرض نفوذ بخار آب (مترمربع)، Δm میزان افزایش وزن سل (گرم)، Δt مدت زمان انتقال بخار آب (ثانیه)، WVP نفوذپذیری فیلم نسبت به بخار آب (گرم بر متر. پاسکال. ثانیه)، X ضخامت فیلم (میلی‌متر) و Δp اختلاف فشار بخار آب دو سوی فیلم می‌باشند (اختلاف فشار جزئی بین درون و بیرون سل در دمای ۲۵°C، برابر با ۳۰۷۳/۹۳ پاسکال است).

۲-۲-۴-۴- اندازه‌گیری خصوصیات رنگی

رنگ نمونه‌ها توسط دستگاه هانترلب (Minolta, CR-410, Japan) ارزیابی شد. میزان رنگ بر اساس پارامترهای L (روشنایی-تیرگی)، a (قرمز-سبز) و b (زرد-آبی) تعیین و اختلاف رنگ کل (ΔE)، شاخص سفیدی (WI) و شاخص زردی (YI) از روابط زیر محاسبه شد:

سطح نمونه‌های فیلم شامل متوسط زبری (Ra)° و انحراف معیار پروفیل ارزیابی شده (Rq)⁶ محاسبه شدند.

۲-۲-۹- طیف سنجی مادون قرمز تبدیل فوریه (FTIR)^۷

مطالعه برهم‌کنش‌های ساختاری فیلم‌های تهیه شده به کمک دستگاه طیف سنجی مادون قرمز تبدیل فوریه (Tensor 27, Bruker, Germany) انجام شد. نمونه‌های فیلم در داخل قرص KBr فشرده شدند و قرص‌های حاوی نمونه داخل سل دستگاه قرار گرفتند. طیف سنجی مادون قرمز در گستره $4000-400 \text{ Cm}^{-1}$ انجام شد.

۲-۲-۵- طراحی آزمایش‌ها و آنالیز آماری

تجزیه و تحلیل آماری داده‌ها در این تحقیق با استفاده از نرم افزار Design Expert نسخه ۱۳ و روش سطح پاسخ (RSM)^۸ اجرا و براساس طرح مرکب مرکزی (CCD)^۹ طراحی گردید. همانطور که در جدول ۱ نشان داده شده است متغیرهای مستقل شامل موسیلاژ بامیه (A) و روغن سیاه دانه (B) بودند که غلظت موسیلاژ بامیه ($X_1 = 1-3$) و غلظت روغن سیاه دانه ($X_2 = 0-5$) در نظر گرفته شد و مطابق با طرح مرکب مرکزی ۱۳ ترکیب به دست آمد. تأثیر متغیرهای مستقل بر روی پاسخ‌ها شامل ضخامت، چگالی، انحلال‌پذیری، نفوذپذیری به بخار آب، خصوصیات رنگی، فعالیت آنتی اکسیدانی، محتوای فنل کل و پارامترهای زبری با استفاده از آنالیز واریانس در سطح ۹۵٪ مورد بررسی قرار گرفت.

دقیقه به آرامی هم زده شد. سپس ۰/۱ میلی لیتر از عصاره فیلم با ۷ میلی لیتر آب مقطر دیونیزه در داخل لوله آزمایشگاهی ریخته و سپس ۰/۵ میلی لیتر از معرف فولین اضافه کرده و با هم مخلوط شدند. پس از گذشت ۸ دقیقه ۱/۵ میلی لیتر محلول کربنات سدیم اشباع (۰/۲ w/v) و ۰/۹ میلی لیتر آب مقطر دیونیزه به لوله‌ها اضافه شد. لوله‌ها به مدت ۲ ساعت در دمای اتاق نگهداری و سپس مقدار جذب در طول موج ۷۶۵ نانومتر با استفاده از دستگاه اسپکتروفتومتر (Perkin-Elmer, model Lambda 25, USA) قرائت گردید. محتوای فنل کل با استفاده از فرمول زیر به دست آمد:

$$T = (C \times V) / M$$

به طوریکه T محتوای فنل کل (mg) و آلان اسیدگالیک/ g (وزن فیلم)، C غلظت اسیدگالیک به دست آمده از روی منحنی استاندارد (mg/mL)، V حجم عصاره (mL) و M وزن فیلم (g) می‌باشد.

۲-۲-۴-۷- مطالعه ریزساختار با میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM)^۲

از دستگاه میکروسکوپ الکترونی روبشی (MIRA3 FEG- SEM, Tescan, Czech Republic) برای مطالعه ریزساختار فیلم‌ها استفاده شد. نمونه‌های فیلم با لایه‌ای از طلا پوشانده شدند و سپس از سطح و مقطع عرضی نمونه‌های فیلم تصاویر SEM ثبت گردید.

۲-۲-۴-۸- میکروسکوپ نیروی اتمی (AFM)^۴

مورفولوژی سطح فیلم‌های بیوکامپوزیتی تهیه شده با استفاده از میکروسکوپ نیروی اتمی (Nanosurf Mobile S, Switzerland) مطالعه شد. پارامترهای کمی برای تعیین زبری

9 - Fourier Transform Infrared Spectroscopy

10 - Response Surface Methodology

11- Central Composite Design

5 - Scanning Electron Microscopy

6 - Atomic Force Microscope

7 - Average Roughness

8 - Root Mean Square Roughness

۳- نتایج و بحث

۳-۱- ضخامت و چگالی

براساس جدول ۱ فیلم تشکیل شده از ۱/۲۹٪ موسیلاژ و ۰/۰۷٪ روغن، کمترین ضخامت و چگالی را دارا بود. مطابق با شکل ۱، با افزایش غلظت موسیلاژ بامیه و روغن سیاه دانه ضخامت و چگالی فیلم‌ها افزایش یافتند و براساس جدول ۲ مدل پیشنهادی برای پارامترهای ضخامت و چگالی مدل خطی بود ($p < ۰/۰۵$). افزایش در ضخامت فیلم‌ها می‌تواند به علت افزایش محتوای مواد جامد در فرمولاسیون فیلم‌ها باشد [۲۲ و ۲۵]. در مطالعات قبلی با افزودن اسانس مرزه به فیلم خوراکی بر پایه CMC و کفیران توسط Hasheminya و همکاران [۲۶] و گنجاندن عصاره چای سبز در فرمولاسیون فیلم‌ها بر پایه پوست پوملو توسط Wu و همکاران [۲۷] افزایش در ضخامت فیلم‌ها گزارش شد که با یافته‌های این تحقیق مطابقت دارد. در تحقیقی که توسط Aydogdu و همکاران [۲۸] انجام شد با افزایش غلظت روغن پرتقال به فیلم بر پایه گوار چگالی افزایش یافت و اعلام کردند که افزایش چگالی فیلم‌ها می‌تواند به علت افزایش وزن مولکولی ترکیبات، افزایش محتوای مواد جامد و واکنش بین زنجیره‌های پلیمر و تشکیل ساختار مولکولی فشرده باشد.

۳-۲- انحلال پذیری

انحلال‌پذیری به عنوان شاخص آب دوستی فیلم‌ها در نظر گرفته می‌شود و مقاومت نسبت به آب یک فاکتور مهم در تهیه فیلم‌های خوراکی تجاری می‌باشد [۲۹]. بر مبنای داده‌های جدول ۱، فیلم تشکیل شده با فرمولاسیون ۱/۲۹٪ موسیلاژ بامیه و ۰/۴۳٪ روغن سیاه دانه کمترین انحلال‌پذیری را دارا بود. مطابق با شکل ۱، با افزایش غلظت موسیلاژ بامیه در فرمولاسیون فیلم‌ها انحلال‌پذیری افزایش پیدا کرد، درحالی‌که با افزایش غلظت روغن کاهش در انحلال‌پذیری مشاهده شد و براساس جدول ۲، مدل خطی برای انحلال‌پذیری پیشنهاد شد ($p < ۰/۰۵$). گروه‌های آبدوست پلی‌فنل‌ها با مولکول‌های آب به آسانی واکنش

می‌دهند و با افزایش غلظت موسیلاژ بامیه ظرفیت ماتریس فیلم جهت پیوند با آب ارتقاء یافت، از این‌رو افزایش در حلالیت اتفاق افتاد [۳۰]. براساس گزارش Nawab و همکاران [۳۱] افزایش در انحلال‌پذیری فیلم‌ها بر پایه نشاسته مانگو با افزودن صمغ‌های گوار و گزانتان مشاهده شد. نتایج مشابهی توسط سایر محققان به دست آمده است [۱۵ و ۲۳]. کاهش حلالیت با افزایش مقدار روغن سیاه دانه در فرمولاسیون فیلم‌ها با واکنش بین گروه‌های هیدروکسیل بیوپلیمر و روغن ارتباط دارد که منجر به کاهش دسترسی گروه‌های هیدروکسیل و ایجاد ماهیت آبریزی در ماتریس فیلم می‌شود [۲۴ و ۱۸]. در مطالعه‌ای Akyuz و همکاران [۱۳] گزارش کردند که افزودن روغن زیتون به فیلم بر پایه کیتوزان منجر به کاهش انحلال‌پذیری شد و این به ساختار فشرده و پیوسته کیتوزان و روغن زیتون نسبت داده شد. نتایج این تحقیق با مطالعات انجام شده توسط Cerqueira و همکاران [۱۴]، Galus و Kadzińska [۲۹] و Ma و همکاران [۳۲] مطابقت دارد.

۳-۳- نفوذپذیری به بخار آب (WVP)

بر مبنای جدول ۱، کمترین نفوذپذیری به بخار آب به فیلم تهیه شده محتوی ۱/۲۹٪ موسیلاژ بامیه و ۰/۴۳٪ روغن سیاه دانه ($۱۰^{-۸} \times ۵/۲۲$ g.mm/Pa.h.cm²) و بالاترین نفوذپذیری به بخار آب به فیلم تولید شده با غلظت ۲/۷۱٪ موسیلاژ بامیه و ۰/۰۷٪ روغن سیاه دانه ($۸/۹۶ \times ۱۰^{-۸}$ g.mm/Pa.h.cm²) اختصاص یافت. شکل ۱ نشان می‌دهد که با افزایش غلظت موسیلاژ بامیه، نفوذپذیری به بخار آب افزایش یافت، در مقابل با افزایش غلظت روغن سیاه دانه، کاهش در نفوذپذیری به بخار آب روی داد و با توجه به جدول ۲ مدل خطی برای این پارامتر پیشنهاد شد که معنی‌دار بود ($p < ۰/۰۵$). براساس مطالعات قبلی نسبت نواحی کریستالی به آمورف و نسبت آبدوستی به آبریزی فیلم‌ها در انتقال بخار آب مؤثر هستند [۳۳]. افزایش غلظت موسیلاژ بامیه در فرمولاسیون فیلم‌ها موجب غلبه شدن ماهیت آبدوستی، افزایش تعداد گروه‌های هیدروکسیل و جذب بیشتر

(۵۳/۲۳) و کمترین قرمزی (۱۱/۷۲) را به نمایش گذاشتند (جدول ۱). شکل ۱ نشان می‌دهد که با افزایش غلظت روغن سیاه دانه و موسیلاژ بامیه در پارامترهای قرمزی (a^*)، اختلاف رنگ کل (ΔE) و شاخص زردی (YI) افزایش مشاهده شد، در مقابل پارامترهای روشنایی (L^*) و شاخص سفیدی (WI) با افزایش غلظت روغن و موسیلاژ کاهش یافتند. مطابق با نتایج به دست آمده در جدول ۲ مشخص شد که همه فاکتورهای رنگی به طور معنی‌داری از مدل خطی تبعیت کردند ($p < 0/05$)، به جز پارامتر زردی (b^*) که هیچ یک از مدل‌ها از نظر آماری معنی‌دار نبود ($p > 0/05$). این نتایج موافق با یافته‌های Kanmani و Rhim [۲۵] بود که گزارش کردند در فیلم‌ها بر پایه آگار حاوی عصاره دانه انگور با افزایش غلظت عصاره، کاهش در روشنایی (L^*) و افزایش در پارامترهای قرمزی (a^*) و زردی (b^*) مشاهده شد. همچنین در تحقیقی دیگر که توسط Sun و همکاران [۳۰] انجام شد با افزایش غلظت عصاره پلی‌فنل‌های سیب به فیلم‌های کیتوزان کاهش در روشنایی اتفاق افتاد. در رابطه با تأثیر روغن بر خصوصیات رنگی فیلم‌ها در طی تحقیقی Ghanbarzadeh و Almasi [۱۲] گزارش نمودند که افزایش غلظت اسید اولئیک در فیلم‌ها بر پایه کربوکسی متیل سلولز منجر به تشدید حالت ابری و افزایش اندیس زردی شد و این پدیده می‌تواند به اثر پراکندگی نور توسط توزیع ذرات چربی در طول فرآیند خشک شدن فیلم‌ها مرتبط باشد. همچنین در مطالعه‌ای Nisar و همکاران [۳۸] دریافتند که افزودن اسانس میخک به فیلم‌های تهیه شده بر پایه پکتین باعث کاهش روشنایی فیلم‌ها شد. این یافته‌ها با نتایج به دست آمده توسط Saberi و همکاران [۳۷] و Hasheminya و همکاران [۲۶] مطابقت دارد.

۳-۵- ارزیابی فعالیت مهار رادیکال آزاد (DPPH) و محتوای فنل کل (TPC)

با توجه به جدول ۱، بالاترین فعالیت آنتی اکسیدانی به فیلم با فرمولاسیون ۲/۷٪ موسیلاژ بامیه و ۰/۰۷٪ روغن سیاه دانه اختصاص یافت. مطابق با شکل ۱ فعالیت آنتی اکسیدانی و

مولکول‌های آب در ساختار فیلم شد که در نتیجه منجر به تحرک و سیالیت بیشتر زنجیره‌های جانبی و ایجاد ساختاری با تراکم کمتر شد و انتقال بخار آب افزایش یافت [۳۱]. همچنین در فیلم‌های بیوکامپوزیت تهیه شده با افزایش غلظت موسیلاژ بامیه نواحی آمورف افزایش پیدا کرد و ساختاری غیرمتراکم و بی‌نظم به وجود آمد که باعث نفوذ آسان مولکول‌های آب به داخل فیلم شد، بنابراین WVP افزایش یافت [۳۳]. Jang و همکاران [۳۴] گزارش کردند که در فیلم‌های بیوکامپوزیتی تهیه شده بر پایه پروتئین دانه کلزا/ژلاتین حاوی عصاره دانه گریپ فروت با افزایش غلظت عصاره، WVP افزایش یافت و علت آن را کاهش واکنش‌های بین مولکولی اجزاء فیلم اعلام نمودند که به افزایش تخلخل و ایجاد ساختاری ضعیف در فیلم‌ها منتهی شد. همچنین بر اساس یافته‌های Cerqueira و همکاران [۳۵] عصاره دانه‌ها و گیاهان حاوی اسیدهای فنولیک و فلاونوئیدها هستند که این ترکیبات منجر به افزایش خواص هیدروفیلی فیلم‌ها می‌شوند که در نتیجه WVP افزایش می‌یابد. نتایج مشابهی توسط Kanmani و Rhim [۲۵] و Wu و همکاران [۲۷] گزارش شده است. برخلاف اثر موسیلاژ بامیه وجود روغن سیاه دانه در فیلم‌های بیوکامپوزیتی تهیه شده به علت ماهیت آبگریزی روغن‌ها منجر به بهبود خواص ممانعتی فیلم‌ها شد. مشاهده این رفتار را می‌توان به عدم پیوستگی فاز آبدوستی نسبت داد که مسیری پریپچ و خم را برای عبور ملکول‌های بخار آب ایجاد می‌کند [۳۶ و ۳۷]. علاوه بر این واکنش بین زنجیره‌های بیوپلیمر و ترکیبات روغن سیاه دانه موجب کاهش تحرک زنجیره‌های پلیمری و ساختاری فشرده‌تر شده به طوریکه حجم آزاد ماتریس فیلم کاهش می‌یابد و بنابراین WVP کاهش یافت [۳۷]. نتایج گزارش شده توسط Niknam و همکاران [۱۷]، Taqi و همکاران [۲۲] و Nisar و همکاران [۳۸] با نتایج این تحقیق مطابقت دارد.

۳-۴- خصوصیات رنگی

فیلم‌های تشکیل شده بر پایه فرمولاسیون ۱/۲۹٪ موسیلاژ بامیه و ۰/۰۷٪ روغن سیاه دانه بالاترین سطح روشنایی

بالایی از اسیدهای چرب آزاد است، از این رو به اکسیداسیون حساس بوده و به آسانی اکسید شده و ترکیبات پراکسید را تولید می‌کند، بنابراین از آنجایی که روغن سیاه دانه عدد پراکسید بالایی دارد، با افزایش غلظت روغن سرعت اکسیداسیون افزایش و فعالیت آنتی اکسیدانی کاهش یافت [۱۰]. از طرف دیگر ترکیبات فرار و آنتی اکسیدانی در طی استخراج روغن و در فرآیند تهیه و خشک شدن فیلم اکسید می‌شوند و با توجه به اکسیداسیون این ترکیبات ظرفیت آنتی اکسیدانی روغن سیاه دانه کاهش می‌یابد، بنابراین فعالیت آنتی اکسیدانی فیلم‌ها کاهش نشان داد [۳۹]. در تأیید نتایج فوق Dinakaran و همکاران [۴۰] گزارش کردند که با افزایش غلظت روغن سیاه دانه از فعالیت آنتی اکسیدانی فیلم‌ها کاسته شد. کاهش ترکیبات فنلی با افزایش غلظت روغن سیاه دانه می‌تواند به علت واکنش‌های بین پلی‌فنل‌ها با سایر ترکیبات موجود در فیلم باشد که مانع آزاد شدن کامل ترکیبات فنلی از ساختار فیلم می‌شود، در نتیجه محتوای فنل کل در فیلم‌ها کاهش یافت [۴۱].

ترکیبات فنلی فیلم‌ها با افزایش غلظت موسیلاژ بامیه افزایش یافتند، درحالی‌که افزایش غلظت روغن سیاه دانه باعث کاهش فعالیت آنتی اکسیدانی و محتوای فنل کل شد. بر مبنای جدول ۲ هر دو پارامتر فعالیت آنتی اکسیدانی و محتوای فنل کل به طور معنی‌داری از مدل مربعی یا درجه دوم پیروی کردند ($p < 0/05$). افزایش فعالیت آنتی اکسیدانی فیلم‌ها با افزایش غلظت موسیلاژ بامیه به افزایش گروه‌های هیدروکسیل ترکیبات پلی‌فنل موجود در موسیلاژ بامیه مرتبط می‌باشد که به عنوان دهنده الکترون به رادیکال‌های آزاد عمل می‌کنند و با اهداء الکترون به رادیکال‌های آزاد مانع گسترش زنجیره رادیکال‌های آزاد می‌شوند، بنابراین با افزایش غلظت موسیلاژ بامیه فعالیت آنتی اکسیدانی نیز افزایش یافت [۱۵].

افزایش در فعالیت آنتی اکسیدانی فیلم‌ها در پی افزایش غلظت موسیلاژ بامیه با یافته‌های سایر محققان مطابقت داشت [۲۳ و ۳۰]. کاهش فعالیت آنتی اکسیدانی با افزایش غلظت روغن سیاه دانه می‌تواند به این علت باشد که روغن سیاه دانه در مقایسه با دیگر روغن‌های گیاهی دارای مقدار

Table1. Experimental data from impacts of independent variables (OM, BSO) on responses including THI, D, WS, WVP, L*, a*, b*, ΔE, WI, YI, DPPH, TPC, Ra and Rq by central composite design

Independent variables			Coded levels													
			-1	0	1											
Okra mucilage (OM)			A	1	2	3										
Black cumin seed oil (BSO)			B	0	0.25	0.5										
Variables			Responses													
Run	OM	BSO	THI	D	S	WVP	L*	a*	b*	ΔE	WI	YI	DPPH	TPC	Ra	Rq
1	2.71	0.43	0.194	4.68	55.38	7.258	39.14	36.99	43.88	82.72	12.63	183.62	26.82	66.15	52.64	65.31
2	2.71	0.07	0.173	3.92	65.04	8.961	41.11	31.69	49.3	78.79	16.91	171.34	39.8	62.18	38.44	48.41
3	2.00	0.25	0.145	2.62	55.14	7.511	46.15	24.98	51.23	74.24	21.58	158.59	14.86	65.12	34.25	43.6
4	1.00	0.25	0.11	1.58	49.97	5.698	51.94	13.46	49.79	66.35	29.49	136.95	11.61	60.35	19.39	24.38
5	2.00	0.25	0.14	2.73	54.96	7.814	47.13	23.95	52.22	73.27	23.07	156.56	14.12	65.22	32.25	40.54
6	2.00	0.25	0.146	2.61	54.68	6.923	45.51	25.26	51.01	75.29	21.99	159.61	13.91	64.97	31.55	39.21
7	2.00	0.50	0.157	2.97	50.53	6.777	42.4	29.19	50.25	77.53	18.17	169.3	19.21	61.06	42.12	51.46
8	1.29	0.43	0.121	1.79	45.31	5.223	49.29	16.15	48.52	67.71	27.98	140.6	8.78	56.64	22.09	27.78
9	2.00	0.25	0.151	2.81	55.51	7.51	45.98	23.69	50.25	74.82	20.85	154.55	15.2	65.29	36.55	45.91
10	2.00	0.00	0.135	2.33	59.96	7.77	48.3	17.82	52.68	71.78	24.06	155.82	26.4	59.17	29.85	36.94
11	2.00	0.25	0.139	2.45	56.1	7.009	46.19	25.97	51.27	73.96	21.81	159.83	14.5	64.89	33.15	42.17
12	3.00	0.25	0.185	4.35	60.8	7.986	39.42	33.35	48.9	80.36	15.26	177.2	34.11	70.52	46.38	61.83
13	1.29	0.07	0.102	1.38	55.02	6.017	53.23	11.72	50.07	65.42	30.49	134.36	16.21	54.62	18.11	23.06

OM: Okra mucilage, BSO: Black seed oil, THI: Thickness, D: Density, S: Solubility, WVP: Water vapor permeability, L*: Lightness, a*: Redness, b*: Yellowness, ΔE: Total color difference, WI: Whiteness index, YI: Yellowness index, TPC: Total phenolic content, Ra: Average roughness, Rq: Root Mean square roughness

Table 2. Variance analysis of the CMC/OM/BSO biocomposite film responses including THI, D, WS, WVP, L*, a*, b*, ΔE, WI, YI, DPPH, TPC, Ra, Rq

Factor	Suggested model	R ²	p-value
Thickness (THI)	Linear	0.96	0.0001*
Density (D)	Linear	0.94	0.0001*
Solubility (S)	Linear	0.97	0.0001*
Water vapor permeability (WVP)	Linear	0.84	0.0001*
Redness (a)	Linear	0.95	0.0001*
Yellowness (b*)	Quadratic	0.7	0.0787 ^{ns}
Lightness (L*)	Linear	0.97	0.0001*
Total color difference (ΔE)	Linear	0.95	0.0001*
Whiteness Index (WI)	Linear	0.96	0.0001*
Yellowness Index (YI)	Linear	0.95	0.0001*
DPPH	Quadratic	0.97	0.0001*
TPC	Quadratic	0.92	0.0009*
Ra	Linear	0.94	0.0001*
Rq	2FI	0.97	0.0001*

The sign of * shows the significant state at P < 0.05, ^{ns} shows the not significant state. 2FI: Two factor interactions

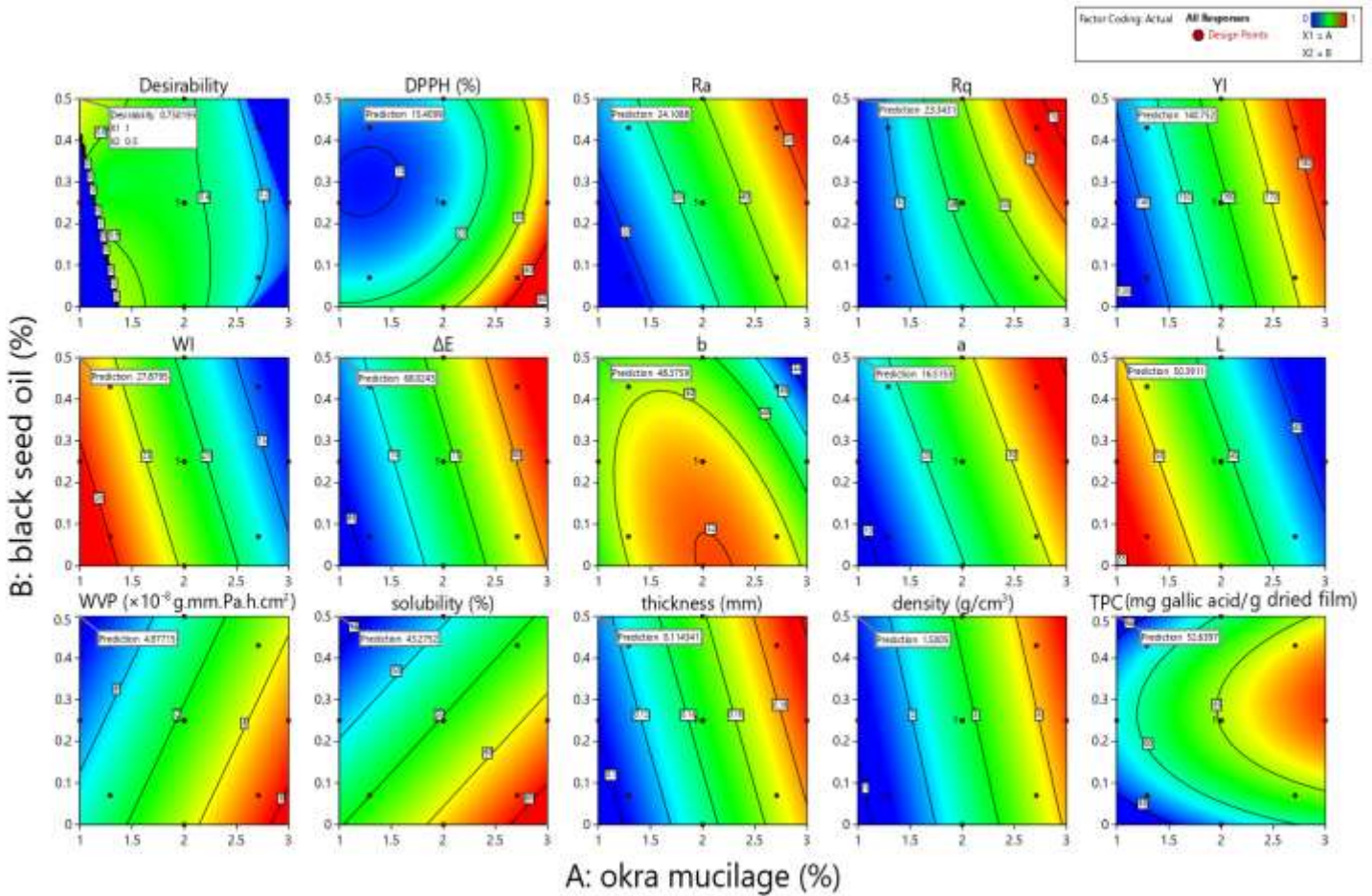


Fig 1. Desirability plot and contour plots of responses of the CMC/OM/BSO biocomposite films at various OM and BSO concentrations.

یکنواخت‌ترین سطح را به نمایش گذاشت. فیلم‌های تهیه شده با غلظت‌های کمتر موسیلاژ بامیه (۱٪ و ۱/۲۹٪) و روغن سیاه دانه (۲۵٪ و ۴۳٪) ریزساختار بهم پیوسته و یکنواخت‌تری را دارا بودند، درحالی‌که در غلظت‌های بالاتر موسیلاژ بامیه و روغن سیاه دانه ناهمگونی و تجمع بیشتری در ریزساختار فیلم‌ها مشاهده شد. شکل‌گیری ساختار گره مانند و ارتقاء ناهموازی‌ها در شبکه فیلم می‌تواند در اثر خاصیت آبدوستی ترکیبات پلی فنل موجود در موسیلاژ بامیه باشد که محتوای آب بالاتری را جذب می‌کند و در نتیجه تجمع و آگلومره شدن ترکیبات پلی فنل غیرمحلول در بستر فیلم اتفاق می‌افتد [۲۳ و ۲۷]. بر اساس تحقیقات قبلی محققان اعلام کردند که با گنجاندن عصاره در داخل فیلم‌های بیوپلیمر، تجمع ذرات پلی فنل در ماتریس فیلم‌ها صورت گرفت و در نتیجه ناهموازی، بی‌نظمی و زبری بیشتری

۳-۶- مطالعه ریزساختار با میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM)

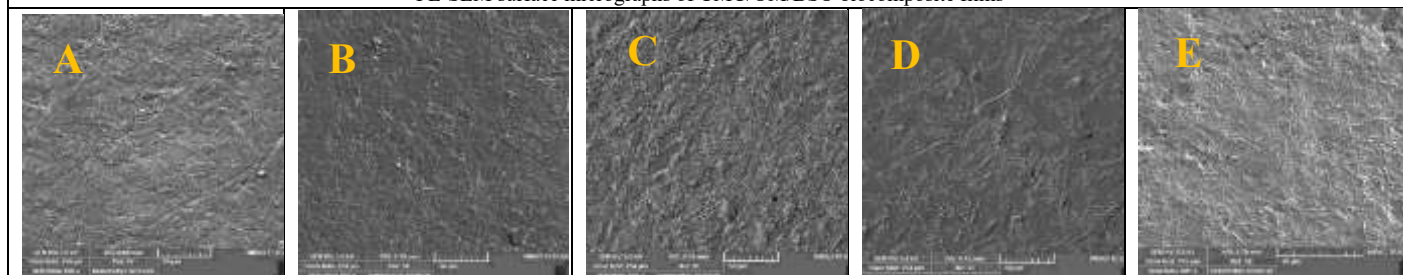
جهت آنالیز بهتر ریزساختار فیلم‌های تهیه شده از میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) استفاده شد. بررسی تصاویر ریزساختار فیلم‌ها اطلاعات قابل توجهی را در رابطه با نحوه توزیع ذرات و چگونگی واکنش ترکیبات مختلف در بستر فیلم ارائه می‌دهد که نقش مهمی را در مکانیسم انتقال بخار آب و کدورت فیلم‌ها ایفا می‌کنند [۴۲]. میکروگراف‌های SEM به دست آمده از سطح و مقطع عرضی نمونه‌های فیلم در شکل ۲ نشان داده شده است. همانطور که مشاهده می‌شود سطح فیلم تهیه شده با غلظت ۱/۲۹٪ موسیلاژ بامیه و ۰/۰۷٪ روغن سیاه دانه

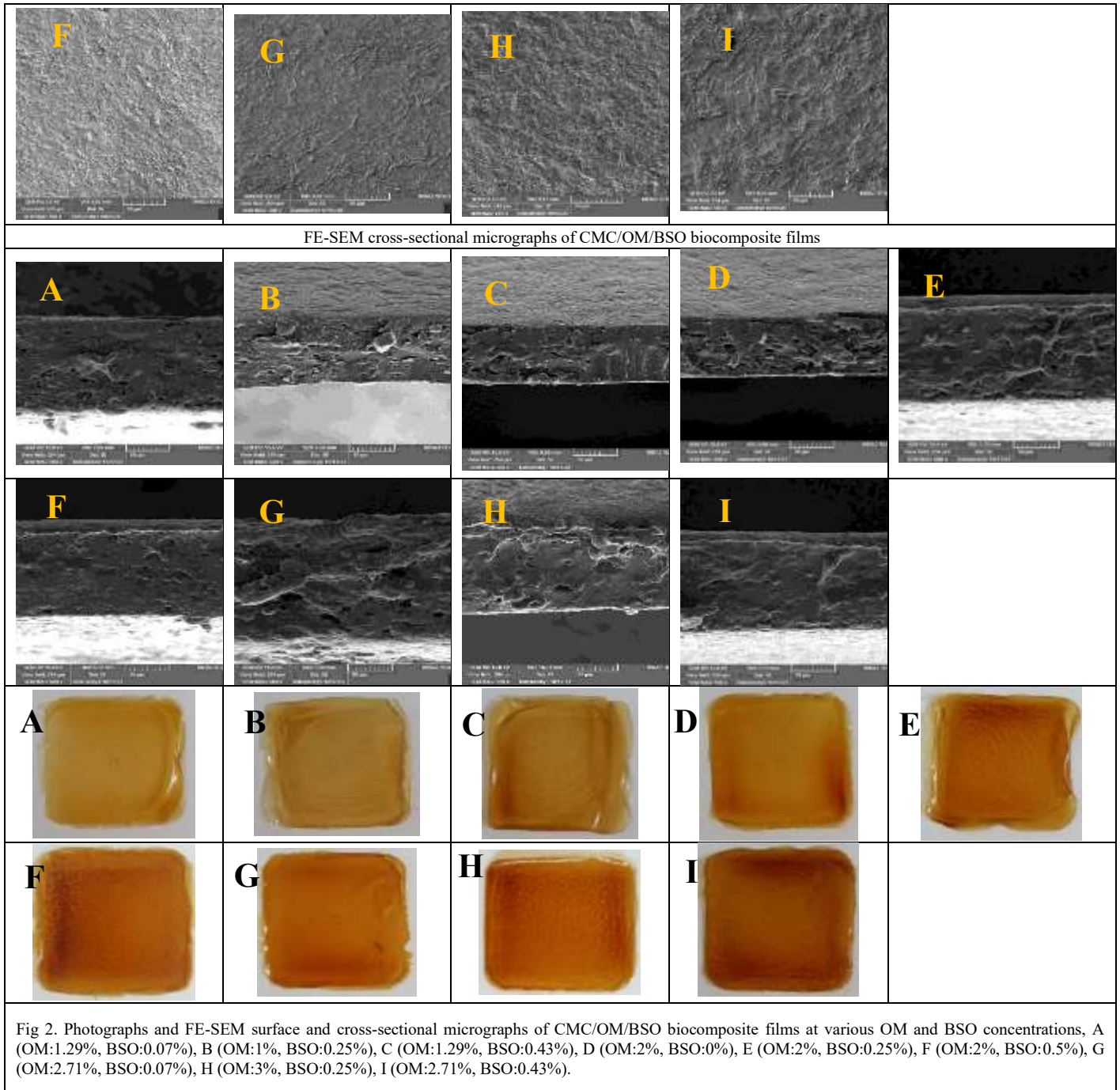
پلی فنل های چای سبز در غلظت های بالا به فیلم تهیه شده بر پایه پوست پوملو منجر به افزایش تخلخل و کاهش پیوستگی فیلم ها شد و موافق با یافته های این تحقیق بود. در طی مطالعه ای Rubilar و همکاران [۳۳] گزارش کردند که با افزودن ترکیب کارواکرول به عنوان یک عامل آبریز به بستر فیلم کیتوزان مقطع عرضی به حالت ورقه های انباشته شده درون لایه های فشرده مشاهده شد. در تحقیقی دیگر Fabra و همکاران [۴۱] اثر روغن سویا و اسید اولئیک همراه با عصاره چای سبز و دانه انگور را روی فیلم بر پایه آلزینات مورد بررسی قرار دادند و گزارش کردند که افزودن روغن به تنهایی به فیلم آلزینات سبب تشکیل دو فاز جداگانه روغن و آلزینات شد، در صورتیکه بعد از اضافه کردن عصاره ها به ماتریس فیلم ترکیبات لیپیدی به طور تصادفی در سراسر مقطع فیلم توزیع شدند و هیچگونه جدایی فاز لیپید به وضوح قابل تشخیص نبود. همچنین Ma و همکاران [۴۳] ساختار فیلم بر پایه صمغ تارا و محتوی اسید اولئیک را مطالعه کردند و بر اساس تصاویر به دست آمده از مقطع عرضی فیلم ها ثابت شد که در غلظت های بالاتر اسید اولئیک، اندازه منافذ کاهش یافت، همچنانکه در این تحقیق با افزایش غلظت روغن منافذ کوچکتری در مقطع عرضی فیلم ها نمایان شد. تصاویر SEM به دست آمده از مقطع عرضی فیلم ها، نتایج حاصل از نفوذپذیری را تأیید می نماید.

مشاهده شد [۱۵، ۲۵ و ۳۵]. علاوه بر اثر تجمع پلی فنل ها، قابلیت امتزاج پذیری پایین فاز روغن در بستر پلیمر بر ریزساختار فیلم ها تأثیر گذار است. متمرکز شدن ذرات روغن در سطح فیلم در طی مرحله خشک کردن باعث افزایش تجمع ذرات، جدایی فاز روغن و سرانجام کریستالیزاسیون اسیدهای چرب در ماتریس فیلم می شود و از این طریق بی نظمی و غیریکنواخت شدن ساختار در ماتریس فیلم ها اتفاق می افتد [۲۹ و ۴۲]. Akyuz و همکاران [۱۳] ثابت کردند با افزودن روغن آفتابگردان و چربی حیوانی به فیلم بر پایه کیتوزان به علت ایجاد دو فازه شدن روغن و بیوپلیمر، ساختاری غیریکنواخت و ناپیوسته در شبکه پلیمری ظاهر شد. مشاهده سطوح زبرتر، ناهموارتر و تجمع ذرات با گنجاندن روغن در ماتریس فیلم توسط سایر محققان گزارش شد [۱۷، ۲۲ و ۳۲].

بر اساس تصاویر SEM ثبت شده از مقطع عرضی نمونه های فیلم، با افزایش غلظت موسیلاژ بامیه میزان تخلخل و ناهمگنی ماتریس فیلم ها افزایش یافت و ساختاری اسفنجی شکل در مقطع عرضی نمونه های فیلم به وجود آمد، در مقابل با افزایش غلظت روغن سیاه دانه شبکه پلیمری متراکم تر شد و میزان خلل و فرج در مقطع عرضی نمونه ها کاهش یافت، به طوریکه فیلم تهیه شده با غلظت پایین موسیلاژ (۱/۲۹٪) و غلظت بالای روغن (۰/۴۳٪) کمترین تخلخل را دارا بود. کاهش حفره ها و افزایش پیوستگی در ریزساختار مقطع عرضی فیلم ها با افزایش غلظت روغن را می توان به وقوع واکنش ها و ایجاد پیوندهای جدید بین ترکیبات فنلی موسیلاژ بامیه و بخش لیپیدی (روغن سیاه دانه) نسبت داد [۴۱]. تحقیقات Wu و همکاران [۲۷] نشان داد که افزودن

FE-SEM surface micrographs of CMC/OM/BSO biocomposite films





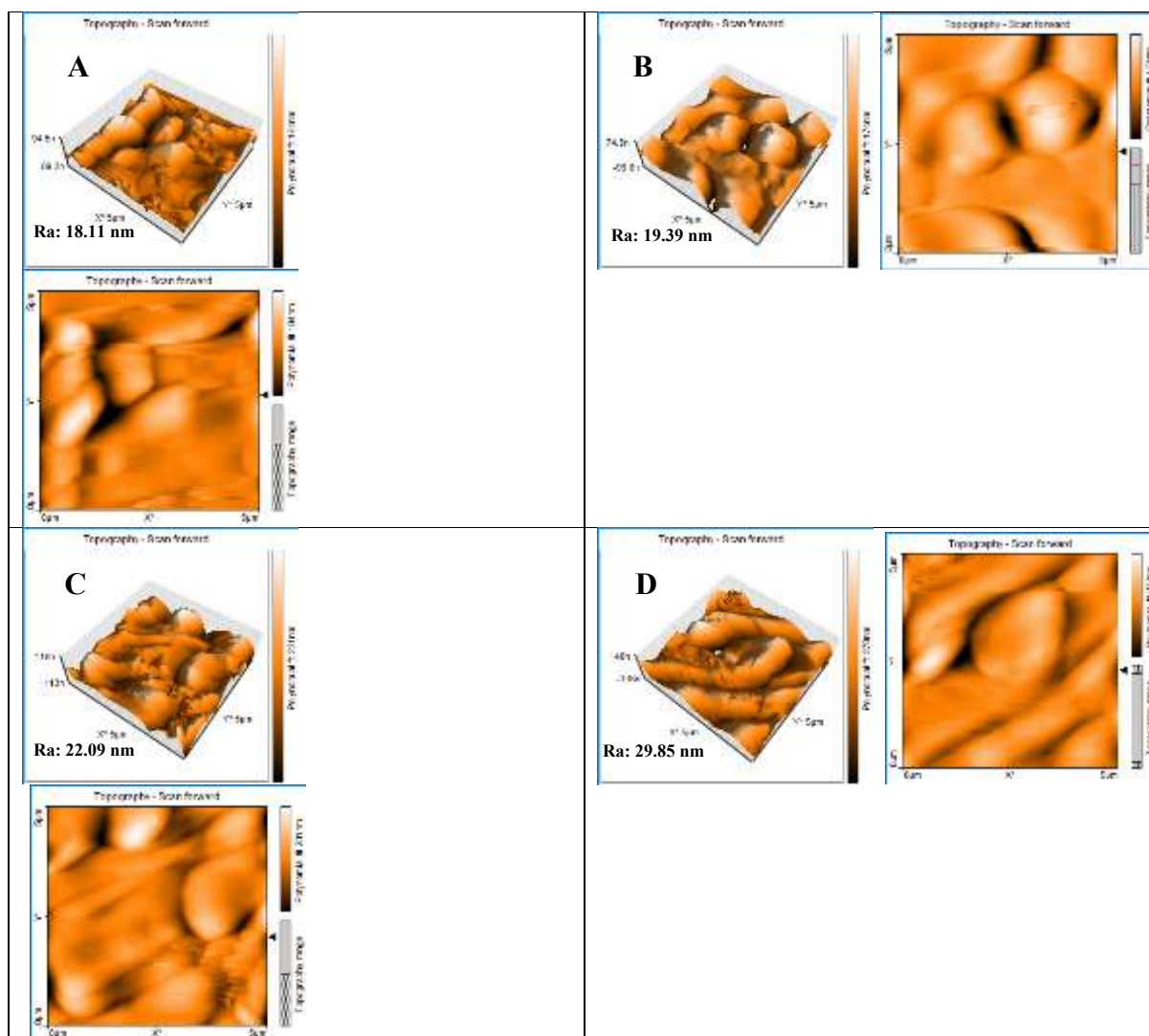
شده قابل مشاهده است. فیلم تهیه شده با فرمولاسیون ۲/۷۱٪ موسیلاژ بامیه و ۰/۴۳٪ روغن سیاه دانه دارای بالاترین زبری سطح بود. مطابق با شکل ۱ مشخص شد که با افزایش غلظت موسیلاژ بامیه و روغن سیاه دانه پارامترهای Ra و Rq افزایش یافتند و بر مبنای جدول ۲ برای پارامترهای Ra و Rq به ترتیب مدل خطی و مدل تعامل دو عاملی پیشنهاد شد که هر دو مدل معنی دار بودند ($p < 0/05$). افزایش در پارامترهای

۳-۷- مطالعه ریزساختار با میکروسکوپ نیروی اتمی (AFM)

با بررسی تصاویر توپوگرافی از سطح فیلم‌ها توسط میکروسکوپ نیروی اتمی (AFM) می‌توان به پارامترهای Ra و Rq به عنوان شاخص‌های زبری سطح فیلم دست پیدا کرد. در شکل ۳ تصاویر AFM فیلم‌های بیوکامپوزیتی تهیه

کردند که در فیلم خوراکی بر پایه سدیم کازئینات حاوی اسانس دارچین و زنجبیل با افزایش غلظت اسانس، بی‌نظمی و ناهمواری‌های بیشتری در سطح فیلم‌ها مشاهده شد. همچنین Jiménez و همکاران [۴۵] با مطالعه ریزساختار سطح فیلم‌های تهیه شده بر پایه هیدروکسی پروپیل متیل سلولز (HPMC) حاوی اسیدهای چرب لوریک، مریستیک، پالمیک، استئاریک و اولئیک دریافتند که با افزایش غلظت اسیدهای چرب پارامترهای زبری افزایش پیدا کردند که با یافته‌های این تحقیق مطابقت دارد.

زبری را می‌توان به ذرات حل نشده موسیلاژ بامیه در بستر فیلم نسبت داد که باعث می‌شوند زنجیرهای پلیمر به صورت نامنظم کنار یکدیگر قرار گیرند و ساختاری غیریکنواخت و ناهموار را در سطح فیلم‌ها ایجاد می‌کنند. افزایش در زبری و ناهمواری سطح فیلم‌ها علاوه بر تجمع و آگلومره شدن ذرات نامحلول موسیلاژ، به توزیع غیریکنواخت ذرات روغن در طول خشک شدن فیلم نیز مرتبط می‌باشد، که با افزایش غلظت روغن پراکندگی نامتقارن ذرات روغن در فیلم افزایش می‌یابد [۳۲]. در تحقیقی Atarés و همکاران [۴۴] گزارش



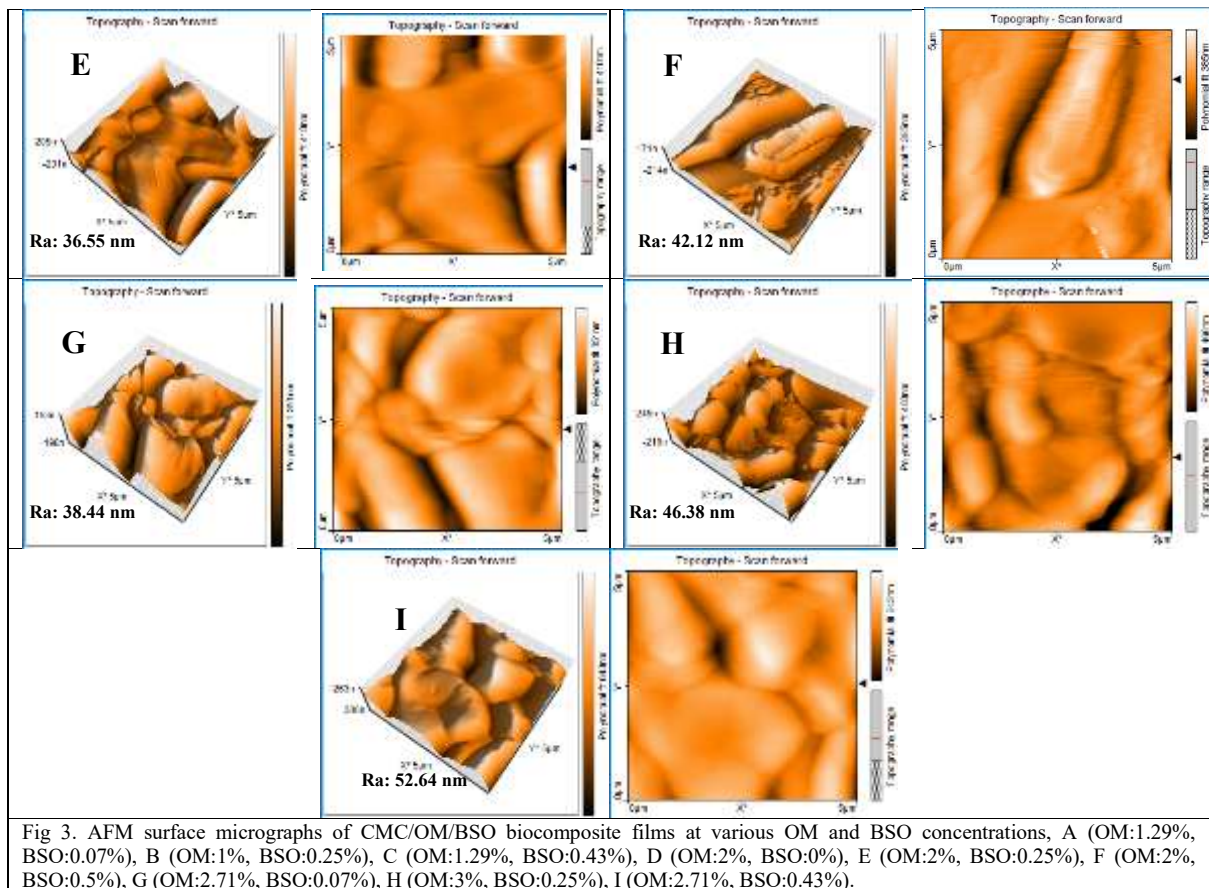


Fig 3. AFM surface micrographs of CMC/OM/BSO biocomposite films at various OM and BSO concentrations, A (OM:1.29%, BSO:0.07%), B (OM:1%, BSO:0.25%), C (OM:1.29%, BSO:0.43%), D (OM:2%, BSO:0%), E (OM:2%, BSO:0.25%), F (OM:2%, BSO:0.5%), G (OM:2.71%, BSO:0.07%), H (OM:3%, BSO:0.25%), I (OM:2.71%, BSO:0.43%).

ظاهر شد که نمایانگر ارتعاشات کششی O-H است. با مقایسه طیف‌های IR مشخص شد که با افزایش غلظت موسیلاژ بامیه پهنای باند O-H کاسته شد و این تغییر دلالت بر افزایش گروه‌های هیدروکسیل آزاد دارد [۲۳]. در رابطه با تأثیر روغن بر ساختار فیلم‌ها، ثابت شد که با افزایش غلظت روغن تغییراتی در پیوندهای ساختاری فیلم ایجاد شد. در فیلم با فرمولاسیون ۲/۷٪ موسیلاژ بامیه و ۰/۰۷٪ روغن سیاه دانه ارتعاشات کششی O-H در عدد موجی 3445 cm^{-1} ظاهر شد که با افزایش غلظت روغن سیاه دانه در فرمولاسیون فیلم‌ها به ۰/۲۵٪ و ۰/۴۳٪ به ترتیب به سمت طول موج‌های پایین‌تر 3434 و 3433 cm^{-1} تغییر محل دادند و این تغییرات تشکیل باندهای هیدروژن بین گروه‌های کربوکسیل CMC و گروه‌های هیدروکسیل ترکیبات فنلی موجود در موسیلاژ بامیه و روغن سیاه دانه را در ماتریس فیلم تأیید نمود [۲۳]. پیک جذبی O-H در فیلم با فرمولاسیون ۲٪ موسیلاژ - ۰٪ روغن در عدد موجی

۳-۸- طیف سنجی مادون قرمز تبدیل فوریه (FTIR)

گروه‌های عاملی و پیوندهای مختلف موجود در ساختار شیمیایی نمونه‌ها فرکانس‌های مختلفی از پرتو IR را جذب می‌کنند، بنابراین به کمک طیف سنجی مادون قرمز می‌توان برهم‌کنش‌ها و تغییرات ساختاری را در فیلم‌های بیوکامپوزیت تهیه شده بررسی کرد. طیف FT-IR فیلم‌های تهیه شده در شکل ۴ نشان داده شده است. طیف فیلم CMC پیک برجسته‌ای را در طول موج 3430 cm^{-1} نشان داد که به ارتعاشات کششی O-H مرتبط می‌باشد، همچنین پیک‌های جذبی در طول موج‌های ۲۹۲۵، ۱۶۲۴ و 1047 cm^{-1} ثبت شدند که به ترتیب به ارتعاشات کششی آلیفاتیک C-H، گروه‌های کربوکسیل و ارتعاشات کششی C-O اشاره دارند. باندهای جذبی فیلم CMC مطابق با مطالعه قبلی بودند [۱۶]. در تمامی فیلم‌ها باند پهنی در ناحیه $3430-3445 \text{ cm}^{-1}$

که مشاهده می‌شود در نمونه‌های حاوی غلظت بیشتر روغن قوت و شدت پیک در عدد موجی 2926 cm^{-1} افزایش یافت و مطابق با یافته‌های Hasheminya و همکاران [۲۶] و Ma و همکاران [۴۳] می‌باشد. همچنین فیلم‌هایی که حاوی غلظت بالاتری از روغن بودند، باند جذبی در عدد موجی 1745 cm^{-1} را با شدت بیشتری به نمایش گذاشتند که ناشی از ارتعاشات کششی C=O می‌باشد. باندهای جذب شده در این محدوده متعلق به گروه استر اسیدهای چرب است و به حضور روغن نسبت داده می‌شود [۱۳]. همچنین باندهایی در محدوده طول موج $1460-1427\text{ cm}^{-1}$ و $1125-1160\text{ cm}^{-1}$ برای همه نمونه‌ها ثبت شدند که به ترتیب به ارتعاشات خمشی CH_2 و گروه C-O-C کربوهیدرات‌ها متعلق می‌باشند [۲۶].

3432 cm^{-1} نمایان شد که با افزایش غلظت روغن به $0/5\%$ به سمت طول موج‌های پایین‌تر 3430 cm^{-1} انتقال یافت و این حاکی از تشکیل پیوندهای هیدروژنی و کاهش گروه‌های OH آزاد می‌باشد. به همین ترتیب، در غلظت‌های پایین‌تر موسیلاژ ($1/1\%$ و $1/29\%$) با افزایش غلظت روغن ارتعاشات کششی O-H در اعداد موجی پایین‌تری ظاهر شد، به طوریکه در فیلم حاوی $0/7\%$ روغن در طول موج 3439 cm^{-1} ثبت شد که با افزایش غلظت روغن به $0/25\%$ و $0/43\%$ ارتعاشات کششی O-H به ترتیب در طول موج‌های پایین‌تر 3437 و 3429 cm^{-1} تشخیص داده شدند. مشاهده این تغییرات همانند سایر فیلم‌ها، وقوع واکنش‌های درون مولکولی و تشکیل پیوندهای هیدروژنی را با افزایش غلظت روغن ثابت نمود [۳۸]. این نتایج با یافته‌های Nisar و همکاران [۳۸] و Moghadam و همکاران [۴۶] مطابقت داشت. پیک در محدوده $2900-3000\text{ cm}^{-1}$ در همه نمونه‌های فیلم ثبت شد که به ارتعاشات کششی C-H مرتبط می‌باشد. همانطور

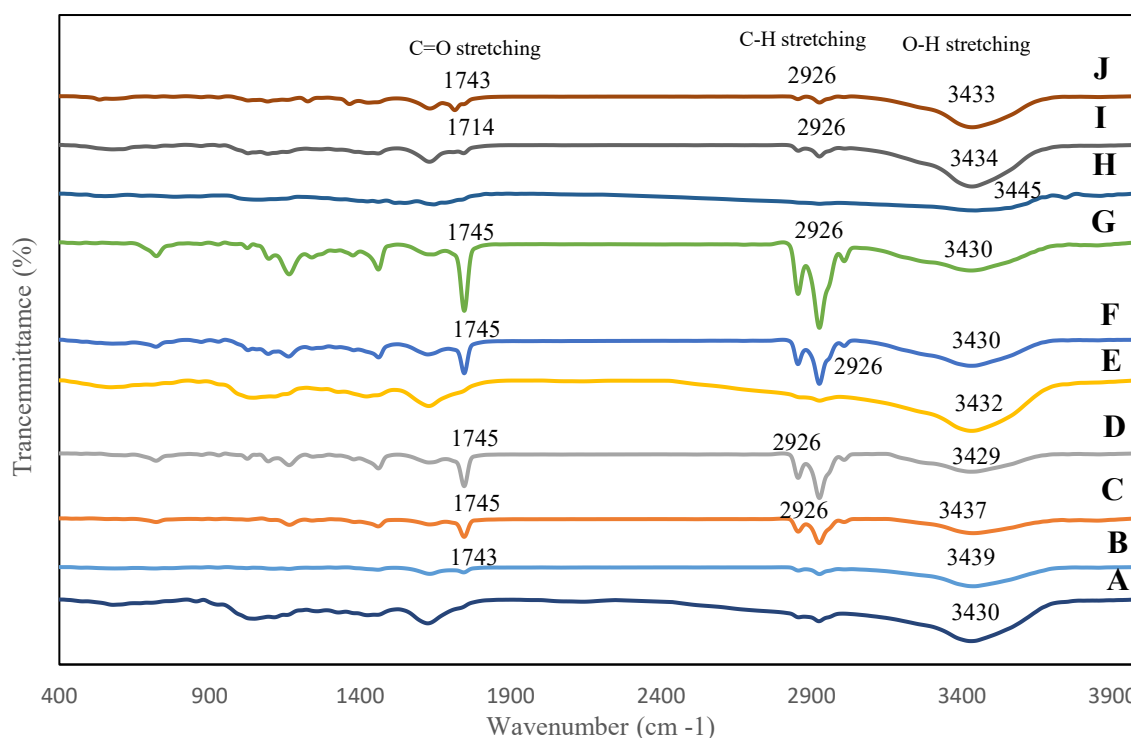


Fig 4. FT-IR spectra for all film samples, A (CMC control), B (OM:1.29%, BSO:0.07%), C (OM:1%, BSO:0.25%), D (OM:1.29%, BSO:0.43%), E (OM:2%, BSO:0%), F (OM:2%, BSO:0.25%), G (OM:2%, BSO:0.5%), H (OM:2.71%, BSO:0.07%), I (OM:3%, BSO:0.25%), J (OM:2.71%, BSO:0.43%).

زردی با توجه به اینکه معنی دار نبود، برای بهینه‌سازی در نظر گرفته نشد. همچنین پارامترها از لحاظ اهمیتی که برای کیفیت فیلم دارند، رتبه‌بندی شدند که برای مهمترین پارامترها عدد ۵ انتخاب شد و ترتیب اهمیت پارامترها در جدول ۳ نشان داده شده است. نمودارهای کانتور در شکل ۱ ارتباط بین متغیرهای مستقل و متغیرهای پاسخ را نشان می‌دهند. همچنین مطابق با شکل ۱ ترکیب بهینه موسیلاژ بامیه و روغن سیاه دانه به ترتیب ۱٪ و ۰/۵٪ با مطلوبیت ۰/۷۵ به دست آمد.

۳-۹- بهینه‌سازی فیلم بیوکامپوزیت بر پایه کربوکسی متیل سلولز حاوی موسیلاژ بامیه و روغن سیاه دانه

به منظور دستیابی به بهترین فرمولاسیون فیلم بر پایه کربوکسی متیل سلولز حاوی موسیلاژ بامیه و روغن سیاه دانه بهینه‌سازی انجام شد. شرایط بهینه‌سازی جهت تولید فیلم با بهترین خصوصیات، در جدول ۳ قابل مشاهده است. در این بهینه‌سازی پارامترهای انحلال‌پذیری، نفوذپذیری به بخار آب و فعالیت آنتی‌اکسیدانی حداکثر و پارامترهای خصوصیات رنگی و زبری سطح، حداقل در نظر گرفته شدند. پارامتر

Table 3. Optimum conditions for achieving optimal CMC/OM/BSO biocomposite film

Factor	Goal	Importance
Okra mucilage	is in range	3
Black seed oil	is in range	3
Thickness (TH)	is in range	3
Density (D)	is in range	3
Solubility (S)	maximize	5
Water vapor permeability (WVP)	maximize	5
Redness (a)	is in range	3
Lightness (L*)	minimize	3
Total color difference (ΔE)	minimize	3
Whiteness Index (WI)	minimize	3
Yellowness Index (YI)	minimize	3
DPPH	maximize	4
Ra	minimize	2
Rq	minimize	2

که با افزایش غلظت روغن سیاه دانه تشکیل پیوندهای هیدروژنی بین گروه‌های هیدروکسیل آزاد موجود در بستر فیلم صورت گرفت. علاوه بر این افزایش غلظت موسیلاژ بامیه فعالیت آنتی‌اکسیدانی فیلم‌ها را افزایش داد، درحالی‌که افزایش غلظت روغن سیاه دانه سبب کاهش فعالیت آنتی‌اکسیدانی فیلم‌ها شد. بنابراین به طور کلی فیلم تهیه شده بر پایه CMC حاوی موسیلاژ بامیه و روغن سیاه دانه را می‌توان به عنوان جایگزین برای بسته‌بندی‌های سنتزی مواد غذایی و دوستدار طبیعت در نظر گرفت.

تأمین مالی

نویسنده اعلام می‌کند که هیچ بودجه‌ای دریافت نکرده است.

۴- نتیجه‌گیری

در این تحقیق تولید فیلم‌های بیوکامپوزیت بر پایه CMC حاوی موسیلاژ بامیه و روغن سیاه دانه مورد مطالعه قرار گرفت. بر اساس یافته‌های به دست آمده با افزایش غلظت موسیلاژ بامیه پارامترهای انحلال‌پذیری و نفوذپذیری به بخار آب افزایش یافتند، درحالی‌که با افزایش غلظت روغن سیاه دانه کاهش نشان دادند. پارامترهای اختلاف رنگ کل (ΔE) و شاخص زردی (YI) با افزایش غلظت موسیلاژ بامیه و روغن سیاه دانه افزایش یافتند. تصاویر به دست آمده از ریزساختار فیلم‌ها توسط SEM و AFM ثابت کرد که با افزایش غلظت موسیلاژ بامیه و روغن سیاه دانه زبری، ناهمواری‌ها و تجمع ذرات در سطح فیلم‌ها افزایش یافت. همچنین مطالعه ساختار فیلم‌ها توسط FTIR مشخص نمود

مشارکت نویسندگان

نویسنده تأیید می‌کند که هیچ گونه تضاد منافع مالی یا منافع رقابتی در این مطالعه ندارد.

تمام فعالیت‌ها توسط نویسنده انجام شده است.

منافع رقابتی

۵- منابع

- [1] Siracusa, V., Rocculi, P., Romani, S., Rosa, M.D. (2008). Biodegradable polymers for food packaging: a review. *Trends in Food Science & Technology*, 19, 634-643.
- [2] Wu, F., Misra, M., Mohanty, A.K. (2021). Challenges and new opportunities on barrier performance of biodegradable polymers for sustainable packaging. *Progress in Polymer Science*, 117, 101395.
- [3] Hassan, B., Chatha, S.A.S., Hussain, A.I., Zia, K.M., Akhtar, N. (2018). Recent advances on polysaccharides, lipids and protein based edible films and coatings: A review. *International Journal of Biological Macromolecules*, 109, 1095-1107.
- [4] Kumar, V.A., Hasan, M., Mangaraj, S., Pravitha M, Kumar Verma, D., Srivastav. P.P. (2022). Trends in Edible Packaging Films and its Prospective Future in Food: A Review. *Applied Food Research*, 2, 100118.
- [5] Irkin, R., Esmer, O.K. (2015). Novel food packaging systems with natural antimicrobial agents. *Food Science and Technology*, 52(10), 6095–6111.
- [6] Salgado, P.R., Ortiz, C.M., Musso, Y.S., Di Giorgio, L., Mauri, A.N. (2015). Edible films and coatings containing bioactives. *Current Opinion in Food Science*, 5, 86-92.
- [7] Tongdeesontorn, W., Mauer, L.J., Wongruong, S., Sriburi, P., Rachtanapun, P. (2011). Effect of carboxymethyl cellulose concentration on physical properties of biodegradable cassava starch-based films. *Chemistry Central Journal*, 5(1), 6-14.
- [8] Bawa, S.H., Badrie, N. Nutrient profile, bioactive components, and functional properties of okra (*Abelmoschus esculentus* (L.) Moench), in: R. R. Watson, V. R. Preedy (Eds.), *Fruits, Vegetables, and Herbs: Bioactive Foods in Health Promotion*, Academic Press, London, UK, 2016, pp. 365–409.
- [9] Ghorji, M.U., Alba, K., Smith, A.M., Conway, B.P. (2014). Okra extracts in pharmaceutical and food applications. *Food Hydrocolloids*, 42, 342-347.
- [10] Mazaheri, Y., Torbati, M., Azadmard-Damirchi S., Savage, G.P. (2019). A comprehensive review of the physicochemical, quality and nutritional properties of *Nigella sativa* oil. *Food Reviews International*, 35 (4), 342-362.
- [11] Darakhshan, S., Bidmeshki pour, A., Hosseinzadeh, A. (2015). Thymoquinone and its therapeutic potentials. *Pharmacological Research*, 95-96, 138-158.
- [12] Ghanbarzadeh, B., Almasi, H. (2011). Physical properties of edible emulsified films based on carboxymethyl cellulose and oleic acid. *International Journal of Biological Macromolecules*, 48, 44–49.
- [13] Akyuz, L., Kaya, M., Ilk, S., Selim Cakmak, Y.S., Salaberria, A.M, Labidi, J., Akyuz Yılmaz, B., Sargin, L. (2018). Effect of different animal fat and plant oil additives on physicochemical, mechanical, antimicrobial and antioxidant properties of chitosan films. *International Journal of Biological Macromolecules*, 111, 475-484.
- [14] Cerqueira, M.A., Souza, B.W.S., Teixeira, J.A., Vicente, A.A. (2012). Effect of glycerol and corn oil on physicochemical properties of polysaccharide films - A comparative study. *Food Hydrocolloids*, 27, 175-184.
- [15] Akhtar, H.M.S., Riaz, A., Hamed, Y.S., Abdin, M., Chen, G., Wan, P., Zeng, X. (2018). Production and characterization of CMC-based antioxidant and antimicrobial films enriched with chickpea hull polysaccharides. *International Journal of Biological Macromolecules*, 118, 469-477.
- [16] Ballesteros, L.F., Cerqueira, M.A., Teixeira, J.A., Mussatto, S.I. (2018). Production and physicochemical properties of carboxymethyl cellulose films enriched with spent coffee grounds polysaccharides. *International Journal of Biological Macromolecules*, 106, 647-655.
- [17] Niknam, R., Ghanbarzadeh, B., Ayaseh, A., Hamishehkar, H. (2019). Plantago major seed gum based biodegradable films: Effects of various plant oils on microstructure and physicochemical properties of emulsified films. *Polymer Testing*, 77, 105868.
- [18] Mohammad Amini, A., Razavi, S.M.A., Zahedi, Y. (2015). The influence of different plasticisers and fatty acids on functional properties of basil seed gum edible film. *International Journal of Food Science and Technology*, 50 (5), 1137–1143.
- [19] Cazon, P., Velazquez, G., Ramirez, J.A., Vazquez, M. (2017). Polysaccharide-based films and

- coatings for food packaging: A review. *Food Hydrocolloids*, 68, 136-148.
- [20] Otoni, C.G., Avena-Bustillos, R.J., Azeredo, H. M.C., Lorevice, M.V., Moura, M.R., Mattoso, L.H.C., McHugh, T.H. (2017). Recent Advances on Edible Films Based on Fruits and Vegetables—A Review. *Comprehensive Reviews in Food Science and Food Safety*, 16(5), 1151- 1169.
- [21] Lee, C.S., Chong, M.F., Robinson, J., Binner, E. (2015). Optimization of extraction and sludge dewatering efficiencies of bio-flocculants extracted from *Abelmoschus esculentus* (okra). *Journal of Environmental Management*, 157, 320-325.
- [22] Taqi, A., Mutihac, L., Stamatina, I. (2014). Physical and barrier properties of apple pectin/cassava starch composite films incorporating *laurus nobilis* L. oil and oleic acid. *Journal of Food Processing and Preservation*, 38 (4), 1982-1993.
- [23] Riaz, A., Lei, S., Akhtar, H.M.S., Wan, P., Chen, D., Jabbar, S., Abid, M., Hashim, M.M., Zeng, X. (2018). Preparation and characterization of chitosan-based antimicrobial active food packaging film incorporated with apple peel polyphenols. *International Journal of Biological Macromolecules*, 114, 547-555.
- [24] Shojaee-Aliabadi, S., Hosseini, H., Mohammadifar, M.A., Mohammadi, A., Ghasemlou, M., Ojagh, S.M., Hosseini, S.M., Khaksar, R. (2013). Characterization of antioxidant-antimicrobial κ -carrageenan films containing *Satureja hortensis* essential oil. *International Journal of Biological Macromolecules*, 52, 116- 124.
- [25] Kanmani, P., Rhim, J.W. (2014). Antimicrobial and physical-mechanical properties of agar-based films incorporated with grapefruit seed extract. *Carbohydrate Polymers*, 102, 708-716.
- [26] Hasheminya, S.M., Rezaei Mokarram, R., Ghanbarzadeh, B., Hamishekar, H., Samadi Kafil, H., Dehghannya, J. (2019). Development and characterization of biocomposite films made from kefir, carboxymethyl cellulose and *Satureja Khuzestanica* essential oil. *Food Chemistry*, 289, 443-452.
- [27] Wu, H., Lei, Y., Zhu, R., Zhao, M., Lu, J., Xiao, D., Jiao, C., Zhang, Z., Shen, G., Li, S. (2019). Preparation and characterization of bioactive edible packaging films based on pomelo peel flours incorporating tea polyphenol. *Food Hydrocolloids*, 90, 41-49.
- [28] Aydogdu, A., Radke, C.J., Bezci, S., Kirtil, E. (2020). Characterization of curcumin incorporated guar gum/orange oil antimicrobial emulsion films. *International Journal of Biological Macromolecules*, 148, 110-120.
- [29] Galus, S., Kadzińska, J. (2016). Whey protein edible films modified with almond and walnut oils. *Food Hydrocolloids*, 25, 78-86.
- [30] Sun, L., Sun, J., Chen, L., Niu, P., Yang, X., Guo, Y. (2017). Preparation and characterization of chitosan film incorporated with thinned young apple polyphenols as an active packaging material. *Carbohydrate Polymers*, 163, 81-91.
- [31] Nawab, A., Alam, F., Abdul Haq, M., Lutfi, Z., Hasnain, A. (2017). Mango kernel starch-gum composite films: Physical, mechanical and barrier properties. *International Journal of Biological*, 98, 869-876.
- [32] Ma, W., Tang, C., Yin, S., Yang, X., Wan, Q., Liu, F., Wei, Z. (2012). Characterization of gelatin-based edible films incorporated with olive oil. *Food Research International*, 49, 572-579.
- [33] Rubilar, J.F., Cruz, R.M.S., Silva, H.D., Vicente, A.A., Khmelinskii, I., Vieira, M.C. (2013). Physico-mechanical properties of chitosan films with carvacrol and grape seed extract. *Journal of Food Engineering*, 115(4), 466-474.
- [34] Jang, S.A., Shin, Y.J., Song, K.B. (2011). Effect of rapeseed protein-gelatin film containing grapefruit seed extract on 'Maehyang' strawberry quality. *International Journal of Food Science and Technology*, 46(3), 620-625.
- [35] Cerqueira, M.A., Souza, B.W.S., Martins, J.T., Teixeira, J.A., Vicente, A.A. (2010). Seed extracts of *Gleditsia triacanthos*: Functional properties evaluation and incorporation into galactomannan films. *Food Research International*, 43(8), 2031-2038.
- [36] Ghasemlou, M., Khodaiyan, F., Oromiehie, A., Yarmand, M.S. (2011). Characterization of edible emulsified films with low affinity to water based on kefir and oleic acid. *International Journal of Biological Macromolecules*, 49, 378-384.
- [37] Saberi, B., Chockchaisawasdee, S., Golding, J.B., Scarlett, C.J., Stathopoulos, C.E. (2017). Development of biocomposite films incorporated with different amounts of shellac, emulsifier, and surfactant. *Food Hydrocolloids*, 72, 174-184.
- [38] Nisar, T., Wang, Z.C., Yang, X., Tian, Y., Iqbal, M., Guo, Y. (2018). Characterization of citrus pectin films integrated with clove bud essential oil: Physical, thermal, barrier, antioxidant and antibacterial properties. *International Journal of Biological Macromolecules*, 106, 670-680.
- [39] Bonilla, J., Talón, E., Atarés, L., Vargas, M., Chiralt, A. (2013). Effect of the incorporation of

antioxidants on physicochemical and antioxidant properties of wheat starch–chitosan films. *Journal of Food Engineering*, 118(3), 271-278.

[40] Dinakaran, S., Sridhar, S., Eganathan, P. (2016). Chemical composition and antioxidant activities of black seed oil (*Nigella Sativa* L). *International Journal of Pharmaceutical Sciences and Research*, 7(11), 4473-4479.

[41] Fabra, M.J., Falcó, I., Randazzo, W., Sánchez, G., López-Rubio, A. (2018). Antiviral and antioxidant properties of active alginate edible films containing phenolic extracts. *Food Hydrocolloids*, 81, 96-103.

[42] Fabra, M.J., Jiménez, A., Atarés, L., Talens, P., Chiralt, A. (2009). Effect of Fatty Acids and Beeswax Addition on Properties of Sodium Caseinate Dispersions and Films. *Biomacromolecules*, 10, 1500–1507.

[43] Ma, Q., Hu, D., Wang, H., Wang, L. (2016). Tara gum edible film incorporated with oleic acid. *Food Hydrocolloids*, 56, 127-133.

[44] Atarés, L., Bonilla, J., Chiralt, A. (2010). Characterization of sodium caseinate-based edible films incorporated with cinnamon or ginger essential oils L. *Journal of Food Engineering*, 100, 678–687.

[45] Jiménez, A., Fabra, M.J., Talens, P., Chiralt, A. (2010). Effect of lipid self-association on the microstructure and physical properties of hydroxypropyl-methylcellulose edible films containing fatty acids. *Carbohydrate Polymers*, 82, 585-593.

[46] Moghadam, M., Salami, M., Mohammadian, M., Khodadadi, M., Emam-Djomeh, Z. (2020). Development of antioxidant edible films based on mung bean protein enriched with pomegranate peel. *Food Hydrocolloid*, 104, 105735.



Scientific Research

Investigation of physical, antioxidant and structural properties of edible films based on carboxymethyl cellulose containing okra mucilage and black cumin seed (*Nigella sativa*) oil

Fariba Shekar¹, Afshin Javadi^{*2}, Sodeif Azadmard-Damirchi³, Hamed Hamishehkar⁴

- 1- PhD Student, Department of Food Science and Technology, Mamaghan Branch, Islamic Azad University, Mamaghan, Iran.
- 2- Associate Professor, Department of Food Hygiene, Faculty of Veterinary, Tabriz Medical Science, Islamic Azad University, Tabriz, Iran.
- 3- Professor, Department of Food Science and Technology, Faculty of Agriculture, University of Tabriz, Tabriz, Iran.
- 4- Professor, Drug Applied Research Center, Tabriz University of Medical Sciences, Tabriz, Iran

ARTICLE INFO

ABSTRACT

Article History:

Received: 2024/01/06

Review: 2024/08/24

Accepted: 2024/09/07

Keywords:

Biocomposite Film,
Okra Mucilage,
Black Seed Oil,
Microstructure Properties,
Hydrophilic Nature,
Hydrophobic Nature

DOI: 10.48311/fsct.2026.83677.0

*Corresponding Author E-

javadi@iaut.ac.ir

The purpose of this work was to establish the biocomposite films made from carboxymethyl cellulose (CMC) (1% w/v), okra mucilage (OM) (1-3% w/v) and black cumin seed oil (BSO) (0-0.5% v/v). The impact of OM and BSO concentrations on the properties of biocomposite films including the thickness, density, water vapor permeability, water solubility, antioxidant activity, color and microstructure properties was evaluated by response surface methodology. The results demonstrated that the water solubility and water vapor barrier properties of fabricated films increased at higher OM concentrations, whereas by increasing BSO concentrations, these parameters decreased. The parameters of redness (a^*), total color difference value (ΔE) and yellowness index (YI) have incremental trend after incorporating higher OM and BSO concentrations, while the lightness (L^*) and whiteness index (WI) displayed a decline. Antioxidant activity (DPPH) and total phenolic content (TPC) of films increased by increasing okra mucilage concentrations, on the contrary the incorporation of BSO at higher concentrations caused a diminish in antioxidant activity and total phenolic content. Meanwhile, the AFM images indicated that the roughness parameters (R_a , R_q) increased by increasing okra mucilage and black seed oil concentrations. According to the analysis of variance, the proposed model was significant for the all parameters ($p < 0.05$), except for the yellowness parameter (b^*), for which none of the models were statistically significant ($p > 0.05$). Based on optimization, the optimal film was obtained with a proportion of 1% OM and 0.5% BSO, with a desirability score of 0.75. The recorded SEM images of the microstructural cross-sectional films indicated that the porosity and discontinuity increased by increasing okra mucilage amount, in contrast higher concentrations of black seed oil led to a decrease in porosity of cross-sectional films. Additionally, FTIR analysis confirmed the occurrence of new intermolecular interactions in the film matrix.