

Optimization of cellulose acetate films incorporated with cellulose nanocrystals and fruit salad flavor

Otimização de filmes de acetato de celulose incorporado com nanocristais de celulose e aroma de salada de frutas

Article Info:

Article history: Received 2022-10-01 / Accepted 2022-10-27/ Available online 2022-10-27

doi: 10.18540/jcecv18iss8pp14855-01e

Amanda Lélis de Souza

ORCID: <https://orcid.org/0000-0002-6279-9407>

Universidade Federal de Viçosa, Brasil

E-mail: amanda.souza1@ufv.br

Bárbara Teixeira Gomes

ORCID: <https://orcid.org/0000-0001-7876-9539>

Universidade Federal de Viçosa, Brasil

E-mail: barbara.gomes@ufv.br

Taila Veloso de Oliveira

ORCID: <https://orcid.org/0000-0001-5444-9530>

Universidade Federal de Viçosa, Brasil

E-mail: taila.oliveira@ufv.br

Nilda de Fatima Ferreira Soares

ORCID: <https://orcid.org/0000-0001-9506-6130>

Universidade Federal de Viçosa, Brasil

E-mail: nfsoares@ufv.br

Resumo

O aumento da conscientização dos consumidores sobre a segurança e qualidade dos alimentos vem motivando inovações nas embalagens de alimentos. Os alimentos embalados sofrem diversas alterações durante o armazenamento (refletindo sua perda de qualidade) que resultam em alterações na composição do ambiente da embalagem. O presente estudo visou incorporar nanocristais de celulose e aroma de salada de frutas em filmes de acetato de celulose. Foram geradas 12 formulações utilizando o método de Delineamento Composto Central Rotacional (DCCR), sendo realizadas as análises de umidade e transparência. Em decorrência aos resultados do delineamento, foi otimizada a formulação com intuito de diminuir a transparência dos filmes, formando uma barreira extra contra a luz e assim diminuir o processo de oxidação lipídica, além de minimizar o teor de umidade dos filmes, que está diretamente relacionando a perda de qualidade dos alimentos. Os resultados sugerem que os nanocristais de celulose e o aroma de salada de frutas tem potencial para ser incorporado em filmes de acetato de celulose e aplica-los em alimentos (como por exemplo, as frutas minimamente processadas), melhorando a qualidade e segurança dos mesmos. Ademais, a produção de polímeros ativos e biodegradáveis mostra-se uma alternativa ecologicamente correta para a produção de embalagens de alimentos, como substituição aos materiais à base de polímeros sintéticos e não biodegradáveis, uma vez que causam sérios problemas ambientais.

Palavras-chave: Biodegradável. Biopolímero. Desejabilidade. Flavor. Nanocompósito.

Abstract

Increasing consumer awareness of the safety and quality of food is motivating innovations in food packaging. Packaged foods undergo several changes during storage (reflecting their loss of quality) that result in changes in the composition of the packaging environment. The present study aimed to

incorporate cellulose nanocrystals and fruit salad flavoring into cellulose acetate films. Twelve formulations were generated using the Central Composite Rotational Design (DCCR) method, and moisture and transparency analyzes were performed. As a consequence of the results of the design, the formulation was optimized in order to reduce the transparency of the films, creating an extra barrier against light and thus reducing the process of lipid oxidation, as well as minimizing the moisture content of the films, which is directly related to the loss of quality of the foods. The results suggest that cellulose nanocrystals and fruit salad aroma have the potential to be incorporated into cellulose acetate films and applied to foods (such as minimally processed fruits), improving their quality and safety. In addition, the production of active and biodegradable polymers proves to be an ecologically correct alternative for the production of food packaging, as a replacement for materials based on synthetic and non-biodegradable polymers, since they cause serious environmental problems.

Keywords: Biodegradable. Biopolymer. Desirability. Flavor. Nanocomposite.

1. Introdução

Biopolímeros biodegradáveis, como o acetato de celulose, são considerados uma alternativa para produção de embalagens, para reduzir o impacto ambiental negativo causado pelos polímeros tradicionais derivados de fontes petrolíferas, geralmente utilizadas para essa finalidade (Koshy et al., 2021).

O acetato de celulose é obtido através do processo de acetilação da celulose, o que leva a obtenção de um produto com características diferentes da celulose (Assis, 2021). Filmes biodegradáveis de acetato de celulose geralmente são obtidos através da técnica de *evaporação-casting*, a partir da solubilização do biopolímero em acetona (Assis, 2021).

Polímeros de base biológica e/ou biodegradáveis apresentam características e desempenhos inferiores em relação aos polímeros tradicionais, que poderiam ser ajustados usando nanopartículas para melhorar suas propriedades (Luzi et al., 2019).

Nanocristais de celulose (CNC) são amplamente utilizados em matrizes poliméricas (Luzi et al., 2019), possuem características mecânicas e físicas que conferem ao CNC a atuação como um material de enchimento, fortalecimento e de reforço na matriz polimérica (Huq et al., 2012).

Atualmente, busca-se produzir embalagens ativas que além de conter e proteger o alimento também influenciam ativamente e interagem com o alimento de forma a prolongar a sua vida útil e preservar as propriedades sensoriais, como o sabor e aroma (Ahmed et al., 2022). Assim sendo, esse trabalho teve como objetivo otimizar a formulação de um filme de acetato de celulose com nanocristais de celulose e aroma de salada de frutas, em relação a umidade e transparência.

2. Metodologia

Os experimentos foram realizados no Laboratório de Embalagens do Departamento de Tecnologia de Alimentos da Universidade Federal de Viçosa, Viçosa, Minas Gerais, Brasil.

2.1 Delineamento experimental

Um planejamento experimental utilizando o delineamento composto central rotacional (DCCR) de segunda ordem foi realizado com o intuito de obter as formulações dos filmes biodegradáveis (Rodrigues & Iemma, 2005). O desempenho das diferentes proporções das variáveis independentes (X_1 = flavor de salada de frutas e X_2 = nanocristais de celulose) foi analisado sobre o filme de acetato de celulose. Cinco níveis codificados ($-\alpha$, -1 , 0 , $+1$, $+\alpha$) foram utilizados no delineamento. Mediante dados da literatura foram inferidos os valores entre os limites inferior e superior de cada variável independente. O planejamento experimental foi constituído por 12 ensaios contendo diferentes proporções das variáveis independentes. As proporções do flavor de salada de frutas foram inseridas na matriz polimérica de 0 a 1% (m/massa de acetato de celulose), enquanto

as proporções dos nanocristais de celulose foram de 0 a 3% (m/massa de acetato de celulose), em valores reais. A partir da análise das respostas obtidas para as 12 formulações de filmes biodegradáveis foram realizadas a análise de Superfície de Resposta.

2.2 Preparação dos filmes biodegradáveis

Os filmes de acetato de celulose foram preparados de acordo com o delineamento apresentado, utilizando o sistema solvente-*casting* (Soares & Hotchkiss, 1998). A proporção de acetato de celulose e a fase líquida da dispersão polimérica foi de 1:10 (m/v), sendo a acetona utilizada como solvente na elaboração dos filmes. Posteriormente, foi incorporado a esta solução 15% (m/m) do trietil citrato. O flavor de salada de frutas e os nanocristais de celulose também foram incorporados a solução, de acordo com cada ensaio do delineamento. Em seguida foram espalhadas sobre placas de vidro com auxílio de aplicador (K Paint applicator). Após a evaporação do solvente em condições ambiente (25 ± 2 °C), os filmes foram retirados das placas e acondicionados em embalagens de polietileno/náilon até posterior utilização.

2.3 Caracterização dos filmes biodegradáveis

A transparência dos filmes foi medida por espectrofotômetro UV-Vis (UV 1800, Shimadzu, Tóquio, Japão) de acordo com o método ASTM (D1746-03) (ASTM, 2003) e o conteúdo de umidade dos filmes foi realizado pelo método gravimétrico padrão ASTM (D644-99) (ASTM, 2007).

2.3 Análise estatística

O DCCR forneceu 12 ensaios e os resultados obtidos foram analisados pela Metodologia de Superfície de Resposta em relação ao coeficiente de regressão e da análise de variância (ANOVA) com nível de significância de 10 %, utilizando o *software* Statistica 7.0 (Stat. Soft. Inc. 2004). As variáveis dependentes (umidade e transparência) sofrem variações que determina esse valor de R^2 . Além disso, foram gerados os gráficos de curva de contorno, que permitiu melhor avaliar os efeitos das variáveis independentes sobre as variáveis respostas (variáveis dependentes) que possuíam diferença significativa. Para encontrar as características desejáveis para o filme, de acordo com os níveis experimentais, foi realizada a função desejabilidade utilizando *software* Statistica 7.0 (Stat. Soft. Inc. 2004).

3. Resultados

Os resultados obtidos nas análises realizadas nos 12 ensaios elaborados pelo DCCR estão dispostos na Tabela 1.

Os resultados encontrados para a umidade dos filmes reportaram valores entre 4,40 e 6,17 %. Mediante curvas de contorno (Figura 1) foi observado que maior concentração da variável independente (aromatizante), resultou em maior umidade dos filmes de acetato de celulose ($p < 0,10$), enquanto a variável independente (nanocristais de celulose) não influenciou a propriedade umidade. Componentes aromatizantes, como álcoois e ésteres, possuem características hidrofílicas e as moléculas de água se difundem preferencialmente na fase hidrofílica (Sánchez-González et al., 2010). Assim a incorporação do aroma que possui características hidrofílicas no filme de acetato de celulose que é hidrofóbico, altera a estrutura da cadeia polimérica, resultando em uma matriz polimérica descontínua e com maior umidade (Dias et al., 2013).

Já os dados da análise de transparência variaram entre 78,78 a 99,45 %. O acetato de celulose pode formar filme inodoro, transparente e rígido, mas com certa flexibilidade que suporta alta tensão à temperatura ambiente (Gouvêa et al., 2015; Marrez et al., 2019).

Tabela 1 – DCCR com 2 variáveis independentes para a elaboração e filmes de acetato de celulose e resultados das análises de umidade e transparência.

Ensaio	Níveis codificados		Níveis reais		Umidade (%)	Transparência (%)
	X ₁	X ₂	X ₁ (m/m)	X ₂ (m/m)		
1	-1	-1	0,0015	0,0044	5,42 ± 0,0091	90,99 ± 0,0684
2	1	-1	0,0085	0,0044	4,40 ± 0,0004	93,34 ± 0,0446
3	-1	1	0,0015	0,0256	5,97 ± 0,0056	86,44 ± 0,1597
4	1	1	0,0085	0,0256	4,77 ± 0,0019	81,15 ± 0,1170
5	-1,41	0	0,000	0,0150	4,63 ± 0,0041	93,94 ± 0,0176
6	1,41	0	0,0100	0,0150	5,02 ± 0,0012	78,78 ± 0,0090
7	0	-1,41	0,0050	0,0000	5,17 ± 0,0040	99,45 ± 0,0897
8	0	1,41	0,0050	0,0300	6,17 ± 0,0101	96,75 ± 0,1941
9	0	0	0,0050	0,0150	5,07 ± 0,0046	92,48 ± 0,2444
10	0	0	0,0050	0,0150	5,26 ± 0,0037	92,54 ± 0,0534
11	0	0	0,0050	0,0150	5,65 ± 0,0023	90,32 ± 0,0496
Padrão	-	-	0,0000	0,0000	4,71 ± 0,0042	98,30 ± 0,0271

No entanto, analisando as curvas de contorno (Figura 1) verifica-se que houve influência na transparência dos filmes tanto com a inserção dos nanocristais de celulose quanto à adição do flavor na matriz polimérica.

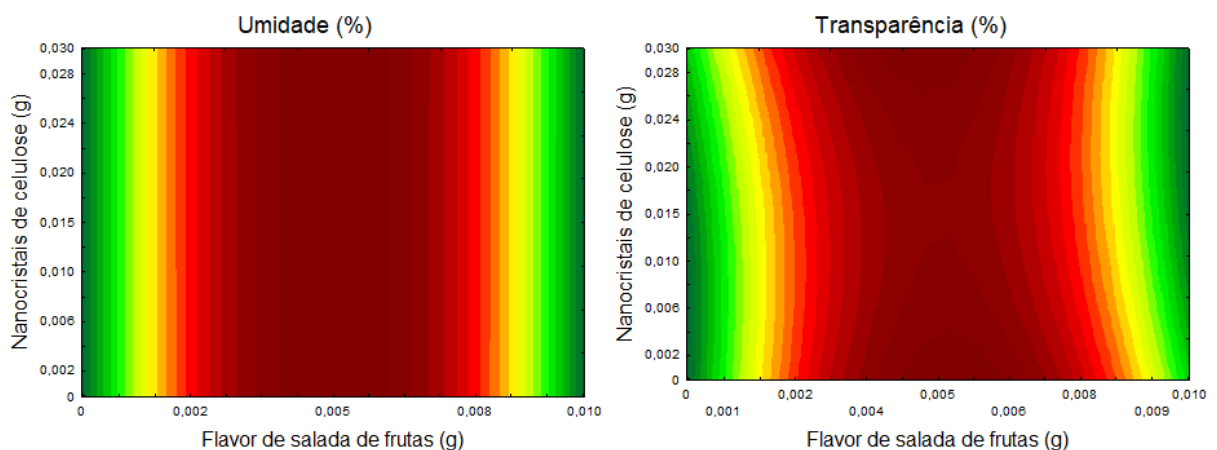


Figura 1 – Curvas de contorno com os efeitos das variáveis independentes sobre umidade e transparência.

O filme sem a inserção dos nanocristais de celulose e flavor de salada de frutas apresentou maior transmitância de luz na região UV (radiação ultravioleta) de 600 nm, comparado aos demais ensaios analisados. O flavor possui uma coloração amarelada, contribuindo com a mudança de transparência. Já a presença das nanocargas, impede a passagem de luz através da matriz polimérica. Os efeitos do tamanho nanométrico podem resultar em uma dispersão homogênea e fortes interações entre os nanocristais e a matriz polimérica, diminuindo, portanto, a passagem de luz (Tibolla et al., 2020).

Avaliando a desejabilidade do processo (minimizando a umidade e minimizando a transparência), os valores do ponto ótimo do processo encontrado pelo *software* Statistica 7.0 (Stat. Soft. Inc. 2004) (Figura 2) foram 0,0100 g de flavor de salada de frutas e 0,0150 g de nanocristais de celulose.

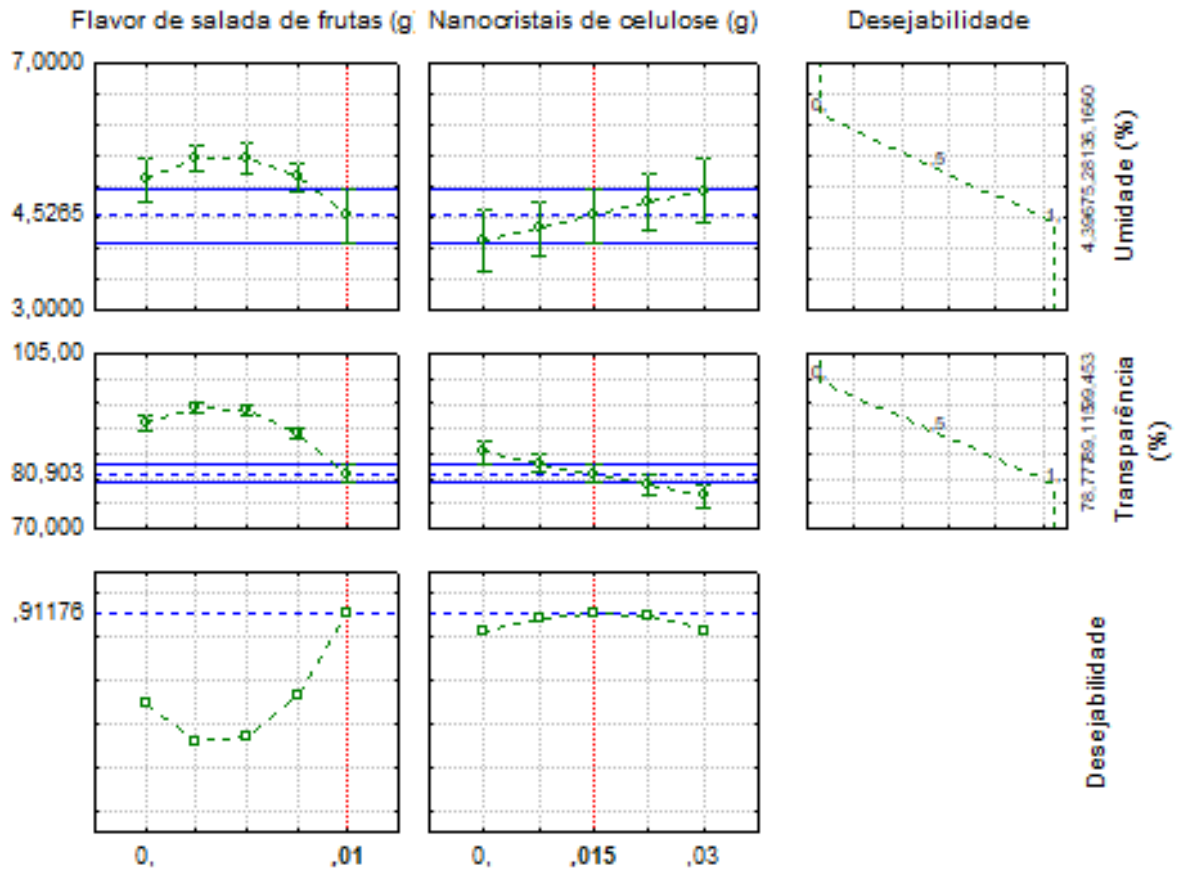


Figura 2 – Distribuição da otimização quanto a desejabilidade do processo para obtenção de filme de acetato de celulose incorporado com nanocristais de celulose e aroma de salada de frutas.

3. Conclusão

Os resultados sugerem que os nanocristais de celulose e o aromatizante desempenham um papel fundamental em filmes de acetato de celulose e tem grande potencial para aplicações destinada as embalagens alimentícias, uma vez que a utilização de filmes com menor transparência pode ser uma alternativa na conservação de produtos que sofrem oxidação lipídica, além de poder contribuir positivamente com o sabor ou o cheiro dos alimentos embalados.

Agradecimentos

Os autores agradecem à Universidade Federal de Viçosa (UFV) e ao Departamento de Tecnologia de Alimentos (DTA) pelo suporte institucional. À Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de Minas Gerais (FAPEMIG). À Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior – Brasil (CAPES) – Código de Financiamento 001 e ao Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq) pelo apoio financeiro.

Referências

- Ahmed, M. W., Haque, M. A., Mohibullah, M., Khan, M. S. I., Islam, M. A., Mondal, M. H. T., & Ahmmed, R. (2022). A review on active packaging for quality and safety of foods: Current trends, applications, prospects and challenges. *Food Packaging and Shelf Life*, 33, 100913. <https://doi.org/10.1016/j.fpsl.2022.100913>
- Assis, R. Q. (2021). *Filmes ativos à base de acetato de celulose com adição de licopeno, norbixina ou zeaxantina*. p. 122. Tese de Doutorado, Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Porto Alegre, Rio Grande do Sul, Brasil.
- ASTM - AMERICAN SOCIETY FOR TESTING AND MATERIALS. (2003). Standard test method for transparency of plastic sheeting (D1746-03). *Annual Book of ASTM Standards*, West Conshohocken, PA: ASTM International.
- ASTM - AMERICAN SOCIETY FOR TESTING AND MATERIALS. (2007). Standard test method for moisture content of paper and paperboard by oven drying (D644-99) (Withdrawn 2010). *Annual Book of ASTM Standards*, West Conshohocken, PA: ASTM International.
- Dias, M. V., de Medeiros, H. S., Soares, N. de F. F., Melo, N. R. de, Borges, S. V., Carneiro, J. de D. S., & Pereira, J. M. T. de A. K. (2013). Development of low-density polyethylene films with lemon aroma. *LWT - Food Science and Technology*, 50(1), 167–171. <https://doi.org/10.1016/j.lwt.2012.06.005>
- Gouvêa, D. M., Mendonça, R. C. S., Soto, M. L., & Cruz, R. S. (2015). Acetate cellulose film with bacteriophages for potential antimicrobial use in food packaging. *LWT - Food Science and Technology*, 63(1), 85–91. <https://doi.org/10.1016/j.lwt.2015.03.014>
- Huq, T., Salmieri, S., Khan, A., Khan, R. A., Le Tien, C., Riedl, B., Frascini, C., Bouchard, J., Uribe-Calderon, J., Kamal, M. R., & Lacroix, M. (2012). Nanocrystalline cellulose (NCC) reinforced alginate based biodegradable nanocomposite film. *Carbohydrate Polymers*, 90(4), 1757–1763. <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2012.07.065>
- Koshy, R. R., Koshy, J. T., Mary, S. K., Sadanandan, S., Jisha, S., & Pothan, L. A. (2021). Preparation of pH sensitive film based on starch/carbon nano dots incorporating anthocyanin for monitoring spoilage of pork. *Food Control*, 126, 108039. <https://doi.org/10.1016/j.foodcont.2021.108039>
- Luzi, F., Torre, L., Kenny, J., & Puglia, D. (2019). Bio- and Fossil-Based Polymeric Blends and Nanocomposites for Packaging: Structure–Property Relationship. *Materials*, 12(3), 471. <https://doi.org/10.3390/ma12030471>
- Marrez, D. A., Abdelhamid, A. E., & Darwesh, O. M. (2019). Eco-friendly cellulose acetate green synthesized silver nano-composite as antibacterial packaging system for food safety. *Food Packaging and Shelf Life*, 20, 100302. <https://doi.org/10.1016/j.fpsl.2019.100302>
- Rodrigues, M. I.; Iemma, A. F. (2005). *Planejamento de experimentos e otimização de processos: uma estratégia sequencial de planejamentos*. p. 325. Monografia, Universidade de São Paulo, São Paulo, Campinas, Brasil.
- Sánchez-González, L., Cháfer, M., Chiralt, A., & González-Martínez, C. (2010). Physical properties of edible chitosan films containing bergamot essential oil and their inhibitory action on *Penicillium italicum*. *Carbohydrate Polymers*, 82(2), 277–283. <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2010.04.047>
- Soares, N. F. F., & Hotchkiss, J. H. (1998). Naringinase Immobilization in Packaging Films for Reducing Naringin Concentration in Grapefruit Juice. *Journal of Food Science*, 63(1), 61–65. <https://doi.org/10.1111/j.1365-2621.1998.tb15676.x>
- Tibolla, H., Czaikoski, A., Pelissari, F. M., Menegalli, F. C., & Cunha, R. L. (2020). Starch-based nanocomposites with cellulose nanofibers obtained from chemical and mechanical treatments. *International Journal of Biological Macromolecules*, 161, 132–146. <https://doi.org/10.1016/j.ijbiomac.2020.05.194>