

## بررسی ویژگی‌های ضد باکتریایی روکش‌های ملامینه حاوی نانوالیاف کیتوزان و نانوذرات رس

عبدالله الیاسی<sup>۱\*</sup>، تقی طبرسا<sup>۲</sup>، حمیدرضا منصوری<sup>۳</sup> و علیرضا شاکری<sup>۴</sup>

\*<sup>۱</sup> - نویسنده مسئول، دانشجوی دکترا، گروه فراورده‌های چندسازه چوب، دانشگاه علوم کشاورزی و منابع طبیعی، گرگان، ایران.

پست الکترونیک: ab.elyasi.a@gmail.com

<sup>۲</sup> - استاد، گروه فراورده‌های چندسازه چوبی، دانشگاه علوم کشاورزی و منابع طبیعی، گرگان، ایران

<sup>۳</sup> - دانشیار، گروه صنایع چوب و کاغذ، دانشگاه زابل، ایران

<sup>۴</sup> - دانشیار، گروه شیمی کاربردی، دانشگاه تهران، ایران

تاریخ دریافت: بهمن ۱۳۹۷ تاریخ پذیرش: مرداد ۱۴۰۱

### چکیده

تحقیقات در زمینه پوشش‌های ضد میکروبی برای حفاظت سطوح از بقایای میکروارگانیسم‌ها در محیط‌زیست که می‌تواند منجر به جلوگیری از گسترش بیماری‌ها در جوامع انسانی شود علاقه قابل ملاحظه‌ای به خود جلب کرده است. در همین راستا، تأثیر نانوالیاف کیتوزان و نانوذرات رس (مونت‌موریلونیت سدیم مثبت) بر ویژگی‌های ضد باکتریایی روکش‌های ملامینه بررسی شد. رزین‌های اوره فرمالدهید و ملامین فرمالدهید با افزودن نانو مواد به هریک از آنها به اندازه ۱ درصد وزنی با کمک روش اختلاط مکانیکی - فراصوت تهیه گردید. نحوه پراکنش و حضور نانو مواد در بستر رزین‌ها و خواص ضد باکتریایی روکش‌های ملامینه تهیه شده مطالعه شد. برای بررسی خواص ضد باکتریایی روکش‌های ملامینه تهیه شده از دو گونه باکتری گرم مثبت (استافیلوکوکوس ارئوس) و گرم منفی (اشریشیاکالی) استفاده شد. نتایج حاصل از پراش پرتو ایکس و تصاویر میکروسکوپ الکترونی گسیل میدانی، مؤید توزیع مناسب نانوالیاف کیتوزان و نانوذرات رس در بستر پلیمر بود. همچنین نتایج نشان داد با افزودن نانو مواد به رزین‌های مورد استفاده در روکش ملامینه خواص ضد باکتریایی روکش‌ها بهبود قابل ملاحظه‌ای یافت. از سوی دیگر، بررسی ویژگی‌های ضد باکتریایی روکش‌ها نشان داد که نانوالیاف کیتوزان نسبت به نانوذرات رس مونت‌موریلونیت از خواص ضد باکتریایی قوی‌تری برخوردار است.

واژه‌های کلیدی: روکش ملامینه، نانوذرات رس مونت‌موریلونیت، نانوالیاف کیتوزان، ضد باکتری، استافیلوکوکوس ارئوس، اشریشیاکالی.

### مقدمه

تکمیلی ارسال شده تا به وسیله روکش‌های تزئینی پوشش داده شوند. در حال حاضر مصرف این روکش‌ها در سطح ایران با حجم ۲۳ درصدی نسبت به کل روکش‌های مورد استفاده بیشترین میزان مصرف را به خود اختصاص داده است (Rafiei et al., 2017). کاغذهای آغشته به رزین ملامین فرمالدهید به طور گسترده‌ای در سطح کاغذهای تزئینی مورد استفاده قرار می‌گیرند. به نحوی که در پانل‌های مبتنی بر مهندسی چوب برای کاربرد در محیط داخلی و خارجی

امروزه در بسیاری از مصارف نیاز به فراورده‌های چندسازه‌ای می‌باشد که به نحو مطلوب پرداخت شده‌اند. آنچه به عنوان پرداخت شناخته می‌شود، شامل استفاده از روکش‌های مصنوعی، طبیعی، لاک‌ها و جلاهای سطحی می‌باشد. با توجه به میزان ارزش افزوده بسیار بالای این فرایند در دهه گذشته در بسیاری از شرکت‌های تولیدکننده بزرگ اوراق فشرده چوبی، تخته‌های تولید شده به بخش

مرتبط با آن به‌طور گسترده‌ای به‌عنوان یک ماده در محیط‌های مسکونی و عمومی مانند خانه‌ها، هتل‌ها، مدارس، بیمارستان‌ها، فروشگاه‌ها و محل‌های مرکزی و ... استفاده می‌شود. در نتیجه تولید روکش‌های چوبی با خواص ضد میکروبی و چند منظوره اهمیت بسیار زیادی دارد. در حال حاضر استفاده از نانوذرات به‌عنوان یک عامل ضد باکتریایی در فرمولاسیون‌های مواد ضد میکروبی جدید در مقیاس نانو میکرو در مقابل میکروارگانیزم‌ها مورد توجه بسیاری قرار گرفته است. تحقیقات بسیاری در زمینه خواص ضد میکروبی نانوکیتوزان (PourKarim Dodange et al., 2016; Gabriel et al., 2007; Wardani et al., 2018 Lafi & Al-Dulaimy, 2011; Vondruskova et al., 2018 Edraki & Zareei, 2018; Afra et al., 2017) انجام شده است که نشان‌دهنده تأثیرات قابل توجه آنها بر این میکروارگانیزم‌ها بوده است. با توجه به اثبات خاصیت ضد میکروبی نانوذرات، هدف از این مطالعه بررسی اثر ضد میکروبی نانوالیاف کیتوزان و نانو ذرات رس برای ضد میکروبی کردن سطوح پوشیده با کاغذهای تزئینی آغشته ملامینه حاوی این نانوذرات علیه باکتری‌های بیماری‌زا استافیلوکوکوس ارئوس و اشریشیاکلاسی می‌باشد.

### مواد و روش‌ها

در این پژوهش برای تهیه روکش ملامینه از کاغذهای پایه سفید وارداتی شرکت نگین چوب قائم تهیه شده در شرکت کینگ دکور پیپر (King Décor Paper) کشور چین با وزن پایه ۸۰ گرم بر سانتی‌متر مربع استفاده شد.

### رزین‌های مصرفی

در این تحقیق از رزین‌های گرماسخت اوره فرمالدهید و ملامین فرمالدهید با ویژگی‌های مخصوص آغشته‌سازی کاغذ تزئینی تهیه شده از شرکت سامد مشهد استفاده شد. شرح مشخصات رزین‌های مورد استفاده در جدول ۱ آورده شده است.

استفاده می‌شوند. ورق‌های آغشته به رزین گرماسخت آمینوپلاست بیشتر برای حفاظت سطحی ورقه‌های تزئینی در تخته فیبر با دانسیته متوسط (MDF) و تخته خرده چوب استفاده می‌شوند، آنها می‌توانند در کف‌پوش‌ها، لمینت‌ها، مبلمان و میزهای کامپیوتر و آشپزخانه به‌کار روند (Kandelbauer et al., 2009). در عرصه پلیمری، ضروری است که خواص یک پلیمر را مطابق با طراحی‌های سفارشی برای کاربردهای مورد نظر متناسب ساخته شده اصلاح کرد. چندین روش برای این موضوع از جمله ترکیب کردن، پیوند دادن و اصلاح کردن وجود دارد (Singh et al., 2017). کاغذهای اشباع شده نهایی متناسب با کاربرد باید ویژگی‌هایی مانند مقاومت در برابر نور، گرما، مواد شیمیایی، میکروارگانیزم‌ها، بخار، سایش، آتش‌سیگار، اسید و جذب آب، ترک، لکه شدن و نیز قابلیت شکل‌پذیری نهایی را داشته باشند (Rafiei et al., 2017).

امروزه روش‌های زیادی برای بهبود ویژگی‌های کاربردی رزین‌های مورد استفاده در صنایع چوب پیشنهاد شده است. یکی از بهترین روش‌های پیشنهاد شده در این زمینه استفاده از پرکننده‌ها در رزین می‌باشد (Pizzi & Mittal, 2003). در طی چند دهه گذشته توجه پژوهشگران به نانوذرات و نانوفناوری جلب شده است. نانوذرات به علت داشتن اندازه کوچک، سطح بسیار زیادی را در حجم کم فراهم و خواص مکانیکی، فیزیکی و شیمیایی و ضد میکروبی قوی‌تری ایجاد می‌کنند (Posner, 2009). با ورود فناوری نانو به صنایع رزین و چوب امروزه استفاده از پرکننده‌های با ابعاد نانو مانند نانو ذرات معدنی و نانو فیبرها و ... در رزین‌های گرماسخت رو به گسترش می‌باشد. از سوی دیگر، همزمان با مشکلات جهانی محیط‌زیست، محیط زندگی اطراف انسان‌ها به‌طور فزاینده‌ای به محیط نامطلوب تبدیل شده است. به‌ویژه در سال‌های اخیر شیوع بیماری‌های سارس، H<sub>1</sub>N<sub>1</sub> و سایر بیماری‌های میکروبی نشان داده است که انسان‌ها نیاز به حفاظت از محیط کاری و زندگی در برابر عوامل بیماری‌زا دارند (Lie et al., 2010). چندسازه‌های چوبی و محصولات

جدول ۱- ویژگی‌های ساختاری رزین‌های اوره فرمالدهید و ملامین فرمالدهید تولید شده در شرکت سامد مشهد

**Table 1. Structural Properties of Urea formaldehyde and Melamine formaldehyde resins produced in Samad Mashhad Company**

pH	زمان ژله شدن (ثانیه) Gelling time (sec)	ویسکوزیته در دمای ۲۵ درجه سانتی گراد (سانتی پواز) Viscosity at 25°C (centipoise)	مقدار ماده جامد (درصد) The amount of solid matter (%)	دانسیتته (gr/cm <sup>3</sup> ) Density (gr/cm <sup>3</sup> )	رنگ Color	ویژگی	نوع رزین
						Property	Resin type
7.6	61	13.5	54	1.222	بیرنگ colorless	رزین اوره فرمالدهید Urea formaldehyde resin	
8.4	210	14.3	52	1.220	بیرنگ colorless	رزین ملامین فرمالدهید Melamine formaldehyde resin	

نانو نوین پلیمرسازی ایران به روش شیمیایی - مکانیکی تهیه شد. خواص این نانو ماده در جدول ۲ شرح داده شده است.

نانو الیاف کیتوزان  
نانو الیاف کیتوزان استفاده شده در این تحقیق از شرکت

جدول ۲- ویژگی‌های ساختاری نانو کیتوزان تهیه شده از شرکت نانو نوین پلیمر

**Table 2. Structural Properties of Nanochitosan prepared by Nano Novin Polymer Company**

ویژگی‌ها Properties	وزن مولکولی (دالتون) molecular weight (Dalton)	درجه استیله شده (%) Acetylated degree (%)	قطر نانو فیبریل‌ها (نانومتر) Diameter of nanofibrils (nanometers)	روش تهیه preparation method	ماده جامد ژل غلیظ شده (درصد) Concentrated gel solids (%)
نانو کیتوزان Nanochitosan	50000-100000	80-85	40	شیمیایی - مکانیکی Chemical-mechanical	12

Products آمریکا می‌باشد. مشخصات نانو ذره استفاده شده در جدول ۳ گزارش شده است.

نانو ذرات رس (مونتموریلونیت سدیم مثبت)  
نانورس مورد استفاده در این تحقیق از نوع مونتموریلونیت سدیم مثبت بود که تهیه شده توسط شرکت Southern Clay

جدول ۳- ویژگی‌های ساختاری نانورس مونتموریلونیت

**Table 3. Structural characteristics of montmorillonite nanoclay**

pH	d001 (انگستروم) d001 (angstrom)	متوسط اندازه ذرات (نانومتر) Average of particle size (nm)	وزن ویژه (gr/cm <sup>3</sup> ) Specific weight (gr/cm <sup>3</sup> )	ویژگی‌ها Propertes
8	14.13	اندازه ذرات >۲ میکرومتر Particle size <2 micrometers	2.86	نانورس Nanoclay

جدول ۴- تیمارهای مورد مطالعه

Table 4. The studied treatments

تیمار Treatment	رزین ملامین فرمالدهید مایع (گرم) Liquid melamine formaldehyde resin (gr)	مقدار (گرم) Amount (gr)	سخت کننده (گرم) Hardner (gr)	تر کننده (گرم) Moisturizer (gr)	آزاد کننده سطحی (گرم) Surface releaser (gr)
ملامین فرمالدهید Melamine formaldehyde	100	0	0.5	0.4	0.3
ملامین فرمالدهید رس Melamine formaldehyde resin	100	0.5	0.5	0.4	0.3
ملامین فرمالدهید کیتوزان Melamine formaldehyde chitosan	100	0.5	0.5	0.4	0.3

## روش پژوهش

ابتدا نانو مواد برای تهیه یک سوسپانسیون کلوئیدی پایدار در سطح ۱ درصد وزنی (نسبت به وزن خشک رزین) با توجه به محدودیت در افزایش گرانیوزی رزین با کمک روش ترکیبی اختلاط مکانیکی به مدت ۱۰ دقیقه با ۱۲۰۰ دور در دقیقه و بعد پراکنش ذرات با روش هموزنایز اولتراسونیک به مدت ۱۰ دقیقه به رزین ملامین فرمالدهید و اوره فرمالدهید افزوده شد (علت انتخاب زمان ۱۰ دقیقه با توجه به محدودیت در افزایش دمای رزین بوده است). در ادامه کاتالیزور مخصوص به رزین اوره فرمالدهید و ملامین فرمالدهید حاوی نانو مواد به مقدار ۰/۴ درصد بر اساس اصول آغشته‌سازی در صنعت افزوده شده و کاغذهای دکور با روش غوطه‌وری ابتدا توسط رزین اوره فرمالدهید و بعد توسط رزین ملامین فرمالدهید آغشته‌سازی شدند. برای کاهش رطوبت در هر مرحله از آغشته‌سازی نمونه‌ها به خشک‌کن منتقل شده و پس از گذشت زمان ۳ دقیقه در دمای ۱۰۰ درجه سانتی‌گراد رطوبت کاغذهای آغشته تا محدوده ۱۰ درصد برای آغشته‌سازی با اوره فرمالدهید و بعد طی دو مرحله به مدت ۹۰ و ۴۵ ثانیه به ترتیب با دمای ۹۰ و ۱۲۵ درجه سانتی‌گراد در آون به رطوبت ۵ تا ۷ درصد به صورت جزئی خشک شدند. گراماژ نهایی کاغذهای روکش ملامینه با درصد رطوبت ذکر شده برابر ۱۸۸ تا ۱۹۲ گرم بر مترمربع اندازه‌گیری شد.

## آزمون پراش پرتو ایکس (XRD)

اولین آزمون در شناسایی نحوه پراکنش الیاف نانوکیتوزان و نانو ذرات رس در بستر ماتریس پلیمری و تشکیل نانوکامپوزیت آزمون پراش پرتو ایکس می‌باشد. این آزمون با استفاده از دستگاه D8-Advance Bruker Cu K $\alpha$  1 با پرتویی به طول موج ۰/۱۵۴۰۶۱ نانومتر در زاویه ۷۰-۱ =  $\theta$  ۲ درجه، در دمای محیط و با سرعت یک درجه در دقیقه واقع در دانشگاه دامغان سنجش شد.

آزمون میکروسکوپ الکترونی گسیل میدانی (FE-DEM) بررسی ریزساختار نمونه‌های تهیه شده به وسیله میکروسکوپ الکترونی گسیل میدانی مدل Tescan-mira III واقع در دانشگاه شریف انجام شد. برای بررسی پراکنش و شکل حضور ذرات در ساختار ماتریس پلیمری رزین تولید شده، تصاویر میکروسکوپ الکترونی از سطح نمونه‌ها تهیه گردید. به علت هدایت الکتریکی مختلف نمونه‌ها قبل از تهیه تصاویر، نمونه‌ها با استفاده از دستگاه پوشش‌دهی یونی تحت پوشش طلا قرار گرفتند.

ارزیابی خاصیت بازدارندگی فیلم‌های مورد مطالعه به روش دیسک دیفیوژن در این روش، ابتدا سوسپانسیون باکتریایی استاندارد (برابر

کاغذهای دکور آغشته شده به رزین حاوی نانوکیتوزان تحت تأثیر باکتری اشریشیاکلای (*Escherichia coli*) و استافیلوکوکوس ارئوس (*Staphylococcus aureus*) قرار گرفتند. این باکتری‌ها از بانک سوش باکتری دانشگاه علوم پزشکی گرگان تهیه شدند.

### تجزیه و تحلیل آماری

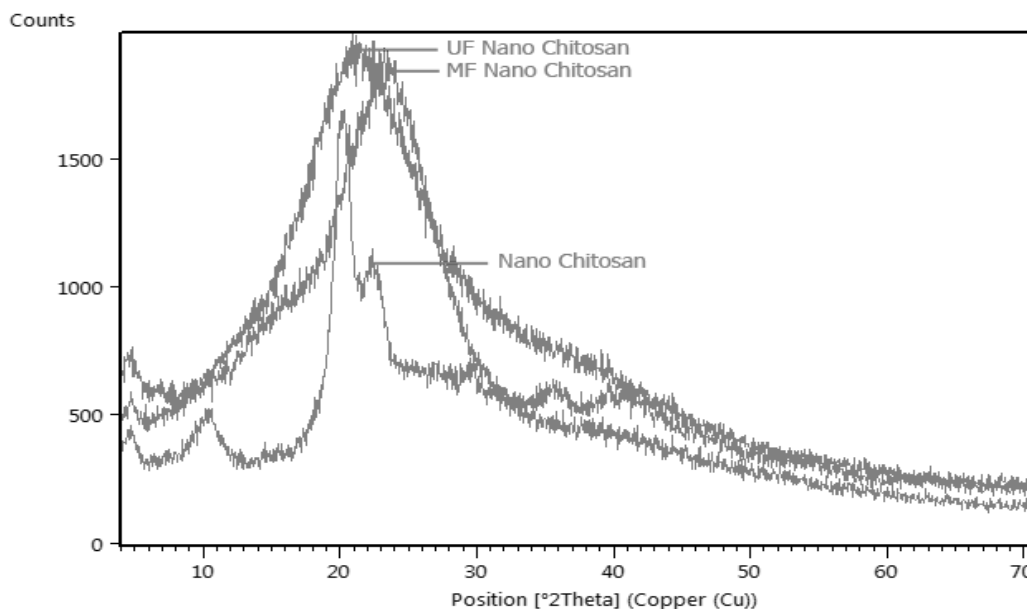
از نرم‌افزار مینی‌تب ۱۷ برای انجام آزمون‌های آماری استفاده شد. برای مقایسه میانگین‌ها از روش آنالیز واریانس یک‌طرفه، به همراه آزمون تکمیلی توکی استفاده گردید.

### نتایج

#### آزمون پراش پرتو ایکس

نتایج پخش نانو کیتوزان و نانوکامپوزیت‌های تهیه شده از رزین‌های اوره فرمالدهید و ملامین فرمالدهید به ترتیب در شکل‌های ۱ و ۲ نشان داده شده است.

نیم استاندارد مک‌فارلند، شامل باکتری‌های استافیلوکوکوس اورئوس و اشریشیا کلای به روش سطحی با استفاده از سوآپ استریل به طور یکنواخت روی محیط کشت مولر هینتون آگار کشت داده شد. برای بررسی اثر ضد میکروبی از فیلم‌های تهیه شده دیسک‌هایی با قطر ۲۰ میلی‌متر تهیه و در وسط پلیت روی آگار قرار داده شدند. پلیت‌های حاوی دیسک به مدت ۲۴ ساعت در دمای ۳۷ درجه سانتی‌گراد گرمخانه‌گذاری شدند. هاله بازدارندگی یا عدم رشد در محیط اطراف دیسک‌ها با در نظر گرفتن قطر دیسک توسط خط‌کش اندازه‌گیری و به صورت میلی‌متر گزارش شد (۸). در این مطالعه به دو دلیل از روش انتشار دیسک دیفوزن برای ارزیابی فعالیت ضد میکروبی کاغذهای دکور ملامینه تولیدی استفاده شد. دلیل اول پیرامون توانایی این آزمون در شبیه‌سازی شرایط پوشش سطوح به وسیله کاغذهای دکور ملامینه و در مرحله بعد کمی بودن آزمون می‌باشد. اساس این روش بر پایه آزادسازی ماده فعال از دیسک کاغذهای دکور ملامینه تیمار شده به آگار پیرامونی و ایجاد ناحیه عدم رشد باکتریایی در اطراف خود است. در این تحقیق

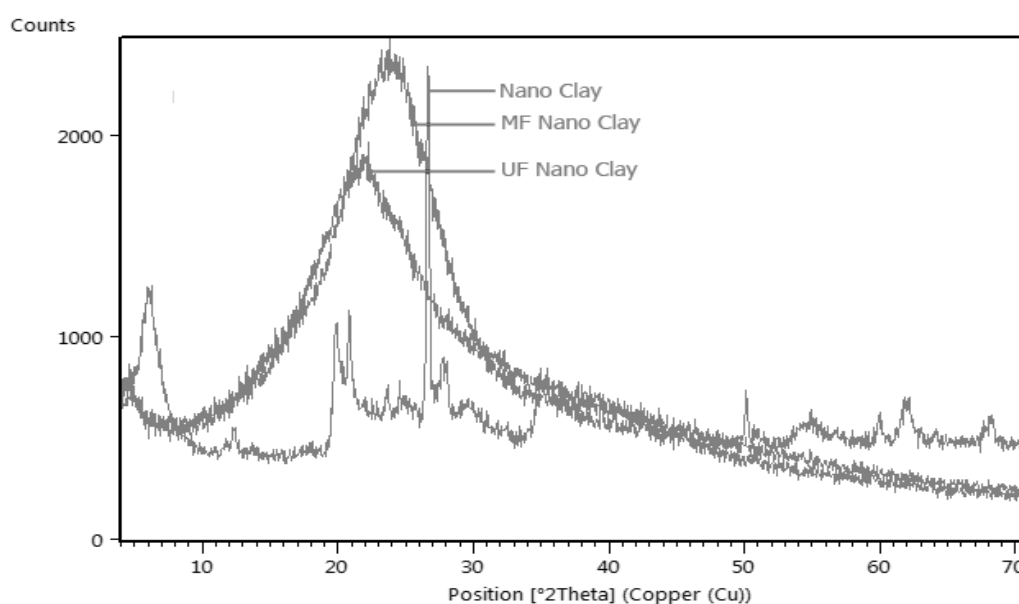


شکل ۱- الگوی پراش پرتو ایکس در نانو الیاف کیتوزان خالص و نانو کامپوزیت‌های حاوی نانو الیاف کیتوزان

Figure 1. X-ray diffraction pattern in pure chitosan nanofibers and nanocomposites containing chitosan nanofibers

است. بنابراین به نظر می‌رسد دلیل آن، وجود ساختار نانوکامپوزیتی با مرفولوژی پراکنش کامل نانوکیتوزان در بستر رزین می‌باشد. به طوری که عدم مشاهده پیک در الگوی پخش اشعه ایکس نانوکامپوزیت مذکور می‌تواند دلالت بر پخش مؤثر نانوالیاف کیتوزان در بستر پلیمر و نفوذ رزین در بین الیاف با استفاده از روش ترکیبی اختلاط مکانیکی و روش فراصوت باشد.

نتایج نشان داد، ماهیت نیمه کریستالی نانوکیتوزان سبب ایجاد یک پیک نسبتاً قوی در ناحیه  $\theta = 10^\circ$  و یک پیک بسیار قوی در ناحیه  $\theta = 20^\circ$  شده است که گویای مرفولوژی بلورین بسیار بالا در این نانوذره می‌باشد. همان‌طور که نتایج نشان می‌دهد با استفاده از روش ترکیبی اختلاط مکانیکی و بعد امواج فراصوتی، در مقادیر استفاده در سطح یک درصد نانوذرات کیتوزان در هر دو رزین اوره فرمالدهید و ملامین فرمالدهید پیک واضحی مشاهده نشده



شکل ۲- الگوی پراش پرتو ایکس در نانو ذرات رس خالص و نانو کامپوزیت‌های حاوی نانو ذرات حاوی نانو رس

**Figure 2. X-ray diffraction pattern in pure clay nanoparticles and nanocomposites containing nanoparticles containing nanoclay**

کامل در نمودارهای حاصل از نانو کامپوزیت محو شده و پیک واضحی مشخص نشده است.

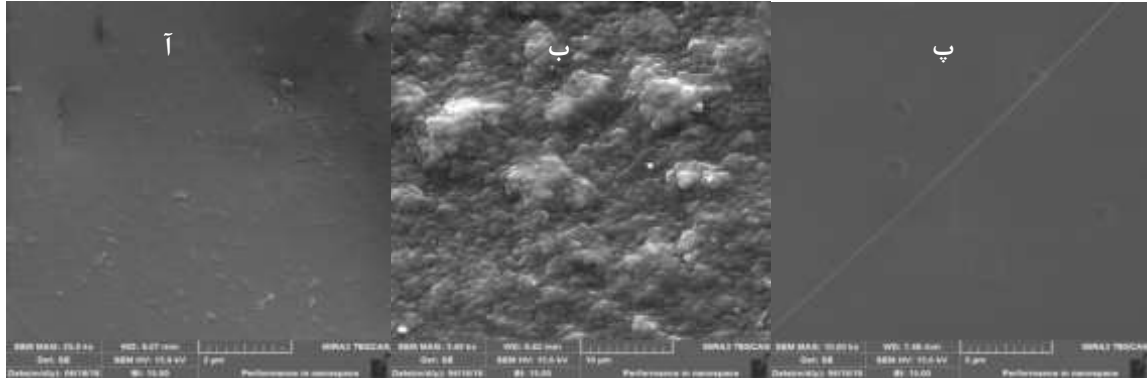
ارزیابی تصویری و آنالیز عنصری نمونه‌های پلیمری تولید شده با FESEM

برای بررسی پراکنش و حضور نانوذرات کیتوزان در ماتریس رزین ملامین فرمالدهید از تصویربرداری سطح رزین پلیمر شده با دستگاه میکروسکوپ الکترونی گسیل میدانی استفاده شد. همان‌طور که در شکل ۲ ملاحظه می‌گردد، وجود نانوذرات

همچنین نتایج نشان داد پیک اصلی مربوط به ساختار بلوری رس مونت موریلونیت در زاویه  $\theta$  حدود  $6/3$  درجه و با فاصله صفحات سیلیکونی  $14/1$  در نتیجه اعمال اختلاط مکانیکی و بعد امواج فراصوت، به شکلی مشخص هم به لحاظ شدت و هم از منظر موقعیت، در نانوکامپوزیت‌های تولید شده رزین اوره فرمالدهید و ملامین فرمالدهید دچار تغییر شده است. با توجه به شکل ۱ مربوط به نانوکامپوزیت‌های اوره فرمالدهید و نانوکامپوزیت‌های ملامین فرمالدهید پیک اصلی نانوذرات رس مونت موریلونیت در زاویه مذکور به صورت

تعداد زیادی از نانو مواد بر روی سطح تصویربرداری شده ماتریس رزین ملامین فرمالدهید مشاهده می شود.

کیتوزان در سطح ماتریس بیانگر آن است که توزیع بر روی رزین ملامین فرمالدهید به خوبی انجام شده است. بر اساس این تصاویر،



شکل ۳- تصویر میکروسکوپ الکترونی روبشی از نوع گسیل میدانی

تصویر (آ) نمونه MF خالص، تصویر (ب) نمونه حاوی نانو ذرات رس و تصویر (پ) نمونه حاوی نانو الیاف کیتوزان می باشد.

Figure 3 - Field emission type scanning electron microscope image. Picture A is a pure MF sample, Picture B is a sample containing clay nanoparticles, and Picture C is a sample containing chitosan nanofibers.

تأثیر استفاده از نانوذرات در پوشش لمینت های تولیدی بر باکتری گرم مثبت ارزیابی می شود و بعد تأثیر نانوذرات در این پژوهش بر باکتری گرم منفی مورد ارزیابی قرار گرفته است.

ارزیابی خواص ضد باکتری

آزمون ضد باکتری برای دو نوع باکتری گرم مثبت استافیلوکوکوس ارئوس و گرم منفی اشیریشیاکلائی انجام شد. ابتدا

جدول ۵- تجزیه واریانس بررسی معنی داری اختلاف بین گروه های مختلف برای خواص ضد باکتری

Table 5- Analysis of variance to study the meaningfulness of the difference between different groups for antibacterial properties

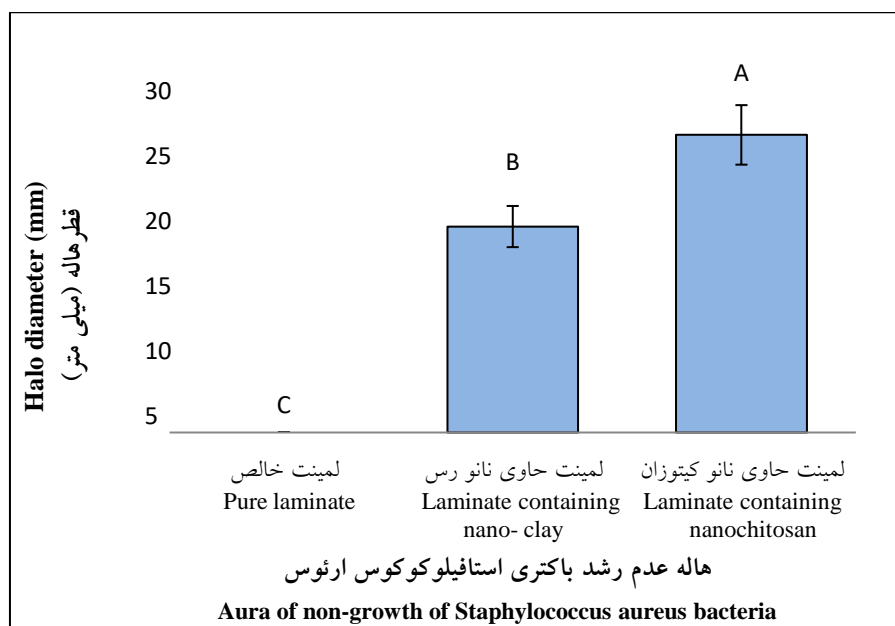
منابع تغییرات Sources of changes	درجه آزادی Degrees of freedom	مجموع مربعات sum of squares	میانگین مربعات average of squares	مقدار F F value	معنی داری (sin) meaningfulness (sin)
باکتری استافیلوکوکوس ارئوس Staphylococcus aureus bacteria	2	984.222	492.111	442.9	0.000
باکتری اشیریشیاکلائی Escherichia coli bacteria	2	731.56	365.778	71.75	0.000

\*: معنی داری در سطح ۹۵٪ \*\*: معنی داری در سطح ۹۹٪ و ns: عدم معنی داری

\*: significance at 95% level, \*\*: significance at 99% level and ns: non-significance\*

شکل ۴ نتایج مربوط به اثر نانوذرات رس و نانوذرات کیتوزان به عنوان یک عامل ضد میکروب در لمینت های تولید شده را روی عملکرد باکتری استافیلوکوکوس ارئوس نشان می دهد.

اندازه گیری هاله عدم رشد باکتری استافیلوکوکوس ارئوس نتایج تجزیه واریانس خاصیت ضد باکتری استافیلوکوکوس ارئوس لمینت های با پوشش نانوذرات حکایت از آن دارد که اثر نانوذرات بر رشد باکتری در سطح اطمینان ۹۹ درصد معنی دار است.

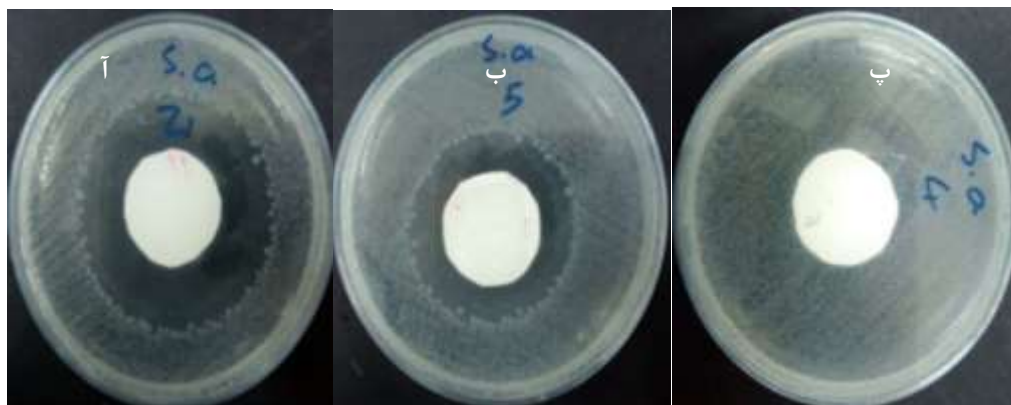


شکل ۴- نمودار اثر استفاده از نانو مواد بر خواص ضد باکتری علیه استافیلوکوکوس در لمینت‌های ملامینه تولید شده

**Figure 4. Diagram of the effect of using nano materials on the antibacterial properties against Staphylococcus in the produced melamine laminates**

۲۵ میلی‌متر بوده است. همچنین استفاده از نانو ذرات رس نیز سبب ایجاد هاله رشدی برابر ۱۷/۳ میلی‌متر شده است.

همان‌طور که در شکل ۴ مشخص است بیشترین تأثیر در لمینت‌های با پوشش نانوذرات کیتوزان با هاله رشدی برابر با



شکل ۵ - مقایسه اثرهای ضد باکتریایی لمینت‌های حاوی نانو ذرات با لمینت خالص (حروف آ، ب و پ به ترتیب مربوط به نمونه

لمینت‌های خاص، حاوی نانو رس و حاوی نانو کیتوزان می‌باشد) علیه باکتری استافیلوکوکوس ارئوس

**Figure 5. Comparison of the antibacterial effects of laminates containing nanoparticles with pure laminate (letters A, B and P correspond to the samples of pure laminates, samples containing nan clay and samples containing Nano chitosan respectively) against Staphylococcus aureus bacteria.**

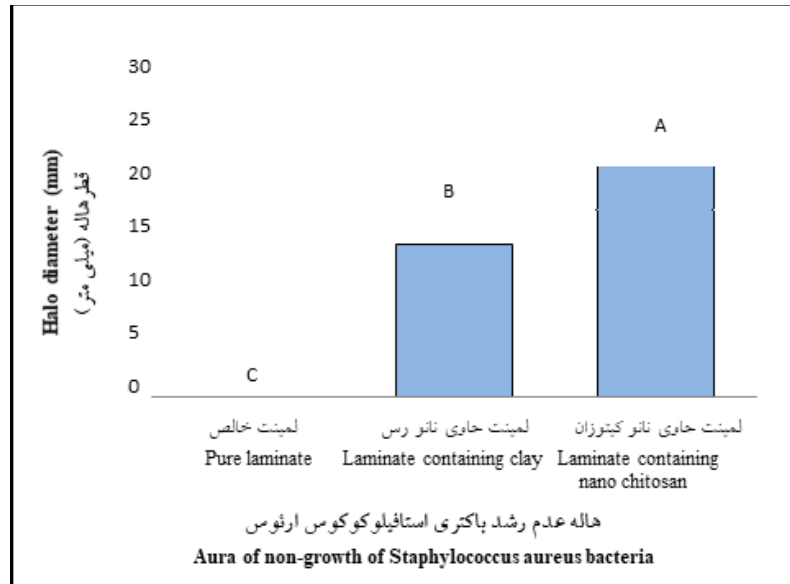
رس و نانوذرات کیتوزان بر هاله عدم رشد باکتری اشیریشیاکلاهی قابل ملاحظه بوده و در سطح احتمال ۹۹ درصد

اندازه‌گیری هاله عدم رشد باکتری اشیریشیاکلاهی نتایج تجزیه واریانس نشان می‌دهد که اثر کاربرد نانوذرات



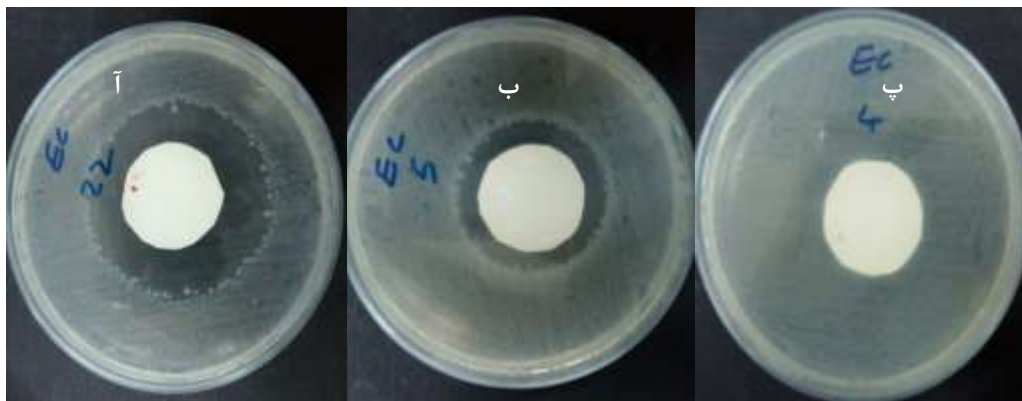
مقدار ۲۲ و ۱۲/۷ میلی‌متر افزایش یابد و بیشترین تأثیر نیز مربوط به نمونه‌های حاوی نانوذرات کیتوزان می‌باشد.

معنی‌دار می‌باشد. همان‌طور که از تصاویر ۶ و ۷ مشخص است استفاده از نانو الیاف کیتوزان و نانوذرات رس در لمینت‌ها سبب شده است تا هاله عدم رشد باکتری به ترتیب به



شکل ۶- نمودار اثر استفاده از نانو مواد بر خواص ضد باکتری علیه اشیریشیاکلاهی در لمینت‌های ملامینه تولید شده

Figure 6. Diagram of the effect of using Nano materials on antibacterial properties against Escherichia coli in produced melamine laminates



شکل ۷- مقایسه اثرهای ضد باکتریایی لمینت‌های حاوی نانو ذرات با لمینت خالص (حروف آ، ب و پ به ترتیب مربوط به نمونه

لمینت‌های خاص، حاوی نانو رس و حاوی نانو کیتوزان می‌باشد) علیه باکتری اشیریشیاکلاهی

Figure 7- Comparison of the antibacterial effects of laminates containing nanoparticles with pure laminate (letters A, B, and P correspond to the samples of pure laminates, samples containing Nan clay and samples containing Nano chitosan respectively) against Escherichia coli bacteria.

از تمامی نانو کامپوزیت‌های تولیدی پیک شاخص حاصل از حضور نانو مواد مورد استفاده به صورت کامل حذف شده بود.

بحث

با توجه به نتایج، پراش پرتو اشعه ایکس در منحنی حاصل

روی سطوح باکتری‌ها مانند پیتیدوگلیکان‌ها در دیواره سلولی باکتری‌های گرم منفی مانند لیپوپلی‌ساکاریدهای انباشته شده و متصل می‌شود. در نتیجه مولکول‌های نانو مواد قادر خواهند بود از دیواره این باکتری‌ها عبور کنند و به غشای پلازما برسند. تداخل بین مولکول‌های نانو مواد و غشاهای سلولی میکروبی، منجر به نشت پروتئین‌ها و در نتیجه افزایش نفوذ نانو کیتوزان و نانو رس به هسته و اتصال به DNA میکروبی شده و می‌تواند سنتز mRNA و پروتئین را مهار کند (Ngmviriyavong *et al.*, 2010; Vilar *et al.*, 2016; Afra *et al.*, 2017). نتایج بدست آمده در این تحقیق با نتایج تحقیقات انجام شده بر روی خواص ضد باکتریایی نانو الیاف کیتوزان (Jahromi *et al.*, 2015; Wardani *et al.*, 2018) و نانو ذرات رس (Lafi & Al-Dulaimy, 2011; Afra *et al.*, 2017) مطابقت دارد. خواص ضد باکتریایی نانوکیتوزان با توجه به این تحقیق و مطالعات گذشته بسیار مناسب به نظر می‌رسد. با توجه به اینکه بیشترین مصرف روکش‌های مصنوعی به روکش‌های ملامینه در پانل‌های چوبی اطلاق می‌گردد، از این رو این تحقیق برای استفاده از نانوذرات کیتوزان به عنوان یک ماده ضد باکتری برای تولید روکش‌های ملامینه ضد باکتری انجام شد. نتایج این مطالعه نشان داد که با افزایش میزان مصرف نانوالیاف کیتوزان و نانو ذرات رس در سطح ۱ درصد وزنی خصوصیات ضد باکتریایی روکش ملامینه تولیدی تا حد چشمگیری افزایش می‌یابد.

#### سپاسگزاری

نویسندگان مقاله بر خود لازم می‌دانند تا از مسئولان شرکت صنعت چوب شمال به علت فراهم کردن امکانات صنعتی و امکانات آزمایشگاهی برای انجام این تحقیق (در سال‌های ۹۵ تا ۹۷) تشکر و قدردانی نمایند.

#### منابع مورد استفاده

-Afra, E., Malek, M.R. and Deghani Firouz Abadi, M.R., 2018. Investigating Clay and Nano-Clay Performance in Healthy Paper for Antibacterial, Physical and Mechanical Properties. Iranian Journal

از این رو به نظر می‌رسد دلیل آن، وجود ساختار نانوکامپوزیتی با مرفولوژی پراکنش کامل و یا مرفولوژی پراکنش جزئی با آرایش به هم ریخته صفحات سیلیکونی و الیاف می‌باشد؛ این خود دلالت بر مؤثر بودن استفاده از روش اختلاط ترکیبی (مکانیکی - فراصوتی) برای پخش مؤثر لایه‌های رس و همچنین نانو فیبرهای کیتوزان در بستر رزین‌ها دارد. به طور کلی نحوه جداسازی صفات نانورس در ماتریس پلیمر، به نوع نانورس، ویسکوزیته رزین، زمان و روش اختلاط بستگی دارد (Singh *et al.*, 2017). به نحوی که تشکیل مرفولوژی کامل نانوذرات رس در بستر پلیمرهای رزین‌های گرماسخت اوره فرمالدهید و ملامین فرمالدهید در مطالعات سایر محققان نیز گزارش شده است (Yonesi Kordkhili *et al.*, 2016؛ Hatam, 2017؛ Lei *et al.*, 2008).

در مورد هر دو نوع باکتری، استافیلوکوکوس ارئوس و اشریشیاکلائی در لمینت‌های تحت تیمار نانو مواد نسبت به نمونه شاهد مقاومت بسیار بالاتری نسبت به باکتری از خود نشان دادند؛ اما در مقایسه عملکرد نانو مواد مورد استفاده بر دو باکتری مورد آزمایش، عملکرد نانو مواد نسبت به باکتری‌های گرم مثبت در سطوح بیشتری آشکار شده است که دلیل آن را می‌توان حساسیت بیشتر باکتری‌های گرم مثبت دانست (Kaya *et al.*, 2015; Friedman *et al.*, 201). علت این حساسیت بیشتر به اختلاف ساختمانی دیواره باکتری مربوط می‌شود. دیواره سلولی باکتری‌های گرم مثبت نازک‌تر و سرشار از ترکیبات موکوپیتیدی (حمل اتصال نانوذرات) بوده، در حالی که دیواره سلولی باکتری گرم منفی ضخیم‌تر و فقط لایه نازکی از موکوپیتید را دارد و قسمت اعظم ساختمان دیواره از لیپوپروتئین و لیپولی ساکارید است. در نتیجه باکتری اشریشیاکلائی مقاومت بیشتری در مقابل مواد ضد باکتری از خود نشان می‌دهد (Wardani *et al.*, 2018). خصوصیات پلی کاتیونی نانوذرات کیتوزان و رس عامل اصلی درگیر در فعالیت ضد میکروبی می‌باشد، از سوی دیگر مقدار اتصال ذرات به باکتری بستگی به سطح در دسترس برای فعل و انفعالات دارد. البته هرچه سطح در دسترس (سطح مؤثر یا سطح در واحد حجم) بیشتر باشد این فعل و انفعالات بهتر انجام می‌شود (Afra *et al.*, 2016). در نتیجه کیتوزان و رس با اجزای آنیونی

- and Ramezani, O., 2016. Operation of Biopolymer system of cellulose and chitosan nanofibres on the properties of pulp and paper recycled from old knurl corrugated boxes. *Iranian Journal of Wood and Paper Industry of Iran*, 7(2): 297-309.
- Rafiei, S., Kermanian, H., Rasouli Garmaroudi, E. and Ramezani, O., 2017. The effect of the type and composition of resin on the melamine paper. *Iranian Journal of Wood and Paper Industry of Iran*, 8(1):
- Singh, V., Singh, L. and Singh, S.V., 2017. Antibacterial study of Melamine – Formaldehyde (MF), Modified MF and Grafted Mf resin. *International Journal of Innovative Research Explores*, SNS No: 23476060.193-198.
- Tasooji, M., Tabarsa, T. and Mohamadi, A., 2010. Manufacturing of wheat straw particle boards based on the mixture of mf. *Iranian Journal of Wood and Paper Research*, 25(2): 291-301.
- Uday, K., Niranjana, K. and Manabendra, M., 2010. Vegetable oil based highly branched polyester/clay silver nanocomposites as antimicrobial surface coating materials. *Journal of Progress in Organic Coatings*, 68: 265-273.
- Vigel, S. and Gindel, W., 2014. Application potential of nanocellulose in the wood industry, *Workshop, Science and Uses of Nano Cellulose Foams and Films*, March 5 – 6, Biocomposites Centre, UK.
- Vilar, J.C., Ribeaux, D.R., Silva, C.A.A. and Takaki, G.M., 2016. Physicochemical and antibacterial properties of chitosan extracted from waste shrimp shells. *International Journal of Microbiology*, 5127515: 1-7.
- Vondruskova, H., Slamora, R., Trckova, M., Zraly, Z. and Pavlik, I., 2010. Alternative to antibiotic growth promoters in prevention of diarrhea in weaned piglets. *Veterinarni Medicin*, 55(5): 199-224.
- Wardani, G. and Mahmiah Sudjarwo, S.A., 2018. In vitro antibacterial activity of chitosan nanoparticles against mycobacterium tuberculosis. *Pharmacognosy Journal*, 10(1): 161-166.
- Xian, D., Semple, K.E., Haghdan, S. and Smith, G.D., 2013. Properties and wood bonding capacity of Nano clay – modified urea and melamine formaldehyde resin. *Wood and Fiber Science*, 45(4): 1-13.
- Yonesi Kordkhili, H., Kazemi Najafi, S. and Behrouz, R., 2016. Effect of clay nanoparticles on physical, chemical, structural and thermal properties of urea formaldehyde adhesive. *Forest and Wood Products, Journal of Natural Resources of Iran*, 69(3): 561-570.
- of Forest and Wood Science and Technology, 25(1):19-32
- Edraki, M. and Zarei, D., 2018. Evaluation of thermal and antimicrobial behavior of montmorillonite Nano-Clay modified with 2-mercap to benzothiazole. *Journal Nano Analysis*, 5(1): 26-35.
- Friedman, M. and Juneja V.K., 2010. Review of antimicrobial and anti-oxidative activities of chitosan in food. *Journal of Food Protective*, 73(9): 1737-1761.
- Gabriel, G.T., Som, A., Madkour, A.E., Eren, T. and Tew, G.N., 2007. Infectious disease: connecting innate immunity to biocide polymers, *Journal of Science Engineering*, 57: 28-64.
- Hatam, A., Firouzabadi, M.D. and Resalati, H., 2017. Surface chemistry of gravure printed decor paper and adhesion of melamine formaldehyde resin coatings. *Bio Resources*, 12(2): 4239 – 4258.
- Jahromi, M.A.M., Rajaei, H., Fasihi, M., Ahmadi, k. and Mirnejad, R., 2015. Evaluation of antibacterial effect of chitosan nanoparticles loaded with Curcumin. *Journal of Fasa University of Medical Sciences*. 5(1): 134-141.
- Kandelbauer, A. and Teischinger, A., 2009. Dynamic mechanical properties of decorative paper impregnated with melamine formaldehyde resin. *European Journal of wood and wood products*, 68: 179-187.
- Kaya, M., Baran, T. and Asan-Ozusiglam, M., 2015. Extraction and characterization of chitin and chitosan with antimicrobial and antioxidant activities from cosmopolitan orthoptera species, *Bioprocess Engineering*, 20(1): 168 – 179.
- Lafi, S.A. and Al-Dulaimy, M.R., 2011. Antibacterial Effect of some mineral clays in vitro. *Egypt.Acad.J.biolog.sci*, 83(1): 75-81.
- Lie, H., Du, G., Pizzi, A. and Celzard, A., 2008. Influence of Nano-Clay on urea formaldehyde resins for wood adhesives and its model. *Journal of Applied Polymer Science*, 104: 2442-2451.
- Ngmviriyavong, P., Thananuson, A., Pankongadisak, P., Tanjak, P. and Janvikul, W., 2010. Antibacterial hydrogels from chitosan derivatives. *Journal Met Mater Miner*, 20(3): 113-117.
- Pizzi, A. and Mittal, k.L., 2003. *Handbook of adhesive technology*. CRC Press, Marcel Dekker, New York.PP, 1063.
- Posner, J.D., 2009. Engineered Nanomaterial: where they go, nobody knows, *Journal of Nano Today*. 4(2): 114-115.
- PourKarim Dodange, H., Jalali Torshizi, H., Roudi, H.R.

## Investigation of antibacterial properties of melamine coatings containing chitosan and clay nanofibers

A. Eliasy<sup>1\*</sup>, T. Tabarsa<sup>2</sup>, H.R. Mansouri<sup>3</sup> and A. Shakeri<sup>4</sup>

1\* - Corresponding author, PhD student, Wood Composite Products of Gorgan University of Agricultural Sciences and Natural Resources, Gorgan, Iran, Email: ab.elyasi.a@gmail.com

2- Professor, Department of Composite Wood Products, Gorgan University of Agricultural Sciences and Natural Resources, Gorgan, Iran

3- Associate professor and engineer of wood and paper industry of Zabol University, Iran

4- Associate Professor of Applied Chemistry, University of Tehran, Iran

Received: Dec., 2018

Accepted: July, 2022

### Abstract

Researches on antimicrobial coatings to protect surfaces from remnants of microorganisms on the surfaces in the environment that can lead to the spread of diseases in human societies, has attracted a remarkable interest. In this regard, the effects of chitosan nanofibers and clay nanoparticles (sodium montmorillonite) on antibacterial properties of melamine coatings were investigated. Urea formaldehyde and melamine formaldehyde resins were prepared by adding nanomaterials to each of them 1% by weight using a mechanical-ultrasound mixing method. The distribution and presence of nanomaterials in the resin and the antibacterial properties of melamine coatings were studied. To investigate the antibacterial properties of melamine coatings prepared, two type Gram-positive bacteria (*Staphylococcus aureus*) and Gram-negative bacteria (*Escherichia coli*) were used. The results of X-ray diffraction and field-emission electron microscopy images, confirmed the proper distribution of chitosan nanofibers and clay nanoparticles in the polymer. The results also showed that by adding nanomaterials to the resins used in the melamine coating, the antibacterial properties of the coatings can be remarkably improved. On the other hand, the study of antibacterial properties of coatings showed that chitosan nanofibers had stronger antibacterial properties than clay montmorillonite Na<sup>+</sup> nanoparticles.

**Keywords:** Melamine coating, clay montmorillonite Na<sup>+</sup> nanoparticles, chitosan nanofibers, antibacterial, *Staphylococcus aureus*, *Escherichia coli*.