

## تأثير إضافة زيت الثوم في بعض خصائص أغلفة الجيلاتين المحضرة مخبرياً القابلة للأكل

عبد الحكيم عزيزية\*\*

نسرين قري\*

عبد الوهاب مرعي\*\*\*

### الملخص

هدف البحث إلى تحضير زيت الثوم، دراسة بعض الخصائص المختلفة لأغلفة الجيلاتين مع الألبينات القابلة للأكل والتي تحتوي على زيت الثوم GEO بنسب مختلفة، وتحديد النسبة المثالية لزيت الثوم مع المحافظة على صفات الجودة للأغلفة. حُضِرَ زيت الثوم بالتقطير بالتبخير، ثم حضرت أغلفة الجيلاتين مع الألبينات بإضافة زيت الثوم GEO بنسبة (0.1، 0.5، 1، 1.5) %.

تم إجراء اختبارات على الأغلفة والتي شملت نسبة الرطوبة (MC)، سماكة الأغلفة، قوة الشد ( $\sigma$ )، الاستطالة حتى القطع (EAB)، نفاذية الأغلفة لبخار الماء (WVP)، قابلية انحلالها في الماء (S)، قياس درجة شفافيتها، تقدير محتواها من المواد الفينولية، والنشاط المضاد للأوكسدة بطريقة كبح جذور DPPH الحرّة وطريقة قياس قوة الإرجاع (RP) Reducing Power، كما تم تشخيص المجاميع الفعالة في الأغلفة بتقنية مطيافية الأشعة تحت الحمراء FTIR، وقياس مؤشرات اللون باستخدام جهاز Hunter Lab.

\* طالبة دكتوراه في قسم علوم الأغذية - كلية الزراعة - جامعة دمشق - دمشق - سورية.

\*\* أستاذ في قسم علوم الأغذية - كلية الزراعة - جامعة دمشق - دمشق - سورية

\*\*\* أستاذ في قسم علوم الأغذية - كلية الزراعة - جامعة دمشق - دمشق - سورية.

أثرت إضافة زيت الثوم بشكل سلبي في بعض خصائص الأغلفة حيث أظهرت نتائج الاختبارات ازدياد سماكتها وانخفاض كل من قوة شدها، ودرجة شفافيتها مع ازدياد نسبة الزيت المضاف وذلك بالمقارنة مع عينة الشاهد، بينما كان تأثيره إيجابياً في بعض الخصائص الأخرى حيث أظهرت نتائج الاختبارات انخفاض كل من نسبة رطوبتها، نفاذيتها لبخار الماء، وقابلية انحلالها في الماء، بينما ازدادت استتاليتها حتى القطع، محتواها من المواد الفينولية، والنشاط المضاد للأكسدة مع ازدياد نسبة الزيت المضاف وذلك بالمقارنة مع عينة الشاهد، كما لوحظ تغيراً في اللون الكلي  $\Delta E$  حيث ازدادت شدته والتي تم التعبير عنها بـ  $\Delta C$ .

أظهرت الأغلفة التي تحتوي على زيت الثوم بنسبة 1.5% أفضل الخصائص بالمقارنة مع الشاهد ومع الأغلفة التي تحتوي على زيت الثوم بنسبة (0.1، 0.5، 1) %.

**الكلمات المفتاحية:** زيت الثوم، جيلاتين، القابلة للأكل، المحضرة مخبرياً، مطيافية الأشعة تحت الحمراء، DPPH.

## Effect of adding garlic essential oil on some properties of edible gelatin films prepared by laboratory

Qurabi, N.\*

Azizieh, A.\*\*

Merai, A.\*\*\*

### Abstract

The aim of this investigation is to extract garlic essential oil (GEO), studying some different characteristics of gelatin-sodium alginate edible films which contain garlic essential oil at various final concentrations and to determine the best concentration of garlic essential oil with saving of quality characteristics of films.

Garlic essential oil was prepared by steam distilling, and gelatin-sodium alginate edible films were prepared, and GEO was added by the following percentages (0.1, 0.5, 1, 1.5.% (Gelatin-sodium alginate films were tested for Moisture content (MC), Thickness, Tensile strength ( $\sigma$ ), Elongation at break (EAB), Water vapour permeability (WVP), Water solubility (S), Opacity, Total phenolic content, DPPH free radical scavenging activity, Reducing power (RP), Fourier Transform Infrared Spectroscopy (FTIR), and Color parameters.

---

\* Ph.D. student, food science department, Faculty of Agriculture, Damascus University, Damascus, Syria.

\*\* Professor, food science department, Faculty of Agriculture, Damascus University, Damascus, Syria.

\*\*\* Professor, food science department, Faculty of Agriculture, Damascus University, Damascus, Syria.

Garlic essential oil negative affect on some different characteristics of gelatin-sodium alginate edible films where the results showed increased of thickness and decreased of each of tensile strength and opacity with increased concentration of added essential oil compared with control sample.

Garlic essential oil positive affect on some other characteristics where the results showed decreased of each of Moisture content, Water vapour permeability, and Water solubility while increased each of Elongation at break, Total phenolic content, and Antioxidant activity with increased concentration of added essential oil compared with control sample.

The results showed difference in otal color  $\Delta E$  at which increased its intensity, which was expressed as  $\Delta C$ .

Films with (1.5 %) of garlic essential oil showed the best characteristics compared with control sample and films with (0.1, 0.5, 1) % of garlic essential oil

**Key words:** garlic oil, gelatin, edible, prepared by laboratory, FTIR, DPPH.

## المقدمة:

تعرف الأغلفة الغذائية بأنها طبقة رقيقة (أقل من 0.3 مم) تستخدم لتغليف الأغذية مصنوعة من مركبات قابلة للأكل، وهي مواد قابلة للتحلل الحيوي صديقة للبيئة تزيد من جودة وسلامة المنتجات الغذائية (Bourtoom، 2008)، وتقلل من استخدام الأغلفة البلاستيكية؛ كونها تمنع نفاذية غاز الأكسجين O<sub>2</sub> وغاز ثاني أكسيد الكربون CO<sub>2</sub> والرطوبة إلى داخل المنتج كما تمنع نفاذية مركبات النكهة الطيارة والمواد الذائبة إلى خارج المنتج (Krochta، 2002)، وتقلل أيضاً من فقدان الرطوبة والتفاعلات الكيميائية والإنزيمية غير المرغوبة (Janjarasskul وزملاؤه، 2014) ومعدل تفاعلات الأكسدة والتنفس الخلوي الذي يؤدي إلى تلف الأنسجة وتقليل مدة صلاحية الأغذية (Hambleton وزملاؤه، 2009)، إضافة إلى أنها توفر الحماية ضد الأضرار الميكانيكية للأغذية وتحافظ على الصفات الحسية دون إضافة نكهة غير مستساغة.

تتكون هذه الأغلفة بشكل أساسي من سلاسل من السكريات المتعددة أو البروتينات أو الليبيدات أو تكون مركبة، ويتم تحضيرها من مواد يمكن تطبيقها على شكل غشاء رقيق، قادرة على الانحلال في الماء والكحول لتشكيل محاليل مائية وأخرى كحولية (Bourtoom، 2008)، كما يمكن إضافة أنواعاً مختلفة من الملونات والمنكهات والملدنات (الغليسيرول والسوربيتول والغليسيريدات الأحادية وجليكول عديد الإيثيلين) ومضادات الأكسدة ومضادات النمو الميكروبي (Han و Gennadios، 2005؛ Vázquez وزملاؤه، 2009).

يعد الجيلاتين مزيجاً من البروتينات المنحلة في الماء والمشتقة من الكولاجين (مكوناً رئيسياً للعظام والجلد والأنسجة الرابطة) بالحلمة الحرارية، وتتألف هذه البروتينات بمعظمها من الأحماض الأمينية والتي ترتبط مع بعضها بواسطة الرابطة الأميدية لتشكيل بوليميراً خطياً (Singh، وزملاؤه، 2002).

استخدم الجيلتين في تحضير الأغلفة القابلة للأكل منذ عام 1960 م (Hanani وزملاؤه، 2012)، وذلك لانخفاض كلفته وتوفره، وتتميز أغشيته بأنها شفافة غير نفوذة وذات خواص ميكانيكية جيدة (Hanani وزملاؤه، 2013).

تحتوي أغلفة الجيلتين على الجيلتين بنسبة 20-30% وعلى الغليسيرول بنسبة 10-30% وعلى الماء بنسبة 40-70% (Hassan وزملاؤه، 2018)، ويمكن إضافة السكريات المتعددة (الأجينات، الكارجينات، الكيتوزان، الصمغ العربي، ...) بهدف تحقيق استقرار المستحلبات المتشكلة كما يمكن إضافة مستخلصات الخضراوات الزيتية لتحسين خصائص الأغلفة القابلة للأكل (Valenzuela وزملاؤه، 2013؛ Pereda وزملاؤه، 2014).

يتكون زيت الثوم بشكل رئيسي من كبريتيد ثنائي الأليل DAS، ثنائي كبريتيد ثنائي الأليل DADS، ثلاثي كبريتيد ثنائي الأليل DATS، وثنائي كبريتيد ميثيل الأليل وثنائي كبريتيد ميثيل الأليل وفينيل الديثيين vinyl-dithiols والأجوين ajoenes (Stojanovic-Radic وزملاؤه، 2013)، تؤدي إضافة الزيوت العطرية غير القطبية للأغلفة إلى زيادة لاقطبيتها وبذلك تقلل من نفاذيتها لبخار الماء (Pranoto وزملاؤه، 2005)، كما تتفصل منخفضة الكثافة منها وتتوضع على سطح الغلاف مشكلةً طبقة مزدوجة ذات بنية مجهرية (Tongnuanchan وزملاؤه، 2013)، أيضاً تؤدي إضافة الزيوت الأساسية إلى تقليل شفافية الأغلفة القابلة للأكل حيث أنها تعمل على تقليل كمية الضوء المنقول عبرها مما يساهم في بعثرة الضوء عند السطح البيني لقطرات الزيت (Gómez Estaca وزملاؤه، 2009؛ Pires وزملاؤه، 2013).

يتعلق لون أغلفة الجيلتين القابلة للأكل بالزيوت الأساسية بشكل مباشر حيث يتأثر بنوع وتركيز الزيت المضاف (Tongnuanchan وزملاؤه، 2012).

تأثير إضافة زيت الثوم في بعض خصائص أغلفة الجيلاتين... ن. قري، ع. عزيزية، ع. مرعي

أدت إضافة الزيوت أو الليبيدات إلى الأغلفة التي تحتوي على البروتينات أو السكريات المتعددة إلى إعطائها المرونة وازدياد استطالتها لكن ترافق ذلك مع انخفاض قوة شدّها (Limpisophon وزملاؤه، 2010).

وبينت دراسة قام بها (Shojaee-Aliabadi وزملاؤه 2013) زيادة محتوى الفينولات الكلية مع زيادة تركيز الزيوت الأساسية (العطرية أو الطيارة) المضافة للغلاف كما ازداد النشاط المضاد للأكسدة لأغلفة الألبينات التي تحتوي على هذه الزيوت بالمقارنة مع أغلفة الألبينات دون إضافتها (Norajit وزملاؤه، 2010)، كما يلعب زيت الثوم دوراً مضاداً للأكسدة عند تركيز 0.2 غ/100 مل (Romeilah وزملاؤه، 2010)، وكان نشاط زيت الثوم الكابح لجذر DPPH الحرّ عند تركيز 0.1 غ/100 مل، و0.2 غ/100 مل (64.1، 67) % على التوالي (Lawrence و Lawrence، 2011).

### أهداف البحث:

نظراً للمشاكل البيئية الناتجة عن البلاستيك الصناعي، وزيادة الطلب على الأغلفة الطبيعية القابلة للتحلل الحيوي، وبسبب خطر استخدام المواد الحافظة الصناعية، والخصائص المضادة للأكسدة والنمو الميكروبي للأغلفة التي تحتوي على الزيوت العطرية، وقلة الدراسات المحلية التي تُعنى باستخدام الجيلاتين والألبينات، كانت أهداف البحث مايلي:

- تحضير زيت الثوم GEO (زيت عطري أساسي) باستخدام طريقة التقطير بالتبخير.
- تحضير أغلفة الجيلاتين مع الألبينات القابلة للأكل والتي تحتوي على زيت الثوم GEO بنسب مختلفة، ودراسة خصائصها المختلفة.
- تحديد النسبة المثالية لزيت الثوم مع المحافظة على صفات الجودة للأغلفة.

## مواد البحث وطرائقه:

### 1- تحضير زيت الثوم (GEO) Garlic Essential Oil:

تم جمع وتحضير الثوم في شهر حزيران لعام 2020 م من أحد الأسواق المحلية المعدّة للبيع بالجملة في مدينة دمشق دون تحديد الصنف، واستخلص الزيت منه بطريقة التقطير بالتبخير (الجرف ببخار الماء) باستخدام جهاز استخلاص الزيوت العطرية (نموذج clevenger) وفقاً لطريقة (AOAC، 2002)، وُجِع الزيت المتكاثف وتمت معاملته بكبريتات الصوديوم اللامائية للتخلص من الماء والحصول عليه في صورة نقية، ثم حُفظ في عبوة زجاجية عاتمة عند درجة حرارة 4 °م إلى حين إضافته للأغلفة.

### 2- تحضير أغلفة الجيلاتين والألجينات بإضافة زيت الثوم GEO:

تم تحضير غلاف الجيلاتين مع ألجينات الصوديوم باتباع طريقة (Adilah وزملاؤه، 2018) مع بعض التعديلات، حيث تم تحضير محلول كربوكسي ميثيل السيللوز CMC بتركيز (2%) من خلال إذابته في الماء المقطر مع التحريك بواسطة المحرك المغناطيسي عند درجة حرارة 60 °م لمدة 20 دقيقة، بعد ذلك أضيف الغليسيرول بنسبة (35%) مع التحريك عند درجة حرارة 45 °م لمدة 15 دقيقة، ثم أضيف الجيلاتين بتركيز (4% وزن/حجم) مع التحريك عند درجة حرارة 60 °م لمدة 15 دقيقة، ثم أضيفت ألجينات الصوديوم على شكل بودرة إلى المحلول بتركيز (3%) مع التحريك الخفيف عند درجة حرارة 45 °م لمدة 20 دقيقة في حمام مائي، وفي النهاية أضيف زيت الثوم GEO للمحلول بنسبة (0.1، 0.5، 1، 1.5% وزن/حجم) عند درجة حرارة 25 °م مع التحريك لمدة 30 دقيقة.

تم التخلص من الغازات باستخدام جهاز ultrasonic تحت التفريغ، وسكب 11 غ من المحلول في طبق بتري زجاجي دائري (قطره 8 سم، مساحته 50.27 سم<sup>2</sup>)، جُف الغلاف

تأثير إضافة زيت الثوم في بعض خصائص أغلفة الجيلاتين... ن. قري، ع. عزيزية، ع. مرعي

عند درجة حرارة 25 °م لمدة 48 ساعة، ووزن بدرجة حرارة 25 ± 2 °م ورطوبة نسبية 50 ± 5 % لمدة 48 ساعة قبل إجراء الاختبارات عليه.

### 3- إجراء الاختبارات على الأغلفة:

3-1- تقدير نسبة الرطوبة في الأغلفة (MC) **Moisture Content**: تم باتباع طريقة (Sánchez-González وزملاؤه، 2010) بالتجفيف عند درجة حرارة 105 °م حتى ثبات الوزن.

3-2- تقدير سماكة الأغلفة: تم باتباع طريقة (Beigomi وزملاؤه، 2018) باستخدام جهاز الميكرومتر ذو دقة 0.01 مم.

3-3- قياس قوة الشد  $\sigma$  والاستطالة حتى القطع للأغلفة **EAB**: تم باتباع طريقة (Zhao، وزملاؤه، 2017)، وباستخدام نموذج العظمة حيث تم قص الأغلفة المحضرة على شكل العظمة وبالأبعاد نفسها، ثم طُبِقَ جهد عليها بسرعة ثابتة وقيس التشوه الحاصل في النموذج بدلالة التغير في الطول.

حُسبت قوة الشد من خلال العلاقة التالية:

$$\sigma \text{ (نيوتن/سم}^2\text{)} = F / b \times \delta$$

حيث: F القوة المطبقة على نموذج العظمة عند التمزق (N نيوتن)، b عرض نموذج العظمة (سم)،  $\delta$  سماكة نموذج العظمة (سم).

وحُسبت الاستطالة حتى القطع من العلاقة التالية:

$$\text{EAB \%} = \frac{\Delta L}{L_0} \times 100$$

حيث:  $\Delta L$  استطالة العينة (سم)،  $L_0$  طول نموذج العظمة قبل تطبيق أي قوة عليه (سم).

**3-4- تقدير نفاذية الأغلفة لبخار الماء WVP:** تم باتباع طريقة (Luis، و Paulo، 2017) بالاعتماد على قياس مقدار اكتساب الرطوبة، حيث تُبَتُّب الغلاف على وعاء يحتوي على السيليكا جيل، ثم وُزِن ووضِع في مجفف زجاجي يحتوي على الماء المقطر، وُزِن الوعاء يومياً لمدة 15 يوماً لضمان استقرار النفاذية، وحُسِبَت نفاذية بخار الماء (مغ/م<sup>2</sup>×يوم×كيلوباسكال) للغلاف من العلاقة التالية:

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

حيث:  $\Delta m$  مقدار الوزن المكتسب (مغ)،  $A$  مساحة عينة الغلاف المختبرة (سم<sup>2</sup>)،  $t$  زمن الاختبار (ساعة)،  $d$  سماكة الغلاف (سم)،  $\Delta p$  اختلاف الضغط على جانبي الغلاف ( $10 \times 2339$  كيلوباسكال عند درجة حرارة 20 °م).

**3-5- تقدير قابلية انحلال الأغلفة في الماء S:** تم باتباع طريقة (Syarifuddin وزملاؤه، 2017)، حيث وُزِنَت قطعة من الغلاف بعد تجفيفها ووضعت في الماء المقطر وتُرِكَت مدة 24 ساعة بدرجة حرارة الغرفة، بعد ذلك جففت وُزِن الجزء المتبقي غير الذواب.

**3-6- قياس درجة شفافية الأغلفة Opacity:** تم باتباع طريقة (Bonilla و Sobral، 2016)، بقياس امتصاصية الغلاف عند طول موجة 600 نانومتر باستخدام جهاز السبكتروفوتومتر.

**3-7- تقدير محتوى الأغلفة من المواد الفينولية:** تم تقدير المواد الفينولية باتباع طريقة (Yu وزملاؤه، 2015) باستخدام كاشف فولن وقياس الامتصاصية عند طول موجة 750 نانومتر باستخدام جهاز السبكتروفوتومتر.

**3-8- تقدير النشاط المضاد للأكسدة:** تم باتباع طريقة (Wangcharoen، 2007) والتي تعتمد على تثبيط جذر الـ DPPH الحر ثم قياس الامتصاصية عند طول موجة 517 نانومتر، وبتابع طريقة (Canabady-Rochelle وزملاؤه، 2015) بقياس قوة الإرجاع

تأثير إضافة زيت الثوم في بعض خصائص أغلفة الجيلاتين... ن. قري، ع. عزيزية، ع. مرعي

RP والتي تعتمد على إرجاع الحديد الثلاثي إلى الحديد الثنائي عند طول موجة 700 نانومتر باستخدام جهاز السبكتروفوتومتر.

### 3-9- تشخيص المجاميع الفعالة في الأغلفة بتقنية مطيافية الأشعة تحت الحمراء

**FTIR**: تم باتباع طريقة (Sobral و Bonilla، 2016) باستخدام جهاز Transform Infrared Spectroscopy، حيث تم قياس امتصاصية المجموعات الوظيفية عند أعداد موجية تتراوح بين 400 إلى 4000 سم<sup>-1</sup>.

### 3-10- قياس مؤشرات اللون باستخدام جهاز Hunter Lab

(Lathasree وزملاؤه، 2004؛ Tongnuanchan وزملاؤه، 2014)، وباستخدام جهاز Hunter Lab Chroma Meter CR-410، وتم التعبير عن النتائج وفق قيم ( $L^*$ ،  $a^*$ ،  $b^*$ ،  $C$ ،  $\Delta C$ ،  $\Delta E$ )، تغير شدة اللون  $\Delta C$ ، تغير اللون الكلي  $\Delta E$ .

## 4- التحليل الإحصائي:

أُجريت الاختبارات بواقع خمس معاملات تم اختبارها بثلاثة مكررات لكل اختبار وسجلت النتائج كمتوسطات  $\pm$  الانحراف المعياري، وأُجري تحليل التباين ANOVA كتجربة عاملية وتُبع باختبار Tukey لتحديد الفروق المعنوية بين المتوسطات عند مستوى ثقة 0.05، باستخدام البرنامج الإحصائي Minitab-14.

## النتائج والمناقشة:

### 1- تأثير إضافة زيت الثوم في خصائص الأغلفة:

يبين الجدول (1) التأثير الإيجابي لزيت الثوم في نسبة رطوبة الأغلفة حيث انخفضت مع زيادة نسبة الزيت المضاف ولوحظت فروق معنوية بين عينة الشاهد والعينات التي تحتوي على نسب مختلفة من الزيت فكانت نسبة الرطوبة للأغلفة التي تحتوي على زيت الثوم بنسبة (1، 1.5) % (20، 20.20) % على التوالي، يعود ذلك إلى الاستحلاب الجيد الذي يؤدي إلى تشتيت الزيت غير القطبي مما يؤثر على بنية الغلاف وهذا ينعكس على محتواه من الرطوبة (Syarifuddin وزملاؤه، 2017)، وهذا ما يتوافق مع (Ma وزملاؤه، 2016) الذي فسّر انخفاض الرطوبة بسبب تناقص ألفة الغلاف للماء في الأغلفة التي تحتوي على مواد كارهة للماء.

كما يبين الجدول (1) التأثير السلبي لزيت الثوم في سماكة الأغلفة حيث ازدادت مع زيادة نسبة الزيت المضاف ولوحظت فروق معنوية بين عينة الشاهد والعينات التي تحتوي على زيت الثوم بنسبة (0.5، 1، 1.5) %، فكانت سماكة الأغلفة التي تحتوي على زيت الثوم بنسبة 1.5% (0.06 مم)، يعود ذلك إلى المركبات الكيميائية المختلفة للزيوت والتي تزيد المسافة بين الجزيئات مما يؤدي إلى غلاف سميك نسبياً وهذا ما يتوافق مع (Syarifuddin وزملاؤه، 2017)، الذي بين أن قطرات الزيت تدخل وتتموضع في شبكة الغلاف فتعمل على عرقلة التفاعل بين حزيئاته، مما يؤدي إلى فقدان التراص والاندماج ضمن شبكة الغلاف ونقصان ترتيب سلسله وتشكيل بنية تحتوي على تنوعات تشير إلى سماكة متزايدة.

كما نلاحظ من الجدول (1) التأثير السلبي لزيت الثوم في قوة الشد للأغلفة حيث انخفضت مع زيادة نسبة الزيت المضاف بينما أثر بشكل إيجابي في استطالة الأغلفة حيث ازدادت مع زيادة نسبة الزيت المضاف ولوحظت فروق معنوية بين عينة الشاهد والعينات التي تحتوي

تأثير إضافة زيت الثوم في بعض خصائص أغلفة الجيلاتين... ن. قري، ع. عزيزية، ع. مرعي

على نسب مختلفة من الزيت، فكانت قوة الشد والاستطالة حتى القطع للأغلفة التي تحتوي على زيت الثوم بنسبة 1.5% (1033.30 نيوتن/سم<sup>2</sup>، 77.5%) على التوالي. تبدو جميع الأغلفة سواء بإضافة الزيوت أو بدونه مرنة ومتجانسة بصرياً، فقد أدت إضافة الزيت إلى تغيير خصائص الأغلفة الميكانيكية حيث انخفضت قوة الشد بينما ازدادت قيمة الاستطالة حتى القطع بالمقارنة مع عينة الشاهد وهذا مايتوافق مع (Teixeira وزملاؤه، 2014).

بينت دراسة قام بها (Yang، و Paulson، و 2000، Tongnuanchan، وزملاؤه، 2012) أن استقرار الغلاف المحضّر يتحقق بوجود روابط ضعيفة تتضمن الروابط الهيدروجينية والتفاعلات الكارهة للماء، لكن التفاعلات بين الجزيئات القطبية أقوى من التفاعلات بين الجزيئات غير القطبية (جزيئات الزيت)، ومن التفاعلات بين الجزيئات القطبية وغير القطبية، وبما أن الزيت المضاف يحتوي على كميات مرتفعة من الجزيئات غير القطبية والتي يمكنها إعاقة تفاعل سلاسل الغلاف وزيادة قدرتها على الحركة بالإضافة إلى التقليل من متانة الغلاف وتماسك مكوناته وزيادة مساميته كما أن قطرات الزيت المتبقية بعد التجفيف قد تؤدي إلى زيادة مسامية الغلاف وتقليل تجانس شبكته وبالتالي انخفاض قوة الشد وزيادة الاستطالة وهذا مايتوافق مع (Limpisophon، وزملاؤه، 2010؛ Jiang وزملاؤه، 2020)، كما بين (Tongnuanchan وزملاؤه، 2014) أن زيادة نسبة الغليسيرول الذي يضاف للتقليل من قساوة الغلاف قد تؤدي إلى انخفاض مقاومته للقطع وزيادة قابليته لتغيير شكله.

نلاحظ أيضاً من الجدول (1) التأثير الإيجابي لزيت الثوم في نفاذية الأغلفة لبخار الماء حيث انخفضت مع زيادة نسبة الزيت المضاف ولوحظت فروق معنوية بين العينات التي تحتوي على نسب مختلفة من الزيت وبينها وبين عينة الشاهد، فكانت النفاذية لبخار الماء

للغلاف الشاهد والأغلفة التي تحتوي على زيت الثوم بنسبة 1.5% (1.51، 0.92 مغ×م<sup>-1</sup>×يوم<sup>-1</sup>× كيلو باسكال<sup>-1</sup>) على التوالي. تؤدي إضافة الزيت إلى الأغلفة التي تحتوي على الجيلاتين وألجينات الصوديوم إلى زيادة خصائصها الكارهة للماء وبالتالي انخفاض نفاذيتها لبخار الماء وهذا ما يتوافق مع (Wu وزملاؤه، 2001) حيث تتشكل شبكة لبيدية مترابطة داخل الغلاف والتي تجعل الغلاف كارهاً للماء وتقلل من امتزاز جزيئات الماء وهذا ما لوحظ في الأغلفة المستحلبة من قبل (Pranoto وزملاؤه، 2005؛ Fabra وزملاؤه، 2011). يبين الجدول (1) التأثير الإيجابي لزيت الثوم في قابلية انحلال الأغلفة في الماء حيث انخفضت مع زيادة نسبة الزيت المضاف، ولوحظت فروق معنوية بين عينة الشاهد والعينات التي تحتوي على نسب مرتفعة من الزيت وكانت قابلية الانحلال في الماء للغلاف الشاهد والأغلفة التي تحتوي على زيت الثوم بنسبة 1.5% (68.91، 25.57) على التوالي. الجيلاتين مادة ذوابة في الماء ويمكنها أن تتحلل جزئياً عند ملامستها لوسط مائي وتفقد بنيتها الليفية لكن وجود الزيت مع الجيلاتين بنسبة كبيرة بالنسبة إلى ألجينات الصوديوم أدى إلى منع انتقال السكريات المتعددة إلى الماء وبالتالي منع ذوبانها فيه (Syarifuddin وزملاؤه، 2017)، حيث أن الروابط المتقاطعة المتشكلة بين مركبات الغلاف أدت إلى استقرار بنيته وتقليل انحلاله في الوسط المائي وهذا ما يتوافق مع (Gomes وزملاؤه، 2013).

تأثير إضافة زيت الثوم في بعض خصائص أغلفة الجيلاتين... ن. قري، ع. عزيزية، ع. مرعي

الجدول (1): خصائص أغلفة الجيلاتين المضاف لها زيت الثوم بنسب مختلفة

% GEO				شاهد (بدون زيت)	المعاملة الاختبار
1.5	1	0.5	0.1		
20.00±0.01 <sup>b</sup>	20.20±0.01 <sup>b</sup>	20.27±0.60 <sup>b</sup>	20.28±0.01 <sup>b</sup>	22.63±0.02 <sup>a</sup>	اللزوجة MC (%)
0.06±0.01 <sup>c</sup>	0.05±0.01 <sup>b,c</sup>	0.05±0.02 <sup>b,c</sup>	0.04±0.02 <sup>a,b</sup>	0.03±0.01 <sup>a</sup>	السماعة (مم)
1033.30±0.06 <sup>e</sup>	1241.90±0.02 <sup>d</sup>	1345.00±0.02 <sup>c</sup>	1729.66±0.01 <sup>b</sup>	2194.03±0.01 <sup>a</sup>	قوة الشد σ (نيوتن/سم <sup>2</sup> )
77.5±0.06 <sup>e</sup>	67.5±0.06 <sup>d</sup>	60±0.02 <sup>c</sup>	47.5±0.01 <sup>b</sup>	25±0.01 <sup>a</sup>	الاستطالة حتى القطع EAB (%)
0.92±0.03 <sup>c</sup>	0.97±0.02 <sup>d</sup>	1.05±0.03 <sup>c</sup>	1.30±0.02 <sup>b</sup>	1.51±0.02 <sup>a</sup>	النفاذية لبخار الماء WVP (مغ×م <sup>-1</sup> ×يوم <sup>-1</sup> ×ك باسكال <sup>-1</sup> )
25.57±0.01 <sup>d</sup>	38.98±0.02 <sup>c</sup>	40.35±0.02 <sup>b</sup>	41.67±0.01 <sup>b</sup>	68.91±0.01 <sup>a</sup>	قابلية الانحلال في الماء S (%)
2.14±0.06 <sup>b</sup>	2.16±0.01 <sup>b</sup>	2.35±0.01 <sup>a</sup>	2.35±0.02 <sup>a</sup>	2.35±0.02 <sup>a</sup>	الشفافية (%)
45.90±0.06 <sup>d</sup>	38.17±0.06 <sup>c</sup>	37.27±0.06 <sup>c</sup>	24.93±0.12 <sup>b</sup>	0.86±0.02 <sup>a</sup>	المواد الفينولية (مغغاليك/100غ)
62.78±0.06 <sup>c</sup>	61.99±0.11 <sup>b,c</sup>	60.88±0.11 <sup>b</sup>	60.25±0.06 <sup>b</sup>	41.17±0.02 <sup>a</sup>	النشاط المضاد للأكسدة % DPPH
77.15±0.04 <sup>c</sup>	75.48±0.13 <sup>b</sup>	74.51±0.09 <sup>b</sup>	74.04±0.09 <sup>b</sup>	55.97±0.04 <sup>a</sup>	النشاط المضاد للأكسدة RP %

\* تدل الأحرف المتشابهة في الصف الواحد على عدم وجود فروق معنوية ( $P > 0.05$ ) بين المتوسطات.

\* تشير الأرقام ضمن الجدول إلى متوسط ثلاثة مكررات ± الانحراف المعياري.

كما يبين الجدول (1) التأثير السلبي لزيت الثوم في درجة شفافية الأغلفة حيث انخفضت مع زيادة نسبة الزيت المضاف، ولوحظت فروق معنوية بين عينة الشاهد والعينات التي تحتوي على نسب مرتفعة من الزيت وكانت درجة شفافية الغلاف الشاهد والأغلفة التي تحتوي على زيت الثوم بنسبة 1.5% (2.35، 2.14) %، يعود ذلك إلى لون الزيت الذي يُمتص في هذا المدى المرئي وهذا ما يتوافق مع (Sobral و Bonilla، 2016).

لأغلفة الجيلتين خصائص غير نفوذة جيدة للأشعة فوق البنفسجية UV بسبب محتواها العالي من الأحماض الأمينية العطرية التي تمتص هذه الأشعة (Hamaguchi وزملاؤه، 2007)، ويعزز هذه الخاصية إضافة الزيوت الأساسية وهذا ما يتوافق مع (Tongnuanchan وزملاؤه، 2014)، حيث يمكن لقطرات الزيت أن تتوضع ضمن شبكة الغلاف وتمنع مرور ضوء أشعة UV والأشعة المرئية، أو قد تؤدي إلى تشتت وبعثرة ضوء الأشعة بدرجات مختلفة، وبشكل عام فإن شفافية الأغلفة ونفاذ الضوء عبرها مرتبط بحجم وتوزيع قطرات الزيت وانتظام أو اصطفا المكونات ضمن شبكة الغلاف (Limpan وزملاؤه، 2010؛ Shojaee-Aliabadi وزملاؤه، 2013).

يشير الجدول (1) إلى التأثير الإيجابي لزيت الثوم في محتوى الأغلفة من المواد الفينولية حيث ازدادت مع زيادة نسبة الزيت المضاف، ولوحظت فروق معنوية بين العينات التي تحتوي على نسب مختلفة من الزيت وبينها وبين عينة الشاهد، وكان المحتوى من المواد الفينولية للأغلفة التي تحتوي على زيت الثوم بنسبة 1.5% (45.90 مغ غاليك/100غ).

كما يشير الجدول (1) إلى التأثير الإيجابي لزيت الثوم في محتوى الأغلفة من مضادات الأكسدة (سواء باتباع طريقة DPPH أو RP) حيث ازدادت مع زيادة نسبة الزيت المضاف، ولوحظت فروق معنوية بين عينة الشاهد والعينات التي تحتوي على نسب مختلفة من الزيت،

تأثير إضافة زيت الثوم في بعض خصائص أغلفة الجيلاتين... ن. قري، ع. عزيزية، ع. مرعي

وكان النشاط المضاد للأكسدة للأغلفة التي تحتوي على زيت الثوم بنسبة 1.5% (62.78%) عند اتباع طريقة DPPH و(77.15%) عند اتباع طريقة RP. يتعلق محتوى الأغلفة من المواد الفينولية ومضادات الأكسدة بالمركبات الفعالة الأساسية الموجودة في الزيوت المضافة (Ruberto، Baratta، 2000)، وهذا مايتوافق مع (Faraji وزملاؤه، 2004) الذي بين أن النشاط المضاد للأكسدة في زيت الثوم يعود إلى الحموض الأمينية مثل التريتوفان، الميثيونين، والتيروزين، وإلى احتوائه على فينيل الديثيين vinyl-dithiins، والأجوين ajoenes، ومركبات الكبريت (DAS، DADS، DATS) التي تحتوي على مجموعات السلفهيدريل.

بينت النتائج احتواء عينة الشاهد على المواد الفينولية كما أظهرت نشاطاً مضاداً للأكسدة إلى حد ما وهذا مايتوافق مع (Kim وزملاؤه، 2001؛ Gómez-Estaca وزملاؤه، 2009)، حيث حدث فيها ترسب للأحماض الأمينية مثل التيروزين والهيستيدين والتي تكون قادرة على التفاعل مع كاشف فولن، كما أن بعض المركبات الفعالة الموجودة في الزيوت قد تتفاعل مع شبكة الغلاف بشكل مختلف مما يؤدي إلى تحرر مركبات مضادة للأكسدة منه، أيضاً فسر (Salgado وزملاؤه، 2012) النشاط المضاد للأكسدة لعينة الغلاف الشاهد باحتواء الجيلاتين على الحموض الأمينية التي تقوم بدور مانح للإلكترونات وتتفاعل مع الجذر الحر.

## 2- مطيافية الأشعة تحت الحمراء FTIR للأغلفة التي تحتوي على زيت الثوم:

تستخدم مطيافية الأشعة تحت الحمراء FTIR لمعرفة المجموعات الوظيفية والتفاعل بين شبكة الغلاف (جيلاتين-ألجينات الصوديوم) والزيت المضاف، والتي تقسر تغير خصائص الغلاف الفيزيائية والميكانيكية، حيث يحدث اهتزاز للمجموعات الوظيفية وامتصاص للروابط (Li وزملاؤه، 2011).

أظهرت عينة الغلاف الشاهد والعينات التي تحتوي على نسب مختلفة من زيت الثوم قمماً رئيسية متشابهة، حيث يبين الشكل (1) قمة واسعة عند أعداد موجية تتراوح

بين 3873-3831 سم<sup>-1</sup> وهي تقابل امتداد اهتزازات المجموعة (C-H و NH) الموجودة في الجيلاتين ومجموعة (-OH) في السكريات المتعددة وألجينات الصوديوم والجلسيرول و CMC، لكن لا توجد اختلافات بين أطيف الأشعة تحت الحمراء لجميع العينات عند هذا المجال وبالتالي لا يمكن التمييز بين العينات المدروسة بالاعتماد على هذه المناطق الطيفية وهذا ما يتوافق مع (Li وزملاؤه، 2011؛ Derkach وزملاؤه، 2019).

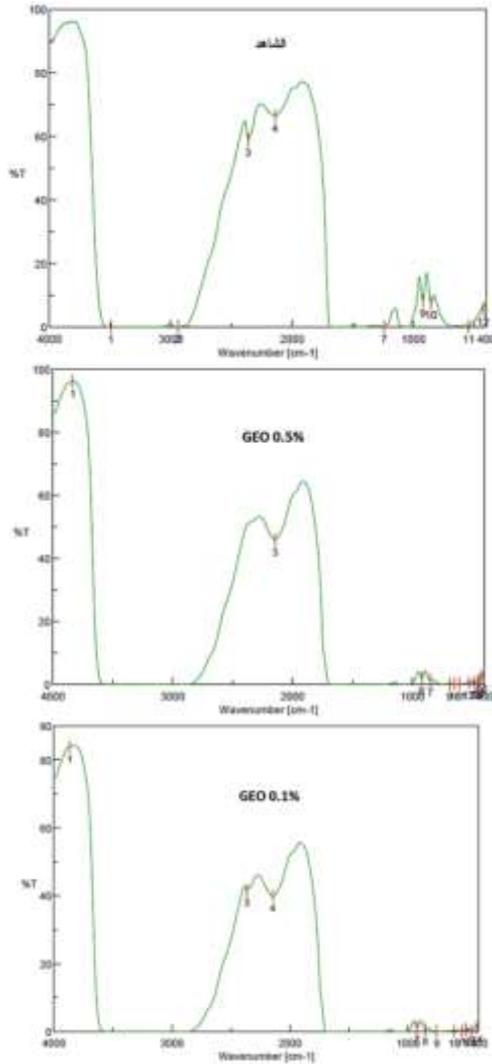
ولوحظ اهتزاز مشدود ممتد بين الأعداد الموجية 3495-2944 سم<sup>-1</sup> وهي تقابل امتداد اهتزازات المجموعة (C-H)، لكن ظهرت قمة منخفضة عند العدد الموجي 2940 سم<sup>-1</sup> لعينة الشاهد فقط وهي تقابل امتداد اهتزازات المجموعة (C-H) وذلك بسبب التخفيف الذي أحدثه الزيت المضاف (Boughendjioua، و Boughendjioua، 2017).

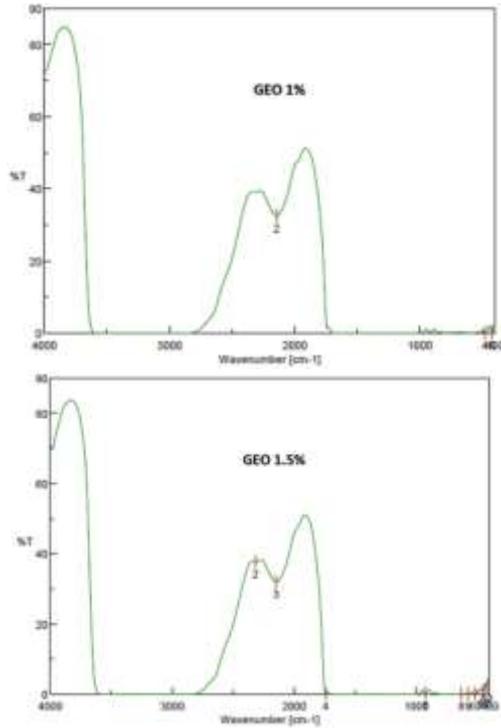
تقابل الامتصاصات عند أعداد موجية تتراوح بين 2375-2145 سم<sup>-1</sup> امتداد اهتزازات (NH<sub>2</sub> و NH) في الجيلاتين، أما الامتصاصات القريبة من العدد الموجي 2400 سم<sup>-1</sup> فهي تقابل امتداد اهتزازات (OH، NH) في الجيلاتين والجلسيرول على التوالي لكنها مفلطحة ضعيفة الاهتزاز، وكثافة امتصاص الرابطة في جميع العينات أقل من كثافتها في عينة الشاهد نتيجة التخفيف الذي أحدثه الزيت المضاف (Tongnuanchan وزملاؤه، 2013).

وتقابل الامتصاصات القريبة من العدد الموجي 1900 سم<sup>-1</sup> امتداد اهتزازات الروابط الثنائية (C=O) في الجيلاتين والألجينات (Derkach وزملاؤه، 2019).

لوحظت امتصاصات عند أعداد موجية تتراوح بين 1743-1720 سم<sup>-1</sup> في العينات التي تحتوي على زيت الثوم بنسبة (0.5، 1) % ولم تلاحظ في الشاهد وذلك بسبب المجموعات العطرية الموجودة في الزيت المضاف.

تأثير إضافة زيت الثوم في بعض خصائص أغلفة الجيلاتين... ن. قري، ع. عزيزية، ع. مرعي





الشكل (1): طيف FTIR للغلاف الشاهد وللأغلفة التي تحتوي على زيت الثوم

أيضاً يوجد اهتزاز مشدود ممتد بين 1720-1500 سم<sup>-1</sup> يقابل امتداد اهتزازات المجموعة (COO) الموجودة في ألجينات الصوديوم. لوحظت امتصاصات عند أعداد موجية تتراوح بين 1300-1100 سم<sup>-1</sup> في عينة الشاهد والعينات التي تحتوي على زيت الثوم بنسبة (0.1، 0.5) % (Sung وزملاؤه، 2014) تقابل ذرات الكربون (مجموعة الكربونيل C-C التي تكون على شكل سلاسل مستقيمة، و=CH<sub>2</sub>). كما لوحظ حزمة امتصاصات عند أعداد موجية تتراوح بين 1092-600 سم<sup>-1</sup> في جميع العينات لكن تقل كثافة الامتصاص مع زيادة نسبة الزيت تقابل امتداد الاهتزازات لمجموعات

تأثير إضافة زيت الثوم في بعض خصائص أغلفة الجيلاتين... ن. قري، ع. عزيزية، ع. مرعي

(CO-C و -C-O) في وحدات الـ mannuronic و guluronic في الألبينات (Dong وزملاؤه، 2006)، ويمكن أن تكون بسبب امتداد الاهتزازات لمجموعات (S=O) في الأغلفة التي تحتوي على زيت الثوم (Sung وزملاؤه، 2014) وهذا المجال يدعي بالبصمة وهو الذي يبين ماهية العينة (Jiang وزملاؤه، 2020).

تقابل حزم الامتصاصات الضعيفة عند الأعداد الموجية الأقل من 600 سم<sup>-1</sup> في جميع العينات (=CH<sub>2</sub>) للجيلاتين (Derkach وزملاؤه، 2019).

أظهر تحليل طيف FTIR للغلاف أن المجموعات منظمة وذلك بسبب الروابط الهيدروجينية المتشكلة ضمن وبين سلاسل الغلاف متضمنة مجموعاتها الأمينية والهيدروكسيل والكربونيل، وأيضاً بسبب التفاعلات الالكتروستاتيكية بين سلاسل مكونات الغلاف.

### 3- تأثير إضافة زيت الثوم في مؤشرات اللون للأغلفة:

الجدول (2): تأثير إضافة زيت الثوم في مؤشرات اللون للأغلفة

GEO%				شاهد (بدون زيت)	المعاملة الاختبار
1.5	1	0.5	0.1		
79.35±0.29 <sup>b</sup>	80.04±0.07 <sup>a,b</sup>	81.10±0.16 <sup>a</sup>	81.42±0.12 <sup>a</sup>	81.48±0.13 <sup>a</sup>	<b>L*</b>
-0.89±0.02 <sup>d</sup>	-0.70±0.01 <sup>c,f</sup>	-0.60±0.04 <sup>b</sup>	-0.46±0.04 <sup>a</sup>	-0.45±0.01 <sup>a</sup>	<b>a*</b>
7.17±0.06 <sup>c</sup>	6.75±0.05 <sup>b</sup>	5.13±0.01 <sup>a</sup>	5.05±0.01 <sup>a</sup>	5.04±0.02 <sup>a</sup>	<b>b*</b>
7.22±0.06 <sup>c</sup>	6.79±0.05 <sup>b</sup>	5.17±0.01 <sup>a</sup>	5.07±0.01 <sup>a</sup>	5.06±0.02 <sup>a</sup>	<b>C</b>
4.07±0.06 <sup>c</sup>	3.64±0.05 <sup>b</sup>	2.02±0.01 <sup>a</sup>	1.93±0.01 <sup>a</sup>	1.92±0.02 <sup>a</sup>	<b>ΔC</b>
12.61±0.26 <sup>d</sup>	11.82±0.08 <sup>c</sup>	10.37±0.16 <sup>b</sup>	10.04±0.11 <sup>a</sup>	9.99±0.13 <sup>a</sup>	<b>ΔE</b>

\* تدل الأحرف المتشابهة في الصف الواحد على عدم وجود فروق معنوية (P>0.05) بين المتوسطات.

\* تشير الأرقام ضمن الجدول إلى متوسط ثلاثة مكررات ± الانحراف المعياري.

يبين الجدول (2) انخفاض قيم مؤشرات اللون  $L^*$  و  $a^*$  مع زيادة نسبة الزيت المضافة ولوحظت فروق معنوية بين عينة الشاهد والعينة التي تحتوي على أعلى نسبة من الزيت، بينما ازدادت قيم مؤشرات اللون  $b^*$  ، و  $C$  مع زيادة نسبة الزيت المضافة حيث لوحظت فروق معنوية بين عينة الشاهد والعينات التي تحتوي على نسب مختلفة من الزيت. كما نلاحظ من الجدول (2) ازدياد قيمة تغير شدة اللون  $\Delta C$  وتغير اللون الكلي  $\Delta E$  مع زيادة نسبة الزيت المضاف حيث لوحظت فروق معنوية بين عينة الشاهد والعينات التي تحتوي على نسب مرتفعة من الزيت. يعود اختلاف قيم مؤشرات اللون إلى اختلاف الأصبغة الموجودة في الزيت المضاف والتي تحدد لون الغلاف الناتج حيث كان تغير مؤشرات اللون ضئيل بالنسبة للعينات التي تحتوي على نسب منخفضة من الزيت وهذا ما يتوافق مع (Peng، Li، 2014).

#### الاستنتاجات:

- أدت إضافة زيت الثوم بنسب مختلفة إلى تحسين خصائص الأغلفة بالمقارنة مع عينة الشاهد.
- اعتماد النسبة 1.5% كنسبة مثالية لزيت الثوم مع المحافظة على معظم صفات الجودة للأغلفة.

#### التوصيات:

- إمكانية تحسين خصائص الأغلفة القابلة للأكل بإضافة زيت الثوم بنسبة 1.5%.
- دراسة تأثير أنواع أخرى من الزيوت في خصائص الأغلفة القابلة للأكل (زيت القرفة، زيت بذور العنب، زيت قشور الحمضيات).
- دراسة تأثير إضافة زيت الثوم لأغلفة الجيلاتين وينسب مختلفة في حفظ اللحوم.

## : References المراجع

- **Adilah, Z. A. M., Jamilah, B., and Hanani, Z. A. N. (2018).** Functional and antioxidant properties of protein-based films incorporated with mango kernel extract for active packaging. *Food Hydrocolloid*, 74, 207-218.
- **AOAC. (2002).** Official methods of Analysis. Association of Official Analytical Chemists International, Arlington, USA.
- **Beigomi, M., Mohsenzadeh, M., and Salari, A. (2018).** Characterization of a novel biodegradable edible film obtained from *Dracocephalum moldavica* seed mucilage, *International Journal of Biological Macromolecules*, 108, 874-883.
- **Bonilla, J., and Sobral, P. J. A. (2016).** Investigation of the physicochemical, antimicrobial and antioxidant properties of gelatin-chitosan edible film mixed with plant ethanolic extracts. *Food Bioscience*, 16, 17–25.
- **Boughendjioua, H., and Boughendjioua, Z. (2017).** Fourier transformed infrared spectroscopy analysis of constituents of *Rosmarinus officinalis* L. essential oil from Algeria. *Journal of Photochemistry and Photobiology*, 5, 30-35.
- **Bourtoom, T. (2008).** Preparation and properties of rice starch-chitosan blend biodegradable film. *Food Science and Technology*, 15 (3), 237–248.
- **Canabady-Rochelle, L. L. S., Harscoat-Schiavo, C., Kessler, V., Aymes, A., Fournier, F., and Girardet, J-M. (2015).** Determination of Reducing Power and Metal Chelating Ability of Antioxidant Peptides: Revisited Methods, *Food Chemistry*. *Food Chemistry*, 1-27.
- **Derkach, R. S., Voron'ko, N. G., Sokolan, N. I. Kolotova, D. S., and Kuchina, Y. A. (2019).** Interactions between gelatin and sodium alginate: UV and FTIR studies. *Journal of Dispersion Science and Technology*, 1-11.
- **Dong, Z., Wang, Q., and Du, Y. (2006).** Alginate/gelatin blend films and their properties for drug controlled release, *Journal of Membrane Science*, 280(1-2) 37-44.

- **Fabra, M. J., Pérez-Masiá, R., Talens, P., and Chiralt, A. (2011).** Influence of the homogenization conditions and lipid self-association on properties of sodium caseinate based films containing oleic and stearic acids. *Food Hydrocolloids*, 25 (5), 1112-1121.
- **Faraji, H., McClements, D. J., and Decker, E. A. (2004).** Role of continuous phase protein on the oxidative stability of fish oil-in-water emulsions. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 52(14), 4558e4564.
- **Gomes, S. R., Rodrigues, G., Martins, G. G., Henriques, C. M. R., and Silva, J. C. (2013).** In vitro evaluation of cross-linked electrospun fish gelatin scaffolds. *Materials Science and Engineering C*, 33, 1219e1227.
- **Go´mez-Estaca, J., Bravo, L., Go´mez-Guille´n, M. C., Alema´n, A., and Montero, P. (2009).** Antioxidant properties of tuna-skin and bovine-hide gelatin films induced by the addition of oregano and rosemary extracts. *Food Chem*, 112(1):18–25.
- **Hamaguchi, P. Y., WuYin, W., and Tanaka, M. (2007).** Effect of pH on the formation of edible films made from the muscle proteins of blue marlin (*Makaira mazara*). *Food Chem*, 100(3):914–920.
- **Hambleton, A., Debeaufort, F., Bonnotte, A., and Voilley, A. (2009).** Influence of alginate\emulsion-based films structure on its barrier properties and on the protection of microencapsulated aroma compound. *Food Hydrocolloids*, 23, 2116-2124.
- **Han, J. H., and Gennadios, A. (2005).** Edible films and coatings: a review. In **Han, J. H** (Ed). *Innovations in food packaging*. Elsevier Academic Press, San Diego, USA, 239-262.
- **Hanani, N. Z. A., Roos, Y. H., and Kerry, J. P. (2012).** Use of beef, pork and fish gelatin sources in the manufacture of films and assessment of their composition and mechanical properties. *Food Hydrocolloid*. 29(1) 144–151.
- **Hanani, N. Z. A., McNamara, J., Roos, Y. H., and Kerry, J. P. (2013).** Effect of plasticizer continent on the functional properties of

- extruded gelatin-based composite films. *Food Hydrocolloid*, 31 (2) 264–269.
- **Hassan, B., Chatha, S. A. S., Hussain, A. I., and Zia, K. M. (2018).** Recent advances on polysaccharides, lipids and protein based edible films and coatings. *International Journal of Biological Macromolecules*, (109) 1095–1107.
  - **Janjarasskul, T., Rauch, D., McCarthy, K., and Krochta, J. (2014).** Barrier and tensile properties of whey protein–candelilla wax film/sheet. *LWT–Food Science and Technology*, 56, 377-382.
  - **Jiang, Y., Lan, W., Sameen, D. E., Ahmed, S., Qin, W., Zhang, Q., Chen, H., Dai, J., He, L., and Liu, Y. (2020).** Preparation and characterization of grass carp collagen-chitosan-lemon essential oil composite films for application as food packaging. *International Journal of Biological Macromolecules*, 20, 1-30.
  - **Kim, S. K., Kim, Y. T., Byun, H. G., Nam, K. S., Joo, D. S., and Shahidi, F. (2001).** Isolation and characterization of antioxidative peptides from gelatin hydrolysate of Alaska pollack skin. *J Agric Food Chem*, 49(4):1984–1989.
  - **Krochta, J. M. (2002).** In: Gennadios (Ed.), *A Protein-based Films and Coatings*, CRC Press, New York, pp. 1–41.
  - **Lathasree, S., Rao, A. N., SivaSankar, B., Sadasivam, V., and Rengaraj, K. (2004).** Heterogeneous photocatalytic mineralisation of phenols in aqueous solutions. *Journal of Molecular Catalysis A: Chemical*, 223, 101e105.
  - **Lawrence, R., Lawrence, K. (2011).** Antioxidant activity of garlic essential oil (*Allium Sativum*) grown in north Indian plains. *Asian Pacific Journal of Tropical Biomedicine*, pp. 1-3.
  - **Li, Y., Jia, H., Cheng, Q., Pan, F., and Jiang, Z. (2011).** Sodium alginate–gelatin polyelectrolyte complex membranes with both high water vapor permeance and high permselectivity. *Journal of Membrane Science*, 375, 304-312.
  - **Limpan, N., Prodpran, T., Benjakul, S., and Prasarpran, S. (2010).** Properties of biodegradable blend films based on fish myofibrillar

protein and polyvinyl alcohol as influenced by blend composition and pH level. *J Food Eng*, 100(1):85–92.

- **Limpisophon, K., Tanaka, M., and Osako, K. (2010).** Characterisation of gelatin–fatty acid emulsion films based on blue shark (*Prionace glauca*) skin gelatin. *Food Chemistry*, 122(4), 1095–1101.
- **Luis, J. P. C., and Paulo J. A. S. (2017).** Physical and antioxidant properties of films based on gelatin, gelatin-chitosan or gelatin-sodium caseinate blends loaded with nanoemulsified active compounds. *Journal of Food Engineering*, 1-23.
- **Ma, Q., Zhang, Y., Critzer, F., Davidson, P. M., Zivanovic, S., and Zhong, Q. (2016).** Physical, mechanical, and antimicrobial properties of chitosan films with microemulsions of cinnamon bark oil and soybean oil. *Food Hydrocolloids*, 52, 533–542.
- **Norajit, K., Kim, K. M., and Ryu, G. H. (2010).** Comparative studies on the characterization and antioxidant properties of biodegradable alginate films containing ginseng extract. *Journal of Food Engineering*, 98 (3), 377–384.
- **Peng, Y., and Li, Y. (2014).** Combined effects of two kinds of essential oils on physical, mechanical and structural properties of chitosan films. *Food Hydrocoll*, 36:287–293.
- **Pereda, M., Dufresne, A., Aranguren, M. I., and Marcovich, N. E. (2014).** Polyelectrolyte films based on chitosan/olive oil and reinforced with cellulose nanocrystals. *Carbohydrate Polymers*, 101 (1), 1018–1026.
- **Pires, C., Ramos, C., Teixeira, B., Batista, I., Nunes, M. L., and Marques, A. (2013).** Hake proteins edible films incorporated with essential oils: Physical, mechanical, antioxidant and antibacterial properties. *Food Hydrocolloids*, 30, 224–231.
- **Pranoto, Y., Salokhe, V. M., and Rakshit, S. K. (2005).** Physical and antibacterial properties of alginate-based edible film incorporated with garlic oil. *Food Research International* 38. 267–272.

- **Romeilah, R. M., Fayed, S. A., and Mahmoud, G. I. (2010).** Chemical compositions, antiviral and antioxidant activities of seven essential oils. *J. App. Sci. Res.*, 6(1): 50-62.
- **Ruberto, G., and Baratta, M. T. (2000).** Antioxidant activity of selected essential oil components in two lipid model systems. *Food Chem.* 69(2): 167-174.
- **Salgado, P. R., López-Caballero, M. E., Gómez-Guillén, M. C., Mauri, A. N., and Montero, M. P. (2012).** Exploration of the antioxidant and antimicrobial capacity of two sunflower protein concentrate films with naturally present phenolic compounds. *Food Hydrocolloids*, 29(2), 374–381.
- **Sánchez-González, L., Cháfer, M., Chiralt, A., and González-Martínez, C. (2010).** Physical properties of edible chitosan films containing bergamot essential oil and their inhibitory action on *Penicillium italicum*. *Carbohydr. Polym.* 82. (2) 277–283.
- **Shojaee-Aliabadi, S., Hosseini, H., Mohammadifar, M. A., Mohammadi, A., Ghasemlou, M., Ojagh, S. M., Hosseini, S. M., and Khaksar, R. (2013).** Characterization of antioxidant-antimicrobial  $\kappa$ -carrageenan films containing *Satureja hortensis* essential oil. *International Journal of Biological Macromolecules*, 52, 116-124.
- **Singh, S., Rama Rao, K. V., and Manikandan, R. (2002).** Alteration in dissolution characteristics of gelatin-containing formulations. *Pharmaceutical Technology*, 26(4), 36-58.
- **Stojanovic-Radic, Z., Matejic, J., and Radulovic, N. (2013).** Garlic essential oil: Biological activities and further potential. *RPMP*, 36: 289-327.
- **Sung, S. Y., Sin, L. T., Tee, T. T., Bee, S. T., Rahmat, A. R., and Rahman, W. A. W. A. (2014).** Control of bacteria growth on ready-to-eat beef loaves by antimicrobial plastic packaging incorporated with garlic oil. *Food Control*, 39, 214-221.
- **Syarifuddin, A., Hasmiyani, A., Dirpan, A., and Mahendradatta, M. (2017).** Physical, mechanical, and barrier properties of sodium alginate/gelatin emulsion based-films incorporated with canola oil. *Earth and Environmental Science*, 101: 1-10.

- **Teixeira, B., Marques, A., Pires, C., Ramos, C. Batista, I., Saraiva, J. A., and Nunes, M. L. (2014).** Characterization of fish protein films incorporated with essential oils of clove, garlic and origanum: Physical, antioxidant and antibacterial properties. *LWT - Food Science and Technology*, 59, 533-539.
- **Tongnuanchan, P., Benjakul, S., and Prodpran, T. (2012).** Properties and antioxidant activity of fish skin gelatin film incorporated with citrus essential oils. *Food Chemistry*, 134, 1571-1579.
- **Tongnuanchan, P., Benjakul, S., and Prodpran, T. (2013).** Physico-chemical properties, morphology and antioxidant activity of film from fish skin gelatin incorporated with root essential oils. *Journal of Food Engineering*, 117, 350-60.
- **Tongnuanchan, P., Benjakul, S., and Prodpran, T. (2014).** Comparative studies on properties and antioxidative activity of fish skin gelatin films incorporated with essential oils from various sources. *Int Aquat Res*, 6, 1-12.
- **Valenzuela, C., Abugoch, L., and Tapia, C. (2013).** Quinoa protein-chitosan-sunflower oil edible film: mechanical, barrier and structural properties. *Journal of Food Science and Technology*, 50 (2), 531-537.
- **Vásconez, M. B., Flores, S. K., Campos, C. A., Alvarado, J., and Gerschenson, L. N. (2009).** Antimicrobial activity and physical properties of chitosan-tapioca starch based edible film and coatings. *Food Research International*. 42 (7) 762-769.
- **Wangcharoen, W. (2007).** Antioxidant capacity and phenolic content of some Thai culinary plants, *Maejo International Journal of Science Technology*, 1(02), 1407-1415.
- **Wu, Y., Weller, C. L., Hamouz, F., Cuppett, S., and Schnepf, M. (2001).** Moisture loss and lipid oxidation for precooked ground-beef patties packaged in edible starch-alginate-based composite films. *Journal of Food Science*, 66(3), 486-493.
- **Yang, L., and Paulson, A. T. (2000).** Effects of lipids on mechanical and moisture barrier properties of edible gellan film. *Food Research*, 33(7), 571-578.

- **Yu, S. H., Tsai, M. L., Lin, B. X., Lin, C. W., and Mi, F. L. (2015).** Tea catechins-cross-linked methylcellulose active films for inhibition of light irradiation and lipid peroxidation induced  $\beta$ -carotene degradation. *Food Hydrocolloid*, 44, 491-505.
- **Zhao, Y., Qiu, J., Xu, J., Gao, X., and Fu, X. (2017).** Effects of crosslinking modes on the film forming properties of kelp mulching films. *Algal Research*, 26, 74-83.