

Investigating physical and mechanical properties of bionanocomposite film based on flaxseed mucilage and cellulose nanocrystal

Elham Safaei¹; Hannan Lashkari^{2*}; Sara Ansari³; Alireza Shirazinejad⁴

*- hlashkari@gmail.com

Introduction

Manufacturers are trying to replace plastic materials in the food packaging industry with biodegradable and edible films. Biodegradable edible films and coatings are mainly made from carbohydrates, lipids and proteins and their mixtures. In recent decades, various carbohydrates from plant sources have been investigated and introduced as new compounds for the preparation of these films. Flaxseed gum is a white to cream-colored powder that dissolves in water and produces a gel, and is a desirable compound for forming films and coatings. Recently, through the integration of reinforcements or fillers with at least one nanometer dimension in the substrate of one or more natural biopolymers, the physicochemical, mechanical, optical, thermal and barrier properties of pure biofilms have been improved. The use of cellulose nanoparticles in biofilms as a reinforcing agent for polymer materials leads to the creation of composite films with better quality characteristics and leads to the creation of functionalization activities in films production. Therefore, the aim of this research was to produce and characterize edible and biodegradable film based on the combination of flaxseed gum and cellulose nanocrystals.

Materials and Methods

Cellulose nanocrystals (Degree of crystallinity: 42% and average particle size: 58 nm) were extracted from cotton linters. Glycerol and other chemicals used for this research were obtained from Merck, Germany. Flaxseeds were purchased from the local market of Shiraz (Iran). Bionanocomposite films were prepared from different ratios (0:100, 30:70, 50:50, 70:30 and 100:0) of flaxseed mucilage (2% w/v) and cellulose nanocrystal (6% w/v) solutions. The prepared solutions were poured on a petri dish with a diameter of 15 cm and dried in an oven at 80°C for 4 hours. Their physical, color and mechanical properties were investigated and the best ratio was selected for the preparation of bionanocomposite film. The produced films were subjected to tests to determine thickness, solubility, water absorption capacity, permeability to water vapor, tensile strength, elongation at break point, and colorimetry. The microstructure of the produced film was studied using a scanning electron microscope (SEM). Average data were analyzed by analysis of variance in a completely random design using SPSS 22.0 software. Differences between treatments were expressed in Duncan's multiple range test at the 95% probability level ($p < 0.05$) and the corresponding graphs were drawn with Excel 2013.

Results and Discussion

The results of the film thickness test showed that the film containing 100% mucilage has the lowest thickness and with the addition of cellulose nanocrystals, the thickness increased significantly ($p < 0.05$). The results of the water solubility and water absorption capacity of the film samples showed that the addition of cellulose nanocrystals to the flaxseed mucilage film initially led to a significant decrease in the water solubility and water absorption capacity ($p < 0.05$), so that the lowest These two physical parameters were obtained in the film containing the combination of 70% flaxseed mucilage and 30% cellulose nanocrystal, and then with the increase of cellulose nanocrystals, an increase in water solubility and water absorption capacity of the films was observed. Nanocrystal cellulose at low levels (30%) acted as a filler and was uniformly dispersed in the network of the film and by filling the empty pores of the biopolymer film based on flax seed mucilage, it made the passage of water vapor more complicated and reduced the permeability to water vapor. gave, but its higher amount increased the permeability of the film to water vapor. The results showed that by adding cellulose nanocrystal to the film based on flaxseed mucilage and increasing its amount, the brightness of the films decreased and the intensity of redness, yellowness and turbidity of the films increased significantly ($p < 0.05$). By combining flaxseed mucilage and cellulose nanocrystals in a ratio of 30:70, the best film was produced in terms of mechanical strength and stability against moisture and water vapor. The SEM image of this film showed a smooth, even surface and a uniform distribution of cellulose nanocrystals in the film network.

Conclusion

The results finally showed that the combination of flaxseed mucilage and cellulose nanocrystals in a ratio of 30:70 was able to produce a biodegradable and edible film with favorable structural and barrier properties. The characteristics of this film include; thickness (0.313mm), solubility (53.42%), water absorption capacity (44.44%), permeability to water vapor ($0.350 \text{ g.m}^{-1}\text{s}^{-1}\text{Pa}^{-1} \times 10^{-10}$), tensile strength (0.973 MPa), elongation at break point (30.52%) was obtained. The colorimetric indices L^* , a^* , b^* and turbidity were determined as 79.73, 1.95, 3.48 and 1.335 mm^{-1} respectively.

Acknowledgement

The authors would like to express their sincere gratitude to Islamic Azad University, Sarvestan Branch.

Keywords: Biodegradable, Colorimetry, Microstructure, Tensile strength, Water resistance.

نسخه خطی
پایان نامه
انتشار

بررسی خصوصیات فیزیکی و مکانیکی فیلم بایونانوکامپوزیت بر پایه ی موسیلاژ کتان و نانوکریستال سلولز

الهام صفایی، حنان لشکری*، سارا انصاری، علیرضا شیرازی نژاد

- ۱- دانشجوی دکتری، گروه علوم و صنایع غذایی، واحد سروستان، دانشگاه آزاد اسلامی، سروستان ایران
- ۲- استادیار، گروه علوم و صنایع غذایی، واحد زرین دشت، دانشگاه آزاد اسلامی، زرین دشت، ایران
- ۳- دانشیار، گروه علوم و صنایع غذایی، واحد کازرون، دانشگاه آزاد اسلامی، کازرون، ایران
- ۴- استادیار، گروه علوم و صنایع غذایی، واحد سروستان، دانشگاه آزاد اسلامی، سروستان ایران

چکیده:

تولیدکنندگان در تلاش هستند تا فیلم‌های زیست تخریب‌پذیر و خوراکی را جایگزین مواد پلاستیکی در صنعت بسته‌بندی مواد غذایی کنند. هدف از این تحقیق، تولید و مشخصه‌سازی فیلم خوراکی و زیست تخریب‌پذیر بر پایه ترکیب صمغ دانه کتان و نانوکریستال سلولز بود. فیلم‌ها از نسبت‌های مختلف (۰:۱۰۰، ۳۰:۷۰، ۵۰:۵۰، ۷۰:۳۰ و ۱۰۰:۰) محلول‌های موسیلاژ دانه کتان (۲ درصد وزنی/حجمی) و نانوکریستال سلولز (۶ درصد وزنی/حجمی) تهیه شد و خصوصیات فیزیکی، رنگی و مکانیکی آنها مورد بررسی قرار گرفت و بهترین نسبت برای تهیه فیلم بایونانوکامپوزیت انتخاب گردید. ریزساختار فیلم تولیدی با استفاده از میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) مورد مطالعه قرار گرفت. میانگین داده‌ها، توسط آنالیز تجزیه واریانس در طرح کاملاً تصادفی و با استفاده از نرم افزار SPSS 22.0 تجزیه و تحلیل شدند. تفاوت‌های بین تیمارها، در آزمون چنددامنه‌ای دانکن و در سطح احتمال ۹۵ درصد بیان گردید ($p < 0.05$) و نمودارهای مربوطه با Excel 2013 رسم شدند. نتایج نشان داد که با افزودن نانوکریستال سلولز به فیلم بر پایه موسیلاژ دانه کتان و افزایش میزان آن، شدت روشنایی فیلم‌ها کاهش و شدت قرمزی، زردی و کدورت فیلم‌ها به طور معنی‌داری افزایش یافت ($p < 0.05$). نتایج حاصل در نهایت نشان داد که ترکیب موسیلاژ دانه کتان و نانوکریستال سلولز در نسبت ۳۰:۷۰ توانست بهترین فیلم از لحاظ استحکام مکانیکی و پایداری در مقابل رطوبت و بخار آب را تولید کند. تصویر SEM این فیلم بیانگر سطح صاف، هموار و توزیع یکنواخت نانوکریستال‌ها در شبکه فیلم بود.

واژه‌های کلیدی: رنگ سنجی، ریز ساختار، زیست تخریب پذیر، مقاومت در برابر آب، مقاومت کششی.

بسته‌بندی روشی است که در آن از ترکیبات مناسب جهت نگهداری و محافظت از مواد غذایی از زمان تولید تا زمان مصرف، استفاده می‌شود. بسته‌بندی‌های پلاستیکی از لحاظ فنی قابل تجزیه هستند، ولی در شرایط طبیعی، تجزیه آن‌ها بسیار طولانی‌تر از مواد زیستی صورت می‌گیرد (Valdés *et al.*, 2015). از این رو، تولیدکنندگان در تلاش هستند تا کاربرد مواد پلاستیکی را در صنعت بسته‌بندی کاهش داده و فیلم‌های انعطاف‌پذیر و زیست‌تخریب‌پذیر و پوشش‌های خوراکی را جهت بسته‌بندی مواد غذایی توسعه دهند (Espitia *et al.*, 2014). تحقیقات اخیر نشان داده‌اند که از مواد زیستی برپایه منابع گیاهی می‌توان به عنوان بسته‌بندی مواد غذایی برای انواع مختلف محصولات استفاده نمود (Sagnelli *et al.*, 2017). فیلم‌ها و پوشش‌های خوراکی دوستدار محیط زیست اساساً از کربوهیدرات‌ها، لیپیدها و پروتئین‌ها و مخلوطی از آنها تهیه می‌شوند (Gohargani *et al.*, 2020). فیلم‌ها و پوشش‌های هیدروکلوئیدی، از پروتئین‌ها، مشتقات سلولز، پکتین و سایر پلی‌ساکاریدها (نظیر صمغ‌ها) تشکیل می‌شوند. در طی دهه‌های اخیر، پلی‌ساکاریدهای مختلفی به عنوان ترکیبات جدید جهت تهیه فیلم‌ها و پوشش‌های خوراکی به منظور بسته‌بندی مواد غذایی بررسی و معرفی شده است (Ramos *et al.*, 2016). کتان با نام علمی *Linum usitatissimum L.* گیاهی یکساله و متعلق به خانواده کتان (Linaceae) بوده و جزو قدیمی‌ترین محصولات کشاورزی به شمار می‌آید. دانه کتان بیضی‌شکل، صاف و در یک انتها نوک‌تیز بوده و دارای ابعاد تقریبی $1 \times 2/5$ میلی‌متر است. از دانه کتان به طور مؤثری جهت جلوگیری از بیماری‌های مختلف نظیر فشار خون بسیار پایین و کلسترول پایین استفاده می‌شود، زیرا این دانه حاوی اسید آلفا-لینولئیک اسید، لیگنان‌ها و پلی‌ساکاریدها می‌باشد (Tabibloghmany *et al.*, 2013). پوسته دانه کتان دارای چهار لایه است که لایه خارجی آن از فیبر محلول تشکیل شده است و این فیبر، موسیلاژ نامیده می‌شود. موسیلاژ زمانی که در آب حل می‌شود، یک لایه ژل‌مانند را تشکیل می‌دهد (Tee *et al.*, 2017). بنابراین، این موسیلاژ، یک ترکیب مطلوب به منظور تشکیل فیلم‌ها یا پوشش‌ها می‌باشد (Hernández *et al.*, 2010). ترکیب مونوساکاریدهای موسیلاژ کتان شامل دی-زایلوز، ال-آرابینوز، ال-رامنوز، دی-گلوکز، ال-گالاکتوز و ال-گالاکتورونیک اسید است (Stewart & Mazza, 2000).

نانوکامپوزیت‌های زیستی مفهوم جدیدی از مواد کاربردی و ترکیبی می‌باشند که از طریق تلفیق تقویت‌کننده‌ها یا فیلرهایی با حداقل یک بعد نانومتری در بستر یک یا چند پلیمر زیستی طبیعی تولید می‌گردند (Savadekar *et al.*, 2012). نانوکامپوزیت‌ها در مقایسه با پلیمرهای زیستی خالص، دارای خصوصیات فیزیکوشیمیایی، مکانیکی، نوری، حرارتی و ممانعت‌کنندگی بهبودیافته‌ای هستند (Rhim *et al.*, 2013). کاربرد نانوذرات سلولز در فیلم‌های زیستی به عنوان عامل تقویت‌کننده مواد پلیمری، موجب ایجاد فیلم‌های کامپوزیتی با خصوصیات کیفی بهتر شده و منجر به ایجاد فعالیت‌های عملگرایی در فیلم‌های تولیدی می‌گردد. این نانوذرات توسط کاربرد تیمارهای مکانیکی، شیمیایی و یا تیمار ترکیبی، از دیواره سلولی منابعی نظیر پالپ پنبه و چوب استخراج می‌شوند (Jensen *et al.*, 2015). نانوذرات سلولز به عنوان افزودنی مطلوب جهت بهبود خصوصیات کیفی پلیمرهای زیستی مورد توجه می‌باشند، چرا که ویژگی‌های مطلوبی مانند تجدیدپذیر بودن، زیست‌تخریب‌پذیری، در دسترس و ارزان قیمت بودن، ایجاد استحکام مکانیکی بالا، دانسیته پایین داشته

و امکان استخراج آن از ضایعات صنعت غذا و کشاورزی و صنعت غذا، وجود دارد (Panaitescu *et al.*, 2015). نانوکریستال‌های سلولز بلورینگی بالایی دارند (غالباً بین ۹۷-۸۵ درصد). بلورینگی بالای کریستال‌های سلولز تأثیر مستقیمی بر خصوصیات شیمیایی، ماندگاری آب و قدرت تورم نشان می‌دهد (Peng *et al.*, 2011). از آنجایی که این نانوکریستال‌ها به طور مؤثری با پلیمرهای زیستی واکنش می‌دهند، می‌توانند به خوبی در شبکه پلیمری فیلم زیستی پراکنده و توزیع شوند (Sharmin *et al.*, 2012). در تحقیقات پیشین از نانوکریستال‌های سلولز جهت بهبود خصوصیات پوشش‌ها و فیلم‌های خوراکی مختلف نظیر آلزینات (Criado *et al.*, 2020)، صمغ ژلان (Criado *et al.*, 2021)، ایزوله پروتئین آب‌پنیر (Sukyai *et al.*, 2018)، کیتوزان و موم‌عسل (Wardhono *et al.*, 2019) استفاده شده است.

بر طبق تحقیقات صورت گرفته، مطالعات محدودی در زمینه توسعه فیلم‌های زیست تخریب‌پذیر ترکیبی بر پایه صمغ و نانوکریستال سلولز انجام گرفته است. بنابراین، هدف از این تحقیق، تولید و مشخصه‌سازی فیلم بر پایه ترکیب صمغ دانه کتان و نانوکریستال سلولز بود.

۲- مواد و روش‌ها

۲-۱- مواد

گلیسرول و سایر مواد شیمیایی و مورد استفاده جهت انجام این تحقیق از شرکت مرک آلمان تهیه شدند. دانه کتان از بازار محلی شیراز (ایران) خریداری شد.

۲-۲- تهیه نانوکریستال سلولز

نانوکریستال سلولز از لیتر پنبه استخراج شد. لیتر پنبه توسط قیچی به قطعات کوچک تقسیم شده و سپس در محلول ۲ درصد وزنی سود به مدت ۱۲ ساعت در دمای اتاق و با هم‌زدن مداوم، به منظور حذف ناخالصی‌ها، تیمار شده و سرانجام با آب مقطر شسته شد. عمل هیدرولیز اسیدی با استفاده از اسید سولفوریک ۶۵ درصد وزنی و با نسبت ۱۱ درصد وزنی فیبرهای پنبه صورت گرفت. هیدرولیز در دمای ۴۵ درجه سانتی‌گراد و به مدت یک ساعت تحت هم‌زدن مداوم انجام گرفت. سوسپانسیون حاصل با آب مقطر مخلوط شده و عمل سانتریفوژ با ۱۰۰۰۰ دور در دقیقه به مدت ۱۵ دقیقه انجام شد. سپس سوپرناتانت تخلیه و با آب مقطر جایگزین گردید. عمل سانتریفوژ تا رسیدن pH سوپرناتانت به بالای ۴، حدوداً ۸ بار صورت گرفت (به دلیل حساسیت غشاهای دیالیز به pH پایین و از بین رفتن کارایی آن‌ها، بخشی از اسید توسط سانتریفوژ جدا می‌شود). در مرحله بعد، عمل دیالیز توسط غشاهای دیالیزی به منظور حذف یون‌های سولفات از محلول رویی و رساندن pH آن به حد خنثی انجام گرفت. سوسپانسیون نانوکریستال سلولز در غشاهای دیالیز ریخته شد، غشاها در داخل آب مقطر قرار داده شده و چند بار در روز آب مقطر تعویض گردید. بعد از رسیدن pH سوسپانسیون به حد خنثی، تیمار مکانیکی

شدید توسط هموژنایزر با ۴۵۰۰ دور در دقیقه به مدت یک‌ساعت با فواصل زمانی ۱۵ دقیقه کار کردن و ۱۵ دقیقه استراحت (به منظور جلوگیری از بالا رفتن دمای سوسپانسیون) انجام شد. در نهایت، سوسپانسیون به مدت ۳۰ دقیقه تحت تیمار اولتراسوند با فواصل زمانی ۱۰ دقیقه قرار گرفت. بعد از هر بار تیمار اولتراسوند، آب دستگاه با آب سرد تعویض شد. به منظور جلوگیری از آلودگی میکروبی، چند قطره کلروفرم به سوسپانسیون (درجه ی بلورینگی: ۴۲٪ و میانگین اندازه ذرات: ۵۸ نانومتر) اضافه شده و تا زمان استفاده در یخچال نگهداری گردید (Roohani *et al.*, 2008).

۲-۳- استخراج موسیلاژ دانه کتان

جهت استخراج موسیلاژ دانه کتان، در ابتدا ۲۴۰ گرم دانه کتان در ۹۶۰ میلی‌لیتر آب مقطر در دمای اتاق به مدت ۱۸ ساعت خیسانده شد. پس از آن، ۸۰۰ میلی‌لیتر آب مقطر افزوده شده و به طور مداوم به مدت ۱۵ دقیقه هم‌زده شد. در نهایت، دو بار فیلتراسیون صورت گرفت (فیلتر دارای مش ۴۰) تا صمغ جداسازی شود (Prado *et al.*, 2018). محلول صمغ دانه کتان استخراج شده با دو برابر حجم خود اتانول ۹۵ درصد ترسیب داده شد و با استفاده از سانتریفیوژ کردن در ۳۰۰۰ دور در دقیقه به مدت ۱۰ دقیقه جداسازی گردید. صمغ جداسازی شده در آن در دمای ۸۰ درجه سانتی‌گراد به مدت ۴ ساعت خشک شد (Wang *et al.*, 2011).

۲-۵- تهیه فیلم خوراکی ترکیبی بر پایه موسیلاژ دانه کتان و نانوکریستال سلولز

جهت تهیه فیلم‌های بایونانو کامپوزیت مورد نظر، از روش کستینگ استفاده شد. بدین صورت که صمغ کتان در آب دیونیزه (۷/۰- pH=۶/۴) حل شد و محلول حاصل به مدت ۳۰ دقیقه در دمای ۲۵ درجه سانتی‌گراد هم‌زده شد، تا محلول صمغ کتان دارای وزن خشک ۲ درصد وزنی/حجمی حاصل آمد. برای تهیه محلول نانوکریستال سلولز نیز این نانوذرات در آب دیونیزه حل شدند تا محلولی با ۶ درصد نانوکریستال سلولز به دست آمد. محلول صمغ کتان و نانوکریستال سلولز در سطوح مختلف با یکدیگر ترکیب شدند و از گلیسرول به عنوان پلاستی‌سایزر (۳۰ درصد وزنی/وزنی) در محلول‌های فیلم‌سازی استفاده گردید (Prado *et al.*, 2018). محلول‌های تهیه شده بر روی پتری‌دیش با قطر ۱۵ سانتی‌متر ریخته شدند و در دمای ۸۰ درجه سانتی‌گراد به مدت ۴ ساعت در آن خشک گردیدند. در نهایت فیلم‌های خشک شده از پتری‌دیش جدا شدند (Wang *et al.*, 2011). سپس آزمون‌های میزان ضخامت، حلالیت در آب، ظرفیت جذب آب، نفوذپذیری به بخار آب، خواص مکانیکی، شاخص‌های رنگی، کدورت و بررسی مورفولوژی توسط میکروسکوپ الکترونی روبشی بر روی فیلم‌های حاصل انجام گرفت و بهترین فیلم از لحاظ خصوصیات فیزیکی و مکانیکی انتخاب گردید.

۲-۶- اندازه‌گیری میزان ضخامت

ضخامت فیلم‌های بایونانو کامپوزیت، با استفاده از یک میکرومتر دیجیتالی با دقت ۰/۰۰۱ میلی‌متر اندازه‌گیری شد.

۷-۲- اندازه‌گیری میزان حلالیت در آب و ظرفیت جذب آب (WAC)^۱

میزان حلالیت در آب فیلم‌ها و همچنین ظرفیت جذب آب، با استفاده از روش بیان شده توسط Torabi و MohammadiNafchi (۲۰۱۳) تعیین گردید. مقادیر حلالیت‌پذیری و ظرفیت جذب آب فیلم‌ها از طریق رابطه ۱ و ۲ محاسبه گردید:

$$\text{درصد حلالیت} = \frac{\text{وزن خشک شده نهایی فیلم} - \text{وزن خشک شده اولیه فیلم}}{\text{وزن خشک شده اولیه فیلم}} \times 100 \quad (1)$$

$$\text{WAC} = \frac{\text{وزن آب جذب شده}}{\text{وزن خشک شده فیلم}} \quad (2)$$

۸-۲- اندازه‌گیری میزان نفوذپذیری به بخار آب (WVP)^۲

اندازه‌گیری نفوذپذیری نسبت به بخار آب بر اساس استاندارد ASTM E96 توسط دسیکاتور حاوی محلول فوق اشباع نیترات‌منیزیم انجام شد (ASTM, 2002). پس از محاسبه سرعت انتقال بخار آب، میزان نفوذپذیری نسبت به بخار آب از طریق رابطه ۳ به دست آمد، که در این رابطه: WVTR سرعت نفوذ بخار آب بر حسب گرم بر مترمربع؛ X ضخامت فیلم بر حسب متر؛ P فشار بخار آب خالص در دمای ۲۵ درجه سانتی‌گراد بر حسب پاسکال؛ ΔR اختلاف رطوبت بین درون و بیرون ویال بر حسب درصد؛ WVP نفوذپذیری به بخار آب.

$$\text{WVP} = \frac{\text{WVTR} \times X}{P \times \Delta R} \quad (3)$$

۱۰-۲- تعیین خصوصیات مکانیکی

بررسی خواص مکانیکی فیلم‌ها، بر اساس استاندارد ASTM و توسط دستگاه بافت‌سنج صورت گرفت (ASTM, 2008). بدین صورت که خصوصیات مکانیکی فیلم‌ها توسط آزمون کششی و با استفاده از دستگاه بافت‌سنج و طبق پارامترهای سل بار ۱ kN و سرعت ۵۰ mm/min ارزیابی شدند. برای هر فیلم، پنج نمونه با ابعاد ۵۰ mm × ۱۵۰ mm آنالیز گردید. استحکام کششی بر حسب Mpa و کشیدگی تا نقطه شکست بر حسب درصد اندازه‌گیری شد.

۱۱-۲- تعیین شاخص‌های رنگی و کدورت

^۱ Water Absorption Capacity

^۲ Water Vapour Permeability

برای تعیین شاخص‌های رنگی نمونه‌های فیلم از دستگاه رنگ سنج (هانتربل) استفاده شد. پارامترهای دستگاه عبارتند از: شدت روشنایی یا L^* (سفید=۱۰۰ و سیاه=۰)، شدت قرمزی و سبزی یا a^* (سبز=۸۰ تا قرمز=۱۰۰) و شدت زردی و آبی یا b^* (آبی=۸۰ تا زرد=۷۰). میزان کدورت فیلم‌ها با استفاده از روش طیف سنجی و طبق روش بیان شده توسط Yan و همکاران (۲۰۱۲) و با استفاده از رابطه ۴ به دست آمد، که در این معادله، A600 میزان جذب در طول موج ۶۰۰ نانومتر و X متوسط ضخامت فیلم برحسب میلی‌متر می‌باشد (Yan *et al.*, 2012).

$$\text{کدورت فیلم} = \frac{A600}{X} \quad (۴)$$

۲-۱۲- بررسی ریزساختار فیلم‌ها

بررسی ریزساختار فیلم‌های بایونانو کامپوزیت توسط میکروسکوپ الکترونی روبشی SEM صورت گرفت (Teymourpoue *et al.*, 2015).

۲-۱۵- تجزیه و تحلیل آماری داده‌ها

کلیه آزمون‌ها در قالب طرح کاملاً تصادفی و در ۳ تکرار انجام گرفت. برای تجزیه و تحلیل آماری داده‌های کمی از نرم افزار SPSS 22.0 استفاده شد. مقایسه‌ی میانگین‌ها با آزمون چنددامنه‌ای دانکن و در سطح احتمال ۹۵ درصد ($p < 0.05$) انجام شد و نمودارهای مربوطه با Excel 2013 رسم شدند.

۳- نتایج و بحث

۳-۱- ضخامت فیلم‌های بر پایه موسیلاژ و نانوکریستال

مقادیر ضخامت فیلم‌های حاوی ترکیب سطوح مختلف موسیلاژ دانه کتان و نانوکریستال‌های سلولز در جدول ۱ آورده شده است و نشان می‌دهد که فیلم حاوی ۱۰۰ درصد موسیلاژ دارای کمترین میزان ضخامت بود (۰/۲۹۴ mm) و با افزودن نانوکریستال‌های سلولز و افزایش سطح آن در فیلم‌ها، میزان ضخامت به طور معنی‌داری افزایش یافت ($p < 0.05$) و در فیلم حاوی ۱۰۰ درصد نانوکریستال به ۰/۳۶۴ mm رسید. افزایش در ضخامت فیلم‌ها در اثر افزودن نانوکریستال‌های سلولز احتمالاً در ارتباط با افزایش محتوای مواد جامد می‌باشد (de Souza Coelho *et al.*, 2020). از سوی دیگر تحقیقات نشان داده است که این نانوکریستال‌های دارای طبیعت نسبتاً آب‌دوستی هستند که می‌توانند سبب انبساط شبکه فیلم شوند (Kord *et al.*, 2016). de Oliveira Filho و همکاران (۲۰۲۱) افزایش در ضخامت فیلم‌های بایوکامپوزیتی در اثر افزودن نانوکریستال‌های سلولز را مشاهده کردند. این نتایج همچنین با نتایج گزارش شده در مطالعه Bayzavi و همکاران (۲۰۲۱) همخوانی داشت.

جدول ۱- داده‌های حاصل از بررسی خواص فیزیکی فیلم‌های بر پایه موسیلاژ دانه کتان و نانوکریستال سلولز

Table 1- Data obtained from examining the physical properties of films based on flaxseed mucilage and cellulose nanocrystals

Treatments تیمارها	Thickness (mm) ضخامت (میلی‌متر)	Solubility (%) حلالیت (درصد)	Water absorption capacity (%) ظرفیت جذب آب (درصد)	Water vapor permeability (g.m ⁻¹ .s ⁻¹ .Pa ⁻¹ × 10 ⁻¹⁰) نفوذپذیری به بخار آب (گرم/متر. ثانیه پاسکال)
T1	0.346 ± 0.003 a	64.33 ± 0.54 a	51.62 ± 0.55 a	0.379 ± 0.006 a
T2	0.327 ± 0.004 b	57.57 ± 0.63 b	48.79 ± 0.41 b	0.364 ± 0.005 b
T3	0.319 ± 0.009 bc	56.19 ± 0.71 c	46.79 ± 0.33 d	0.359 ± 0.002 c
T4	0.313 ± 0.005 c	53.42 ± 0.80 d	44.44 ± 0.59 e	0.350 ± 0.003 d
T5	0.294 ± 0.002 d	55.97 ± 0.63 c	47.86 ± 0.49 c	0.356 ± 0.002 e

*نتایج به صورت میانگین ± انحراف معیار گزارش شده است. وجود حداقل یک حرف لاتین مشترک بیانگر عدم وجود اختلاف بین مقادیر هر ستون در سطح احتمال ۵٪ می‌باشد. T1: ۱۰۰ درصد نانوکریستال سلولز؛ T2: ۷۰ درصد نانوکریستال + ۳۰ درصد موسیلاژ کتان، T3: ۵۰ درصد نانوکریستال + ۵۰ درصد موسیلاژ کتان، T4: ۳۰ درصد نانوکریستال + ۷۰ درصد موسیلاژ کتان، T5: ۱۰۰ درصد موسیلاژ کتان.

*The results are reported as mean ± standard deviation. The presence of at least one common Latin letter indicates that there is no significant difference between the values of each column at the 5% probability level. T1: 100% cellulose nanocrystals; T2: 70% cellulose nanocrystals+30% flaxseed mucilage; T3: 50% cellulose nanocrystals+50% flaxseed mucilage; T4: 30% cellulose nanocrystals+70% flaxseed mucilage; T5: 100% flaxseed mucilage.

۳-۲- حلالیت در آب و ظرفیت جذب آب فیلم‌های بر پایه موسیلاژ و نانوکریستال

حساسیت فیلم‌های بسته‌بندی در مقابل رطوبت، عامل مهمی است که موجب محدود شدن کاربرد فیلم تولیدی برای بسته‌بندی مواد غذایی مختلف (به ویژه انواع حساس به رطوبت) می‌گردد. نتایج حاصل از بررسی میزان حلالیت در آب و ظرفیت جذب آب نمونه‌های فیلم حاوی ترکیب سطوح مختلف موسیلاژ دانه کتان و نانوکریستال‌های سلولز (جدول ۱) نشان می‌دهد که افزودن نانوکریستال‌های سلولز به فیلم‌های نانوکامپوزیتی در ابتدا منجر به کاهش معنی‌دار حلالیت در آب و ظرفیت جذب آب گردید ($p < 0.05$)، به طوری کمترین میزان این دو پارامتر فیزیکی در فیلم حاوی ترکیب ۷۰ درصد موسیلاژ کتان و ۳۰ درصد نانوکریستال سلولز به دست آمد (به ترتیب ۵۳/۴۲ درصد و ۴۴/۴۴ درصد)، که این کاهش به دلیل اثر تقویت‌کنندگی نانوکریستال‌های سلولز بر روی فیلم‌های بایوپلیمری بوده و بین نانوکریستال سلولز و شبکه فیلم واکنش‌های هیدروژنی قوی برقرار می‌شود که می‌تواند موجب کاهش قابلیت انحلال و ظرفیت جذب آب فیلم‌های تولیدی گردد (Cao *et al.*, 2008). این نتایج با نتایج ارائه شده توسط Kumar و همکاران (۲۰۱۷) و Oliveira Filho و همکاران (۲۰۲۱) مطابقت داشت. با این حال استفاده از سطوح بالاتر نانوکریستال سبب افزایش حلالیت‌پذیری در آب و ظرفیت جذب آب فیلم‌ها گردید، چرا که این نانوکریستال‌ها دارای خصوصیات آب‌دوستی می‌باشند و حضور مقادیر بالای آن‌ها در فیلم‌ها می‌تواند حساسیت فیلم‌ها در مقابل رطوبت را افزایش دهد. بنابراین، همانطوری که انتظار می‌رفت، بیشترین حلالیت‌پذیری در آب و ظرفیت جذب آب (به ترتیب ۶۴/۳۳ درصد و ۵۱/۶۲ درصد) در فیلم حاوی ۱۰۰ درصد نانوکریستال سلولز مشاهده گردید. افزایش حساسیت فیلم‌های بایوپلیمری در اثر تلفیق سطوح بالای نانوکریستال‌های سلولز نیز توسط سایر محققین نشان داده شده است (Agustin *et al.*, 2013; Prado *et al.*, 2018).

۳-۳- نفوذپذیری به بخار آب فیلم‌های بر پایه موسیلاژ و نانوکریستال

یکی از خصوصیات مهم و قابل توجه در انتخاب فیلم‌های مورد استفاده جهت بسته‌بندی مواد غذایی، نفوذپذیری به بخار آب می‌باشد و میزان آن در بسته‌بندی‌های غذایی بایستی تا حد امکان کاهش یابد (Chang *et al.*, 2010). نتایج مربوط به اندازه‌گیری میزان WVP نمونه‌های فیلم بایونانو کامپوزیتی در جدول ۱ ارائه شده است. افزودن ۳۰ درصد نانوکریستال سلولز به فیلم بر پایه موسیلاژ دانه کتان، میزان WVP فیلم‌ها را به طور معنی‌داری کاهش داد و کمترین میزان WVP در این فیلم به دست آمد ($10^{-1} \times 10^{-1} \text{ g.m}^{-1}.\text{s}^{-1}.\text{Pa}^{-1}$). با این حال در اثر استفاده از سطوح بالای نانوکریستال سلولز (۳۰ درصد به بالا)، میزان WVP افزایش معنی‌داری نشان داد ($p < 0.05$) و در فیلم حاوی ۱۰۰ درصد نانوکریستال سلولز به بیشترین میزان خود رسید ($10^{-1} \times 10^{-1} \text{ g.m}^{-1}.\text{s}^{-1}.\text{Pa}^{-1}$). نانوکریستال سلولز در سطوح پایین نقش فیلری ایفاء کرده و به طور یکنواخت در شبکه فیلم پراکنده می‌شوند و با پر کردن منافذ خالی فیلم بایوپلیمری بر پایه موسیلاژ دانه کتان، موجب پیچیده‌تر شدن مسیر عبور بخار آب می‌گردند و از این طریق میزان WVP را کاهش می‌دهند (Abdollahi *et al.*, 2013). همچنین تحقیقات نشان داده است که استفاده از نانوکریستال‌های سلولز به عنوان یک فیلر در فیلم‌های بسته‌بندی، تحرک مولکول‌های آب را کاهش داده و بنابراین موجب کاهش WVP می‌گردد (El Miri *et al.*, 2015). با این حال، در اثر استفاده از سطوح بالای نانوکریستال‌ها غالباً توزیع آن‌ها در شبکه فیلم یکنواخت نبوده و استحکام و یکپارچگی شبکه فیلم را کاهش می‌دهد و از این طریق، میزان WVP را افزایش می‌دهد که با نتایج حاصل توسط Chang و همکاران (۲۰۱۰) مطابقت داشت.

۳-۴- خواص مکانیکی فیلم‌های بر پایه موسیلاژ و نانوکریستال

یکی دیگر از پارامترهای کیفی مهم و مؤثر محصولات غذایی بسته‌بندی شده در مقابل صدمات و فشارهای وارد شده طی حمل‌ونقل، جابه‌جایی و انبارمانی، استحکام مکانیکی فیلم‌ها می‌باشد. خواص مکانیکی مهم فیلم‌های بایوپلیمری حاصل از ترکیب موسیلاژ دانه کتان و نانوکریستال سلولز شامل استحکام کششی و درصد کشیدگی تا نقطه شکست، در جدول ۲ نشان داده شده است. در فیلم حاوی ۳۰ درصد نانوکریستال سلولز بالاترین میزان استحکام کششی مشاهده شد (۰/۹۷۳ MPa) و افزایش سطح نانوکریستال سلولز در فیلم‌ها موجب کاهش میزان استحکام کششی و میزان کشیدگی تا نقطه شکست گردید، به طوری که فیلم حاوی ۱۰۰ درصد نانوکریستال سلولز دارای کمترین میزان استحکام کششی و درصد کشیدگی در بین فیلم‌های مورد مطالعه در این تحقیق بود (به ترتیب MPa ۰/۶۹۱ و ۲۶/۸۸ درصد). افزایش استحکام کششی و کاهش انعطاف‌پذیری فیلم‌های بایوپلیمری در اثر تلفیق سطوح پایین نانوکریستال‌های سلولز، در مطالعات صورت گرفته توسط de Oliveira Filho و همکاران (۲۰۲۱) و Oun و Rhim (۲۰۱۶) نیز گزارش شده است. در سطوح پایین نانوکریستال‌ها می‌توانند به طور یکنواخت‌تری در شبکه فیلم پخش شوند و از طریق برقراری اتصالات هیدروژنی قوی با گروه‌های هیدروکسیل موسیلاژ دانه کتان موجب بهبود استحکام کششی فیلم‌ها و محکم‌تر شدن ساختار آن‌ها گردند که بدین طریق میزان انعطاف‌پذیری را کاهش دهند (Kumar *et al.*, 2010). با این حال، در اثر تلفیق سطوح بالاتر این

نانوکریستال‌ها، توزیع آن‌ها در ساختار فیلم یکنواخت نبوده و ساختار فیلم تضعیف می‌گردد و بنابراین فیلم‌های حاوی سطوح بالای نانوکریستال‌های سلولز از استحکام و انعطاف‌پذیری پایین‌تری برخوردار هستند. Qazanfarzadeh و Kadivar (۲۰۱۵) نیز اظهار داشتند که افزودن نانوکریستال‌های سلولز در ابتدا موجب افزایش استحکام و کاهش انعطاف‌پذیری فیلم‌ها گردید، ولی با به کار بردن سطوح بالای این نانوکریستال‌ها، کاهش در استحکام مکانیکی فیلم‌ها گزارش شد که با نتایج پژوهش حاضر مطابقت داشت. Agustin و همکاران (۲۰۱۳) و Cerqueira و همکاران (۲۰۱۷) به نتایج مشابهی دست یافتند. این محققین دریافتند که با افزایش سطح نانوکریستال‌های سلولز در فیلم‌های بایوکامپوزیتی، میزان استحکام فیلم‌ها در ابتدا افزایش و سپس کاهش یافت.

جدول ۲- داده‌های حاصل از بررسی خواص مکانیکی فیلم‌های بر پایه موسیلاژ دانه کتان و نانوکریستال سلولز
Table 2- Data obtained from examining the mechanical properties of films based on flaxseed mucilage and cellulose nanocrystals

Treatments تیمارها	Tensile strength (MPa) استحکام کششی (مگاپاسکال)	Elongation at break point (%) کشیدگی تا نقطه شکست (درصد)
T1	0.691 ± 0.037 d	26.88 ± 0.81 c
T2	0.780 ± 0.051 c	28.69 ± 0.97 b
T3	0.892 ± 0.023 b	29.88 ± 1.05 ab
T4	0.973 ± 0.045 a	30.52 ± 0.59 a
T5	0.851 ± 0.034 bc	30.89 ± 0.77 a

*نتایج به صورت میانگین ± انحراف معیار گزارش شده است. وجود حداقل یک حرف لاتین مشترک بیانگر عدم وجود اختلاف بین مقادیر هر ستون در سطح احتمال ۵٪ می‌باشد. T1: ۱۰۰ درصد نانوکریستال سلولز؛ T2: ۷۰ درصد نانوکریستال+۳۰ درصد موسیلاژ کتان، T3: ۵۰ درصد نانوکریستال+۵۰ درصد موسیلاژ کتان، T4: ۳۰ درصد نانوکریستال+۷۰ درصد موسیلاژ کتان، T5: ۱۰۰ درصد موسیلاژ کتان.

*The results are reported as mean ± standard deviation. The presence of at least one common Latin letter indicates that there is no significant difference between the values of each column at the 5% probability level. T1: 100% cellulose nanocrystals; T2: 70% cellulose nanocrystals+30% flaxseed mucilage; T3: 50% cellulose nanocrystals+50% flaxseed mucilage; T4: 30% cellulose nanocrystals+70% flaxseed mucilage; T5: 100% flaxseed mucilage.

۳-۵- خواص رنگی فیلم‌های بر پایه موسیلاژ و نانوکریستال

رنگ فیلم‌های بسته‌بندی تأثیر قابل توجهی در پذیرش محصول توسط مصرف‌کنندگان دارد. شاخص‌های رنگی نمونه‌های فیلم شامل شدت روشنایی رنگ (L^*)، شدت قرمزی-سبزی رنگ (a^*) و شدت زردی-آبی رنگ (b^*) و همچنین میزان کدورت نمونه‌های فیلم در جدول ۳ آورده شده است و نشان می‌دهد که با افزودن نانوکریستال سلولز و افزایش سطح آن در فیلم‌های موسیلاژ دانه کتان، شدت روشنایی رنگ فیلم‌های تولیدی کاهش و شدت زردی و قرمزی رنگ و همچنین کدورت فیلم‌ها به طور معنی‌داری افزایش یافت ($p < 0.05$). به طوری که بیشترین میزان L^* (۸۱/۷۰) و کمترین میزان a^* (۱/۷۲) و b^* (۲/۵۸) و کدورت ($1/179 \text{ mm}^{-1}$) در فیلم حاوی ۱۰۰ درصد موسیلاژ دانه کتان مشاهده شد و کمترین میزان L^* (۷۳/۹۶) و بیشترین میزان a^* (۲/۵۷) و b^* (۵/۲۰) و کدورت ($1/946 \text{ mm}^{-1}$) مربوط به فیلم حاوی ۱۰۰ درصد نانوکریستال سلولز بود. افزایش کدورت فیلم‌ها در اثر افزودن نانوکریستال‌های سلولز ناشی از کاهش روشنایی فیلم‌ها و خصوصیات پراکندگی نور توسط نانوکریستال‌ها می‌باشد (Li *et al.*, 2018). نانوذرات از طریق تجمع در ساختار فیلم‌ها، عبور نور از فیلم‌ها را مشکل می‌سازند (Abdollahi *et al.*, 2013). de Oliveira Filho و همکاران (۲۰۲۱) نیز دریافتند که افزودن نانوکریستال‌های سلولز به فیلم‌های بایوپلیمیری منجر به کاهش شدت روشنایی و افزایش میزان کدورت فیلم‌های

تولیدی گردید. Qazanfarzadeh و Kadivar (۲۰۱۵) نیز گزارش کردند که میزان کدورت فیلم‌های بر پایه ایزوله پروتئین آب‌پنیر در اثر تلفیق سطوح مختلف نانوکریستال سلولز به طور معنی‌داری افزایش یافت. Bayzavi و همکاران (۲۰۲۰) نیز به طور موافق با نتایج حاصل در پژوهش حاضر مشاهده کردند که میزان روشنایی رنگ فیلم‌های بر پایه صمغ دانه به حاوی نانوکریستال‌های سلولز بالاتر از فیلم شاهد بود، ولی این فیلم‌های بایونانوکامپوزیتی دارای شدت زردی رنگ بالاتری بودند.

جدول ۳- نتایج بررسی خواص رنگی فیلم‌های بر پایه موسیلاژ دانه کتان و نانوکریستال سلولز

Table 3- Data obtained from examining the color properties of films based on flaxseed mucilage and cellulose nanocrystals

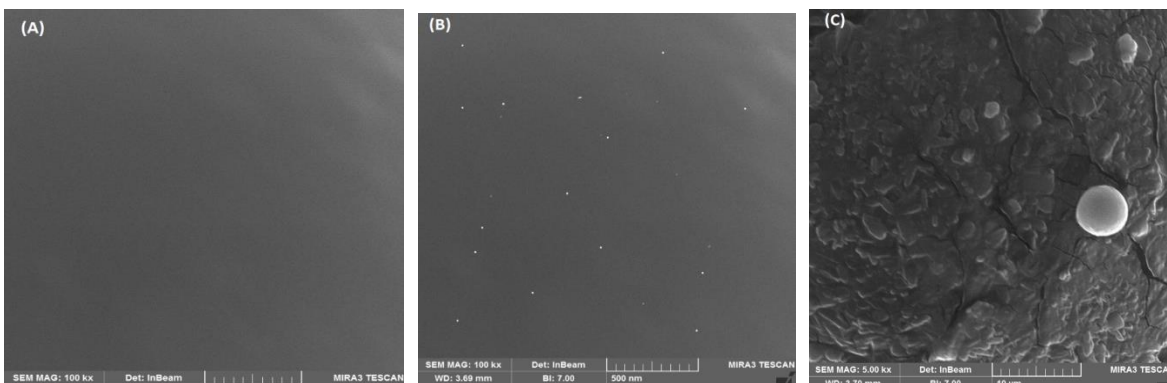
Treatments	L*	a*	b*	Opacity (mm ⁻¹)
تیمارها	روشنایی رنگ	قرمزی-سبزی رنگ	زردی-آبی رنگ	کدورت (بر میلی‌متر)
T1	73.96 ± 1.09 d	2.57 ± 0.11 a	5.20 ± 0.18 a	1.946 ± 0.015 a
T2	75.35 ± 0.87 c	2.40 ± 0.02 b	4.72 ± 0.14 b	1.805 ± 0.042 b
T3	76.91 ± 0.96 b	2.29 ± 0.13 b	4.19 ± 0.37 c	1.518 ± 0.016 c
T4	79.73 ± 0.99 a	1.95 ± 0.08 c	3.48 ± 0.29 d	1.335 ± 0.026 d
T5	81.70 ± 1.16 a	1.72 ± 0.06 d	2.58 ± 0.21 e	1.179 ± 0.033 e

*نتایج به صورت میانگین ± انحراف معیار گزارش شده است. وجود حداقل یک حرف لاتین مشترک بیانگر عدم وجود اختلاف بین مقادیر هر ستون در سطح احتمال ۵٪ می‌باشد. T1: ۱۰۰ درصد نانوکریستال سلولز؛ T2: ۷۰ درصد نانوکریستال+۳۰ درصد موسیلاژ کتان، T3: ۵۰ درصد نانوکریستال+۵۰ درصد موسیلاژ کتان، T4: ۳۰ درصد نانوکریستال+۷۰ درصد موسیلاژ کتان، T5: ۱۰۰ درصد موسیلاژ کتان.

*The results are reported as mean ± standard deviation. The presence of at least one common Latin letter indicates that there is no significant difference between the values of each column at the 5% probability level. T1: 100% cellulose nanocrystals; T2: 70% cellulose nanocrystals+30% flaxseed mucilage; T3: 50% cellulose nanocrystals+50% flaxseed mucilage; T4: 30% cellulose nanocrystals+70% flaxseed mucilage; T5: 100% flaxseed mucilage.

۳-۶- ریزساختار فیلم‌های بر پایه موسیلاژ و نانوکریستال

ریزساختار فیلم بر پایه ۱۰۰ درصد موسیلاژ دانه کتان و فیلم حاوی ۳۰ درصد نانوکریستال سلولز با استفاده از میکروسکوپ SEM مورد مطالعه قرار گرفت و تصاویر آن در شکل ۱ ارائه شده است. همانطوری که در شکل ملاحظه می‌گردد، هر دو فیلم دارای سطح صاف و یکنواختی هستند و فاقد حفره و ترک واضحی می‌باشند. در فیلم حاوی نسبت ۳۰ به ۷۰ نانوکریستال سلولز به موسیلاژ دانه کتان، نانوکریستال‌ها به طور یکنواخت در شبکه فیلم موسیلاژی پراکنده و توزیع شدند و تجمع ذرات مشاهده نشد. Diem و همکاران (۲۰۲۱) مشاهده کردند که در فیلم‌های بر پایه ترکیب پلی‌وینیل‌الکل و صمغ تراگاکانت، با افزودن سطوح پایین نانوکریستال سلولز، این نانوکریستال‌ها به صورت فیلر در ساختار فیلم پراکنده شدند. de Oliveira Filho و همکاران (۲۰۲۱) گزارش کردند که افزودن نانوکریستال سلولز به فیلم بر پایه نشاسته موجب متراکم‌تر شدن ساختار فیلم‌های تولیدی در مقایسه با فیلم فاقد نانوکریستال (شاهد) گردید، با این حال، این محققین اظهار داشتند که فیلم‌های حاوی نانوکریستال، تجمع کمی از نانوذرات مشاهده شد.



شکل ۱- تصاویر SEM: (A) بخش سطحی فیلم بر پایه ۱۰۰ درصد موسیلاژ دانه کتان؛ (B) بخش سطحی از فیلم حاوی ۳۰ درصد نانوکریستال سلولز، (C) بخش عرضی فیلم حاوی ۳۰ درصد نانوکریستال سلولز

Figure 1- SEM images: (A) Surface section of film based on 100% flaxseed mucilage; (B) Surface section of film containing 30% cellulose nanocrystals; (C) Cross section of film containing 30% cellulose nanocrystals

۴- نتیجه گیری

نتایج این تحقیق نشان داد که فیلم بایونانو کامپوزیتی دارای خصوصیات مکانیکی و پایداری مطلوب در برابر رطوبت و بخار آب را می توان از طریق مخلوط کردن موسیلاژ دانه کتان و محلول نانوکریستال سلولز در نسبت ۳۰:۷۰ تولید نمود و از این فیلم زیست تخریب پذیر می توان جهت بسته بندی محصولات غذایی، به ویژه انواع حساس به رطوبت استفاده کرد.

منابع

Abdollahi, M., Alboofetileh, M., Rezaei, M., & Behrooz, R. (2013). Comparing physico-mechanical and thermal properties of alginate nanocomposite films reinforced with organic and/or inorganic nanofillers. *Food Hydrocolloids*, 32(2), 416-424.

Agustin, M.B., Ahmmad, B., De Leon, E.R.P., Buenaobra, J.L., Salazar, J.R., & Hirose, F. (2013). Starch-based biocomposite films reinforced with cellulose nanocrystals from garlic stalks. *Polymer Composites*, 34(8), 1325-1332.

American Society for Testing and Materials (ASTM), (2002). Standard test methods for water vapor transmission of materials (E 96-00). In: Annual book of ASTM Standards (pp. 1048-1053). Philadelphia, PA: American Society for Testing and Materials.

American Society for Testing and Materials (ASTM), (2005). Standard Test Methods for Water Vapor Transmission of Materials E96/E96M-05. Annual Book of ASTM Standards. Philadelphia, PA.

American society standard testing and materials (ASTM), (2008). Standard test method for tensile properties of plastics: D 638-08. Philadelphia.

Bayzavi, T., Ansari, S., & Danesh, N. (2020). Preparation of Composite Films from Quince Seed Mucilage and Nanocrystalline Cellulose and Studying their Properties. *Journal of Food Technology and Nutrition*, 17(fall 2020), 93-108.

Cao, X., Chen, Y., Chang, P.R., Muir, A.D., & Falk, G. (2008). Starch-based nanocomposites reinforced with flax cellulose nanocrystals. *Express Polymer Letters*, 2(7), 502-510.

Cerqueira, J.C., Penha, J.D.S., Oliveira, R.S., Guarieiro, L.L.N., Melo, P.D.S., Viana, J.D., & Machado, B.A.S. (2017). Production of biodegradable starch nanocomposites using cellulose nanocrystals extracted from coconut fibers. *Polímeros*, 27, 320-329.

Chang, P.R., Jian, R., Zheng, P., Yu, J., & Ma, X. (2010). Preparation and properties of glycerol plasticized-starch (GPS)/cellulose nanoparticle (CN) composites. *Carbohydrate Polymers*, 79(2), 301-305.

Criado, P., Frascini, C., Salmieri, S., & Lacroix, M. (2020). Cellulose nanocrystals (CNCs) loaded alginate films against lipid oxidation of chicken breast. *Food Research International*, 132, 109110.

Criado, P., Frascini, C., Shankar, S., Salmieri, S., & Lacroix, M. (2021). Influence of cellulose nanocrystals gellan gum-based coating on color and respiration rate of *Agaricus bisporus* mushrooms. *Journal of Food Science*, 86(2), 420-425.

de Oliveira Filho, J.G., Albiero, B.R., Cipriano, L., de Oliveira Nobre Bezerra, C.C., Oldoni, F.C.A., Egea, M.B., & Ferreira, M. D. (2021). Arrowroot starch-based films incorporated with a carnauba wax nanoemulsion, cellulose nanocrystals, and essential oils: A new functional material for food packaging applications. *Cellulose*, 28(10), 6499-6511.

de Souza Coelho, C.C., Silva, R. B. S., Carvalho, C.W.P., Rossi, A.L., Teixeira, J.A., Freitas-Silva, O., & Cabral, L.M.C. (2020). Cellulose nanocrystals from grape pomace and their use for the development of starch-based nanocomposite films. *International Journal of Biological Macromolecules*, 159, 1048-1061.

Diem, L.N., Banerjee, I., Pal, K., Sukatta, U., Rugthaworn, P., & Sukyai, P. (2021). Evaluation in Cellulose Nanocrystals Effectiveness on Composite Film based Wound Dressing from Poly (vinyl alcohol) and Gum Tragacanth, <https://doi.org/10.21203/rs.3.rs-1094285/v1>.

El Miri, N., Abdelouahdi, K., Barakat, A., Zahouily, M., Fihri, A., Solhy, A., & El Achaby, M. (2015). Bio-nanocomposite films reinforced with cellulose nanocrystals: Rheology of film-forming solutions, transparency, water vapor barrier and tensile properties of films. *Carbohydrate Polymers*, 129, 156-167.

Espitia, P.J.P., Du, W., de Avena-Bustillos, R.J., de Soares, N.F.F. & McHugh, T.H. (2014). Edible films from pectin: Physical-mechanical and antimicrobial properties: A review. *Food Hydrocolloids*, 35, 287-296.

Gohargani, M., Lashkari, H., & Shirazinejad, A. (2020). Study on Biodegradable Chitosan-Whey Protein-Based Film Containing Bionanocomposite TiO₂ and Zataria multiflora Essential Oil. *Journal of Food Quality*, 2020, 8844167.

Hernández, C., Pérez-Cabrera, L.E. & González-Martínez, C. (2010). Development of linseed-mucilage edible coatings and its application to extend fresh-cut cucumber shelf-life. In *Innovations in Food Science and Food Biotechnology in Developing Countries*; AMECA Inc.: Queretaro, Mexico, pp. 321-334.

Jensen, A., Lim, L. T., Barbut, S. & Marcone, M. (2015). Development and characterization of soy protein films incorporated with cellulose fibers using a hot surface casting technique. *LWT- Food Science and Technology*, 60, 162-170.

Kumar, P., Sandeep, K.P., Alavi, S., Truong, V.D., & Gorga, R.E. (2010). Preparation and characterization of bio-nanocomposite films based on soy protein isolate and montmorillonite using melt extrusion, *Journal of Food Engineering*, 100(3), 480-489.

Kumar, A., Rao, K.M., & Han, S.S. (2017). Development of sodium alginate-xanthan gum based nanocomposite scaffolds reinforced with cellulose nanocrystals and halloysite nanotubes. *Polymer Testing*, 63, 214-225.

Oun, A.A., & Rhim, J.W. (2016). Isolation of cellulose nanocrystals from grain straws and their use for the preparation of carboxymethyl cellulose-based nanocomposite films. *Carbohydrate Polymers*, 150, 187-200.

Panaitescu, D. M., Frone, A. N., Ghiurea, M. & Chiulan, I. (2015). Influence of storage conditions on starch/PVA films containing cellulose nanofibers. *Indian Crop Products*, 70, 170-177.

Peng, B.L., Dhar, N., Liu, H.L. & Tam, K.C. (2011). Chemistry and applications of nanocrystalline cellulose and its derivatives: a nanotechnology perspective. *Canadian Journal of Chemistry and Engineering*, 89, 1191-1206.

Prado, N.S., da Silva, I.S.V., Silva, T.A.L., de Oliveira, W.J., de Castro Motta, L.A., Pasquini, D. & Otaguro, H. (2018). Nanocomposite Films Based on Flaxseed Gum and Cellulose Nanocrystals. *Materials Research*, 21(6), 1-9.

Qazanfarzadeh, Z., & Kadivar, M. (2015) Investigation of the effect of cellulose nanocrystal on physical properties of whey protein isolates bionanocomposite films. *Innovative Food Technologies*, 2(4), 75-85.

- Ramos, M., Valdes, A., Beltran, A. & Garrigos, M.C. (2016). Gelatin-based films and coatings for food packaging application: A review. *Coatings*, 6, 41.
- Rhim, J.W., Park, H.M. & Ha, C.S. (2013). Bionanocomposites for food packaging applications. *Progress Polymer Science*, 38, 1629-1652.
- Roohani, M., Habibi, Y., Belgacem Naceur, M., Ebrahim, G., Karimi, A.N. & Dufresne, A. (2008) Cellulose whiskers reinforced polyvinyl alcohol copolymers nanocomposites. *European Polymer Journal*, 44: 2489-2498.
- Sagnelli, D., Hooshmand, K., Kemmer, G.C., Kirkensgaard, J.J.K., Mortensen, K., Giosafatto, C.V.L., Holse, M., Hebelstrup, K.H., Bao, J. & Stelte, W. (2017) Cross-linked amylose bio-plastic: A transgenic-based compostable plastic alternative. *International Journal of Molecule Science*, 18, 2075.
- Savadekar, N.R., Karande, V.S., Vigneshwaran, N., Bharimalla, A.K. & Mhaske, S.T., (2012). Preparation of nano cellulose fibers and its application in kappacarrageenan based film. *International Journal of Biology and Macromolecules*, 51, 1008-1013.
- Sharmin, N., Khan, R., Salmieri, S., Dussault, D., Bouchard, J. & Lacroix, M. (2012). Mechanical and barrier properties of methylcellulose- based films grafted with trimethylolpropane trimethacrylate by gamma radiation: effect of filling with cellulose nanocrystals. *JFOR*, 2, 24-31.
- Stewart, S. & Mazza, G. (2000). Effect of flaxseed gum on quality and stability of a model salad dressing. *Journal of Food Quality*, 23, 373-390.
- Sukyai, P., Anongjanya, P., Bunyahwuthakul, N., Kongsin, K., Harnkarnsujarit, N., Sukatta, U., & Chollakup, R.J.F.R.I., (2018). Effect of cellulose nanocrystals from sugarcane bagasse on whey protein isolate-based films. *Food Research International*, 107, 528-535.
- Tabibloghmany, F., Hojjatoleslami, M., Farhadian, F. & Ehsandoost, E. (2013). Effect of Linseed (*Linum usitatissimum* L.) hydrocolloid as edible coating on decreasing oil absorption in potato chips during Deep-fat frying. *International Journal of Agricultural Crop Science*, 6, 63-69.
- Tee, Y., Wong, J., Ching Tan, M. & Talib, R.A. (2017) Development of edible film from flaxseed mucilage. *Bioresources*, 11, 10286-10295.
- Teymourpour, Sh., Abdorreza, M.N. & Fariborz, N. (2015) Functional, thermal, and antimicrobial properties of soluble soybean polysaccharide biocomposites reinforced by nano TiO₂. *Carbohydrate Polymers*, 134, 726-731.

Torabi, Z., & MohammadiNafchi, A. (2013). The effects of SiO₂ nanoparticles on mechanical and physicochemical properties of potato starch films. *Journal of Chemical Health Risks*, 3(1).

Wang, Y., Li, D., Wang, L., Yang, L. & Ozkan, N. (2011). Dynamic mechanical properties of flaxseed gum based edible films. *Carbohydrate Polymers*, 86, 499-504.

Wardhono, E. Y., Pinem, M. P., Kustiningsih, I., Agustina, S., Oudet, F., Lefebvre, C., & Guénin, E. (2019). Cellulose nanocrystals to improve stability and functional properties of emulsified film based on chitosan nanoparticles and beeswax. *Nanomaterials*, 9(12), 1707.

Yan, Q., Hou, H., Guo, P. & Dong, H. (2011). Effects of extrusion and glycerol content on properties of oxidized and acetylated corn starch-based films. *Carbohydrate Polymers*, 87(1), 707-712.