

UFRRJ
INSTITUTO DE TECNOLOGIA
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM CIÊNCIA E TECNOLOGIA DE
ALIMENTOS

TESE

DESENVOLVIMENTO DE FILME INDICADOR DE pH A PARTIR DE BATATA-DOCE DE POLPA ROXA (*Ipomoea batatas (L.) Lam*) PARA MONITORAMENTO DA QUALIDADE DE ALIMENTOS

MARIÁ TOLEDO DE CARVALHO SILVA

2023



**UNIVERSIDADE FEDERAL RURAL DO RIO DE JANEIRO
INSTITUTO DE TECNOLOGIA
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM CIÊNCIA E TECNOLOGIA DE
ALIMENTOS**

DESENVOLVIMENTO DE FILME INDICADOR DE pH A PARTIR DE BATATA-DOCE DE POLPA ROXA (*Ipomoea batatas* (L.) Lam) PARA MONITORAMENTO DA QUALIDADE DE ALIMENTOS

MARIÁ TOLEDO DE CARVALHO SILVA

Sob orientação da Professora
Dra. Elisa Helena da Rocha Ferreira

e Co-orientação dos Professores
Dra. Mariana Teixeira da Costa Machado
Dr. Ana Carla Kawazoe Sato

Tese submetida como requisito parcial para obtenção de grau de **Doutora em Ciência e Tecnologia de Alimentos**, no Programa de Pós-Graduação em Ciência e Tecnologia de Alimentos, na área de concentração Ciência de Alimentos.

Seropédica, RJ
Agosto de 2023

O presente trabalho foi realizado com o apoio da Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior – Brasil (CAPES) – Código de Financiamento 001.

Universidade Federal Rural do Rio de Janeiro
Biblioteca Central / Seção de Processamento Técnico

Ficha catalográfica elaborada
com os dados fornecidos pelo(a) autor(a)

S586d Silva, Mariá Toledo de Carvalho, 1993-
Desenvolvimento de filme indicador de pH a partir
de batata-doce de polpa roxa (*Ipomoea batatas* (L.)
Lam) para monitoramento da qualidade de alimentos /
Mariá Toledo de Carvalho Silva. - Seropédica, 2023.
109 f.: il.

Orientadora: Elisa Helena da Rocha Ferreira.
Coorientadora: Mariana Teixeira da Costa Machado.
Coorientadora: Ana Carla Kawazoe Sato.
Tese(Doutorado). -- Universidade Federal Rural do
Rio de Janeiro, Programa de Pós-Graduação em Ciência e
Tecnologia de Alimentos, 2023.

1. Desenvolvimento de filmes indicadores de pH. 2.
Antocianinas. 3. Batata-doce de polpa roxa. I.
Ferreira, Elisa Helena da Rocha, 1977-, orient. II.
Machado, Mariana Teixeira da Costa, 1985-, coorient.
III. Sato, Ana Carla Kawazoe, 1980-, coorient. IV
Universidade Federal Rural do Rio de Janeiro.
Programa de Pós-Graduação em Ciência e Tecnologia de
Alimentos. V. Título.



MINISTÉRIO DA EDUCAÇÃO
UNIVERSIDADE FEDERAL RURAL DO RIO DE JANEIRO
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM CIÊNCIA E TECNOLOGIA DE
ALIMENTOS



TERMO N° 1073/2023 - PPGCTA (12.28.01.00.00.00.41)

Nº do Protocolo: 23083.062537/2023-91

Seropédica-RJ, 18 de setembro de 2023.

MARIÁ TOLEDO DE CARVALHO SILVA

Tese submetida como requisito parcial para obtenção do grau de Doutora em Ciência e Tecnologia de Alimentos, no Curso de Pós-Graduação em Ciência e Tecnologia de Alimentos, área de Concentração em Ciência de Alimentos.
TESE APROVADA EM 15/09/2023

ELISA HELENA DA ROCHA FERREIRA (Dra.) UFRRJ (orientadora)

VERONICA MARIA DE ARAÚJO CALADO (Dra) UFRJ

JOAO VICTOR NICOLINI (Dr) UFRRJ

ANDRE FIORAVANTE GUERRA (Dr) CEFET/RJ

KETLY PONTES SOARES, (Dra) UFRRJ

Documento não acessível publicamente

(Assinado digitalmente em 18/09/2023 15:44)
ELISA HELENA DA ROCHA FERREIRA
PROFESSOR DO MAGISTERIO SUPERIOR
DTA (12.28.01.00.00.00.46)
Matrícula: ####069#6

(Assinado digitalmente em 18/09/2023 15:05)
JOAO VICTOR NICOLINI
PROFESSOR DO MAGISTERIO SUPERIOR
CoordCGEngM (12.28.01.00.00.00.39)
Matrícula: ####033#6

(Assinado digitalmente em 19/09/2023 08:39)
KETLY PONTES SOARES
PROFESSOR DO MAGISTERIO SUPERIOR
DEQ (12.28.01.00.00.00.45)
Matrícula: ####487#1

(Assinado digitalmente em 19/09/2023 12:19)
ANDRÉ FIORAVANTE GUERRA
ASSINANTE EXTERNO
CPF: ####.###.236-##

(Assinado digitalmente em 18/09/2023 15:21)
VERONICA MARIA DE ARAUJO CALADO
ASSINANTE EXTERNO
CPF: ####.###.704-##

AGRADECIMENTOS

Primeiramente, agradeço a Deus por todas as oportunidades que tive ao longo da vida que me permitiram chegar até aqui. Sua graça e orientação foram fundamentais em todos os momentos.

À minha família, que foi meu porto seguro e fonte inesgotável de apoio incondicional, quero expressar minha profunda gratidão. Em especial, à minha mãe, Eliane, à minha irmã, Ana, e à minha madrinha, Rosane. Sem o amor, encorajamento e compreensão delas, eu não teria ido tão longe.

Aos meus amigos, cuja amizade e apoio foram como um farol durante esses anos desafiadores, quero agradecer do fundo do meu coração. Agradeço especialmente ao meu amigo PC, que foi meu grande companheiro e parceiro nesta jornada. Essa vitória é nossa, e cada sucesso é compartilhado por todos vocês.

À minha orientadora, Elisa, que não apenas me guiou academicamente, mas também se tornou uma amiga e mentora, quero expressar minha profunda gratidão. Seu apoio, suporte e paciência foram fundamentais ao longo desse processo. Aos demais professores, técnicos e funcionários do PPGCTA, agradeço por todo o conhecimento compartilhado, orientação e suporte que me proporcionaram ao longo dos anos. Cada um de vocês desempenhou um papel crucial em minha formação acadêmica.

Além disso, desejo expressar minha gratidão à CAPES e ao CNPq pelo financiamento que tornou possível a realização deste doutorado.

Também, não posso deixar de mencionar a parceria valiosa com a Universidade Estadual de Campinas (Unicamp). A colaboração com a Unicamp enriqueceu minha pesquisa e experiência acadêmica de maneira significativa.

Por fim, gostaria de agradecer à Universidade Federal Rural do Rio de Janeiro por me proporcionar a oportunidade de me tornar um profissional e, acima de tudo, uma pessoa melhor. Essa instituição desempenhou um papel fundamental em minha jornada acadêmica e pessoal.

RESUMO GERAL

SILVA, Mariá Toledo de Carvalho. Desenvolvimento de filme indicador de pH a partir de batata-doce de polpa roxa (*ipomoea batatas (l.) lam*) para monitoramento da qualidade de alimentos. 2023. 97 p. Tese (Doutorado em Ciência e Tecnologia de Alimentos). Instituto de Tecnologia, Departamento de Tecnologia de Alimentos, Universidade Federal Rural do Rio de Janeiro, Seropédica, RJ, 2023.

Reducir perdas e desperdícios de alimentos ao longo da cadeia e, ao mesmo tempo, garantir a oferta de alimentos seguros e com sua qualidade nutricional e sensorial preservadas é um importante desafio para a cadeia de alimentos. Para isso, filmes inteligentes capazes de monitorar a qualidade do alimento e indicar o frescor e a segurança do produto embalado vêm sendo amplamente estudados. Dentre eles, estão os filmes indicadores de pH, obtidos pela associação de um pigmento sensível a alterações de pH e uma base polimérica. É o caso das antocianinas, pigmento amplamente presente no reino vegetal capaz de ter sua coloração alterada de acordo com o pH do meio em que se encontra. Assim, o objetivo deste trabalho foi desenvolver um filme indicador de pH utilizando batata-doce de polpa roxa, rica em antocianinas, para o acompanhamento dinâmico da qualidade de alimentos. A batata-doce de polpa roxa foi cozida e liofilizada resultando em um pó liofilizado de batata-doce (PLBD) uniforme e de coloração estável. A batata e o PLBD foram caracterizados quanto sua composição centesimal, teor de amido e de antocianinas monoméricas totais. Foram desenvolvidos filmes utilizando amido (4% m/v) e PLBD (0, 2 e 3g) com ou sem a adição de solução de carboximetilcelulose (CMC) (1,5% m/v). Os filmes foram avaliados quanto às suas propriedades físicas e mecânicas e sua capacidade de alteração de cor. Tanto o PLBD quanto os filmes desenvolvidos apresentaram alterações de cor visualmente perceptíveis em soluções tampões de diferentes valores de pH, variando de coloração rosa a tons esverdeados quando o pH aumentou de 1 para 11. A eficácia dos filmes indicadores foi avaliada pelo teste de deterioração da carne moída, que resultou na mudança de cor de roxo para verde quando o pH da carne aumentou de 5,54 para 7,92. O crescimento microbiológico e as alterações sensoriais da carne confirmaram o processo de deterioração ocorrido. Portanto, filmes biodegradáveis indicadores de pH foram desenvolvidos com sucesso sem a utilização de uma etapa prévia de extração das antocianinas, podendo ser utilizados no desenvolvimento de embalagens inteligentes capazes de indicar em tempo real a qualidade do alimento embalado.

Palavras-Chave: filmes indicadores de pH, antocianina, deterioração de alimentos.

GENERAL ABSTRACT

SILVA, Mariá Toledo de Carvalho. **Development of pH-indicator film from purple fleshed Sweet potato (*ipomoea batatas (l.) lam*) for food quality monitoring.** 2023. 97 p. Tese (Doutorado em Ciência e Tecnologia de Alimentos). Instituto de Tecnologia, Departamento de Tecnologia de Alimentos, Universidade Federal Rural do Rio de Janeiro, Seropédica, RJ, 2023.

Reducing food losses and waste throughout the chain and, at the same time, ensuring the supply of safe food with preserved nutritional and sensorial quality is an important challenge for the food chain. To this purpose, smart films capable of monitor the quality of the food and indicate the freshness and safety of the packaged product have been widely studied. Among them are pH indicator films, obtained by the association of a pigment sensitive to pH changes and a polymeric base. This is the case of anthocyanins, a pigment widely present in the plant kingdom capable of having its color changed according to the pH of the environment in which it is found. Thus, the objective of this work was to develop pH-indicator films using purple-fleshed sweet potatoes, which are rich in anthocyanins, to dynamically monitor the quality of the food. The purple-fleshed sweet potato was cooked and freeze-dried resulting in a uniform and color-stable freeze-dried sweet potato powder (PLBD). Potato and PLBD were characterized in terms of their proximate composition, starch content and total monomeric anthocyanins content. Films were developed using starch (4% w/v) and PLBD (0, 2 and 3g) with or without the addition of carboxymethylcellulose (CMC) solution (1.5% w/v). The films were evaluated for their physical and mechanical properties and their color-change ability. Both the PLBD and the developed films showed visually noticeable color changes when submerged in buffer solutions of different pH values, ranging from pink to greenish tones when the pH increased from 1 to 11. The effectiveness of the indicator films was evaluated by the test of ground beef spoilage, which resulted in the color changes from purple to green when meat pH increased from 5.54 to 7.92. The microbiological growth and sensory changes in the meat confirmed the deterioration process that had occurred. Therefore, biodegradable pH indicator films have been successfully developed without the use of a previous anthocyanin extraction step and can be used in the development of intelligent packaging capable of indicating in real time the quality of the packaged food.

Keywords: pH indicator films, anthocyanin, food spoilage

PRODUÇÃO CIENTÍFICA

Capítulo	Título do manuscrito	Períodico	Status
I	Filmes inteligentes produzidos com antocianina de batata-doce para monitoramento da qualidade de alimentos	-	A submeter
II	Desenvolvimento de filme inteligente e biodegradável a partir de batata-doce de polpa roxa para avaliação qualitativa de alimentos	Observatorio de La Economía Latinoamericana (Qualis 2017 – 2020: A4)	Publicado
III	Development and application of pH-indicator film based on freeze-dried purple-fleshed sweet potato, starch, and CMC	International Journal of Food Science and Technology (Qualis 2017 – 2020: A2)	Publicado

SUMÁRIO

1 INTRODUÇÃO.....	1
2 OBJETIVOS	4

CAPÍTULO I: FILMES INTELIGENTES PRODUZIDOS COM ANTOCIANINA DE BATATA-DOCE PARA MONITORAMENTO DA QUALIDADE DE ALIMENTOS – REVISÃO	5
1 INTRODUÇÃO.....	8
2 BATATA-DOCE DE POLPA ROXA	11
2.1 Antocianinas	13
3 FILMES INDICADORES DE pH COM ANTOCIANINA DE BATATA-DOCE DE POLPA ROXA	17
3.1 Bases Poliméricas Utilizadas	22
3.2 Processo Tecnológico para Obtenção das Antocianinas	23
3.3 Aplicação dos Filmes Inteligentes no Monitoramento da Qualidade de Alimentos.....	25
4 CONCLUSÕES	35
5 REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	36

CAPÍTULO II: DESENVOLVIMENTO DE FILME INTELIGENTE E BIODEGRADÁVEL A PARTIR DE BATATA-DOCE DE POLPA ROXA PARA AVALIAÇÃO QUALITATIVA DE ALIMENTOS	44
1 INTRODUÇÃO	48
2 MATERIAL E MÉTODOS.....	50
2.1 Lavagem e sanitização das batatas.....	50
2.2 Preparo do pó liofilizado de batata-doce (PLBD).....	51
2.3 Rendimento.....	51
2.4 Alteração visual de cor do plbd em soluções de diferentes valores de pH	51
2.5 Caracterização da batata-doce e do pó liofilizado de batata-doce	52
2.6 Preparo dos filmes.....	53
2.7 Caracterização dos filmes.....	54
2.8 Avaliação subjetiva dos filmes	54
2.9 Biodegradabilidade	54
2.10 Resposta colorimétrica dos filmes em soluções de diferentes valores de pH	55

2.11 Análise estatística.....	55
3 RESULTADOS E DISCUSSÃO.....	55
3.1 Liofilização, moagem e peneiramento	55
3.2 Rendimento.....	55
3.3 Alteração visual de cor do PLBD em soluções de diferentes valores de pH	56
3.4 Caracterização da batata-doce <i>in natura</i> e do pó liofilizado de batata-doce	57
3.5 Avaliação subjetiva do filme	59
3.6 Biodegradabilidade	60
3.7 Resposta colorimétrica dos filmes em soluções de diferentes valores de pH	61
4 CONSIDERAÇÕES FINAIS	63
5 AGRADECIMENTOS.....	64
6 REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS.....	64

CAPÍTULO III: DEVELOPMENT AND APPLICATION OF pH-INDICATOR FILM BASED ON FREEZE-DRIED PURPLE-FLESHED SWEET POTATO, STARCH AND CMC.....	70
1 INTRODUCTION	73
2 MATERIALS AND METHODS.....	74
2.1 Materials	74
2.2 Methods	75
2.2.1 Powder sensitivity to pH changes	75
2.2.2 Preparation of the films	75
2.2.3 Characterisation of the films.....	76
2.2.4 Moisture content (MC)	76
2.2.5 Thickness	76
2.2.6 Total soluble matter (TSM)	76
2.2.7 Colorimetric response to different pH values	76
2.2.8 Mechanical properties	77
2.2.9 Ground beef spoilage trial	77
2.2.10 Microbiological growth during storage (4 °C).....	77
2.2.11 Statistical analysis	77
3 RESULTS AND DISCUSSION.....	78
3.1 Powder sensitivity to pH changes	78
3.2 Characterisation of the films.....	79

3.3 Colorimetric response of films to different pH values	80
3.4 Mechanical properties	81
3.5 Ground beef spoilage trial	82
4 CONCLUSIONS.....	85
5 ACKNOWLEDGMENTS	85
6 REFERENCES	85
APPENDIX S1	90
3 CONCLUSÕES GERAIS	95
4 REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	95

1 INTRODUÇÃO

Alimentos contaminados representam um risco à saúde dos consumidores, sendo um importante tema no âmbito da saúde pública. De acordo com a Organização Mundial da Saúde (OMS), o número de casos de doenças ocasionadas pelo consumo de alimentos contaminados chega a 600 milhões por ano, resultando em 420 mil mortes (OMS, 2022). Tais doenças, que podem ser chamadas de Doença de Transmissão Hídrica e Alimentar (DTHA), são caracterizadas por uma síndrome geralmente constituída de anorexia, náuseas, vômitos e ou diarreia, acompanhada ou não de febre, relacionada à ingestão de alimentos ou água contaminados (BRASIL, 2022).

Por outro lado, 14% dos alimentos produzidos são perdidos mundialmente até chegar ao mercado varejista, valor estimado em 400 bilhões de dólares (FAO, 2019). Nos níveis de varejo, serviços de alimentação e consumidor, o percentual chega a 17% da produção, responsáveis pela geração de 8-10% da emissão global de gases do efeito estufa (UNEP, 2021). A redução dessas perdas é, portanto, uma discussão fundamental sob pontos de vista econômicos, ambientais e sociais, uma vez que pode contribuir com a redução dos custos de produção, aumentar a eficiência do sistema alimentar, contribuir com a segurança alimentar e nutricional e, ainda, com a sustentabilidade ambiental (FAO, 2019). A relevância dessa temática é refletida em sua inclusão nos Objetivos de Desenvolvimento Sustentável (ODS), por meio do ODS 12 – Consumo e produção responsável por meio da meta, meta 12.3, que visa reduzir pela metade o desperdício per capita de alimentos nos níveis de varejo e consumidores, além de minimizar as perdas ao longo das cadeias de produção e abastecimento até 2030 (ONU, 2015).

No âmbito doméstico, uma grande quantidade de alimentos acaba sendo descartada ao atingir a data de validade, que é definida considerando não apenas aspectos de segurança do alimento como também sua qualidade sensorial (FDA, 2019). Desse modo, alimentos cuja segurança e qualidade nutricional encontram-se preservadas, acabam sendo descartados. Nesse contexto, fica evidente a necessidade de métodos simples que possam indicar o frescor e a segurança do alimento, capazes de alertar os consumidores alterações dinâmicas no produto ocasionadas por processos naturais de deterioração ou, ainda, falhas como possíveis alterações na cadeia do frio ou defeitos da embalagem (ETXABIDE; KILMARTIN; MATÉ, 2021).

É o caso das embalagens inteligentes, que associam os papéis tradicionais das embalagens de comunicação com os consumidores e proteção dos alimentos contra os fatores

químicos, físicos e biológicos, com a capacidade de interagir com a atmosfera interna e transmitir sinais visuais para o consumidor, fornecendo informações confiáveis ao fabricante, revendedor e/ou consumidor sobre o produto, indicando em tempo real as condições do alimento embalado e as condições de armazenamento e distribuição (KERRY; O'GRADY; HOGAN, 2006; YAM; TAKHISTOV; MILTZ, 2005).

Durante a vida útil dos alimentos, é comum ocorrer alterações de pH decorrentes da ação de micro-organismos, enzimas e/ou processos oxidativos nos alimentos, que liberam substâncias que tornam os meios mais básicos ou ácidos, distanciando-os de seus padrões de identidade e qualidade, além de causar a sua deterioração (KUSWANDI, 2017). Dessa forma, indicadores de frescor capazes de identificar alterações de pH são amplamente estudados (ALIZADEH-SANI *et al.*, 2020). Na literatura científica recente, há diversos relatos de filmes indicadores de pH aplicados em diversos produtos alimentícios, como pescados (BAO *et al.*, 2022; EZATI *et al.*, 2019; JIANG *et al.*, 2020; WANGMO *et al.*, 2022), produtos lácteos (MOAZAMI GOODARZI *et al.*, 2020; SILVA *et al.*, 2020), produtos cárneos (LIU *et al.*, 2022; ZHANG *et al.*, 2022) e cogumelos (ZONG *et al.*, 2023).

Tais indicadores são, geralmente, obtidos pela associação de um material polimérico de suporte e um pigmento sensível às variações de pH (ROY; RHIM, 2021), resultando em um dispositivo capaz de indicar visualmente e em tempo real mudanças de pH dos alimentos embalados, permitindo que os consumidores obtenham em tempo real indicativos sobre a segurança, o frescor e a qualidade do alimento (BECERRIL; NERÍN; SILVA, 2021; GUO *et al.*, 2020; ZHANG *et al.*, 2019). Tradicionalmente, os filmes indicadores de pH eram produzidos com componentes sintéticos. Entretanto, motivados pela tendência de busca por produtos naturais, filmes indicadores de pH produzidos com biopolímeros e pigmentos naturais em detrimento dos sintéticos vêm ganhando destaque.

Diversos vegetais possuem em sua composição compostos que possuem sensibilidade à variação de pH evidenciada pela alteração de cor, de modo que sua utilização na produção de embalagens inteligentes apresenta grande potencial. Dentre eles, a antocianina se destaca, devido a sua elevada disponibilidade em diversas fontes naturais, segurança, atoxicidade, atividade antimicrobiana e antioxidante e, mais importante, sua capacidade de alteração de cor frente a diferentes valores de pH (RAKIĆ *et al.*, 2019; YIN *et al.*, 2023). As antocianinas são flavonoides com capacidade de pigmentação e potencial antioxidante. São capazes de apresentar uma ampla faixa de coloração, indo do vermelho ao amarelo, passando por rosa,

roxo, azul e verde. Esse pigmento pode ser encontrado em alimentos como repolho roxo, amora, morango, uva, mirtilo, entre outros (BECERRIL; NERÍN; SILVA, 2021).

A mudança de coloração das antocianinas está associada à sua instabilidade, que sofre influência direta do pH do meio em que ela se encontra (RAKIĆ et al., 2019). Tal mudança é influenciada pela substituição dos grupamentos hidroxila e metoxila: quando há uma elevação no número de grupamentos hidroxila, a antocianina tende a apresentar coloração azulada, enquanto o aumento dos grupamentos metoxila faz com que a coloração tenda ao vermelho (TARONE; CAZARIN; MAROSTICA JUNIOR, 2020).

A batata-doce de polpa roxa (*Ipomoea batatas* (L.) Lam) é um tubérculo que apresenta alta concentração de compostos bioativos já estudados e isolados, como as antocianinas (JIANG et al., 2022). O teor desses compostos e a sua biodisponibilidade podem variar de acordo com o cultivar da batata e etapas de processamento empregadas. Como exemplo, está a cozimento da batata, que pode ocasionar ruptura no tecido da batata liberando mais compostos antioxidantes, como as antocianinas (CHEONG; AHMAD; TENGKU ROZAINA, 2022). Dentre esses compostos, a antocianina se destaca, sendo este pigmento responsável por sua coloração roxa intensa, o que possibilita a sua utilização como corante natural produtos alimentícios, principalmente no mercado asiático (TANAKA et al., 2017; XU et al., 2015). As antocianinas presentes na batata-doce de polpa roxa estão predominantemente na sua forma acilada. A acilação com diversos ácidos orgânicos, além de ocasionar maiores atividades antioxidante e antimutagênica, resulta em uma maior estabilidade na molécula frente ao calor e à luz (HERNÁNDEZ-SANTOS et al., 2023; JIANG et al., 2020).

A utilização de antocianina de batata-doce vem sendo amplamente reportada para o desenvolvimento de filmes indicadores de pH (BECERRIL; NERÍN; SILVA, 2021; JIANG et al., 2020; MIAO et al., 2023). Para isso, o processo mais comum é a extração do pigmento, seguida de secagem, requerendo, portanto, etapas preliminares custosas e demoradas que geram diversos resíduos que podem ser ambientalmente controversos (MIR-CERDÀ et al., 2023; SANTOS; MARTINS, 2023)

Mediante o exposto, o principal objetivo deste trabalho foi desenvolver um filme indicador de pH utilizando batata-doce de polpa roxa, sem uma etapa prévia de extração, para o monitoramento da qualidade de alimentos.

2 OBJETIVOS

2.1 Objetivo Geral

Desenvolver um filme indicador de pH a partir de batata-doce de polpa roxa para o acompanhamento dinâmico da qualidade e segurança de alimentos

2.2 Objetivos Específicos

- Caracterizar a batata-doce de polpa roxa quanto à sua composição centesimal, teor de amido e teor de antocianinas monoméricas totais;
- Desenvolver e caracterizar o pó liofilizado de batata doce (PLBD);
- Desenvolver o filme indicador de pH a partir de batata-doce de polpa roxa e caracterizá-lo em relação aos parâmetros físico-químicos (umidade, espessura, matéria total solúvel, biodegradabilidade e propriedades mecânicas);
- Avaliar a sensibilidade do filme e sua alteração de cor frente às variações de pH;
- Estudar a utilização do filme indicador desenvolvido para o monitoramento dinâmico de carne bovina moída, correlacionando a sua mudança de cor com alterações no pH do alimento e sua deterioração microbiológica.

CAPÍTULO I

FILMES INTELIGENTES PRODUZIDOS COM ANTOCIANINA DE BATATA-DOCE PARA MONITORAMENTO DA QUALIDADE DE ALIMENTOS – REVISÃO

RESUMO

Quantidades expressivas de alimentos são perdidas e desperdiçadas ao longo da cadeia de suprimentos e em nível doméstico, o que prejudica a segurança alimentar e nutricional, além de representar perdas econômicas e ambientais expressivas. Por outro lado, a ingestão de alimentos impróprios para o consumo pode ocasionar doenças e se configurar um risco para a saúde pública. Nesse contexto, filmes inteligentes capazes de monitorar a qualidade do alimento e indicar o frescor e a segurança do produto embalado vêm sendo amplamente estudados. Dentre eles, estão os filmes indicadores de pH, obtidos pela associação de um pigmento sensível a alterações de pH e uma base polimérica, dentre os quais se destacam os pigmentos naturais e polímeros naturais e biodegradáveis. O objetivo deste estudo foi revisar as publicações recentes que utilizam antocianina de batata-doce de polpa roxa para desenvolver sensores colorimétricos, abordando o processo tecnológico utilizado para a obtenção da antocianina, método de incorporação nos filmes, matriz polimérica utilizada e aplicação do sensor desenvolvido. Os estudos revisados indicaram que a maior parte dos filmes foi desenvolvida utilizando mais de um polímero, com ênfase para o amido, seguido do álcool polivinílico (PVA) e quitosana. O processo tecnológico mais utilizado para a obtenção da antocianina foi extração seguida de concentração por liofilização, para então incorporar o extrato liofilizado à solução filmogênica. Como forma de aplicação, um sistema modelo com o filme acoplado a tampa de uma placa de Petri foi o mais utilizado, sendo a exposição por meio do contato com a atmosfera interna da embalagem. A maior parte dos estudos utilizou alimentos proteicos nos testes, com destaque para o camarão. No geral, os filmes apresentaram alteração de cor perceptível e correlação positiva com os sinais de deterioração testados, indicando ser promissora sua utilização para a determinação do frescor e da segurança de alimentos.

Palavras-chave: embalagem inteligente, segurança alimentar, segurança de alimentos.

ABSTRACT

Significant amounts of food are lost and wasted along the supply chain and at the household level, which prejudices food and nutritional security, and represents significant economic and environmental losses. On the other hand, the consumption of food unfit for consumption can cause diseases and constitute a risk to public health. In this context, smart films capable of monitor the quality of the food and indicate the freshness and safety of the packaged product have been widely studied. Among them are pH indicator films, obtained by the association of a pigment sensitive to pH changes and a polymeric base, among which natural pigments and natural and biodegradable polymers stand out. The objective of this study was to review recent publications that use anthocyanin from purple-fleshed sweet potatoes to develop colorimetric sensors, addressing the technological process used to obtain anthocyanin, method of incorporation in films, polymeric matrix used and application of the developed sensor. The reviewed studies indicated that most of the films were developed using more than one polymer, with emphasis on starch, followed by polyvinyl alcohol (PVA) and chitosan. The most used technological process to get the anthocyanin was extraction followed by concentration by lyophilization, to then incorporate the lyophilized extract to the filmogenic solution. As form of application, a model system with the film attached to the lid of a Petri dish was the most used, with exposure through contact with the internal atmosphere of the package. Most studies used protein foods in the tests, with emphasis on shrimp. In general, the films showed a perceptible color change and a positive correlation with the signs of deterioration assessed, indicating that their use for determining freshness and food safety is promising.

Keywords: smart packaging, food security, food safety

1 INTRODUÇÃO

Minimizar as perdas e desperdícios de alimentos que ocorrem em grandes volumes ao longo de toda a cadeia apresenta vantagens econômicas evidentes. Mais importante, entretanto, é a contribuição que tal redução pode gerar para a melhoria da segurança alimentar e nutricional, preservação de recursos naturais e redução da emissão de gases do efeito estufa. Tais questões se tornam um problema global quando são considerados os desafios climáticos e o aumento populacional que ocorre anualmente (FAO, 2019). Portanto, a discussão deste tópico é imprescindível e urgente, estando contemplado na agenda para 2030 da Organização das Nações Unidas (ONU), por meio do Objetivo de Desenvolvimento Sustentável (ODS) 12 – Consumo e produção responsável, que uma das metas específicas visa reduzir pela metade o desperdício per capita de alimentos nos níveis de varejo e consumidores, além de minimizar as perdas ao longo das cadeias de produção e abastecimento até 2030 (ONU, 2015).

No cenário dos produtos industrializados, grande parte dos alimentos é descartada por terem atingido a data de validade, que pode estar relacionada à qualidade sensorial do produto em detrimento de sua segurança (FDA, 2019). Dessa forma, uma grande quantidade de produtos aptos para o consumo sob o ponto de vista microbiológico e nutricional, acaba sendo desprezada. Por outro lado, o consumo de alimentos impróprios pode representar riscos para a saúde humana, devendo ser considerado no contexto de saúde pública. De acordo com a Organização Mundial da Saúde, o número de casos de doenças ocasionadas pelo consumo de alimentos contaminados chega a 600 milhões por ano, resultando em 420 mil mortes (OMS, 2022). Segundo o Ministério da Saúde, aproximadamente 40% dos casos de doenças de Transmissão Hídrica e Alimentar (DTHA), aquelas desenvolvidas após o consumo de algum alimento ou água contaminados, notificados no Brasil nos últimos 10 anos ocorreram no ambiente doméstico (Brasil, 2022).

Nesse contexto, a utilização de dispositivos capazes de indicar aos consumidores em tempo real o frescor, a qualidade e a segurança do produto embalado pode reduzir desperdícios de produtos seguros para o consumo e a exposição dos consumidores no caso de produtos impróprios (ETXABIDE; KILMARTIN; MATÉ, 2021). É o caso das embalagens inteligentes, aquelas cujo material ou algum dispositivo acoplado é capaz de interagir com o alimento ou sua atmosfera e transmitir sinais visuais para o consumidor ao longo de toda a cadeia (YAM; TAKHISTOV; MILTZ, 2005). Essas embalagens, além dos papéis tradicionais de comunicação com os consumidores e proteção dos alimentos contra os fatores químicos, físicos e biológicos, podem ser utilizadas para fornecer informações confiáveis ao fabricante,

revendedor e/ou consumidor sobre a o produto, indicando em tempo real as condições do alimento embalado e as condições de armazenamento e distribuição (KERRY; O'GRADY; HOGAN, 2006; YAM; TAKHISTOV; MILTZ, 2005).

Uma das maneiras de cumprir as citadas funcionalidades é por meio de indicadores que proverão informações sobre alguma propriedade do alimento, indicando sua atividade microbiológica ou qualidade. Dentre os indicadores existentes, estão os de temperatura, presença de oxigênio, alterações de pH e de frescor (KALPANA et al., 2019). Diversos mecanismos podem ser utilizados no desenvolvimento de indicadores e frescor. É importante, contudo, pensar em alternativas que possam ser implementadas pela indústria. Para isso, os sensores propostos devem cumprir os seguintes requisitos: desempenho adequado, que permita um monitoramento rápido das alterações de interesse e uma boa correlação com a qualidade do alimento; baixo custo e tecnologia simples; ser facilmente visualizado e interpretado pelos consumidores, sem a necessidade de utilização de um dispositivo específico (BECERRIL; NERÍN; SILVA, 2021).

Os indicadores de frescor são capazes de indicar diretamente a qualidade do alimento a partir de sua sensibilidade a algum metabólito gerado no processo de deterioração, que é ocasionado por mudanças químicas ou atividade de microrganismos. A maioria apresenta alguma resposta colorimétrica visível que pode ser correlacionada ao grau de deterioração do produto (KUSWANDI, 2017). Tal mecanismo é possível devido às alterações que ocorrem durante a decomposição de alimentos, que possibilitam a utilização de indicadores capazes de detectar mudanças na concentração de metabólitos como glicose, ácidos orgânicos, etanol, compostos nitrogenados voláteis, aminas biogênicas, dióxido de carbono e compostos sulfúricos (SMOLANDER, 2003).

Como muitas dessas alterações causam mudanças de pH no alimento, indicadores de frescor com base em um corante sensível a alterações de pH é uma estratégia amplamente estudada para a detecção de deterioração em diversos tipos de produtos alimentícios (ALIZADEH-SANI et al., 2020). Geralmente, tais indicadores são compostos por um material polimérico de suporte e um pigmento sensível a alterações de pH (ROY; RHIM, 2021), dando origem a um dispositivo colorimétrico que irá traduzir visualmente as mudanças de pH dos produtos para os consumidores (JIANG et al., 2020; KIM et al., 2017; ZHANG et al., 2019).

Há diversos exemplos de indicadores de pH reportados na literatura científica recente utilizados de forma eficaz para o monitoramento do frescor de diversos alimentos, como pescados (BAO *et al.*, 2022; EZATI *et al.*, 2019; JIANG *et al.*, 2020; WANGMO *et al.*,

2022), produtos lácteos (MOAZAMI GOODARZI *et al.*, 2020; SILVA, N. M. *et al.*, 2020), produtos cárneos (LIU *et al.*, 2022; ZHANG *et al.*, 2022) e cogumelos (ZONG *et al.*, 2023). Seu funcionamento é possível devido às reações químicas, bioquímicas e enzimáticas e crescimento de microrganismos que ocorrem ao longo da deterioração dos alimentos, que resultam em mudanças em sua composição e pode ocasionar alterações de pH (KUSWANDI, 2017).

Tradicionalmente, para essa finalidade eram utilizados materiais sintéticos. Entretanto, em consonância com a tendência de aumento da busca de materiais naturais e biodegradáveis em detrimento dos sintéticos e de fontes fósseis, a utilização de biopolímeros e pigmentos naturais na obtenção de sensores e indicadores também está em ascensão. Além de serem ecológicos, tais materiais apresentam as vantagens de serem atóxicos, de fácil preparo, biodegradáveis, de baixo custo, amplamente disponíveis e renováveis (ALIZADEH-SANI *et al.*, 2020).

Aliado à tendência dos consumidores de buscarem produtos com base em ingredientes naturais, filmes indicadores de pH produzidos com biopolímeros e pigmentos naturais em detrimento dos sintéticos vêm sendo amplamente estudados. Dentre eles, a antocianina se destaca, devido a sua elevada disponibilidade em diversas fontes naturais, segurança, atoxicidade, atividade antimicrobiana e antioxidante e, mais importante, sua capacidade de alteração de cor frente a diferentes valores de pH (RAKIĆ *et al.*, 2019; YIN *et al.*, 2023).

Sua utilização se dá, normalmente, na forma de extratos de antocianinas previamente preparados de diversas fontes vegetais, como repolho roxo (CHENG, M. *et al.*, 2022; LIU, D. *et al.*, 2021), casca de jaboticaba (SILVA, N. M. *et al.*, 2020), mirtilo (BAO *et al.*, 2022; KUREK *et al.*, 2019; ZHANG *et al.*, 2022), uva vermelha (KUREK *et al.*, 2019), fruta jambolão (MERZ *et al.*, 2020), hibisco (ZHANG *et al.*, 2019), folhas de manjericão roxo (EBRAHIMI *et al.*, 2022), arroz roxo (*rieberry*) (EZE; JAYPEOYE; SINGH, 2022), cenoura roxa (KOOSHA; HAMEDI, 2019; MOAZAMI GOODARZI *et al.*, 2020) e batata-doce roxa (CHEN, S. *et al.*, 2020; JIANG *et al.*, 2020; ZONG *et al.*, 2023). Dentre elas, uma das mais utilizadas é a batata-doce de polpa roxa, uma vez que suas antocianinas se encontram em sua forma acilada, apresentando maior estabilidade térmica e à luz (BECERRIL; NERÍN; SILVA, 2021).

Assim, esta revisão tem como objetivo abordar estudos recentes que utilizam antocianina de batata-doce de polpa roxa no desenvolvimento de sensores colorimétricos,

abordando o processo tecnológico utilizado para a obtenção da antocianina, forma de incorporação nos filmes, matriz polimérica utilizada e aplicação do sensor desenvolvido.

As buscas foram realizadas nas plataformas Scopus, Sciende Direct, Scielo, Springer e Wiley Online Library, por meio das palavras-chaves “*anthocyanins*”, “*pH-indicator films*”, “*pH-indicator*”, “*sweet potato*”, “*freshness indicator*” e “*smart packaging*”, considerando trabalhos publicados a partir do ano de 2017.

2 BATATA-DOCE DE POLPA ROXA

Batata doce (*Ipomoea batatas (L.) Lam*) é um tubérculo de elevado interesse econômico tipicamente cultivado em regiões tropicais e subtropicais (JI *et al.*, 2021). O cultivo da batata doce apresenta vantagens como elevada adaptabilidade em diferentes climas, tolerância à seca e elevado rendimento (JI *et al.*, 2015). Atualmente, seu cultivo se tornou uma importante atividade econômica em muitos países da Ásia, África e América Latina, sendo reportadas mais de 2000 variedades (ZHANG *et al.*, 2018).

Dentre elas, está a batata-doce de polpa roxa (Figura 1), rica em carboidratos, minerais, aminoácidos, polissacarídeos, fibras e compostos bioativos, como antocianinas, β-caroteno e ácido ascórbico, a fazem ser considerada um alimento funcional com diversos efeitos benéficos à saúde, (HERNÁNDEZ-SANTOS *et al.*, 2023; MENG *et al.*, 2023). Apesar de vir ganhando destaque recentemente ao redor do mundo, seu consumo é comum desde o século 17 na região de Okinawa, localizada no sudoeste do Japão, onde tal variedade é popularmente conhecida como “Beni imo” (TANAKA *et al.*, 2017).



Figura 1. Batata-Doce de Polpa Roxa

Fonte: (DA CUNHA JÚNIOR *et al.*, 2023)

A composição deste tubérculo pode variar de acordo com diversos fatores genéticos e ambientais, como as técnicas de cultivo utilizadas e as características genotípicas do vegetal

(WANG *et al.*, 2020). Em geral, como macronutriente majoritário estão os carboidratos, com destaque para o amido, que varia de 40 a 70% do vegetal em base seca, o que contribui para tornar este vegetal uma das fontes mais baratas de amido (AHMED; AKTER; EUN, 2010; JI *et al.*, 2015; WANG *et al.*, 2020; ZHANG *et al.*, 2018). Em relação aos compostos bioativos, sua composição é rica e complexa. Uma ampla gama já foi isolada e identificada das folhas, raiz e casca da batata-doce de polpa roxa, incluindo 47 flavonoides, 36 ácidos fenólicos, 18 ácidos orgânicos e 14 carotenoides, entre outros (JIANG *et al.*, 2022). O teor de compostos bioativos, assim como sua biodisponibilidade, pode sofrer influência de fatores como o cultivar em questão e etapas de processamento empregadas. Como exemplo, está a cozimento da batata, que pode ocasionar ruptura no tecido da batata liberando mais compostos antioxidantes, como as antocianinas (CHEONG; AHMAD; TENGKU ROZAINA, 2022).

Dentre eles, estão as antocianinas, um grupo de flavonoides expressivo na composição da batata-doce de polpa roxa. Nos últimos anos, diversos estudos de quantificação e identificação dessas antocianinas foram realizados, de modo que diversos tipos e teores de antocianinas já foram reportados. Em relação ao teor de antocianinas totais, STEED e TRUONG (2008) reportaram valores entre 51,5 e 174,7 mg/100g para batata-doce de polpa roxa (cultivar Stokes). Valores superiores foram reportados por JI *et al.* (2015): 623 mg/100g para o cultivar Jizi 01 e por XU *et al.* (2015): 1390 mg/100g para a cultivar P40.

O alto teor de antocianinas na batata-doce de polpa roxa é responsável por sua cor roxa vívida, o que torna a sua utilização popular como corante natural em diversos alimentos, principalmente no mercado asiático (TANAKA *et al.*, 2017; XU *et al.*, 2015). É importante ressaltar que as antocianinas presentes na batata-doce de polpa roxa estão predominantemente na sua forma acilada. A acilação com diversos ácidos orgânicos, além de ocasionar maiores atividades antioxidante e antimutagênica, resulta em uma maior estabilidade na molécula frente ao calor e à luz (HERNÁNDEZ-SANTOS *et al.*, 2023; JIANG *et al.*, 2020). Além disso, a sua utilização em forma de extratos vem sendo amplamente reportada para o desenvolvimento de filmes indicadores de pH (BECERRIL; NERÍN; SILVA, 2021; JIANG *et al.*, 2020; MIAO *et al.*, 2023).

Entretanto, a utilização deste vegetal na alimentação humana e na indústria de alimentos pode ser limitada pela sua elevada perecibilidade quando crua. Para facilitar sua comercialização e promover sua utilização em diversos tipos de produtos, processos de desidratação podem ser aplicados para a fabricação de farinha, que além de menos volumosa, apresentam uma maior estabilidade, devido a sua baixa atividade de água (AHMED; AKTER;

EUN, 2010). Diversos autores reportaram a obtenção de farinha de batata-doce por meio de métodos tradicionais de secagem, fazendo uso de calor, em diferentes temperaturas (AHMED; AKTER; EUN, 2010; HERNÁNDEZ-SANTOS *et al.*, 2023; SILVA, R. D. S. *et al.*, 2020; VITAL *et al.*, 2023).

Processos térmicos de secagem podem ocasionar perdas nutricionais dos alimentos (DALMAU *et al.*, 2019). Assim, outros métodos de secagem podem ser utilizados, como a liofilização. Tal processo promove a remoção da água, em forma de gelo, por sublimação, passando diretamente do estado sólido ao gasoso sem passar pelo líquido (ASSEGEHEGN *et al.*, 2019). Por ocorrer em baixas temperaturas e vácuo, é um método preferencial para a desidratação de produtos que contenham compostos termicamente sensíveis e propensos à oxidação (OYINLOYE; YOON, 2020), como a batata-doce de polpa roxa. Como a água do material é congelada antes do processamento, processos químicos, bioquímicos e microbiológicos são inibidos, de modo que a qualidade biológica, nutricional e sensorial dos alimentos é preservada (JIA *et al.*, 2019; NOWAK; JAKUBCZYK, 2020).

Vale destacar que, apesar das antocianinas serem substâncias termolábeis, o cozimento da batata-doce pode aumentar o teor de antocianinas e a atividade antioxidante, uma vez que leva ao amolecimento dos tecidos e gelatinização do amido, liberando compostos ligados aos tecidos e facilitando a sua extração. Além disso, o cozimento é capaz de inativar a polifenol oxidase, enzima naturalmente presente na batata capaz de oxidar as antocianinas (LI *et al.*, 2023; XU *et al.*, 2015). Assim, o cozimento da batata doce seguido da liofilização para obtenção de pó liofilizado de batata-doce se mostra uma técnica promissora para a preservação e estabilização das antocianinas.

2.1 Antocianinas

As antocianinas são compostos fenólicos pertencentes ao subgrupo dos flavonoides, devido a sua estrutura carbônica C₆C₃C₆, característica do grupo. Pigmento mais abundante dentre os vegetais, as antocianinas são responsáveis por uma ampla gama de cores nas plantas, como azul, roxo, violeta, vermelho e laranja (DAMODARAN; PARKIN; FENNEMA, 2010). Diversos efeitos protetivos e promotores são amplamente associados a este pigmento, como o seu conhecido efeito antioxidante, atividade citoprotetora, antimicrobiana e antitumorais, além de potencial neuroprotetor e antiobesidade (SMERIGLIO *et al.*, 2016). Quimicamente, as antocianinas ocorrem como glicosídeos de poli-hidroxi e/ou polimetoxi derivados do sal favílio, que se caracteriza pela presença de dois anéis benzílicos

(A e B) e um anel heterocíclico (C), que é unido aos anéis A e B por uma ponte de três carbonos (Figura 2).

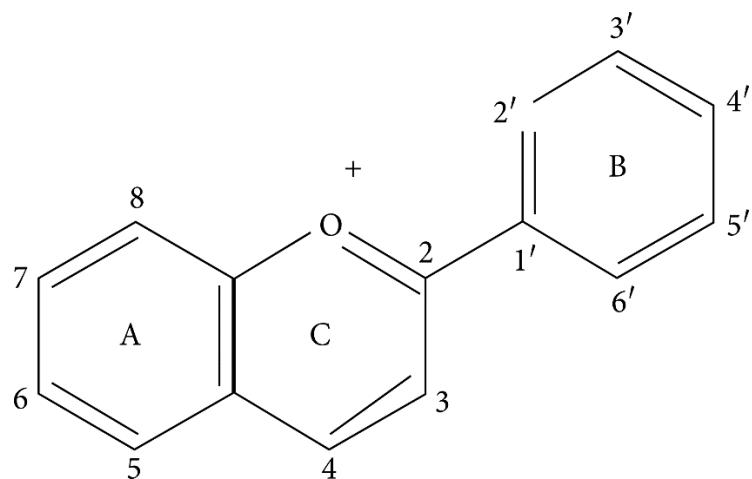


Figura 2. Estrutura química do íon flavílio

Fonte: AZZINI et al. (2017)

A estrutura das antocianinas consiste em um núcleo chamado antocianidina, que é composto por dois anéis aromáticos ligados a um heterociclo oxigenado, que podem ser ligados a diferentes porções de açúcar (SMERIGLIO *et al.*, 2016). Até o momento, há 23 diferentes tipos de antocianidinas conhecidos, que diferem entre si pelo número e grau de metilação dos grupos hidroxilos em um dos seus anéis. Entretanto, seis antocianidinas são as mais comuns em plantas vasculares: Perlagonidina, Cianidina, Delfnidina, Peonidina, Petunidina e Malvidina, cujas estruturas estão apresentadas na Figura 3 (BECERRIL; NERÍN; SILVA, 2021):

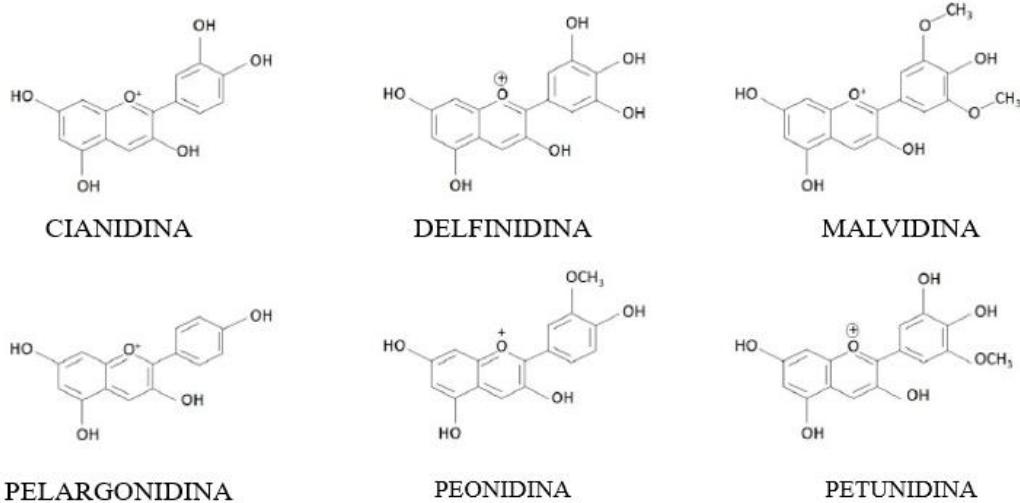


Figura 3. Estrutura química das seis antocianidinas mais comuns

Fonte: AZZINI et al. (2017)

Quando as antocianidinas estão ligadas a uma molécula de açúcar e, portanto, em sua forma glicosídica, elas são conhecidas como antocianinas (CASTAÑEDA-OVANDO *et al.*, 2009). Os diferentes tipos de antocianidinas existentes se combinam a alguns fatores para dar origem aos mais de 600 tipos de antocianinas presentes na natureza (BECERRIL; NERÍN; SILVA, 2021). Os fatores responsáveis por ocasionar as diferenças na estrutura química das antocianinas são: o número de grupos hidroxila no anel B e seu grau de metilação, natureza, número e localização de moléculas de açúcar ligadas, além do ácidos alifáticos ou aromáticos ligados à molécula de açúcar (EKER *et al.*, 2019).

Desse modo, a forma estrutural na qual a antocianina se apresenta sofre influência de diversos fatores, como o pH do meio, temperatura, enzimas, radiação UV, co-pigmentação e presença de oxigênio, proporcionando as diferentes colorações existentes para este pigmento (DAMODARAN; PARKIN; FENNEMA, 2010; ROY; RHIM, 2021). Dentre esses, o pH é o fator que mais exerce influência na coloração das antocianinas. Em soluções aquosas, as antocianinas podem ocorrer em quatro formas estruturais, que irão sofrer alteração dependendo do pH do meio. Em valores baixos de pH (1-3), as antocianinas são muito estáveis e há a predominância do cátion flavílio, contribuindo para uma coloração tendendo ao rosa e vermelho. Com o aumento do pH (4-5), há a formação da pseudobase incolor carbinol, resultando na perda de coloração. Quando o pH atinge a faixa de 6-7, ocorre a desprotonação e, consequentemente, a espécie predominante passa a ser a base quinoidal azul. Em valores de pH entre 7 e 8, há a predominância da chalcona, que também é praticamente

incolor (AZZINI; GIACOMETTI; RUSSO, 2017; DAMODARAN; PARKIN; FENNEMA, 2010). A Figura 4 ilustra as diferentes colorações que as antocianinas podem apresentar em função do pH do meio:

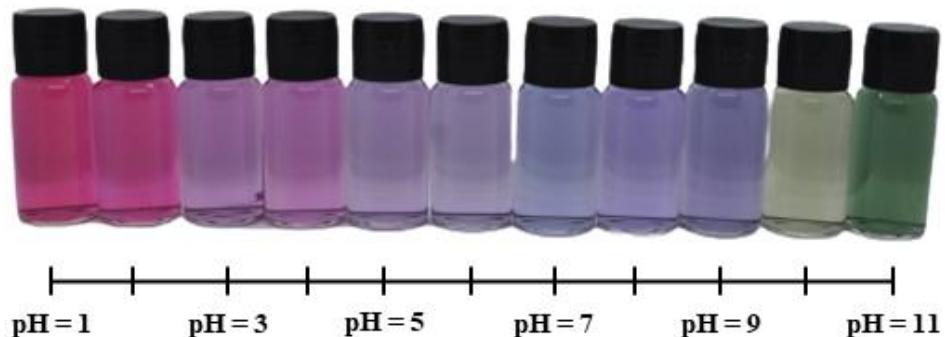


Figura 4. Representação das diferentes colorações que a antocianina pode apresentar em função do pH

Fonte: (SILVA *et al.*, 2023b)

A coloração e a estabilidade das antocianinas depende da sua forma química, que pode ser modificada de acordo com o pH do meio em que ela se encontra, conforme ilustrado na Figura 5 (RAKIĆ *et al.*, 2019).

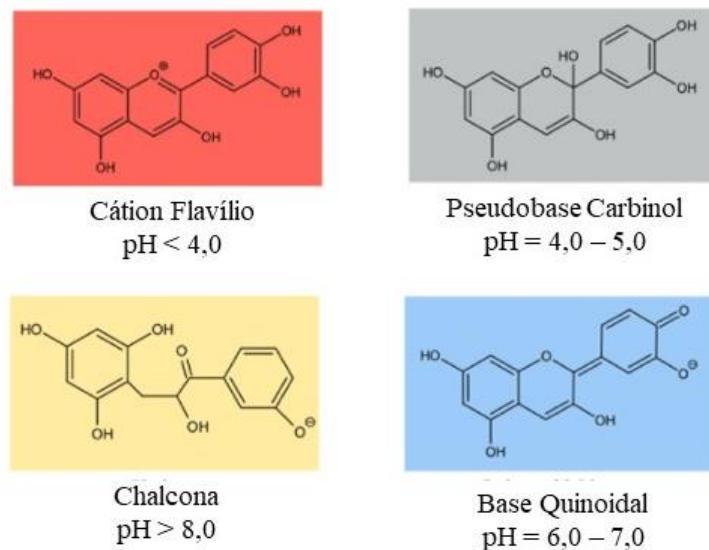


Figura 5. Diferentes estruturas químicas das antocianinas em função do pH

Fonte: Adaptado de (ZHAO *et al.*, 2022)

Um fator que limita a utilização da antocianina é sua instabilidade, que é melhorada com o aumento dos grupos metoxilos tendendo a coloração para o vermelho. Por outro lado, a

estabilidade é reduzida com o aumento dos grupos hidroxilas e a coloração tende ao azul (TARONE; CAZARIN; MAROSTICA JUNIOR, 2020).

Por apresentarem uma coloração atrativa, serem amplamente disponíveis em diversas fontes naturais, elevada disponibilidade de diversas fontes naturais, serem seguros, atóxicos e, ainda, apresentarem atividade antimicrobiana e antioxidante, as antocianinas vêm sendo amplamente utilizadas como corantes naturais em diversos produtos alimentícios. Entretanto, a insatibilidade deste pigmento natural pode ser um fator limitante para a sua aplicação em escala industrial (BECERRIL; NERÍN; SILVA, 2021; RAKIĆ *et al.*, 2019; YIN *et al.*, 2023).

Por outro lado, esta característica pode ser favorável para outras aplicações e, associada a sua segurança e disponibilidade, torna a antocianina um dos corantes naturais mais utilizados no desenvolvimento de filmes indicadores de pH (CHENG, H. *et al.*, 2022; MENG *et al.*, 2023).

3 FILMES INDICADORES DE pH COM ANTOCIANINA DE BATATA-DOCE DE POLPA ROXA

Filmes indicadores de pH desenvolvidos com antocianina de batata-doce de polpa roxa têm sido amplamente reportados na literatura. Para o seu desenvolvimento, o pigmento precisa ser imobilizado em um material suporte, como uma base polimérica. Conforme apresentado na Tabela 1, diferentes matrizes poliméricas e formas de utilização da antocianina de batata-doce foram reportadas e sua potencial utilização como indicador de frescor em diversos tipos de alimentos vem sendo destacada.

Tabela 1. Polímero, fonte de antocianina, concentração e solvente da solução extratora, teor de antocianina do extrato, fonte de antocianina adicionada ao filme e quantidade de pigmento adicionada (continua).

Polímero	Fonte de Antocianina	Processo tecnológico para obtenção da antocianina	Teor de antocianina	Quantidade de pigmento adicionada	Referência
Ágar e Amido de batata	Batata doce em pó (Comercial)	1. Extração com 10% (m/v) / etanol 40% 2. Concentração	-	-	(CHOI <i>et al.</i> , 2017)
Amido e álcool polivinílico (PVA)	Antocianina de batata-doce (comercial)	• Diluição da antocianina comercial em HCl	-	5 mL da solução de antocianina	(LIU <i>et al.</i> , 2017)
Goma gelana	Batata doce em pó (Comercial)	1. Utilização direta da batata doce comercial em pó	101,7 g/100 g	1% m/v (em água)	(WEI <i>et al.</i> , 2017)
Quitosana e nanofibras de quitina (CN) de superfície desacetilada.	Batata doce em pó (Comercial)	1. Extração com 5% (m/v) / solução de etanol acidificado com HCl (85:15) 2. Concentração	24,3 mg/g	Solução de 1% m/v (em água) até atingir 2% v/v em relação à solução de quitosana	(LI <i>et al.</i> , 2019)
Quitosana	Batata doce em pó (<i>in natura</i>)	1. Extração com 20% (m/v) / etanol 80% (v/v) com 1% (v/v) de HCl 2. Concentração	-	(0, 5, 10 e 15% em peso com base em quitosana)	(YONG <i>et al.</i> , 2019)
Carboximetilcelulose e amido	Batata doce em pó (<i>in natura</i>)	1. Extração com 10% (m/v) / etanol 40% 2. Concentração	27,49 mg/g	0, 0,1, 0,3, 0,5, 0,7 e 0,9 g/100 g solução final	(JIANG <i>et al.</i> , 2020)
Nanofibras de celulose	Batata doce em pó (<i>in natura</i>)	1. Extração com 10% (m/v) / etanol 40% 2. Concentração	-	0,4 em 60 mL de sol. Filmogênica	(CHEN, S. <i>et al.</i> , 2020)

Tabela 1. Continuação

Amido e álcool polivinilico (PVA)	Batata doce em pó (Comercial)	1. Extração com 20% (m/v) / etanol 70% 2. Concentração	4,20 mg/g	0, 0,5 e 1 g/100 mL solução final	(ZHANG <i>et al.</i> , 2020)
Camada 1: pululano com o extrato da batata doce; camada 2: zeína-glicerol-carvacrol (ZN-GL-CA).	Batata doce em pó (Comercial)	1. Extração com 7% (m/v) / etanol 80% 2. Concentração	-	0, 20, 30 3 40% em relação a massa de pululano	(GUO <i>et al.</i> , 2020)
Amido e álcool polivinilico (PVA)	Batata doce em pó (<i>in natura</i>)	1. Extração com 5% (m/v) / etanol 80% acidificado (contendo 20% (v/v) de 1,0 mol/L de ácido acético) 2. Concentração 3. Diluição em etanol acidificado com ácido acético	-	4% v/v em relação à solução filmogênica	(CHEN, H. <i>et al.</i> , 2020)
Quitosana/álcool polivinílico/nano-ZnO	Batata doce em pó (Comercial)	1. Extração com 10% (m/v) / etanol 50% 2. Concentração	8,2 mg/g	0, 120, 180 e 240 mg/g (com base no peso seco de quitosana e PVA)	(LIU, J. <i>et al.</i> , 2021)
Polissacarídeo agarose	Batata-doce (<i>in natura</i>)	1. Extração com 10% (m/v) / etanol acidificado (50% etanol e 1% HCl em igual volume) 2. Concentração	14,8 mg/100 g de extrato	solução preparada com o extrato (10 mg/mL) na quantidade de 1.0%, 2.0%, 3.0%, 4.0%, e 5.0% em relação a massa de agarose	(HUANG <i>et al.</i> , 2021)

Tabela 1. Continuação

Amido e gelatina	Batata doce em pó (<i>in natura</i>)	2,5% (m/v) de Batata-doce in natura em pó em solução de etanol e ácido cítrico e	208,55 mg/L	EAP	3, 6, and 12 mg extrato de batata doce em pó/100 mg de amido	-	(NIU <i>et al.</i> , 2021)
Amido de batata e casca de batata em pó	Antocianina de batata-doce (comercial)	-	5,29 mg/g	Antocianina comercial em pó	0%, 1%, 1,5%, and 2% (m/v))	vermelho ao amarelo (pH 1 a 12)	(SOHANY <i>et al.</i> , 2021)
etilcelulose	Batata doce em pó (Comercial)	6,7% / etanol absoluto	28,2 mg/g	EAP	2g em 7 mL de solução filmogênica	rosa ao verde (pH 2 a 10)	(WANG <i>et al.</i> , 2022)
k-carragenina	Batata-doce (<i>in natura</i>)	5% m/v / etanol acidificado com 0,1% de HCl (1:1)	-	EAP	3 mg/mL de misturas de antocianinas e betacianinas adicionadas na solução filmogênica (3:1, 3:2, 1:1, 2:3 e 1:3)	vermelho ao amarelo (pH 2 a 13)	(GAO <i>et al.</i> , 2022)
Alginato de sódio	Casca de batata-doce em pó	5% m/v / etanol 80%	513 mg/100 g de extrato de casca de batata doce em pó	EAP	0, 0.2, 0.4, 0.6 0.8 and 1.0 %, m/v)	rosa ao amarelo (pH 2 a 13)	(ZHAO <i>et al.</i> , 2022)
Alfarroba/álcool polivinílico, quitosana/álcool polivinílico e κ-carragenina/álcool polivinílico	Batata-doce (<i>in natura</i>)	10% m/v / etanol 80% acidificado com HCl 1%	87,79 mg/g	EAP	1% em peso com base em polissacarídeo/PVA	rosa ao amarelo (pH 3 a 12)	(YONG <i>et al.</i> , 2022)

Tabela 1. Continuação

Ágar, alginato de sódio e nanopartículas de quitosana carregadas com quer cetina	Batata doce em pó (Comercial)	10% m/v / etanol 70%	11,66 mg/g and	EAP	1,5% em massa sobre a solução filmogênica	rosa ao amarelo (pH 2 a 14)	(DONG <i>et al.</i> , 2023)
Amido e gelatina	Antocianina de batata-doce (comercial)	-	-	Antocianina comercial de batata doce	0,1 g em 100 mL	-	(ZONG <i>et al.</i> , 2023)
Glicerina e alginato de sódio	Batata doce cozida	-	300 a 400 mg/100g	Pó liofilizado de batata-doce preparado por cozimento e liofilização	6,8 g em 85 mL de água, depois foi adicionado o alginato de sódio e a glicerina	rosa a azul (pH 3 a 12)	(LI <i>et al.</i> , 2023)
Exopolissacarídeo riclina e álcool polivinílico (PVA)	Batata doce em pó (Comercial)	10% m/v / etanol 40%	5,74 mg/g	EAP	200, 300 e 400 mg em 100 mL de solução filmogênica	rosa ao verde (pH 2 a 12)	(MIAO <i>et al.</i> , 2023)
Amido e/ou CMC	Batata doce cozida	-	60,28 mg/100 g	Batata-doce em pó preparada por cozimento e liofilização	0,2 e 3 g em 100 mL de solução filmogênica	rosa ao verde (pH 1 a 11)	(SILVA <i>et al.</i> , 2023)

3.1 Bases Poliméricas Utilizadas

Materiais poliméricos tradicionalmente utilizados para o desenvolvimento de embalagens são de fontes não renováveis e podem representar diversos impactos ambientais caso sejam descartados incorretamente (ARAÚJO; MACHADO; VILARINHO, 2019; BABU; O'CONNOR; SEERAM, 2013; BRITO *et al.*, 2011). Tal problemática, somada ao fato de que os filmes indicadores de pH serão um dispositivo de uso único que serão imediatamente descartados, incentiva a utilização de materiais poliméricos naturais e biodegradáveis associada a corantes naturais (ALIZADEH-SANI *et al.*, 2020).

A utilização de polímeros naturais em detimentos dos sintéticos apresenta inúmeras vantagens, como sua biocompatibilidade, biodegradabilidade e atoxicidade, além do fato de oferecerem menores impactos ambientais (KUMAR *et al.*, 2022). Entretanto, filmes obtidos a partir de biopolímeros podem apresentar certas limitações como baixas propriedades mecânicas, propriedades de barreira e elevada hidrofilicidade que dificultam sua utilização (ROY; RHIM, 2021). Para mitigar tais limitações, estudos utilizam a associação de dois ou mais biopolímeros (CHOI *et al.*, 2017; JIANG *et al.*, 2020; NIU *et al.*, 2021; YONG *et al.*, 2022), obtenção de filmes multicamadas (GUO *et al.*, 2020) e adição de materiais de enchimento, como nanopartículas (DONG *et al.*, 2023; LI *et al.*, 2019; LIU, J. *et al.*, 2021) e adição de plastificantes como glicerina (LI *et al.*, 2023) e glicerol (JIANG *et al.*, 2020; SILVA *et al.* 2023a).

Para apresentar adequada funcionalidade, a matriz polimérica de um filme indicador de pH, além da capacidade de imobilizar uma substância indicadora de pH, precisa apresentar boa capacidade de formação de filme, apresentar propriedades mecânicas satisfatórias, atoxicidade à saúde humana, ser estável à variações de pH para não mascarar as alterações de cor das antocianinas e apresentar certa sensibilidade à umidade para permitir a alteração de cor do indicador (BECERRIL; NERÍN; SILVA, 2021; HALÁSZ; CSÓKA, 2018). Vale destacar que a matriz polimérica utilizada é capaz de interferir não só nas propriedades físicas e mecânicas dos filmes desenvolvidos como também na resposta colorimétrica do filme indicador desenvolvido (YONG *et al.*, 2022), sendo, portanto, um fator fundamental para ser observado durante o desenvolvimento de tais filmes.

Nos últimos anos, a utilização de biopolímeros para o desenvolvimento de filmes indicadores de pH baseados em antocianinas se destaca, conforme ilustrado na Tabela 1 e na Figura 6. Dentre eles, destaca-se o amido, que foi utilizado em 28% dos estudos. Tal polímero, é amplamente utilizado para diversos propósitos, devido à sua abundância,

biodegradabilidade e baixo custo. O amido é capaz de formar filmes transparentes e inodoros, com boa propriedade de barreira ao oxigênio (LI *et al.*, 2020). Por outro lado, o amido apresenta limitações em relação às suas propriedades mecânicas que dificultam sua aplicação no desenvolvimento de filmes e embalagens (MUTHURAJ; MISRA; MOHANTY, 2018). Devido às suas limitações, em todos os estudos analisados, o amido foi utilizado em associação a outros polímeros, como ágar (CHOI *et al.*, 2017), carboximetilcelulose (CMC) (JIANG *et al.*, 2020; SILVA *et al.*, 2023a), álcool polivinílico (PVA) (CHEN, H. *et al.*, 2020; LIU *et al.*, 2017; ZHANG *et al.*, 2020), gelatina (NIU *et al.*, 2021; ZONG *et al.*, 2023). O segundo polímero mais frequentemente utilizado foi o PVA, polímero sintético de elevada biodegradabilidade, boa flexibilidade e barreira ao oxigênio e atóxico (LIU, J. *et al.*, 2021). O PVA é muito utilizado em combinação com outros polímeros no desenvolvimento de filmes indicadores de pH com antocianinas devido à sua base aquosa, que facilita a incorporação de compostos hidrossolúveis como as antocianinas (BECERRIL; NERÍN; SILVA, 2021).

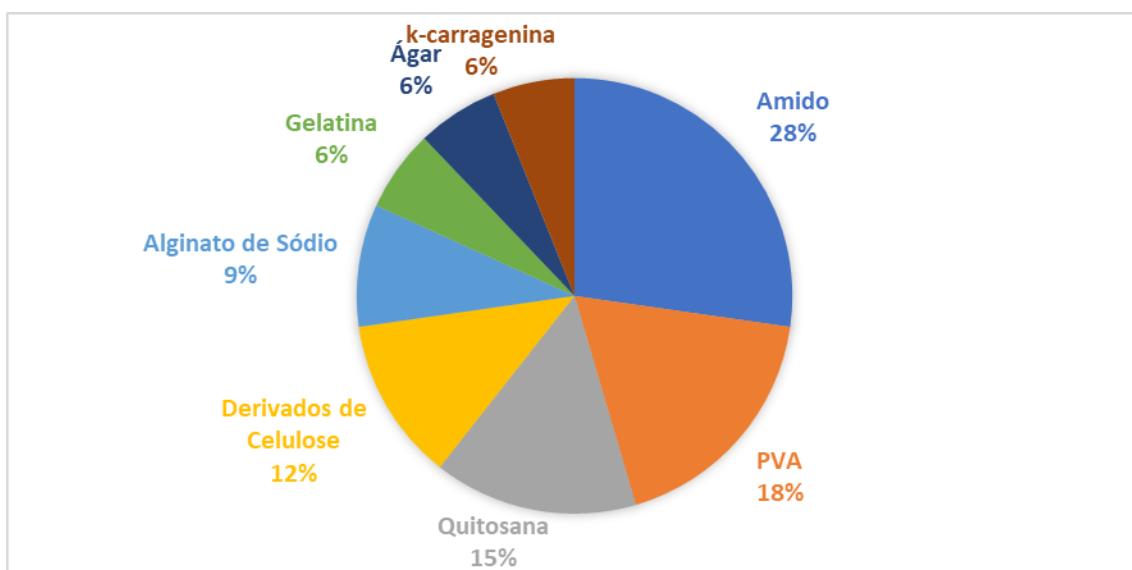


Figura 6. Polímeros utilizados no desenvolvimento de filmes indicadores de pH por ordem de ocorrência.

3.2 Processo Tecnológico para Obtenção das Antocianinas

Conforme apresentado na Tabela 1, a maior parte dos filmes indicadores desenvolvidos utiliza a antocianina em pó após sua extração e concentração (EAP). Entretanto, a adição pode ser realizada por meio da batata-doce em pó (WEI *et al.*, 2017) e da antocianina de batata-doce (LIU *et al.*, 2017; SOHANY *et al.*, 2021; ZONG *et al.*, 2023) comercialmente adquiridas diretamente na solução filmogênica. Uma alternativa recentemente reportada é a utilização do vegetal submetido a algum tratamento térmico e sem uma etapa

prévia de extração. Para isso, a batata-doce cozida foi liofilizada e o pó resultante foi utilizado para o desenvolvimento de filmes que tiveram sua coloração alterada durante a deterioração de carne bovina moída (SILVA *et al.*, 2023a) e camarão (LI *et al.*, 2023), indicando ser promissora a obtenção de filmes indicadores de pH sem prévia de extração.

O preparo do extrato de antocianina em pó predominantemente utilizado se dá majoritariamente por algum método de secagem realizado posteriormente à etapa de extração. Para a extração, é utilizado um solvente e uma fonte de antocianina. Como solvente, destaca-se a utilização de (Tabela 1).

Para o preparo do extrato, pode ser utilizada a batata doce *in natura* (GAO *et al.*, 2022; HUANG *et al.*, 2021; YONG *et al.*, 2022), a casca da batata-doce (ZHAO *et al.*, 2022) ou a batata-doce em pó, sendo essa a forma mais frequente. A batata-doce em pó pode ser adquirida comercialmente (CHEN, H. *et al.*, 2020; CHOI *et al.*, 2017; GUO *et al.*, 2020; LI *et al.*, 2019; LIU, J. *et al.*, 2021; MIAO *et al.*, 2023; WANG *et al.*, 2022) ou preparada a partir da secagem da batata doce *in natura* (CHEN, H. *et al.*, 2020; CHEN, S. *et al.*, 2020; JIANG *et al.*, 2020; NIU *et al.*, 2021; YONG *et al.*, 2019).

É importante destacar que diversos fatores podem influenciar as propriedades físicas e mecânicas dos filmes indicadores de pH, assim como sua resposta colorimétrica, como o teor de antocianina adicionado no filme, a fonte da qual ela foi obtida (YONG *et al.*, 2019, 2022; ZHANG *et al.*, 2020). Quando se trata da resposta colorimétrica, até mesmo fatores ambientais como temperatura e umidade relativa do teste apresentam influência. Entretanto, a concentração de pigmento é um dos fatores mais relevantes (HUANG *et al.*, 2021). Quando a concentração de antocianina é muito reduzida, a variação de cor é pouco detectável. Por outro lado, concentrações muito elevadas de pigmento podem causar interferência na cor e dificultar a percepção das alterações de cor, além de aumentar o tempo de reação, de modo que o filme demora a apresentar uma mudança de cor perceptível (BECERRIL; NERÍN; SILVA, 2021; JIANG *et al.*, 2020).

LIU, J. *et al.* (2021), ao avaliarem diferentes concentrações de extrato de batata-doce em pó em filmes de quitosana e álcool polivinílico, concluíram que a intensidade das cores foi superior para os filmes com maior quantidade de extrato. Resultado semelhante foi reportado por NIU *et al.* (2021), que destacou, ainda, que os filmes com quantidade intermediária de pó tiveram melhor desempenho no teste de sensibilidade à amônia e no teste de aplicação dos filmes para detecção de deterioração em carne de pouco. Os autores justificaram que um maior teor de antocianina pode melhorar a percepção da variação de cor até certo ponto.

Entretanto, concentração muito elevada do pigmento pode resultar em um aumento no tempo de resposta do filme, reduzindo sua eficiência.

YONG *et al.* (2019) reportaram que o aumento do teor de extrato em pó de batata-doce em filmes de quitosana reduziu a resistência à tração, o alongamento na ruptura e a barreira ao vapor de água. Por outro lado, melhorou as propriedades de barreira à luz UV-Vis a estabilidade térmica, o potencial antioxidante e a capacidade de detecção de pH.

Em um estudo conduzido com diferentes quantidades de extrato de antocianina em pó (0, 0,1, 0,3, 0,5, 0,7 e 0,9 g/100 g) em filmes de amido e CMC, JIANG *et al.* (2020) constataram que o aumento no teor de antocianina resultou em uma maior interação interfacial de pontes de hidrogênio entre o pó e a matriz polimérica, que resulta em uma maior resistência à tração. Por outro lado, as antocianinas são naturalmente rígidas, de modo que um aumento em sua concentração reduz a flexibilidade das cadeias poliméricas, resultando em uma redução no alongamento percentual na ruptura. Os autores avaliaram, ainda, a resposta colorimétrica ao vapor de amônia. Foi constatado que o maior teor de extrato resultou em uma variação total de cor maior. Entretanto, o tempo necessário para chegar a um ponto em que não houvesse mais variação de cor foi maior para os teores mais elevados de pó.

Dessa forma, fica evidente que o teor de antocianina adicionado ao filme é um fator determinante no desenvolvimento de filmes indicadores de pH. Entretanto, conforme evidenciado na Tabela 1, os estudos costumam indicar o teor de extrato adicionado de antocianina adicionado em detrimento do teor de antocianina propriamente dita, o que pode ser um fator limitante para a comparação entre os estudos e determinação de um teor ideal de pigmento a ser utilizado.

3.3 Aplicação dos Filmes Inteligentes no Monitoramento da Qualidade de Alimentos

Os filmes indicadores de pH desenvolvidos se mostraram promissores para a detecção de alteração de pH em diferentes tipos de alimentos, conforme mostrado na Tabela 2.

Tabela 2. Aplicação dos filmes indicadores de pH (continua)

Referência	Produto Aplicado	Forma de Aplicação	Temperatura de Incubação	Testes realizados	Principais resultados
(CHOI <i>et al.</i> , 2017)	Carne suína	Contato direto com o alimento	25 °C por 48h	pH da carne e coloração do filme nos tempos 0, 4, 8, 12, 20, 28, 36 e 48h	<ul style="list-style-type: none">Após dois dias de análise, o pH da carne atingiu o ponto máximo para ser considerado fresco, indicando a deterioração da carne após esse período;A cor dos filmes mudou de vermelho para verde com a deterioração.
(LIU <i>et al.</i> , 2017)	Leite	Contato com a atmosfera interna	25 °C por 48h	pH do leite e foto do leite e do filme após 48h	<ul style="list-style-type: none">Após 48h, o leite estava perceptivelmente estragado;Houve redução do pH devido à acidificação decorrente do crescimento de bactérias lácteas durante a deterioração;O filme contendo limoneno previnu a deterioração do leite;Os filmes tiveram sua coloração alterada de vermelho para roxo com a deterioração do leite.
(JIANG <i>et al.</i> , 2020)	Filé de peixe	Contato com a atmosfera interna	25 °C por 48h	Coloração dos filmes, pH do peixe, N-BVT e contagem total de microrganismos nos tempos 0, 24, 26 e 48h	<ul style="list-style-type: none">O teor de N-BVT aumentou durante o armazenamento, atingindo o ponto de rejeição de 20 mg/100 g após 36h;Houve crescimento de microrganismos, que atingiu o ponto de rejeição de 7 log UFC/g após 36h.O pH do peixe aumentou gradualmente ao longo do armazenamento;A coloração dos filmes mudou de rosa, para roxo e depois para azul.

Tabela 2. Continuação

(ZHANG <i>et al.</i> , 2020)	Camarão	Contato com a atmosfera interna	25 °C por 24h	Coloração dos filmes, pH do camarão e N-BVT a cada 6h	<ul style="list-style-type: none">· O teor de N-BVT aumentou durante o armazenamento, atingindo o ponto de rejeição de 30 mg/100 g for após 18h;· O pH aumentou ao longo do armazenamento;· Os filmes tiveram sua coloração alterada de rosa-roxo, para azul claro e depois para azul escuro, com destaque para os filmes com a concentração intermediária testada.
(GUO <i>et al.</i> , 2020)	Carne suína	Contato com a atmosfera interna	25 °C por 72 h	Coloração dos filmes e N-BVT a cada 12h	<ul style="list-style-type: none">· O teor de N-BVT aumentou durante o armazenamento, superando o ponto de rejeição de 15 mg/100 g após 36h;· A coloração do filme variou de rosa escuro (0 h) – vermelho escuro (12 h) – roxo (24 h) – azul (36 h) – verde escuro (48 h) – verde claro (60 h) – verde amarelo (72 h);· Na amostra contendo o filme com a presença do antibacteriano carvacrol, o ponto de rejeição e consequente alteração de cor do filme foi atingido após 60h.
(CHEN, H. <i>et al.</i> , 2020)	Peixe	Contato com a atmosfera interna	4 °C por 10 dias	Contagem em placa de microrganismos aeróbios e N-BVT a cada 2 dias	<ul style="list-style-type: none">· O teor de N-BVT aumentou superando o limite de rejeição de N-BVT de 20 mg/100 após 8 dias;· A contagem de microrganismos aeróbios aumentou significativamente durante o armazenamento, superando o limite de rejeição de 7 log UFC/g após 10 dias;· A coloração de todos os filmes alterou com a deterioração do peixe, com destaque para a formulação contendo somente antocianina e a contendo teor maior de antocianina que de curcumina;· O filme com antocianina e curcumina apresentou a melhor correlação entre a variação de cor e o frescor do peixe.

Tabela 2. Continuação

(LIU, J. et al., 2021)	Camarão	Contato com a atmosfera interna	4 °C por 8 dias	Coloração dos filmes, pH do camarão e N-BVT a cada 2 dias	<ul style="list-style-type: none">· O pH aumentou nos dias 2, 6 e 8 devido a produção de amônia pela degradação de proteínas e a liberação de bases nitrogenadas voláteis;· No dia 4, houve uma redução do pH atribuída ao acúmulo de ácido lático produzido por glicólise;· O teor de N-BVT aumentou a cada dia, atingindo o ponto de rejeição de 30 mg/100 g no dia 4.· A coloração do filme alterou de roxo (0 d) > azul claro (2 d) > verde claro (4/6/8 d).
(NIU et al., 2021)	Carne suína	Contato com a atmosfera interna	4 °C por 5 dias	cor do filme, Determinação do N-BVT e contagem bacteriana a cada 1 dia	<ul style="list-style-type: none">· Houve crescimento de microrganismos que coincidiu com o aumento no teor de bases nitrogenadas voláteis, resultando em aumento no pH da carne.· A contagem de microrganismos superou o limite aceitável de 7 log UFC/g ao final do teste;· O teor de N-BVT atingiu o limite de rejeição após 3 dias de análise, indicando a deterioração na carne;· Os filmes tiveram sua cor alterada de acordo com as alterações de pH observadas, com destaque para o filme com teor de antocianina intermediário;· O filme com teor intermediário apresentou uma boa correlação entre sua alteração de cor e o teor de N-BVT.
(SOHANY et al., 2021)	Frango	Contato direto com o alimento	28 ± 2 °C por 24h	pH da carne e variação de cor do filme nos tempos 0, 4, 16 e 24h	<ul style="list-style-type: none">· Houve aumento do pH do frango ao longo do armazenamento;· Os filmes mudaram de cor com o aumento do pH do frango;· O contato direto com o alimento resultou em migração da antocianina, o que pode ser mitigado reduzindo a hidrofilicidade do filme (inserindo compostos hidrofóbicos, ou filmes multicamadas)

Tabela 2. Continuação

(WANG <i>et al.</i> , 2022)	Carne suína	Contato com a atmosfera interna	4 °C por 8 dias	Variação total de cor do filme e N-BVT a cada 24h	<ul style="list-style-type: none">· O teor de N-BVT atingiu o ponto de rejeição de 15 mg/100 g no terceiro dia;· O filme mostrou uma mudança de cor visível a olho nu durante o armazenamento da carne suína;· Até o segundo dia, não houve mudança perceptível na cor, após, o filme mudou de rosa para azul.
(GAO <i>et al.</i> , 2022)	Carne suína	Contato com a atmosfera interna	25 °C por 72h e 4°C por 8 dias	Variação total de cor do filme, pH da carne, N-BVT, coeficiente acidez/poder oxidante da carne e substâncias reativas ao ácido tiobarbitúrico (TBARS) (nos tempos 0, 6, 12, 18, 24, 48 e 72h a 25 oC) e a cada 2 dias a 4 oC	<ul style="list-style-type: none">· O pH da carne aumentou em ambas as temperaturas testadas, atingindo a deterioração após 3 dias a 25 oC e 8 dias a 4 oC;· O teor de N-BVT superou o limite de 20 mg/100 g após 3 dias a 25 oC e 6 dias a 4 oC;· Durante o armazenamento, o coeficiente acidez/poder oxidante da carne apresentou tendência de queda;· O teor de TBARS aumentou em ambas as temperaturas de armazenamento, resultando em ocorrência de odor volátil desagradável típico de deterioração após 3 dias a 25 oC e 8 dias a 4 oC;· A variação de cor instrumental do filme aumentou gradualmente ao longo do armazenamento, apresentando forte correlação com o grau de deterioração do produto.
(ZHAO <i>et al.</i> , 2022)	Frango (filmes 2, 4 e 6)	Contato com a atmosfera interna	4 °C (5 dias) e 25 °C (60 horas)	variação de cor do filme, pH e N-BVT	<ul style="list-style-type: none">· Houve o aumento do N-BVT e do pH;· O teor de N-BVT superou o limite máximo de 15 mg/100 g após 5 dias a 4 oC e 60 horas a 25 oC.· Todos os filmes tiveram sua cor alterada de rosa para azul;· Os filmes apresentaram correlação elevada entre a variação total de cor e o teor de N-BVT, com destaque para o filme com o maior teor de antocianina.

Tabela 2. Continuação

(YONG <i>et al.</i> , 2022)	Camarão	Contato com a atmosfera interna	4 °C por 5 dias	variação de cor do filme, pH e N-BVT a cada dia	<ul style="list-style-type: none">· O teor de N-BVT aumentou gradualmente superando o limite máximo (20 mg/100 g) após 2 dias;· Houve o aumento do pH do camarão;· Os perfis de mudança de cor dos filmes foram associados com a natureza dos polissacarídeos e a fonte de antocianinas, com destaque para o filme com goma de alfarroba e antocianina de repolho roxo.
(DONG <i>et al.</i> , 2023)	Camarão	Contato com a atmosfera interna	4 °C por 1 dia e 25 °C por 3 horas	Variação de cor do filme, e N-BVT, pH do camarão, contagem bacteriana total e ácido tiobarbitúrico	<ul style="list-style-type: none">· O teor de N-BVT superou ponto de rejeição de 20 mg/100 g em 6h a 25 oC;· A correlação entre a mudança de cor do filme e o teor de N-BVT indica que o filme é capaz de indicar o grau de frescor do camarão, indicando quando ele está ou não apto para o consumo.· A 4 oC, o filme foi capaz de preservar a coloração do camarão, além de retardar a produção de N-BVT e o aumento do pH ao longo de sua vida útil;· O filme retardou o crescimento de bactérias, que superou o limite de aceitação de 6 log cfu /g para a amostra controle no 3o dia e permaneceu abaixo no quarto dia para a amostra embalada com o filme multifuncional;· O teor de TBARS ficou abaixo no quinto dia que o controle no quarto dia.
(ZONG <i>et al.</i> , 2023)	Cogumelo s Flammuli na velutipes	Contato com a atmosfera interna	20 °C por 60 h	Variação de cor do filme, variação dos índices nutricionais e aparentes (açúcares solúveis totais, proteína solúvel, taxa de perda de peso e alongamento do caule do cogumelo) de do cogumelo a cada 12h	<ul style="list-style-type: none">· O CO₂ gerado no armazenamento do cogumelo é capturado pelo filme, ocasionando sua alteração de pH e consequente mudança de cor;· Os teores de proteínas e de sólidos totais do cogumelo reduziram consideravelmente, enquanto a perda de massa e o comprimento do caule aumentaram;· Como resultado, a coloração do filme mudou gradualmente (verde > roxo esverdeado > verde amarelado).

Tabela 2. Continuação

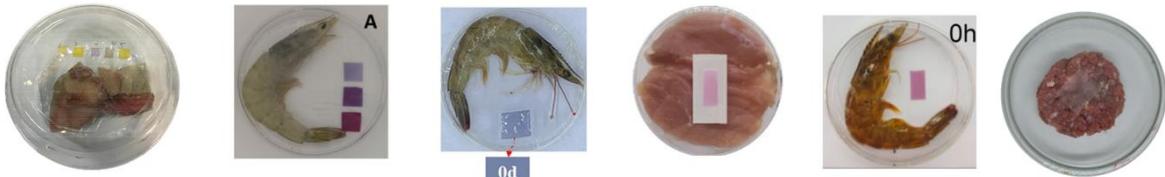
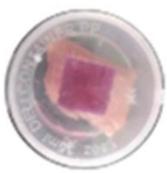
(LI <i>et al.</i> , 2023)	Camarão	Contato com a atmosfera interna	4 °C por 6 dias	variação de cor e N-BVT a cada dia	<ul style="list-style-type: none">· O teor de N-BVT superou o limite de aceitação de 20 mg/100 g no terceiro dia de armazenamento;· Todos os filmes apresentaram alteração de cor: aos filmes preparados sem cozimento tiveram sua coloração avermelhada intensificada, enquanto os filmes preparados após o cozimento variaram de roxo intenso para azul-violeta, sendo mais facilmente percebida a olho nu.
(MIAO <i>et al.</i> , 2023)	Camarão	Contato com a atmosfera interna	25 °C por 24h	pH do camarão, N-BVT e variação de cor do filme a cada 2h	<ul style="list-style-type: none">· O teor de N-BVT superou o limite de aceitação (20 mg/100 g) após 12h de armazenamento;· O pH aumentou gradualmente ao longo do armazenamento;· Todos os filmes tiveram mudanças de cor graduais (vermelho-violeta > roxo > azul > verde-floresta > verde-amarelo);· A variação total de cor dos filmes aumentou ao decorrer do tempo de armazenamento;· As correlações entre ΔE e os indicadores de monitoramento de frescor (pH e TVB-N) apresentaram excelentes ajustes e fortes correlações positivas.
(SILVA <i>et al.</i> , 2023)	Carne bovina moída	Contato com a atmosfera interna	4 °C por 10 dias	Variação da cor do filme, pH da carne e análises microbiológicas da carne nos tempos (0, 3, 5, 7 e 10 dias)	<ul style="list-style-type: none">· O pH da carne aumentou gradualmente ao longo do armazenamento;· Houve o crescimento de microrganismos ao longo do armazenamento;· A carne apresentou alterações sensoriais perceptíveis;· Os filmes responderam alterando gradualmente sua coloração (roxo > cinza > cinza-esverdeado > verde)

A maior parte dos alimentos testados foram produtos cárneos e pescados. A utilização neste tipo de alimento se justifica devido a sua elevada perecibilidade, que é resultante de sua propensão às reações enzimáticas e ao desenvolvimento de microrganismos. Ambos são favorecidos pelos aspectos intrínsecos desse tipo de alimento, como elevada atividade de água, alta concentração de nutrientes prontamente disponíveis (proteínas, amino ácidos livres, gorduras, vitaminas e minerais), presença de enzimas autolíticas e baixa acidez (PELLISSERY *et al.*, 2019; SUN; HOLLEY, 2012).

Essas reações químicas e enzimáticas resultam em mudanças na composição química e nas características sensoriais do alimento, além do aumento da concentração de microrganismos, o que configura a sua deterioração (GRAM *et al.*, 2002). Durante a deterioração, há a produção de certos metabólitos que alteram o pH do alimento e podem ser detectados pelo filme indicador. Tais compostos irão variar de acordo com as características do produto. Podem ser citados os compostos nitrogenados voláteis produzidos ao longo da deterioração de alimentos proteicos, como frango (ZHAO *et al.*, 2022), carne de porco (GAO *et al.*, 2022) e camarão (LI *et al.*, 2023), CO₂ gerado na ao longo da vida útil de cogumelos (ZONG *et al.*, 2023) e ácido láctico produzido na deterioração de produtos lácteos (LIU *et al.*, 2017).

Para a condução dos testes, foi construído um sistema modelo simulando a deterioração do alimento selecionado. Em sua maioria, a ação do filme indicador foi testada pelo contato com a atmosfera interna do sistema, construído por uma placa de Petri contendo uma certa quantidade do alimento e o filme acoplado à superfície interna da tampa da placa (CHOI *et al.*, 2017; GUO *et al.*, 2020; JIANG *et al.*, 2020; LIU, J. *et al.*, 2021; MIAO *et al.*, 2023; WANG *et al.*, 2022; ZHANG *et al.*, 2020; ZHAO *et al.*, 2022), conforme ilustrado na Figura 7 a. Outros autores simularam a aplicação utilizando embalagens plásticas transparentes (DONG *et al.*, 2023; NIU *et al.*, 2021), de polipropileno (PP) (LI *et al.*, 2023; ZONG *et al.*, 2023), polietileno (PE) – Figura 7 b. (GAO *et al.*, 2022), polietileno tereftalato (PET) (CHEN, H. *et al.*, 2020; YONG *et al.*, 2022).

Ainda, houve relatos da aplicação do filme indicador de pH por meio do contato direto com o alimento, conforme ilustrado na Figura 7 c. Entretanto, a utilização desta técnica pode ser limitada devido à migração de antocianina para o alimento devido à sua elevada solubilidade em água. (SOHANY *et al.*, 2021).

a) Placas de Petri(CHEN, H. zhi *et al.*, 2020) (ZHANG *et al.*, 2020) (LIU, J. *et al.*, 2021) (WANG *et al.*, 2022) (MIAO *et al.*, 2023) (SILVA *et al.*, 2023)**b) Embalagem de PE**(GAO *et al.*, 2022)**c) Contato direto com o alimento**(SOHANY *et al.*, 2021)**Figura 7.** Exemplos de forma de aplicação dos filmes indicadores de pH.

Para a condução dos testes, os sistemas modelos preparados foram armazenados em ambiente com temperatura controlada. Conforme especificado na Tabela 2, alguns autores utilizaram temperatura de refrigeração (4°C), simulando o armazenamento convencional dos alimentos testados, resultando em testes cujo tempo variou de 5 a 10 dias. Por outro lado, a metodologia acelerada conduzida em temperaturas superiores (20 a 28°C) foi utilizada em alguns estudos. Em todos os estudos realizados, foram conduzidos testes periodicamente para acompanhar a deterioração do alimento e a alteração de cor do sensor. De forma geral, os intervalos das análises para os testes conduzidos na temperatura de refrigeração foram maiores (1 dia ou mais), quando comparados aos intervalos das análises nas metodologias aceleradas, que utilizaram intervalos de horas. O acompanhamento fotográfico das alterações de cor do filme foi realizado por todos os estudos avaliados. Junto a ele, a maior parte avaliou a alteração de cor instrumental dos filmes.

Para acompanhar o processo de deterioração dos alimentos, análises qualitativas de alguns parâmetros foram utilizadas. Tais análises são possíveis devido às alterações que ocorrem na composição dos alimentos em decorrência da ação de enzimas e microrganismos. Como consequência, há a degradação de compostos como proteínas, carboidratos e lipídeos (JIANG *et al.*, 2020; WANG *et al.*, 2022). A decomposição das proteínas resulta na liberação de compostos nitrogenados voláteis, como amônia e gás nitrogênio básico volátil, ocasionando em um aumento do pH do produto (GAO *et al.*, 2022; YONG *et al.*, 2022; ZHANG *et al.*, 2020).

Dessa forma, tanto o pH do alimento quanto o teor de bases voláteis totais (N-BVT) são parâmetros comumente utilizados para avaliar o frescor de produtos proteicos, como é evidenciado na Tabela 2. Além desses parâmetros, alguns autores avaliaram o crescimento de microrganismos ao longo do armazenamento (DONG *et al.*, 2023; NIU *et al.*, 2021; SILVA *et al.*, 2023a) e outros testes mais específicos como o teor de substâncias reativas ao ácido tiobarbitúrico (TBARS) como forma de determinar o grau de oxidação lipídica para carne de porco (GAO *et al.*, 2022) e camarão (DONG *et al.*, 2023), variação de índices nutricionais e aparentes de cogumelos (ZONG *et al.*, 2023).

Conforme apresentado na Tabela 2, os testes de aplicação realizados foram determinantes para atestar a eficiência dos sensores desenvolvidos. Após determinado período de armazenamento, que foi variável de acordo com o alimento e a temperatura de incubação do teste, o produto atingiu algum ponto de rejeição que o tornou impróprio para consumo, como o limite máximo permitido para o N-BVT, contagem de microrganismos ou pH do produto, além de demonstrar sinais de deterioração, podendo ser identificado pelos sensores que responderam a essas mudanças por meio da alteração visual e/ou instrumental de sua cor. Além da mudança visual de cor, alguns autores conduziram testes de correlação entre os parâmetros analisados e a variação total de cor dos filmes e encontraram uma boa correlação com os modelos matemáticos utilizados, comprovando matematicamente a possibilidade de utilização dos sensores para o monitoramento do frescor dos alimentos aplicados (CHEN, H. *et al.*, 2020; DONG *et al.*, 2023; GAO *et al.*, 2022; NIU *et al.*, 2021; ZHAO *et al.*, 2022).

É importante destacar que a alteração de cor depende de fatores como a quantidade de antocianina adicionada ao sensor (ZHAO *et al.*, 2022), apresentando variação mais acentuada para filmes com teores intermediários de antocianina (NIU *et al.*, 2021; ZHANG *et al.*, 2020). Além de outros fatores como a matriz polimérica e fonte da antocianina utilizadas (YONG *et al.*, 2022), método de obtenção do filme (LI *et al.*, 2023), quantidade de alimento utilizada (GAO *et al.*, 2022) e associação com outros tipos de pigmentos (CHEN, H. *et al.*, 2020).

Além da capacidade de alteração de cor indicando o grau de frescor dos alimentos testados, alguns filmes tiveram a incorporação de compostos antimicrobianos capazes de aumentar a vida útil do produto. LIU *et al.* (2017), em seu estudo, adicionaram antocianina de batata doce e /ou limoneno em filmes de amido e PVA e concluíram que os filmes contendo somente antocianinas e os filmes contendo limoneno tiveram ação antimicrobiana contra *Bacillus subtilis*, *Staphylococcus aureus* e *Aspergillus niger*, com ação mais pronunciada nos filmes adicionados de limoneno. Além disso, no teste de aplicação dos filmes em leite, o filme

contendo limoneno preveniu a deterioração do alimento após 48h, enquanto as amostras contendo o filme com antocianina e a amostra controle estavam visivelmente deterioradas. GUO *et al.* (2020) desenvolveram um filme dupla camada com atividade antimicrobiana e antioxidante com pululano com o extrato da batata doce e outra camada de e zeína-glicerol-carvacrol, substância presente no tomilho e no orégano com conhecida atividade antioxidante e antimicrobiana. Os autores detectaram boa atividade antimicrobiana contra *Escherichia coli* e *Staphylococcus aureus*. Além disso, no teste de aplicação do sensor em porco, a vida útil do produto aumentou em 24 horas a 25 °C, evidenciando a atividade antimicrobiana. Assim, os autores provaram que o filme duplo foi capaz de aumentar a vida útil do alimento e servir como indicador para o monitoramento do frescor da carne de porco. Por sua vez, DONG *et al.* (2023) desenvolveram um filme multifuncional com ágar e alginato de sódio, incorporado de extrato de antocianina e de nanopartículas de quitosana carregadas com quer cetina. Os filmes foram capazes de preservar a coloração do camarão, além de reduzir a produção de N-BVT e alterações de pH, o crescimento de microrganismos e de TBARS, prolongando a vida útil do camarão em pelo menos 36h, além de indicar colorimetricamente seu frescor.

4 CONCLUSÕES

Filmes indicadores de pH utilizando antocianinas provenientes da batata doce são promissores. A utilização de polímeros naturais e biodegradáveis é preferida em detrimento dos polímeros tradicionais de fontes não renováveis. Apesar de apresentarem certas limitações em relação às suas propriedades mecânicas, técnicas como a associação com outros polímeros, obtenção de filmes multicamadas e utilização de nanocompósitos podem mitigar tais limitações. Para a obtenção dos sensores, há destaque para a utilização do amido, seguido de PVA e quitosana, sendo eles utilizados em sua maioria em conjunto com outros materiais poliméricos. Como forma de utilização da antocianina, o extrato liofilizado foi predominantemente reportado. O método de aplicação que se destacou foi a elaboração de um sistema modelo composto com placas de Petri ao qual o filme foi acoplado, simulando o contato com a atmosfera interna de uma embalagem. Os sensores desenvolvidos apresentaram mudança perceptível de coloração e correlação positiva com os sinais de deterioração dos produtos quando aplicados em diferentes tipos de alimentos, em sua maioria alimentos proteicos, com destaque para o camarão. Diversos fatores podem influenciar a resposta colorimétrica dos sensores, como a fonte da antocianina e o teor utilizado, a matriz polimérica, a quantidade de alimento embalado e o método de obtenção do filme. Apesar de

os testes de correlação evidenciarem a eficiência dos filmes no monitoramento dinâmico do frescor de alimentos, ainda faltam estudos para auxiliar na escalabilidade dos filmes indicadores desenvolvidos visando sua produção e aplicação industrial em larga escala.

5 REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

AHMED, Maruf; AKTER, Mst Sorifa; EUN, Jong Bang. Peeling, drying temperatures, and sulphite-treatment affect physicochemical properties and nutritional quality of sweet potato flour. **Food Chemistry**, v. 121, n. 1, p. 112–118, 2010.

ALIZADEH-SANI, Mahmood *et al.* pH-sensitive (halochromic) smart packaging films based on natural food colorants for the monitoring of food quality and safety. **Trends in Food Science and Technology**, v. 105, n. August, p. 93–144, 2020.

ARAÚJO, David Jefferson Cardoso; MACHADO, Ana Vera; VILARINHO, Maria Cândida Lobo Guerra. Availability and Suitability of Agroindustrial Residues as Feedstock for Cellulose-Based Materials: Brazil Case Study. **Waste and Biomass Valorization**, v. 10, p. 2863–2878, 2019.

ASSEGEHEGN, Getachew *et al.* The Importance of Understanding the Freezing Step and Its Impact on Freeze-Drying Process Performance. **Journal of Pharmaceutical Sciences**, v. 108, n. 4, p. 1378–1395, 2019.

AZZINI, Elena; GIACOMETTI, Jasminka; RUSSO, Gian Luigi. Antioesity Effects of Anthocyanins in Preclinical and Clinical Studies. **Oxidative Medicine and Cellular Longevity**, v. 2017, n. ii, 2017.

BABU, Ramesh P; O'CONNOR, Kevin; SEERAM, Ramakrishna. Current progress on bio-based polymers and their future trends. **Progress in Biomaterials**, , v. 8, n. 2, p. 1–16, 2013.

BAO, Yiwen *et al.* Novel pH sensitivity and colorimetry-enhanced anthocyanin indicator films by chondroitin sulfate co-pigmentation for shrimp freshness monitoring. **Food Control**, v. 131, n. July 2021, 2022.

BECERRIL, Raquel; NERÍN, Cristina; SILVA, Filomena. Bring some colour to your package: Freshness indicators based on anthocyanin extracts. **Trends in Food Science and Technology**, v. 111, n. January, p. 495–505, 2021.

BRITO, G. F. *et al.* Biopolímeros, Polímeros biodegradáveis e polímeros verdes. **Revista Eletrônica de Materiais e Processos**, v. 6.2, n. 5, p. 127–139, 2011.

CASTAÑEDA-OVANDO, Araceli *et al.* Chemical studies of anthocyanins: A review. **Food Chemistry**, v. 113, n. 4, p. 859–871, 2009.

CHEN, Shunli *et al.* Development of pH indicator and antimicrobial cellulose nanofibre packaging film based on purple sweet potato anthocyanin and oregano essential oil.

International Journal of Biological Macromolecules, v. 149, p. 271–280, 2020.

CHEN, Hui zhi *et al.* Novel pH-sensitive films containing curcumin and anthocyanins to monitor fish freshness. **Food Hydrocolloids**, v. 100, n. October 2019, p. 105438, 2020.

CHENG, Meng *et al.* Effect of dual-modified cassava starches on intelligent packaging films containing red cabbage extracts. **Food Hydrocolloids**, v. 124, n. June 2021, 2022.

CHENG, Hao *et al.* Recent advances in intelligent food packaging materials: Principles, preparation and applications. **Food Chemistry**, v. 375, n. December 2021, p. 131738, 2022.

CHEONG, J. J.; AHMAD, F.; TENGKU ROZAINA, T. M. Effects of cooking methods on physicochemical properties, antioxidant properties and sensory acceptability of purple sweet potato (*Ipomoea batatas*). **Food Research**, v. 6, n. 6, p. 257–266, 2022.

CHOI, Inyoung *et al.* Intelligent pH indicator film composed of agar/potato starch and anthocyanin extracts from purple sweet potato. **Food Chemistry**, v. 218, p. 122–128, 2017.

DA CUNHA JÚNIOR, Paulo Cezar *et al.* Natural ingredient obtained from purple sweet potato of Family Farming (Seropédica / RJ): elaboration and characterization. **Observatorio de La Economia Latinoamericana**, p. 2698–2720, 2023.

DALMAU, Maria Esperanza *et al.* Effects of convective drying and freeze-drying on the release of bioactive compounds from beetroot during in vitro gastric digestion. **Food & Function**, v. 10, n. 6, p. 3209–3223, 2019.

DAMODARAN, Srinivasan; PARKIN, Kirk L.; FENNEMA, Owen R. **Química de Alimentos de Fennema**. 4a. ed. Porto Alegre: Artimed, 2010. E-book. Disponível em: <https://www.saraiva.com.br/quimica-de-alimentos-de-fennema-4-ed-2010-2878340.html>.

DONG, Shengye *et al.* Multifunctional intelligent film integrated with purple sweet potato anthocyanin and quercetin-loaded chitosan nanoparticles for monitoring and maintaining freshness of shrimp. **Food Packaging and Shelf Life**, v. 35, n. December 2022, p. 101022, 2023.

EBRAHIMI, Vajiheh *et al.* Fabrication and characterization of a pH-sensitive indicator film by purple basil leaves extract to monitor the freshness of chicken fillets. **Food Packaging and Shelf Life**, v. 34, n. June, p. 100946, 2022.

EKER, Merve Eda *et al.* A review of factors affecting anthocyanin bioavailability: Possible implications for the inter-individual variability. **Foods**, v. 9, n. 1, p. 1–18, 2019.

ETXABIDE, Alaitz; KILMARTIN, Paul A.; MATÉ, Juan I. Color stability and pH-indicator ability of curcumin, anthocyanin and betanin containing colorants under different storage conditions for intelligent packaging development. **Food Control**, v. 121, n. May 2020, 2021.

EZATI, Parya *et al.* Intelligent pH-sensitive indicator based on starch-cellulose and

alizarin dye to track freshness of rainbow trout fillet. **International Journal of Biological Macromolecules**, v. 132, p. 157–165, 2019.

EZE, Fredrick Nwude; JAYEOYE, Titilope John; SINGH, Sudarshan. Fabrication of intelligent pH-sensing films with antioxidant potential for monitoring shrimp freshness via the fortification of chitosan matrix with broken Riceberry phenolic extract. **Food Chemistry**, v. 366, n. July 2021, p. 130574, 2022.

FAO. **The State of Food and Agriculture 2019. Moving forward on food loss and waste reduction.** Rome: Licence: CC BY-NC-SA 3.0 IGO, 2019.

FDA. U.S. Food and Drug Administration. **Confused by Date Labels on Packaged Foods?**. 2019. Disponível em: <https://www.fda.gov/consumers/consumer-updates/confused-date-labels-packaged-foods>.

GAO, Li *et al.* κ-carrageenan-based pH-sensing films incorporated with anthocyanins or/and betacyanins extracted from purple sweet potatoes and peels of dragon fruits. **Process Biochemistry**, v. 121, n. 56, p. 463–480, 2022.

GRAM, Lone *et al.* Food spoilage - Interactions between food spoilage bacteria. **International Journal of Food Microbiology**, v. 78, n. 1–2, p. 79–97, 2002.

GUO, Min *et al.* Intelligent double-layer fiber mats with high colorimetric response sensitivity for food freshness monitoring and preservation. **Food Hydrocolloids**, v. 101, n. October 2019, p. 105468, 2020.

HALÁSZ, Katalin; CSÓKA, Levente. Black chokeberry (*Aronia melanocarpa*) pomace extract immobilized in chitosan for colorimetric pH indicator film application. **Food Packaging and Shelf Life**, v. 16, n. March, p. 185–193, 2018.

HERNÁNDEZ-SANTOS, Betsabé *et al.* Chemical composition, techno-functional properties, and bioactive components of blends of blue corn/purple sweet potato for its possible application in the food industry. **Journal of Food Measurement and Characterization**, v. 17, n. 2, p. 1909–1920, 2023.

HUANG, Shaoyun *et al.* Preparation and dynamic response properties of colorimetric indicator films containing pH-sensitive anthocyanins. **Sensors and Actuators Reports**, v. 3, p. 100049, 2021.

JI, Hua *et al.* Analysis on the Nutrition Composition and Antioxidant Activity of Different Types of Sweet Potato Cultivars. **Food and Nutrition Sciences**, v. 06, n. 01, p. 161–167, 2015.

JI, Chenfeng *et al.* Purification, characterization, and in vitro antitumor activity of a novel glucan from the purple sweet potato *Ipomoea Batatas* (L.) Lam. **Carbohydrate Polymers**, v. 257, n. January, p. 117605, 2021.

JIA, Yangyang *et al.* Influence of three different drying techniques on persimmon chips' characteristics: A comparison study among hot-air, combined hot-air-microwave, and vacuum-freeze drying techniques. **Food and Bioproducts Processing**, v. 118, p. 67–76, 2019.

JIANG, Guangyang *et al.* Preparation and characterization of indicator films from carboxymethyl-cellulose/starch and purple sweet potato (*Ipomoea batatas* (L.) lam) anthocyanins for monitoring fish freshness. **International Journal of Biological Macromolecules**, v. 143, p. 359–372, 2020.

JIANG, Tian *et al.* The botanical profile, phytochemistry, biological activities and protected-delivery systems for purple sweet potato (*Ipomoea batatas* (L.) Lam.): An up-to-date review. **Food Research International**, p. 111811, 2022.

KOOSHA, Mojtaba; HAMEDI, Sepideh. Intelligent chitosan/PVA nanocomposite films containing black carrot anthocyanin and bentonite nanoclays with improved mechanical, thermal and antibacterial properties. **Progress in Organic Coatings**, v. 127, p. 338–347, 2019.

KUREK, Mia *et al.* Comparison of two pH responsive color changing bio-based films containing wasted fruit pomace as a source of colorants. **Journal of Food Science**, v. 84, n. 9, p. 2490–2498, 2019.

KUSWANDI, Bambang. **Freshness Sensors for Food Packaging**. Elsevier, 2017. E-book. Disponível em: <http://dx.doi.org/10.1016/B978-0-08-100596-5.21876-3>.

LI, Chenchen *et al.* A new method to prepare color-changeable smart packaging films based on the cooked purple sweet potato. **Food Hydrocolloids**, v. 137, n. November 2022, p. 108397, 2023.

LI, Yuan *et al.* A pH-indicating intelligent packaging composed of chitosan-purple potato extractions strength by surface-deacetylated chitin nanofibers. **International Journal of Biological Macromolecules**, v. 127, p. 376–384, 2019.

LI, Siying *et al.* Cassava starch/carboxymethylcellulose edible films embedded with lactic acid bacteria to extend the shelf life of banana. **Carbohydrate Polymers**, v. 248, n. June, p. 116805, 2020.

LIU, Danfei *et al.* A colorimetric film based on polyvinyl alcohol/sodium carboxymethyl cellulose incorporated with red cabbage anthocyanin for monitoring pork freshness. **Food Packaging and Shelf Life**, v. 28, n. July 2020, p. 100641, 2021.

LIU, Yaowen *et al.* Fabrication and characterization of pH-responsive intelligent films based on carboxymethyl cellulose and gelatin/curcumin/chitosan hybrid microcapsules for pork quality monitoring. **Food Hydrocolloids**, v. 124, p. 107224, 2022.

LIU, Jialin *et al.* pH-sensitive and antibacterial films developed by incorporating anthocyanins extracted from purple potato or roselle into chitosan/polyvinyl alcohol/nano-ZnO matrix: Comparative study. **International Journal of Biological Macromolecules**, v. 178, p. 104–112, 2021.

LIU, Bin *et al.* Preparation and characterization of intelligent starch/PVA films for simultaneous colorimetric indication and antimicrobial activity for food packaging applications. **Carbohydrate Polymers**, v. 157, p. 842–849, 2017.

MENG, Meng *et al.* Structural characterization and induction of tumor cell apoptosis of polysaccharide from purple sweet potato (*Ipomoea batatas* (L.) Lam). **International Journal of Biological Macromolecules**, v. 235, n. August 2022, p. 123799, 2023.

MERZ, Barbara *et al.* A novel colorimetric indicator film based on chitosan, polyvinyl alcohol and anthocyanins from jambolan (*Syzygium cumini*) fruit for monitoring shrimp freshness. **International Journal of Biological Macromolecules**, v. 153, p. 625–632, 2020.

MIAO, Yaqiong *et al.* Exopolysaccharide riclin and anthocyanin-based composite colorimetric indicator film for food freshness monitoring. **Carbohydrate Polymers**, v. 314, p. 120882, 2023.

MOAZAMI GOODARZI, Mohsen *et al.* Development of an easy-to-use colorimetric pH label with starch and carrot anthocyanins for milk shelf life assessment. **International Journal of Biological Macromolecules**, v. 153, p. 240–247, 2020. Disponível em: <https://doi.org/10.1016/j.ijbiomac.2020.03.014>.

MUTHURAJ, Rajendran; MISRA, Manjusri; MOHANTY, Ama Kumar. Biodegradable compatibilized polymer blends for packaging applications: A literature review. **Journal of Applied Polymer Science**, v. 135, n. 24, p. 35, 2018.

NIU, Xiaoqing *et al.* Design and characterization of bio-amine responsive films enriched with colored potato (Black King Kong) anthocyanin for visual detecting pork freshness in cold storage. **Journal of Food Measurement and Characterization**, v. 15, n. 5, p. 4659–4668, 2021.

NOWAK, Dorota; JAKUBCZYK, Ewa. The freeze-drying of foods—the characteristic of the process course and the effect of its parameters on the physical properties of food materials. **Foods**, v. 9, n. 1488, p. 1–27, 2020.

OMS. **Food Safety**. 2022. Disponível em: <https://www.who.int/news-room/fact-sheets/detail/food-safety>.

ONU. **Transformando Nosso Mundo: A Agenda 2030 para o Desenvolvimento Sustentável**. 2015. Disponível em: <https://brasil.un.org/pt-br/sdgs>. Acessado em 21 de abril de 2023.

OYINLOYE, Timilehin Martins; YOON, Won Byong. Effect of freeze-drying on quality and grinding process of food produce: A review. **Processes**, v. 8, n. 3, p. 1–23, 2020.

PELLISSERY, Abraham Joseph *et al.* **Spoilage bacteria and meat quality**. Elsevier Inc., 2019. *E-book*. Disponível em: <http://dx.doi.org/10.1016/B978-0-12-819233-7.00017-3>.

RAKIĆ, Violeta *et al.* pH-induced structural forms of cyanidin and cyanidin 3-O- β -glucopyranoside. **Dyes and Pigments**, v. 165, n. June 2018, p. 71–80, 2019.

ROY, Swarup; RHIM, Jong Whan. Anthocyanin food colorant and its application in pH-responsive color change indicator films. **Critical Reviews in Food Science and Nutrition**, v. 61, n. 14, p. 2297–2325, 2021.

SILVA, Nayane Matias *et al.* Adição de extrato de casca de jaboticaba no desenvolvimento de embalagem inteligente para queijo prato. **Brazilian Journal of Development**, v. 6, n. 4, p. 19512–19532, 2020.

SILVA, Mariá Toledo de Carvalho *et al.* Development and application of pH-indicator film based on freeze-dried purple-fleshed sweet potato, starch, and CMC. **International Journal of Food Science & Technology**, 2023a.

SILVA, Mariá Toledo de Carvalho *et al.* Development of a biodegradable smart film from purple fleshed sweet potato for food quality assessment. **Observatorio de La Economia Latinoamericana**, p. 2721–2748, 2023b.

SILVA, Ricácia De Sousa *et al.* Elaboration and physicochemical characterization of sweet potato flour (Ipomoea batatas L.). **Revista Brasileira de Gestão Ambiental**, v. 14, n. 01, p. 127–131, 2020.

SMERIGLIO, Antonella *et al.* Chemistry, Pharmacology and Health Benefits of Anthocyanins. **Phytotherapy Research**, n. April, p. 1265–1286, 2016.

SOHANY, Mouluda *et al.* Characterization of anthocyanin associated purple sweet potato starch and peel-based pH indicator films. **Foods**, v. 10, n. 9, 2021.

STEED, L. E.; TRUONG, V. D. Anthocyanin content, antioxidant activity, and selected physical properties of flowable purple-fleshed sweetpotato purees. **Journal of Food Science**, v. 73, n. 5, p. 215–221, 2008.

SUN, Xiang Dong; HOLLEY, Richard A. Antimicrobial and Antioxidative Strategies to Reduce Pathogens and Extend the Shelf Life of Fresh Red Meats. **Comprehensive Reviews in Food Science and Food Safety**, v. 11, n. 4, p. 340–354, 2012.

TANAKA, Masaru *et al.* Functional components in sweetpotato and their genetic improvement. **Breeding Science**, v. 67, n. 1, p. 52–61, 2017.

TARONE, Adriana Gadioli; CAZARIN, Cinthia Baú Betim; MAROSTICA JUNIOR, Mario Roberto. Anthocyanins: New techniques and challenges in microencapsulation. **Food Research International**, v. 133, p. 109092, 2020.

KUMAR, Ajesh *et al.* Trends in Edible Packaging Films and its Prospective Future in Food: A Review. **Applied Food Research**, v. 2, n. 1, p. 100118, 2022.

VITAL, Aline Nataly Soares *et al.* Physicochemical composition and antioxidant activity of sweet potato flours from different cultivars produced in the Sub-middle São Francisco region. **Ciencia Rural**, v. 53, n. 3, 2023.

WANG, Honglu *et al.* Isolation and characterization of starch from light yellow, orange, and purple sweet potatoes. **International Journal of Biological Macromolecules**, v. 160, p. 660–668, 2020.

WANG, Xinyu *et al.* Novel hydrophobic colorimetric films based on ethylcellulose/castor oil/anthocyanins for pork freshness monitoring. **Lwt**, v. 164, n. January,

p. 113631, 2022.

WANGMO, Lungten *et al.* A novel sensor based on bead-counting of purple sweet potato tapioca pearl for freshness monitoring of shrimp. **Food Chemistry**, v. 368, p. 130863, 2022.

WEI, Yu Chia *et al.* Active gellan gum/purple sweet potato composite films capable of monitoring pH variations. **Food Hydrocolloids**, v. 69, p. 491–502, 2017.

XU, Jianteng *et al.* Characterisation and stability of anthocyanins in purple-fleshed sweet potato P40. **Food Chemistry**, v. 186, p. 90–96, 2015.

YAM, Kit L.; TAKHISTOV, Paul T.; MILTZ, Joseph. Intelligent Packaging: Concepts and Applications. **Journal of Food Science**, v. 70, n. 1, p. 1–10, 2005.

YIN, Wenqi *et al.* Recent advances in biomolecule-based films and coatings for active and smart food packaging applications. **Food Bioscience**, v. 52, n. November 2022, p. 102378, 2023.

YONG, Huimin *et al.* Active/intelligent packaging films developed by immobilizing anthocyanins from purple sweetpotato and purple cabbage in locust bean gum, chitosan and κ-carrageenan-based matrices. **International Journal of Biological Macromolecules**, v. 211, n. April, p. 238–248, 2022.

YONG, Huimin *et al.* Development of antioxidant and intelligent pH-sensing packaging films by incorporating purple-fleshed sweet potato extract into chitosan matrix. **Food Hydrocolloids**, v. 90, n. October 2018, p. 216–224, 2019.

ZHANG, Long *et al.* Characterization and comparative study of starches from seven purple sweet potatoes. **Food Hydrocolloids**, v. 80, p. 168–176, 2018.

ZHANG, Xinyue *et al.* Intelligent colorimetric film incorporated with anthocyanins-loaded ovalbumin-propylene glycol alginate nanocomplexes as a stable pH indicator of monitoring pork freshness. **Food Chemistry**, v. 368, n. April 2021, p. 130825, 2022.

ZHANG, Kailong *et al.* Novel pH-sensitive films based on starch/polyvinyl alcohol and food anthocyanins as a visual indicator of shrimp deterioration. **International Journal of Biological Macromolecules**, v. 145, p. 768–776, 2020.

ZHANG, Junjun *et al.* Preparation of an intelligent pH film based on biodegradable polymers and roselle anthocyanins for monitoring pork freshness. **Food Chemistry**, v. 272, n. April 2018, p. 306–312, 2019.

ZHAO, Mengna *et al.* Monitoring dynamic changes in chicken freshness at 4 °C and 25 °C using pH-sensitive intelligent films based on sodium alginate and purple sweet potato peel extracts. **International Journal of Biological Macromolecules**, v. 216, n. May, p. 361–373, 2022.

ZONG, Zihao *et al.* Preparation and characterization of a novel intelligent starch/gelatin binary film containing purple sweet potato anthocyanins for Flammulina

velutipes mushroom freshness monitoring. **Food Chemistry**, v. 405, n. PB, p. 134839, 2023.
Disponível em: <https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2022.134839>

CAPÍTULO II

DESENVOLVIMENTO DE FILME INTELIGENTE E BIODEGRADÁVEL A PARTIR DE BATATA-DOCE DE POLPA ROXA PARA AVALIAÇÃO QUALITATIVA DE ALIMENTOS

Artigo publicado na revista Observatorio de La Economía Latinoamericana.

Desenvolvimento de filme inteligente e biodegradável a partir de batata-doce de polpa roxa para avaliação qualitativa de alimentos

Development of a biodegradable smart film from purple fleshed sweet potato for food quality assessment

DOI: 10.55905/oelv21n5-020

Recebimento dos originais: 25/04/2023

Aceitação para publicação: 26/05/2023

Mariá Toledo de Carvalho Silva¹

Doutoranda em Ciência e Tecnologia de Alimentos

E-mail: mariahtoledo@msn.com

Paulo Cezar da Cunha Júnior¹

Mestre em Ciência e tecnologia de Alimentos

E-mail: pc.cunha.alim@gmail.com

Caio Silva de Farias¹

Graduando em Engenharia de Alimentos

E-mail: caiodfarias@gmail.com

Mariana Teixeira da Costa Machado¹

Doutora em Engenharia de Alimentos

E-mail: mariynamachado210@gmail.com

Elisa Helena da Rocha Ferreira¹

Doutora em Engenharia de Processos Químicos e Bioquímicos

E-mail: elisarocha@ufrj.br

¹Universidade Federal Rural do Rio de Janeiro

Departamento de Tecnologia de Alimentos - Instituto de Tecnologia

BR-465, Km 7, Seropédica /RJ

RESUMO

Reducir as perdas e desperdícios de alimentos e garantir a oferta de produtos seguros e com qualidade sensorial e nutricional preservadas é um desafio para a cadeia de alimentos. Embalagens inteligentes indicadoras de pH desenvolvidas a partir de biopolímeros e corantes naturais vêm sendo estudadas para essa finalidade. O principal objetivo deste estudo foi utilizar a batata-doce de polpa roxa para o desenvolvimento de um filme indicador de pH biodegradável e sem a etapa prévia de extração da antocianina. Para isso, a batata doce de polpa roxa foi cozida e liofilizada resultando em um pó liofilizado de batata-doce (PLBD) uniforme e de coloração estável. O PLBD apresentou redução significativa nos teores de carboidratos, fibras, proteínas, lipídios, cinzas e amido, contudo o teor de antocianinas quintuplicou quanto comparada a batata doce de polpa roxa in natura. Outro aspecto relevante foi a redução significativa de umidade (de 66.76 ± 1.14 para $2.76 \pm 0.06\%$) após o processo de liofilização. Tanto o PLBD quanto os filmes desenvolvidos a partir de amido e carboximetilcelulose (CMC) apresentaram alterações visualmente perceptíveis em sua cor quando submersos em soluções tampões de diferentes valores de pH, variando de coloração rosa à tons esverdeados quando o pH aumentou de 1 para 11. Por fim, as matrizes poliméricas utilizadas (amido e CMC) não exerceram influência nas mudanças de cor observadas nos filmes. Assim, filmes indicadores de pH biodegradáveis foram desenvolvidos com sucesso sem a utilização de uma etapa prévia de extração das antocianinas, podendo ser utilizados no desenvolvimento de embalagens inteligentes capazes de indicar em tempo real sobre a qualidade do alimento embalado.

Palavras-chave: deterioração de alimentos, embalagem inteligente, sustentabilidade, indicadores de pH.

ABSTRACT

Reducing food losses and food waste and ensuring the supply of safe products with preserved sensory and nutritional quality is a challenge for the food chain. Intelligent pH indicator packages developed from biopolymers and natural dyes have been studied for this purpose. The main objective of this study was to use the purple flesh sweet potato for the development of a biodegradable pH indicator film without the previous step of anthocyanin extraction. For this purpose, purple fleshed sweet potato was cooked and freeze-dried resulting in a uniform and color stable freeze-dried sweet potato powder (PLBD). The DBP showed a significant reduction in carbohydrate, fiber, protein, lipid, ash and starch contents, but the anthocyanin content increased fivefold when compared to fresh purple flesh sweet potato. Another relevant aspect was the significant reduction in moisture content (from 66.76 ± 1.14 to $2.76 \pm 0.06\%$) after the freeze-drying process. Both the PLBD and the films developed from starch and carboxymethylcellulose (CMC) showed visually perceptible changes in their color when submerged in buffer solutions of different pH values, ranging from pink coloration to greenish tones when the pH increased from 1 to 11. Finally, the polymeric matrices used (starch and CMC) had no influence on the color changes observed in the films. Thus, biodegradable pH indicator films were successfully developed without the use of a previous step of anthocyanins extraction and can be used in the development of smart packaging capable of indicating in real time about the quality of the packaged food.

Keywords: food deterioration, intelligent packaging, sustainability, pH indicators.

1 INTRODUÇÃO

A redução das perdas e desperdícios de alimentos é um tópico de extrema relevância no cenário desafiador referente ao aumento populacional e desafios climáticos e ambientais enfrentados no âmbito mundial. Tal redução, portanto, além de minimizar os custos de produção, contribui com a melhoria da segurança alimentar e nutricional, além de contribuir com aspectos de sustentabilidade, preservando recursos naturais e reduzindo a emissão de gases do efeito estufa (FAO, 2019). As perdas e desperdícios de alimentos tornaram-se um problema global e, por isso, estão contemplados na agenda para 2030 da Organização das Nações Unidas (ONU), por meio do Objetivo de Desenvolvimento Sustentável (ODS) 12 – Consumo e produção responsável, que tem como uma de suas metas reduzir pela metade o desperdício per capita nos níveis de varejo e consumidores, além de minimizar as perdas de alimentos ao longo das cadeias de produção e abastecimento até 2030 (ONU, 2015). No âmbito doméstico, grande parte dos alimentos é descartada por terem atingido a data de validade, que pode estar relacionada à qualidade sensorial do produto em detrimento de sua segurança (FDA, 2019). Dessa forma, uma grande quantidade de alimentos aptos para o consumo sob o ponto de vista microbiológico e nutricional, acaba sendo desprezada pela falta de um mecanismo capaz de indicar aos consumidores em tempo real o frescor, a qualidade e a segurança do produto embalado (Etxabide et al., 2021).

As embalagens inteligentes têm se destacado no âmbito da pesquisa e podem ser aliadas na redução dos desperdícios de alimentos. Tais embalagens utilizam diversos sinais para transmitir ao consumidor informações sobre a qualidade e a segurança do produto embalado por meio do monitoramento do alimento e/ou da atmosfera ao seu redor (Yousefi et al., 2019). Para isso, diferentes métodos de detecção podem ser utilizados, como temperatura, umidade, níveis de oxigênio, pH, composição química ou crescimento microbiano (Cheng et al., 2022; Kalpana et al., 2019).

Dentre eles, indicadores de alteração de pH apresentam elevado potencial para serem utilizados no desenvolvimento de embalagens inteligentes, uma vez que, durante o processo de deterioração de diversos alimentos ocorrem reações químicas, enzimáticas e/ou microbiológicas que resultam em alterações consideráveis de pH (Becerril et al., 2021; Chen et al., 2020). Para o funcionamento desses indicadores, é necessária a utilização de uma substância capaz de responder às variações de pH. Alinhado à tendência dos consumidores preferirem a utilização de produtos naturais em detrimento de sintéticos (Asioli et al., 2017), indicadores de pH utilizando polímeros naturais e pigmentos naturalmente presentes em

diversos vegetais têm sido extensivamente estudados (Alizadeh-Sani et al., 2021; Etxabide et al., 2021; Rodrigues et al., 2021; X. Zhang et al., 2022).

Diversos polímeros podem ser utilizados no desenvolvimento de filmes indicadores de pH. Dentre eles, destaca-se o amido, amplamente utilizado para diversos propósitos, devido à sua abundância, biodegradabilidade e baixo custo. Por outro lado, apresenta limitações em relação às suas propriedades mecânicas que dificultam sua aplicação no desenvolvimento de filmes e embalagens (Muthuraj et al., 2018). Para melhorar as propriedades físicas e mecânicas de filmes de amido, a associação com outros polímeros quimicamente compatíveis pode ser realizada (Mansur et al., 2020). É o caso da carboximetilcelulose (CMC), um polímero atóxico e não-alergênico de elevada viscosidade (Jantanasakulwong et al., 2018).

Dentre os pigmentos naturais, a antocianina se destaca não só por sua habilidade de mudar de cor de acordo com o pH como também por sua segurança e elevada disponibilidade (Yin et al., 2023). As antocianinas são pigmentos solúveis em água pertencentes ao subgrupo dos flavonoides. Trata-se do pigmento mais abundante dentre os vegetais, responsáveis por uma ampla gama de cores nas plantas, como azul, roxo, violeta, vermelho e laranja (Ghosh et al., 2022). A coloração e a estabilidade das antocianinas dependem da sua forma química, que pode ser modificada de acordo com o pH do meio em que ela se encontra (Rakić et al., 2019). Um fator que limita a utilização da antocianina é sua instabilidade, que é melhorada com o aumento dos grupos metoxilas tendendo a coloração para o vermelho. Por outro lado, a estabilidade é reduzida com o aumento dos grupos hidroxilas e a coloração tende ao azul (Tarone et al., 2020).

Dentre os vegetais que apresentam antocianinas em sua composição, está a batata doce de polpa roxa (*Ipomoea batatas* (L.) Lam), tubérculo de elevado interesse econômico tipicamente cultivado em regiões tropicais e subtropicais (C. Ji et al., 2021). Tal vegetal pode ser considerado um alimento funcional, com diversos efeitos benéficos à saúde, devido à sua composição, que se destaca pela presença de carboidratos, minerais, aminoácidos, polissacarídeos, fibras e compostos bioativos, como antocianinas, βcaroteno e ácido ascórbico (Hernández-Santos et al., 2023; Meng et al., 2023). Além disso, as antocianinas presentes na batata doce de polpa roxa estão predominantemente na sua forma acilada, o que ocasiona uma maior estabilidade e atividade antioxidante (Hernández-Santos et al., 2023; Jiang et al., 2020). Entretanto, a utilização deste vegetal pode ser limitada pela sua elevada perecibilidade quando crua. Para mitigar tal problemática e facilitar sua comercialização e aplicação, processos de

desidratação podem ser aplicados, resultando em um produto de menor volume e atividade de água, e, por consequência, mais estável (Ahmed et al., 2010).

Diversos estudos apontam a utilização dos polímeros amido e/ou CMC para a imobilização de antocianinas no desenvolvimento de sensores indicadores de pH (Bao et al., 2022; Jiang et al., 2020; Zhao et al., 2022). Entretanto, a maioria utiliza este pigmento em forma de extrato (Neves et al., 2022), requerendo etapas prévias que, além de custosas e demoradas, utilizam solventes e geram resíduos que podem ser tóxicos ao ambientalmente (Mir-Cerdà et al., 2023; Santos & Martins, 2023). Mediante ao exposto, o principal objetivo do presente trabalho foi desenvolver um pó liofilizado de batata-doce de polpa roxa oriunda da agricultura familiar do município de Seropédica, RJ e utilizá-lo no desenvolvimento de um filme indicador de pH.

2 MATERIAL E MÉTODOS

A batata-doce de polpa roxa (*Ipomoea batatas* (L.) Lam) foi obtida no Sistema Integrado de Produção Agroecológica – SIPA (Fazendinha Agroecológica do km 47) localizado em Seropédica, Rio de Janeiro – RJ (220° 48' 00" de latitude Sul e 430° 41' 00" de longitude Oeste).

Soluções tampão de pH 4 (biftalato de potássio/hidróxido de sódio Ref:2739), pH 7 (fosfato dissódico/fosfato monobásico de potássio Ref: 2740) e pH 10 (ácido bórico/cloreto de potássio Ref: 1902) foram adquiridas da Neon Comercial Ltda. (São Paulo, Brasil). As soluções tampão dos demais valores de pH foram preparadas por correção HCl 0,1 M e NaOH 0,1 M, medindo o pH com um potenciômetro digital (Ionlab, PHS-3E, Brasil). O amido solúvel CAS [9005-25-8] foi adquirido da Êxodo Científica (São Paulo, Brasil). A CMC e glicerol de grau alimentício foram adquiridos no mercado local (Seropédica, Brasil).

2.1 Lavagem e sanitização das batatas

As batatas foram lavadas com auxílio de escovas para a remoção de sujidades e resíduos do manejo. Em seguida, foram selecionadas, sanitizadas em solução de hipoclorito de sódio 200 ppm por 10 minutos e lavadas em água corrente. O excesso de água foi retirado com papel absorvente e as batatas foram acondicionadas em sacos plásticos estéreis e armazenadas sob refrigeração (4 °C) até o seu processamento.

2.2 Preparo do pó liofilizado de batata-doce (PLBD)

Primeiramente, as batatas previamente sanitizadas foram descascadas manualmente e cortadas em pedaços uniformes de aproximadamente 3 X 3 cm. Em seguida, foram cozidas em água a 90 °C a uma proporção de 1:3 (batata:água) por 10 min. Então, a batata cozida foi processada em liquidificador industrial por 10 min juntamente com a água do cozimento. Após acondicionado em potes plásticos herméticos, o purê foi congelado a -18 °C em freezer convencional por um período mínimo de 7 dias. Finalmente, o purê congelado foi submetido ao processo de liofilização em liofilizador de bancada (Liotech®, modelo L101) por um período médio de 5 dias. Após o processo, a amostra foi triturada em um moinho analítico (IKA®, model A11) e selecionada em peneira de análise granulométrica de abertura de 710 µm, dando origem ao pó, que foi armazenado em embalagem hermética sob refrigeração para posterior utilização.

2.3 Rendimento

O rendimento do PLBD foi calculado com base nos teores de umidade removidos durante o processamento, tendo como base a massa inicial de batata utilizada, conforme a Equação 1:

$$\text{Rendimento (\%)} = (M - m) / M \times 100 \quad \text{Equação 1}$$

Em que:

M é a massa de batata doce, em gramas, antes da liofilização.;

m é a massa final, em gramas, do pó obtida após a liofilização.

2.4 Alteração visual de cor do PLBD em soluções de diferentes valores de pH

A capacidade de alteração visual de cor do PLBD foi avaliada por meio da metodologia descrita por (Chen et al., 2020), com pequenas adaptações. Para isso, 0,30 g do PLBD foram adicionados em 20 mL de soluções tampão de pH variando de 1 a 11 por 30 minutos. Após as misturas foram centrifugadas por 15 minutos a 840 x g utilizando uma centrífuga analógica (FANEM, 204-N, Brasil). Seguidamente, o líquido sobrenadante foi recolhido em tubos de vidro de 5 mL dos quais foi realizado o registro fotográfico.

2.5 Caracterização da batata-doce e do pó liofilizado de batata-doce

2.5.1 Composição Centesimal

A composição centesimal da batata e do pó liofilizado de batata doce foram avaliadas a partir da determinação dos teores de umidade, proteínas, lipídios, cinzas, fibra alimentar total e teor de amido, seguido os procedimentos descritos por IAL (2008), com pequenas adaptações. O conteúdo de carboidratos foi determinado por diferença, a partir da Equação 02.

$$T (\%) = 100 - U(\%) - P(\%) - L(\%) - C(\%) - FB (\%) \quad \text{Equação 2}$$

Em que:

C(%) – percentual de carboidratos na amostra;

U(%) – percentual de umidade na amostra;

P(%) – percentual de proteínas na amostra;

L(%) – percentual de lipídios na amostra;

C(%) – percentual de cinzas na amostra;

FB(%) – percentual de fibras na amostra.

2.5.2 Teor de Amido

O teor de amido total foi determinado por meio do método de hidrólise ácida assistida por temperaturas elevadas em autoclave (121 °C/1 atm) (IAL, 2008).

2.5.3 Teor de Antocianinas Monoméricas Totais (AMT)

O teor de antocianinas totais de SPP foi determinado usando os procedimentos descrito por Du et al. (2021) e Lee et al. (2005) com modificações. A extração foi realizada a partir de 1,5 g de SPP utilizando 30 mL de solução aquosa etanólica acidificada (60 % v/v) em banho de ultrassom por 2 h. As amostras foram centrifugadas a $3.570 \times g$ por 20 min a 4°C. Os sobrenadantes foram filtrados. A partir do sobrenadante, AMT foi determinado usando o método de pH diferencial (pH 1,00 e pH 4,50), com cianidina 3-glicosídeo como referência.

2,0 mL do extrato foram adicionados a 3,0 mL de solução tampão de cloreto de potássio 0,025 M (pH 1,0) e, em outro tubo de ensaio, 2,0 mL do extrato foram adicionados a 3,0 mL de solução tampão de acetato de sódio 0,4 M (pH 4,5). As misturas foram

homogeneizadas, mantidas em repouso por 15 minutos e filtradas. Em seguida, as absorbâncias foram medidas em 530 e 700 nm (Modelo WUV – M51, WEBLABORSP, Mogi das Cruzes, São Paulo, Brasil). O conteúdo de antocianinas monoméricas será determinado pelas Equações 03 e 04.

$$A = (A_{520} \text{ nm/pH 1.00} - A_{700} \text{ nm/pH 1.00}) - (A_{520} \text{ nm/pH 4.50} - A_{700} \text{ nm/pH 4.50})$$

Equação 3

$$AMT = (A \varepsilon X L) \times MM \times 100 \times df \quad \text{Equação 4}$$

Em que:

A é a absorbância corrigida pela diferença entre as absorbâncias registradas nas leituras em pH 1,00 e pH 4,50;

ε é o coeficiente de extinção molar da antocianina;

L é o comprimento do caminho óptico (1 cm);

MM é a massa molecular da antocianina.

2.6 Preparo dos filmes

Os filmes foram preparados por meio da adaptação da metodologia descrita por Luchese et al. (2017), utilizando duas concentrações diferentes de PLBD e duas diferentes matrizes poliméricas (amido ou a associação de amido e CMC). Para isso, 1,2 g de glicerol foi adicionado a uma solução de amido em água previamente preparada (4% m/v). Então, foi adicionado o corante e solução de 1,5% m/v de CMC em água, em quantidades descritas na Tabela 1. Nos filmes em que não foi adicionada solução de CMC, massa equivalente de água foi adicionada para manter a proporção. Além disso, para cada matriz polimérica foi preparado um filme sem a adição do corante como controle, para avaliar possíveis interferências da matriz polimérica nos resultados obtidos. As variações testadas deram origem à seis diferentes formulações (Tabela 1).

Tabela 1 - Quantidades de corante e solução de CMC adicionadas.

Filme	PLBD (g)	Solução de CMC (1,5% m/v) (g)
-------	----------	----------------------------------

1	0	0
2	2	0
3	3	0
4	0	30
5	2	30
6	3	30

Após formuladas, as soluções filmogênicas foram mantidas em banho-maria com agitação (Solab, SL -155, Brasil) a 90 °C por uma hora, sendo agitadas manualmente com um bastão de vidro a cada 10 minutos. Após resfriadas até temperatura ambiente, as soluções foram peneiradas para garantir a homogeneidade e dispostas em placas de Petri (0,34 g/cm²) e levadas para secar em estufa ventilada (Solab, SL 102, Brasil) a 40 °C por 12 horas.

2.7 Caracterização dos filmes

Antes de serem caracterizados, os filmes foram estabilizados por pelo menos 48h em dissecador com solução saturada de nitrato de cálcio a uma umidade relativa de 52.2% e temperatura de 25 °C.

2.8 Avaliação subjetiva dos filmes

Os filmes foram subjetivamente avaliados por meio de uma escala de 3 pontos (bom, excelente ou ruim) com base em sua continuidade (ausência de pontos de fratura ou ruptura após a secagem), homogeneidade (ausência de partículas insolúveis ou bolhas vistas a olho nu, zonas de opacidade ou colorações diferentes) e manuseabilidade (facilidade de rompimento do filme) (MONTERREY & SOBRAL, 1999).

2.9 Biodegradabilidade

Um teste qualitativo de biodegradabilidade foi realizado com base em adaptações da metodologia descrita por Jaramillo et al. (2016), simulando o processo de degradação que ocorre naturalmente pela microbiota presente no ambiente. Para isso, os filmes foram cortados em retângulos (2 cm × 3 cm) e secos em estufa a 60 °C até massa constante. Então, foram acondicionados em uma malha de alumínio, previamente seca e pesada, e enterrados em solo a uma profundidade de aproximadamente 4 cm. A cada dois dias o solo foi pulverizado com água para manter a umidade em torno de 40%. Periodicamente (3, 7 e 15 dias) os filmes foram removidos e fotografados para a avaliação visual da biodegradabilidade.

2.10 Resposta colorimétrica dos filmes em soluções de diferentes valores de pH

Para avaliar a resposta colorimétrica dos filmes em diferentes valores de pH, os filmes foram cortados em quadrados de 3 cm x 3 cm e submersos em soluções-tampão de diferentes valores de pH (1, 3, 5, 7, 9, 11) por 10 minutos. Após, os filmes foram retirados e gentilmente secos com um papel absorvente fotografados para a avaliação subjetiva das mudanças de cor.

2.11 Análise estatística

Todas as análises citadas foram conduzidas em triplicada para cada amostra e os resultados foram expressos por médias \pm desvio padrão. Os dados foram analisados pelo programa STATISTICA 7.0 (Stati Soft, Inc., Tulsa, Okla., U.S.A.). As diferenças estatísticas foram comparadas por meio do teste F da análise de variância (ANOVA). Diferenças entre as médias foram estimadas pelo teste de Tukey e consideradas significativas a $p \leq 0,05$.

3 RESULTADOS E DISCUSSÃO

3.1 Liofilização, moagem e peneiramento

O processo de liofilização teve uma duração média de 10 dias. Após moagem e peneiramento, obteve-se um pó fino, de coloração arroxeadas, uniforme e estável, conforme apresentado na Figura 1:



Figura 1. Pó Liofilizado de Batata Doce (PLBD)

3.2 Rendimento

O rendimento do PLBD foi de $(26,19 \pm 3,25)\%$ da massa inicial de batata utilizada. Esse resultado corrobora o rendimento encontrado por Araújo et al. (2015) que relataram valores entre 18,43 e 25,25% quando produziram farinha de batata-doce secas a 40, 50 e 60 °C. Já Silva et al. (2020) encontraram 34% de rendimento ao elaborar farinha de batata-doce. No entanto, o processo foi conduzido utilizando a hortaliça com casca, o que pode justificar o

maior rendimento. Por outro lado, o resultado encontrado neste estudo foi significativamente superior aos relatados por Jaime et al. (2020) (9,66 e 15,31%) após produzirem farinha com batata-doce de duas diferentes localidades. Essas diferenças observadas podem ser causadas pelo teor inicial de umidade e matéria seca da amostra, técnica de secagem e parâmetros de processo utilizados (Pilon et al., 2020; R. D. S. Silva et al., 2020). Além disso, o rendimento pode ser afetado pela umidade final do produto. Ainda que tenha sido obtido um pó de umidade baixa (2,76 %), pode-se dizer que o rendimento encontrado no presente estudo é satisfatório e equivalente aos relatados obtidos em estudos com técnicas de secagem com menor capacidade na remoção de água.

3.3 Alteração visual de cor do PLBD em soluções de diferentes valores de pH

A alteração visual de cor do PLBD em soluções de diferentes valores de pH pode ser observada na Figura 2:

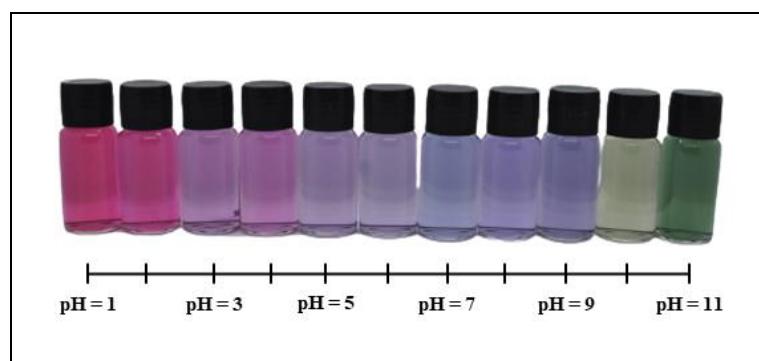


Figura 2. Percepção visual da alteração de cor do PLBD em diferentes valores de pH

Em pH 1, a solução apresentou coloração rosa intenso, mudando gradualmente para roxo com o aumento do pH. Ao atingir o pH 10, a solução começou a apresentar coloração verde, passando para um verde intenso em pH 11, respeitando as faixas de cor esperadas para as antocianinas em função do pH (Parizadeh et al., 2023). Essas alterações de cor são características das antocianinas, que têm sua coloração alterada dependendo da estrutura química que apresenta, influenciando também sua estabilidade (Damodaran et al., 2010). Em soluções aquosas, as antocianinas podem ocorrer em quatro formas estruturais, que irão sofrer alteração dependendo do pH do meio. Em valores baixos de pH (1-3), as antocianinas são muito estáveis e há a predominância do cátion flavílio, contribuindo para uma coloração tendendo ao rosa e vermelho. Com o aumento do pH (4-5), há a formação da pseudobase

incolor carbinol, resultando na perda de coloração. Quando o pH atinge a faixa de 6-7, ocorre a desprotonação e, consequentemente, a espécie predominante passa a ser a base quinoidal azul. Em valores de pH entre 7 e 8, há a predominância da chalcona, que também é praticamente incolor (Azzini et al., 2017; Damodaran et al., 2010).

3.4 Caracterização da batata-doce *in natura* e do pó liofilizado de batata-doce

O resultado da composição centesimal da batata-doce *in natura* e da batata-doce liofilizada em pó, assim como os teores de amido e antocianinas monoméricas totais, estão descritos na Tabela 2:

Tabela 2. Caracterização da batata-doce e do pó liofilizado de batata doce (PLBD)

Parâmetro	Batata-doce <i>in natura</i>	PLBD
Umidade (%)	66.76 ± 1.14 ^A	2.76 ± 0.06 ^B
Carboidratos totais (%)	68.37 ± 0.51 ^B	78.78 ± 0.15 ^A
Fibra alimentar total (%)	23.17 ± 0.31 ^A	14.08 ± 0.53 ^B
Proteínas (%)	4.84 ± 0.27 ^A	2,51 ± 0.08 ^B
Lipídeos (%)	1.23 ± 0.09 ^A	0.60 ± 0.06 ^B
Cinzas (%)	2.39 ± 0.14 ^A	1.27 ± 0.03 ^B
Amido (%)	58.57 ± 0.46 ^A	49.67 ± 2.47 ^B
Antocianinas Monoméricas		
totais	11.07 ± 0.24 ^B	60.58 ± 0.05 ^A
(mg.100 g ⁻¹)		

*valores expressos em base seca como média ± desvio padrão

Letras ^{A-B} diferentes na mesma linha indicam diferença significativa ($p < 0,05$).

O valor de umidade encontrado para a batata-doce *in natura* está compreendido na faixa reportada por Zhang et al. (2018) (2,6 - 73,6%) e Wang et al. (2020) (68,03 – 69,6%). Comparando ao valor encontrado para PLBD, fica evidente que o processo de liofilização empregado resultou em um teor de umidade significativamente mais baixo (2,72%). Além disso, o valor de umidade atingido é mais baixo quando comparado com resultados previamente reportados na literatura (Ahmed et al., 2010; Hernández-Santos et al., 2023; Qiu

et al., 2019). Tais resultados ilustram a eficiência de remoção de água do processo de liofilização empregado, que promoveu a drástica redução de água da matéria-prima utilizada.

O carboidrato foi o macronutriente de predominância tanto para batata-doce *in natura* quanto para o PLBD, apesar dos teores terem sido significativamente diferentes entre si. Dentre os carboidratos presentes na batata, o de destaque é o amido. O teor de amido encontrado foi de $58,57\% \pm 0,46$. Estudos apontam quantidades variáveis de amido em batata-doce de polpa roxa. Zhang et al. (2018), ao analisarem sete variedades de batata-doce de polpa roxa, relataram valores compreendidos entre 40,1% e 53,6%, caracterizando teores inferiores ao encontrado neste estudo. Tal faixa compreende os valores relatados por Wang et al. (2020) (41,07 e 48,61%). Por outro lado, Ji et al. (2015) reportaram o valor de 68,6% de amido, valor superior ao encontrado neste estudo. O valor de amido encontrado para o PLBD (49,67%) foi significativamente inferior ao da batata-doce *in natura*. O teor de amido reportado na literatura para farinhas de batata-doce roxa também foi variável. Zhang et al. (2022), ao estudar sete diferentes farinhas de batata-doce de polpa roxa, encontraram uma faixa de valores que compreende o teor reportado neste estudo (31,68 - 64,90%). Entretanto, Qiu et al. (2019) reportaram valor de amido superior (79,3 – 83,0%) ao avaliarem diferentes métodos de secagem para a produção de farinha de batata-doce de polpa roxa.

Em relação aos teores de proteínas, o valor encontrado para a batata-doce *in natura* (4,84%) foi superior à faixa relatada por Zhang et al. (2018) (1,92 – 3,84%) e inferior ao valor encontrado por Ji et al. (2015) (6,41). O valor de proteínas encontrado para PLBD (2,51%) foi significativamente inferior ao encontrado para a batata *in natura*. Tal valor também foi inferior ao reportado na literatura para farinhas de batata-doce de polpa roxa (Hernández-Santos et al., 2023; Qiu et al., 2019).

Os teores de lipídeos e cinzas da batata-doce *in natura* foram significativamente superiores aos encontrados para a PLBD. Os valores encontrados no PLBD para os dois nutrientes (0,6 e 1,27%), respectivamente, foram inferiores aos previamente relatados na literatura (Hernández-Santos et al., 2023; Qiu et al., 2019).

Por fim, o teor de antocianina monomérica foi significativamente superior no PLBD, quando comparado à batata-doce *in natura*. Tal incremento pode ser justificado pelo processo de cozimento empregado, que é conhecido por causar ruptura no tecido da batata liberando mais compostos antioxidantes, como as antocianinas (Cheong et al., 2022). Para PLBD, o teor de antocianinas monoméricas totais foi de $60.58 \text{ mg.}100 \text{ g}^{-1}$. Resultados similares foram reportados previamente. Pilon et al. (2020) encontraram valores entre 22,74 e 75,96 mg.100 g⁻¹.

¹ para farinhas produzidas por liofilização com seis diferentes genótipos de batata-doce roxa. Tal resultado evidencia a presença de antocianinas de forma destacável no PLBD após o processamento, o que é de extrema importância para a aplicação proposta, uma vez que tal flavonoide apresenta a capacidade de alteração de cor em diferentes valores de pH, possibilitando sua utilização como sensor indicador de alterações de pH (Rodrigues et al., 2021).

As variações observadas na composição química em comparação com resultados previamente apresentados são naturais de matérias-primas vegetais e podem ocorrer devido à variedade utilizada, técnicas de manejo e cultivo, disponibilidade de água e de nutrientes. Além disso, podem sofrer influência das técnicas pós-colheita aplicadas, parâmetros e técnicas de processamento e, ainda, pela técnica analítica utilizada (Morais, 2009; Qiu et al., 2019; L. Zhang et al., 2022). Em relação às variações observadas entre a batata-doce in natura e o PLBD, acredita-se que foram decorrentes do cozimento empregado durante o preparo do purê, conforme relatado previamente por outros autores (Cheong et al., 2022; Ogliari et al., 2020), uma vez que a liofilização é uma técnica de remoção conhecida por preservar as características sensoriais e nutricionais dos alimentos (Nowak & Jakubczyk, 2020).

3.5 Avaliação subjetiva do filme

A Tabela 3 apresenta os resultados da avaliação subjetiva dos filmes em uma escala de três pontos: excelente (3), bom (2) e ruim (1).

Tabela 3. Avaliação subjetiva dos filmes

Filme	Continuidade	Homogeneidade	Manuseabilidade
F1	1	3	3
F2	2	2	3
F3	2	1	3
F4	2	3	3
F5	3	2	3
F6	3	1	3

A análise subjetiva dos filmes mostrou que nenhuma das amostras apresentou dificuldade para ser retirada das placas de Petri e manuseadas. Além disso, a inclusão do pó melhorou a continuidade dos filmes, mas diminuiu a homogeneidade, resultando em amostras

com partículas insolúveis visíveis. Isso pode ser um fator limitante se o objetivo fosse desenvolver uma embalagem, mas não deve ser um problema no desenvolvimento do sensor proposto, que será um dispositivo acoplado à embalagem. Por fim, a adição de CMC resultou em estruturas mais contínuas, com ruptura menos visível.

O uso de CMC para melhorar as propriedades dos filmes de amido já foi relatado anteriormente. Os efeitos podem estar associados à semelhança da estrutura de ambos os polímeros e à interação dos grupos hidroxila do amido com os grupos carboxila CMC, que tornam a estrutura molecular da blenda mais compacta, melhorando características como resistência à água e propriedades mecânicas dos filmes à base de amido (Y. Li et al., 2008; Ma et al., 2008; Tavares et al., 2019).

3.6 Biodegradabilidade

A Biodegradabilidade foi avaliada visualmente por um teste qualitativo. Os resultados são mostrados na Figura 3.

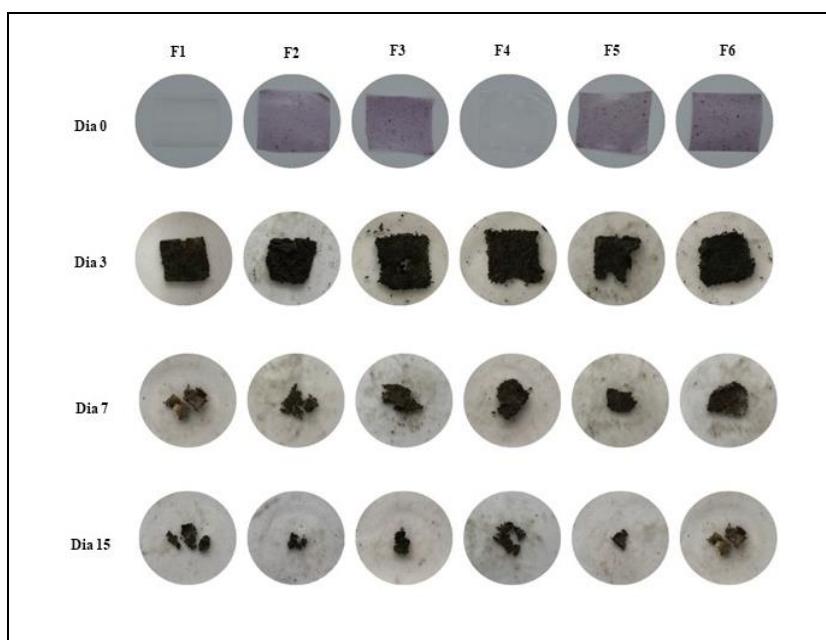


Figura 3. Biodegradação dos Filmes

O processo de biodegradação pode ser definido como a degradação de substâncias orgânicas causada por organismos vivos (Shah et al., 2008). Por meio desse processo, as propriedades físicas e químicas dos materiais poliméricos podem ser completamente degradadas resultando na redução do acúmulo de materiais no ambiente, aumento da fertilidade do solo, redução do custo do gerenciamento de resíduos, produção de metabólitos úteis durante o processo de degradação e redução da emissão de gases de efeito estufa (Babu et al., 2013; Tokiwa et al., 2009).

A análise mostrou que os filmes começaram a apresentar pequenas alterações em sua integridade após 3 dias, com um ínfimo destaque para a amostra F5. No décimo quinto dia de estudo, a degradação quase completa foi alcançada, sem diferença visual significativa detectada entre as amostras. Este resultado sugere que nem a quantidade de pó nem a adição de CMC influenciaram o processo de biodegradação e evidenciam a alta biodegradabilidade dos materiais desenvolvidos.

Estudos anteriores já relataram a rápida biodegradabilidade de amido e filmes à base de amido e CMC. Boeira et al. (2022) relataram que os filmes de amido de milho e gelatina desenvolvidos degradaram completamente antes do décimo dia de estudo. Da mesma forma, Abdillah e Charles (2021) desenvolveram filmes biodegradáveis à base de amido de araruta e carragenina. Embora a biodegradabilidade tenha diminuído com a adição da carragenina, as amostras degradaram completamente após 7, 14 ou 30 dias, dependendo da formulação. S. Li et al. (2020) desenvolveram filmes probióticos altamente biodegradáveis à base de amido de mandioca e CMC cuja perda de massa aumentou com o tempo.

Este estudo, portanto, evidenciou o baixo tempo de degradação dos filmes desenvolvidos, demonstrando a sua biocompatibilidade e sugerindo que poderiam ser descartados sem qualquer intervenção industrial, reduzindo impactos ambientais e econômicos.

3.7 Resposta colorimétrica dos filmes em soluções de diferentes valores de pH

A Figura 4 apresenta a resposta colorimétrica dos filmes após serem submersos em soluções tampões de diferentes valores de pH:

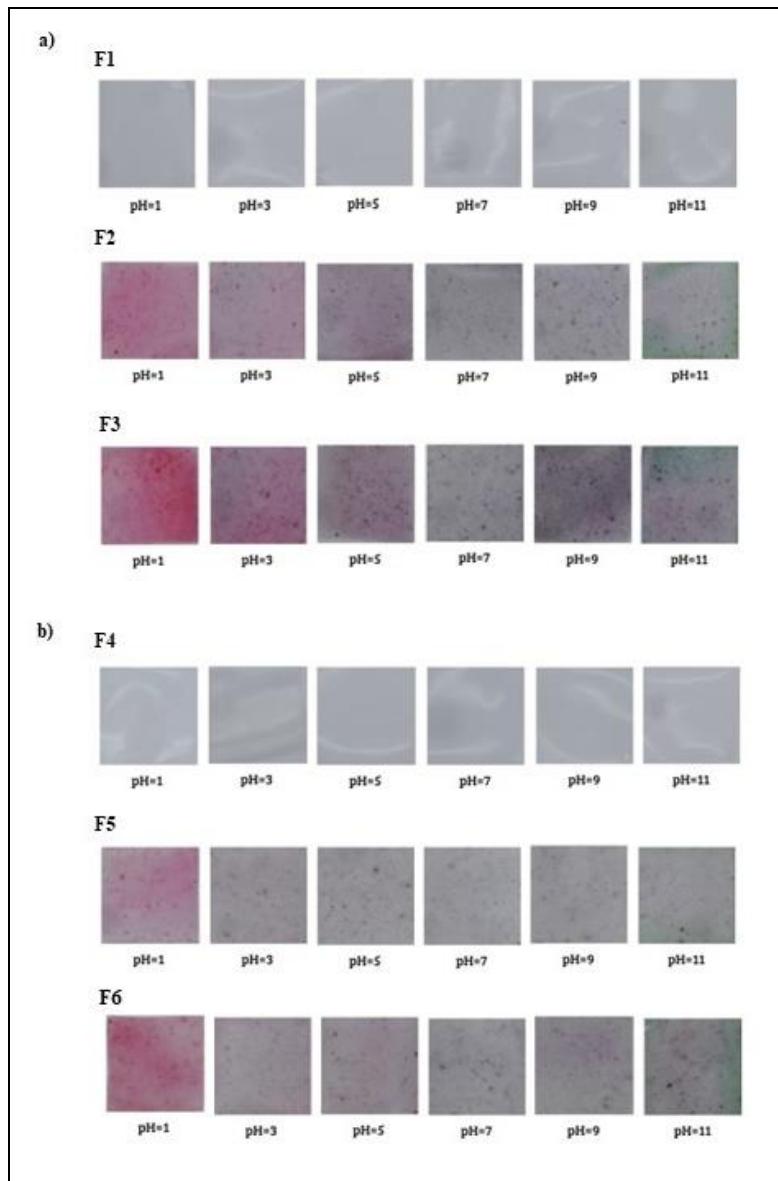


Figura 4. Resposta colorimétrica dos filmes em soluções de diferentes valores de pH

Os filmes 1 e 4 não tiveram suas cores alteradas quando expostas aos diferentes valores de pH, indicando que ambas as matrizes poliméricas testadas podem ser utilizadas para a inclusão do corante. Estudos anteriores corroboraram tal resultado, uma vez que amido e CMC já foram anteriormente utilizados com sucesso para a imobilização de antocianinas no desenvolvimento de filmes indicadores de pH (Jiang et al., 2020). Por outro lado, as quatro formulações contendo o corante apresentaram variação do rosa para o roxo acinzentado, tendendo ao verde, com o aumento do pH do 1 para o 11. Tal mudança foi levemente influenciada pela quantidade de PLBD utilizada, sendo a variação mais pronunciada para as formulações com maior quantidade de PLBD (F3 e F6). Tal efeito se manteve no teste de aplicação realizado em carne moída, uma vez que os filmes desenvolvidos se tornaram verdes

com o aumento de pH da carne ocasionado pelo desenvolvimento de micro-organismos, evidenciando sua aplicabilidade no desenvolvimento de embalagens inteligentes para avaliação qualitativa em alimentos (Silva et al., 2023). A variação de cor observada ocorre devido às mudanças de conformação que as antocianinas sofrem em sua estrutura química dependendo do pH do meio aquoso em que se encontram (Castañeda-Ovando et al., 2009; Rakić et al., 2019). Tal resultado está em consonância com estudos previamente realizados utilizando extratos de antocianinas de diversas fontes para o desenvolvimento de filmes indicadores de pH, como repolho roxo (Liu et al., 2021), arroz rico em antocianinas (*riceberry*) (Eze et al., 2022), mirtilo (Bao et al., 2022; X. Zhang et al., 2022) e batata-doce de polpa roxa (Choi et al., 2017). Dessa forma, a utilização do PLBD para o desenvolvimento de filmes indicadores de pH, sem uma etapa prévia de extração, mostra-se viável. Por fim, a matriz polimérica exerceu pouca diferença na variação de cor. Entretanto, as formulações preparadas somente com amido apresentaram uma coloração levemente mais forte, facilitando a percepção visual de variação de cor.

4 CONSIDERAÇÕES FINAIS

O cozimento prévio da batata-doce de polpa roxa reduziu significativamente os teores de carboidrato, fibra alimentar, proteína, lipídeo, cinzas e amido no pó liofilizado, contudo aumentou consideravelmente a concentração de antocianinas, sem a necessidade de extração química prévia. Somado a isso, o processo de liofilização se mostrou uma boa estratégia para a remoção de água da amostra, uma vez que, por meio dele, foi possível obter um pó de coloração uniforme e estável, além de apresentar um rendimento satisfatório. Dessa forma, o PLBD desenvolvido conteve quantidade de antocianina suficiente para apresentar alteração de cor visível quanto exposta às soluções de diferentes valores de pH, apresentou estabilidade, mostrando-se promissor para a avaliação de alterações de pH.

As matrizes poliméricas utilizadas, amido e CMC, foram eficazes para a imobilização das antocianinas, uma vez que suas cores se mantiveram estáveis à variação de pH testada. Os filmes desenvolvidos mostraram-se biodegradáveis e foram capazes de modificar sua coloração de forma satisfatória e visualmente perceptível a olho nu, variando de coloração rosa a tons esverdeados quando o pH aumentou de 1 para 11, indicando seu potencial para serem utilizados como filmes inteligentes e biodegradáveis para a avaliação qualitativa de alimentos.

5 AGRADECIMENTOS

Os autores agradecem ao Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq) e à Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior (CAPES).

6 REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- Abdillah, A. A., & Charles, A. L. (2021). Characterization of a natural biodegradable edible film obtained from arrowroot starch and iota-carrageenan and application in food packaging. *International Journal of Biological Macromolecules*, 191, 618–626.
- Ahmed, M., Akter, M. S., & Eun, J. B. (2010). Peeling, drying temperatures, and sulphite-treatment affect physicochemical properties and nutritional quality of sweet potato flour. *Food Chemistry*, 121(1), 112–118.
- Alizadeh-Sani, M., Tavassoli, M., Mohammadian, E., Ehsani, A., Khaniki, G. J., Priyadarshi, R., & Rhim, J. W. (2021). pH-responsive color indicator films based on methylcellulose/chitosan nanofiber and barberry anthocyanins for real-time monitoring of meat freshness. *International Journal of Biological Macromolecules*, 166, 741–750.
- Araújo, C. P. de, Andrade, F. H. A. de, Oliveira Galdino, P. O., & Pinto, M. do S. de C. (2015). Desidratação de batata-doce para fabricação de farinha. *Agropecuária Científica No Semiárido*, 4(11), 33–41.
- Asioli, D., Aschemann-Witzel, J., Caputo, V., Vecchio, R., Annunziata, A., Næs, T., & Varela, P. (2017). Making sense of the “clean label” trends: A review of consumer food choice behavior and discussion of industry implications. *Food Research International*, 99, 58–71.
- Azzini, E., Giacometti, J., & Russo, G. L. (2017). Antiobesity Effects of Anthocyanins in Preclinical and Clinical Studies. *Oxidative Medicine and Cellular Longevity*.
- Babu, R. P., O'Connor, K., & Seeram, R. (2013). Current progress on bio-based polymers and their future trends. *Progress in Biomaterials*, 8(2), 1–16.
- Bao, Y., Cui, H., Tian, J., Ding, Y., Tian, Q., Zhang, W., Wang, M., Zang, Z., Sun, X., Li, D., Si, X., & Li, B. (2022). Novel pH sensitivity and colorimetry-enhanced anthocyanin indicator films by chondroitin sulfate co-pigmentation for shrimp freshness monitoring. *Food Control*, 131.
- Becerril, R., Nerín, C., & Silva, F. (2021). Bring some colour to your package: Freshness indicators based on anthocyanin extracts. *Trends in Food Science and Technology*, 111(January), 495–505.
- Boeira, C. P., Flores, D. C. B., Alves, J. dos S., Moura, M. R. de, Melo, P. T. S., Rolim, C. M. B., Nogueira-Librelootto, D. R., & Rosa, C. S. da. (2022). Effect of corn stigma extract on physical and antioxidant properties of biodegradable and edible gelatin and corn starch films. *International Journal of Biological Macromolecules*, 208(March), 698–706.

Castañeda-Ovando, A., Pacheco-Hernández, M. de L., Páez-Hernández, M. E., Rodríguez, J. A., & Galán-Vidal, C. A. (2009). Chemical studies of anthocyanins: A review. *Food Chemistry*, 113(4), 859–871.

Chen, S., Wu, M., Lu, P., Gao, L., Yan, S., & Wang, S. (2020). Development of pH indicator and antimicrobial cellulose nanofibre packaging film based on purple sweet potato anthocyanin and oregano essential oil. *International Journal of Biological Macromolecules*, 149, 271–280.

Cheng, H., Xu, H., Julian McClements, D., Chen, L., Jiao, A., Tian, Y., Miao, M., & Jin, Z. (2022). Recent advances in intelligent food packaging materials: Principles, preparation and applications. *Food Chemistry*, 375(December 2021), 131738.

Cheong, J. J., Ahmad, F., & Tengku Rozaina, T. M. (2022). Effects of cooking methods on physicochemical properties, antioxidant properties and sensory acceptability of purple sweet potato (*Ipomoea batatas*). *Food Research*, 6(6), 257–266.

Choi, I., Lee, J. Y., Lacroix, M., & Han, J. (2017). Intelligent pH indicator film composed of agar/potato starch and anthocyanin extracts from purple sweet potato. *Food Chemistry*, 218, 122–128.

Damodaran, S., Parkin, K. L., & Fennema, O. R. (2010). *Química de Alimentos de Fennema* (4a ed.). Artmed, Porto Alegre, Brasil. 900p.

Du, H., Yang, H., Wang, X., Zhu, F., Tang, D., Cheng, J., & Liu, X. (2021). Effects of mulberry pomace on physicochemical and textural properties of stirred-type flavored yogurt. *Journal of Dairy Science*, 104(12), 12403–12414.

Etxabide, A., Kilmartin, P. A., & Maté, J. I. (2021). Color stability and pH-indicator ability of curcumin, anthocyanin and betanin containing colorants under different storage conditions for intelligent packaging development. *Food Control*, 121.

Eze, F. N., Jayeoye, T. J., & Singh, S. (2022). Fabrication of intelligent pH-sensing films with antioxidant potential for monitoring shrimp freshness via the fortification of chitosan matrix with broken Riceberry phenolic extract. *Food Chemistry*, 366, 130574.

Food and Agriculture Organization of the United Nations - FAO. (2019). The State of Food and Agriculture 2019. Moving forward on food loss and waste reduction. Rome. Licence: CC BY-NC-SA 3.0 IGO.

Food and Drug Administration (FDA – USA) (2019). *Confused by Date Labels on Packaged Foods*. Disponível em: <https://www.fda.gov/consumers/consumer-updates/confused-date-labels-packaged-foods>. Acessado em: 21 de abril de 2023.

Ghosh, S., Sarkar, T., Das, A., & Chakraborty, R. (2022). Natural colorants from plant pigments and their encapsulation: An emerging window for the food industry. *Lwt*, 153, 112527.

Hernández-Santos, B., Lerdo-Reyes, A. A., Téllez-Morales, J. A., & Rodríguez-Miranda, J. (2023). Chemical composition, techno-functional properties, and bioactive components of

blends of blue corn/purple sweet potato for its possible application in the food industry. *Journal of Food Measurement and Characterization*, 17(2), 1909–1920.

IAL, I. A. L. (2008). Métodos físicos-químicos para análise de Alimentos - 4^a Edição., *Istituto Afonso Lutz* (IV edição, Vol. 9), São Paulo, Brasil.

Jaime, C. E. F., Camargo, V. C. dos S., Azevedo, N. C., & Enes, C. C. (2020). Obtaining of biofortified sweetpotato flour. *Brazilian Journal of Development*, 6(3), 10958–10979.

Jantanarakulwong, K., Wongsuriyasak, S., Rachtanapun, P., Seesuriyachan, P., Chaiyaso, T., Leksawasdi, N., & Techapun, C. (2018). Mechanical properties improvement of thermoplastic corn starch and polyethylene-grafted-maleicanhydride blending by Na⁺ ions neutralization of carboxymethyl cellulose. *International Journal of Biological Macromolecules*, 120, 297–301.

Jaramillo, C. M., Gutiérrez, T. J., Goyanes, S., Bernal, C., & Famá, L. (2016). Biodegradability and plasticizing effect of yerba mate extract on cassava starch edible films. *Carbohydrate Polymers*, 151, 150–159.

Ji, C., Zhang, Z., Zhang, B., Chen, J., Liu, R., Song, D., Li, W., Lin, N., Zou, X., Wang, J., & Guo, S. (2021). Purification, characterization, and in vitro antitumor activity of a novel glucan from the purple sweet potato Ipomoea Batatas (L.) Lam. *Carbohydrate Polymers*, 257, 117605.

Ji, H., Zhang, H., Li, H., & Li, Y. (2015). Analysis on the Nutrition Composition and Antioxidant Activity of Different Types of Sweet Potato Cultivars. *Food and Nutrition Sciences*, 06(01), 161–167.

Jiang, G., Hou, X., Zeng, X., Zhang, C., Wu, H., Shen, G., Li, S., Luo, Q., Li, M., Liu, X., Chen, A., Wang, Z., & Zhang, Z. (2020). Preparation and characterization of indicator films from carboxymethyl-cellulose/starch and purple sweet potato (Ipomoea batatas (L.) lam) anthocyanins for monitoring fish freshness. *International Journal of Biological Macromolecules*, 143, 359–372.

Kalpana, S., Priyadarshini, S. R., Maria Leena, M., Moses, J. A., & Anandharamakrishnan, C. (2019). Intelligent packaging: Trends and applications in food systems. *Trends in Food Science and Technology*, 93, 145–157.

Lee, J., Durst, R. W., & Wrolstad, R. E. (2005). Determination of total monomeric anthocyanin pigment content of fruit juices, beverages, natural colorants, and wines by the pH differential method: Collaborative study. *Journal of AOAC International*, 88(5), 1269–1278. Li, S., Ma, Y., Ji, T., Sameen, D. E., Ahmed, S., Qin, W., Dai, J., Li, S., & Liu, Y. (2020). Cassava starch/carboxymethylcellulose edible films embedded with lactic acid bacteria to extend the shelf life of banana. *Carbohydrate Polymers*, 248, 116805.

Li, Y., Shoemaker, C. F., Ma, J., Shen, X., & Zhong, F. (2008). Paste viscosity of rice starches of different amylose content and carboxymethylcellulose formed by dry heating and the physical properties of their films. *Food Chemistry*, 109(3), 616–623.

Liu, D., Cui, Z., Shang, M., & Zhong, Y. (2021). A colorimetric film based on polyvinyl alcohol/sodium carboxymethyl cellulose incorporated with red cabbage anthocyanin for

monitoring pork freshness. *Food Packaging and Shelf Life*, 28, 100641.

Luchese, C. L., Sperotto, N., Spada, J. C., & Tessaro, I. C. (2017). Effect of blueberry agro-industrial waste addition to corn starch-based films for the production of a pH-indicator film. *International Journal of Biological Macromolecules*, 104, 11–18.

Ma, X., Chang, P. R., & Yu, J. (2008). Properties of biodegradable thermoplastic pea starch/carboxymethyl cellulose and pea starch/microcrystalline cellulose composites. *Carbohydrate Polymers*, 72(3), 369–375.

Mansur, T. K., de Campos, A., Luchesi, B. R., Resende, A. A., de Oliveira, J. E., & Marconcini, J. M. (2020). Effect of carboxymethyl cellulose concentration on mechanical and water vapor barrier properties of corn starch films. *Carbohydrate Polymers*, 246, 116521.

Meng, M., Sun, Y., Qi, Y., Xu, J., Sun, J., Bai, Y., Han, L., Han, R., Hou, L., & Sun, H. (2023). Structural characterization and induction of tumor cell apoptosis of polysaccharide from purple sweet potato (*Ipomoea batatas* (L.) Lam). *International Journal of Biological Macromolecules*, 235, 123799.

Mir-Cerdà, A., Nuñez, O., Granados, M., Sentellas, S., & Saurina, J. (2023). An overview of the extraction and characterization of bioactive phenolic compounds from agri-food waste within the framework of circular bioeconomy. *TrAC - Trends in Analytical Chemistry*, 161.

MONTERREY, E. S., & SOBRAL, P. J. do A. (1999). Caracterização de propriedades mecânicas e óticas de biofilmes a base de proteínas miofibrilares de tilápia do nilo usando uma metodologia de superfície-resposta. *Ciência e Tecnologia de Alimentos*, 19(2).

Morais, L. A. S. (2009). Influência Dos Fatores Ambióticos Na Composição Química Dos Óleos Essenciais. *Horticultura Brasileira*, 27(2), 4050–4063.

Muthuraj, R., Misra, M., & Mohanty, A. K. (2018). Biodegradable compatibilized polymer blends for packaging applications: A literature review. *Journal of Applied Polymer Science*, 135(24), 35.

Neves, D., Andrade, P. B., Videira, R. A., de Freitas, V., & Cruz, L. (2022). Berry anthocyanin-based films in smart food packaging: A mini-review. *Food Hydrocolloids*, 133, 107885.

Nowak, D., & Jakubczyk, E. (2020). The Freeze-Drying of Foods—The Characteristic of the Process Course and the Effect of Its Parameters on the Physical Properties of Food Materials. *Foods*, 9(1488), 1–27.

Ogliari, R., Soares, J. M., Teixeira, F., Schwarz, K., Da Silva, K. A., Schiessel, D. L., & Novello, D. (2020). Chemical, Nutritional and Sensory Characterization of Sweet Potato Submitted To Different Cooking Methods. *International Journal of Research - GRANTHAALAYAH*, 8(10), 147–156.

ONU. (2015). Transformando Nosso Mundo: A Agenda 2030 para o Desenvolvimento Sustentável. Disponível em: <https://brasil.un.org/pt-br/sdgs>, acessado em 22 de abril de 2023.

Parizadeh, P., Moeinpour, F., & Mohseni-Shahri, F. S. (2023). Anthocyanin-induced color

changes in bacterial cellulose nanofibers for the accurate and selective detection of Cu(II) in water samples. *Chemosphere*, 326, 138459.

Pilon, L., Wartha, C. C., Martins Rossetto, L., Goncalvez de Souza, D., Castro e Melo, R. A. de, & Vendrame, L. P. de C. (2020). Avaliação físico-química e compostos bioativos de farinhas de batatas-doces de polpa roxa. *Boletim de Pesquisa e Desenvolvimento*, 202.

Qiu, G., Jiang, Y., & Deng, Y. (2019). Drying characteristics, functional properties and in vitro digestion of purple potato slices dried by different methods. *Journal of Integrative Agriculture*, 18(9), 2162–2172.

Rakić, V., Rinnan, Å., Polak, T., Skrt, M., Miljković, M., & Ulrih, N. P. (2019). pH-induced structural forms of cyanidin and cyanidin 3-O- β -glucopyranoside. *Dyes and Pigments*, 165(June 2018), 71–80.

Rodrigues, C., Souza, V. G. L., Coelhoso, I., & Fernando, A. L. (2021). Bio-Based Sensors for Smart Food Packaging—Current Applications and Future Trends. *Sensors*, 21(2148), 157–202.

Santos, L. G., & Martins, V. G. (2023). Optimization of the green extraction of polyphenols from the edible flower Clitoria ternatea by high-power ultrasound: a comparative study with conventional extraction techniques. *Journal of Applied Research on Medicinal and Aromatic Plants*, 34(January), 100458.

Shah, A. A., Hasan, F., Hameed, A., & Ahmed, S. (2008). Biological degradation of plastics: A comprehensive review. *Biotechnology Advances*, 26(3), 246–265.

Silva, M. T. de C., da Cunha Júnior, P. C., Miranda, C. G., Sato, A. C. K., Machado, M. T. da C., & Ferreira, E. H. da R. (2023). Development and application of pH-indicator film based on freeze-dried purple-fleshed sweet potato, starch, and CMC. *International Journal of Food Science & Technology*.

Silva, R. D. S., Arcanjo, N. M., Morais, J. L. De, Cristina, A., Martins, S., Jerônimo, M. Â., & Ribeiro, A. (2020). Elaboration and physicochemical characterization of sweet potato flour (Ipomoea batatas L.). *Revista Brasileira de Gestão Ambiental*, 14(01), 127–131.

Tarone, A. G., Cazarin, C. B. B., & Marostica Junior, M. R. (2020). Anthocyanins: New techniques and challenges in microencapsulation. *Food Research International*, 133, 109092. Tavares, K. M., de Campos, A., Mitsuyuki, M. C., Luchesi, B. R., & Marconcini, J. M. (2019). Corn and cassava starch with carboxymethyl cellulose films and its mechanical and hydrophobic properties. *Carbohydrate Polymers*, 223, 115055.

Tokiwa, Y., Calabia, B. P., Ugwu, C. U., & Aiba, S. (2009). Biodegradability of plastics. *International Journal of Molecular Sciences*, 10(9), 3722–3742.

Wang, H., Yang, Q., Ferdinand, U., Gong, X., Qu, Y., Gao, W., Ivanistau, A., Feng, B., & Liu, M. (2020). Isolation and characterization of starch from light yellow, orange, and purple sweet potatoes. *International Journal of Biological Macromolecules*, 160, 660–668.

Yin, W., Qiu, C., Ji, H., Li, X., Sang, S., McClements, D. J., Jiao, A., Wang, J., & Jin, Z.

(2023). Recent advances in biomolecule-based films and coatings for active and smart food packaging applications. *Food Bioscience*, 52, 102378.

Yousefi, H., Su, H. M., Imani, S. M., Alkhaldi, K., Filipe, C. D., & Didar, T. F. (2019). Intelligent Food Packaging: A Review of Smart Sensing Technologies for Monitoring Food Quality. *ACS Sensors*, 4(4), 808–821.

Zhang, L., Gao, Y., Deng, B., Ru, W., Tong, C., & Bao, J. (2022). Physicochemical, Nutritional, and Antioxidant Properties in Seven Sweet Potato Flours. *Frontiers in Nutrition*, 9.

Zhang, L., Zhao, L., Bian, X., Guo, K., Zhou, L., & Wei, C. (2018). Characterization and comparative study of starches from seven purple sweet potatoes. *Food Hydrocolloids*, 80, 168–176.

Zhang, X., Zou, W., Xia, M., Zeng, Q., & Cai, Z. (2022). Intelligent colorimetric film incorporated with anthocyanins-loaded ovalbumin-propylene glycol alginate nanocomplexes as a stable pH indicator of monitoring pork freshness. *Food Chemistry*, 368(April 2021), 130825.

Zhao, L., Liu, Y., Zhao, L., & Wang, Y. (2022). Anthocyanin-based pH-sensitive smart packaging films for monitoring food freshness. *Journal of Agriculture and Food Research*, 9(June), 100340.

CAPÍTULO III

**DEVELOPMENT AND APPLICATION OF PH-INDICATOR FILM
BASED ON FREEZE-DRIED PURPLE-FLESHED SWEET POTATO,
STARCH, AND CMC**

Artigo publicado na revista International Journal of Food Science and Technology

Mariá Toledo de Carvalho Silva,¹* Paulo Cesar da Cunha Junior,¹ Cristiane Grella Miranda,² Ana Carla Kawazoe Sato,² Mariana Teixeira da Costa Machado¹ & Elisa Helena da Rocha Ferreira¹

1 Department of Food Technology, Institute of Technology, Federal Rural University of Rio de Janeiro (UFRRJ), Seropédica, Brazil

2 School of Food Engineering, University of Campinas, São Paulo, Brazil

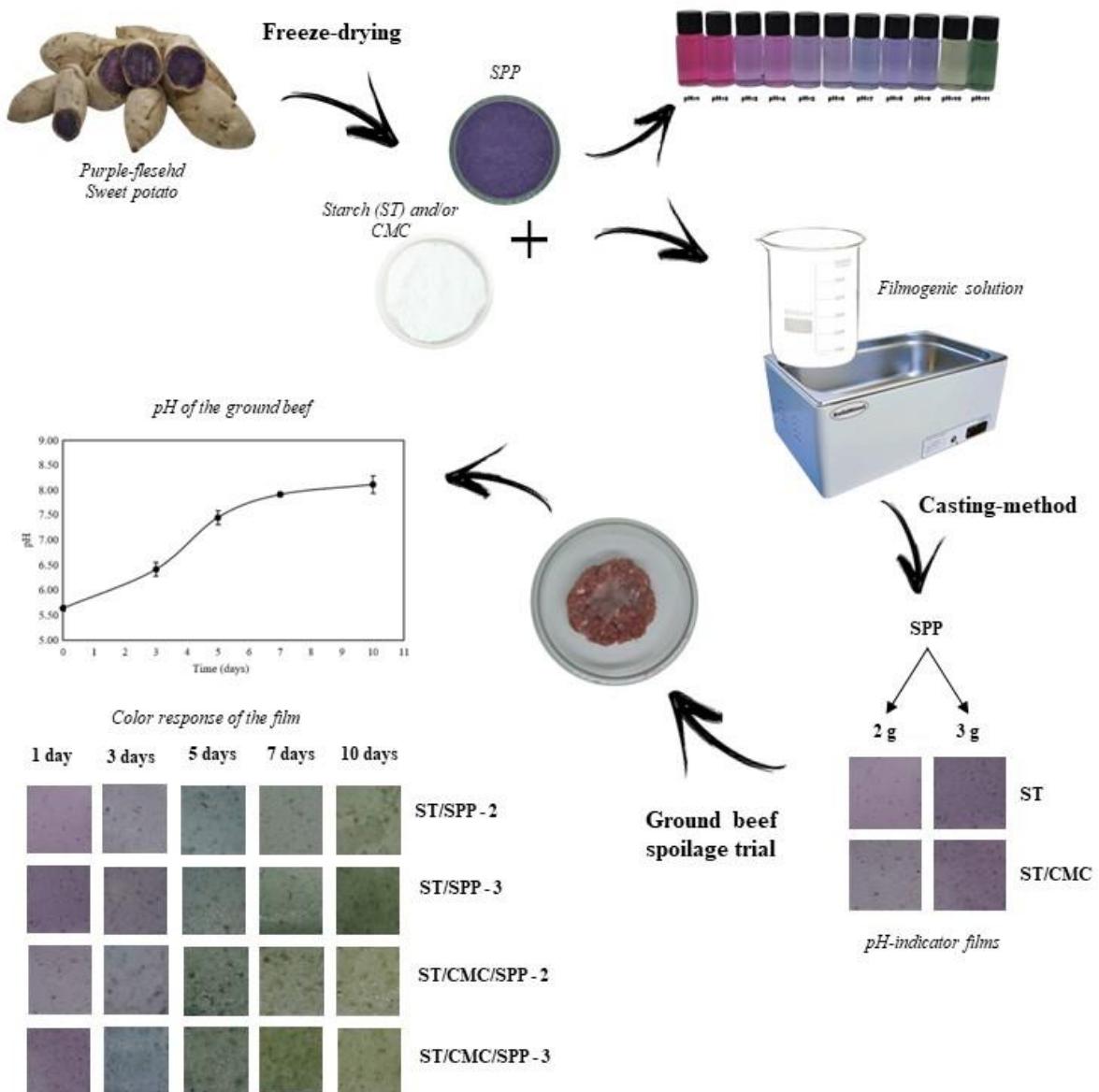
(Received 2 February 2023; Accepted in revised form 14 April 2023)

ABSTRACT

Smart packaging is an emergent solution commonly used to indicate the current quality and freshness of the food. In this study, a pH indicator film without an anthocyanin-extraction step was developed, based on purple-fleshed sweet potato powder (SPP) prepared by freeze drying process, with starch or starch and carboxymethyl cellulose (CMC). The colour of the powder and the films changed from pink to green with the pH change from 1 to 11. The effectiveness of the indicator films was assessed by the ground beef spoilage trial, which resulted in a colour change from purple to green when the pH of the meat raised from 5.54 to 7.92. The microbiological growth and the sensory changes of the meat confirmed the deterioration process. Therefore, developed indicator films could successfully indicate the spoilage of packaged ground beef.

Keywords: Anthocyanins, food spoilage, freshness indicator.

GRAPHICAL ABSTRACT



1 INTRODUCTION

Eating habits can significantly impact humans' health (Biesalski et al., 2009). For this reason, food quality and safety are driving consumer purchasing decisions, and this concern is a trend in the food market (Guimarães et al., 2018).

Assuring the safety of highly perishable foods, such as meat products, can be challenging. The intrinsic characteristics of meat products – high water activity and concentration of available nutrients, and a low acid medium cause elevated perishability and ideal conditions for the development of spoilage microorganisms and common food-borne pathogens (Franco & Landgraf, 2004; Sun & Holley, 2012).

Several conditions can favour meat contamination and proliferation of microorganisms: failures in hygiene control, inadequacy of storage time and temperature, and excessive handling (Bogataj et al., 2020). The risk of proliferation of microorganisms is higher in ground beef because of the additional handling step and the consequent increase in the exposed surface of the food product. To preserve the hygienic-sanitary quality of ground beef and consequently the consumers' safety, proper packaging is essential, besides satisfactory hygienic conditions during handling (Chen et al., 2020a).

Traditionally, the main function of the packaging was to protect the food product along the supply chain (Yam et al., 2005; Brody et al., 2008). However, to meet consumers' demand about food safety and quality and the tendency to use environmentally friendly and biodegradable packaging materials, the development of active and smart packaging using biopolymers have been extensively studied. These packaging systems can actively interact with the food, improving its shelf-life (Esmaeili et al., 2020; Kamkar et al., 2021) or indicate to the consumer the quality and safety of the product (Lopez-Rubio et al., 2004; Yam, 2010; Rukchon et al., 2014). In both cases, they are useful to reduce food waste and prevent foodborne illness.

One kind of smart packaging extensively studied is direct freshness indicators with a colorimetric response to pH changes (Zhang et al., 2019). These pH changes occur during the deterioration process of the food caused by the action of microorganisms, enzymes, and/or oxidative processes in food, which release substances that make the media more basic or acidic, differing the food from its safety and quality standards. Several vegetables have in their composition sensitive compounds to pH variation evidenced by colour change, that can be used to fabricate smart packaging, especially matrices that have anthocyanins in their composition (Choi et al., 2017; Zhang et al., 2019).

Anthocyanins are flavonoids with pigmentation capacity and antioxidant potential responsible for the colour of several plants, such as red cabbage, blackberry, strawberry, grape, and blueberry (Li et al., 2017). The colour change of anthocyanins is influenced by the substitution of hydroxyl and methoxyl groups. With a greater amount of hydroxyl groups, anthocyanin tends to be blue, while the increase in methoxyl groups turns the colour to red (Francis, 1982). Even though the use of anthocyanin has been reported for the development of pH indicator films, it is usually used as extracts (Neves et al., 2022). The traditional extraction techniques can be laborious and environmentally problematic, since demand large amount of solvents and generates wastes (Mir-Cerdà et al., 2023; Santos & Martins, 2023).

Purple-fleshed sweet potato (*Ipomoea batatas* (L.) Lam) is a tuber that has a high concentration of anthocyanins (Lim et al., 2013). It is one of the most consumed and cultivated tuber worldwide. Because of its low input requirements and high adaptability, it is cultivated in different regions of the world, especially in China, which is the biggest producer (Tang et al., 2018). In addition, it has a high content of starch (Zhu & Sun, 2019). Starch is an interesting biopolymer because of its abundance, low-cost, renewability and biodegradability. However, its use for packaging application is limited because of its poor mechanical properties (Muthuraj et al., 2018). CMC is a natural cellulose derivative polymer. It is important because of its high viscosity, non-toxicity, and nonallergic properties (Jantanasakulwong et al., 2018). Since CMC is chemically compatible with starch, they have been blended to improve the physical properties of the developed films (Mansur et al., 2020).

Based on that, the main objective of our study was to develop an indicator film from purple-fleshed sweet potato, starch, and CMC, with no further anthocyanin extraction step. The pH-indicator film was applied in ground beef to evaluate its colour change response to the meat pH-change during the refrigerated storage.

2 MATERIALS AND METHODS

2.1 Materials

Purple-fleshed sweet potatoes (*Ipomoea batatas* (L.) Lam) were purchased from local Family Agriculture (Seropédica, RJ, Brazil). SSP was produced and characterised as described in Appendix S1. SSP composition are described in Table S1. Food-grade glycerol, CMC and frozen ground beef was obtained from local market (Seropédica, RJ, Brazil). Industrialised frozen ground beef was used to discard the effect of inadequate manipulation. Buffer solutions of pH 4 (potassium biphthalate/sodium hydroxide Ref:2739), pH 7 (disodium

phosphate/monobasic potassium phosphate Ref: 2740), and pH 10 (boric acid/potassium chloride Ref: 1902) were purchased from Neon Comercial Ltda. (São Paulo, Brazil). The other pH solutions were prepared by pH correction using 0.1 M HCl and 0.1 M NaOH, measuring the pH with a digital potentiometer (Ionlab, PHS3E, Brazil). The soluble starch CAS [9005-25-8] was purchased from Exodo Científica (São Paulo, Brazil). All other chemicals were of analytical grade.

2.2 Methods

2.2.1 Powder sensitivity to pH changes

The colorimetric sensitivity of SPP to pH changes was assessed with adaptations of the methodology described by Chen et al. (2020b). After the immersion of 0.30 g in 20 mL of buffer solutions ranging from pH 1 to 11 for 30 min, they were centrifuged at an RCF of 8409 g, using an analog centrifuge (FANEM, 204-N, Brazil) for 15 min. Photographs of the supernatants were recorded to detect the visual perception of the colour change. UV–Vis spectra of the solutions was analysed to evaluate the impact of pH on the optical properties using an UV–VIS spectrophotometer (WebLaborSP, UV-M51, Brazil) (400–700 nm).

2.2.2 Preparation of the films

The film was prepared based on the methodology described by Luchese et al. (2017) with some modifications. A 4% w/v solution of starch (ST) was prepared in 100 mL of distilled water, and 1.2 g of glycerol was added. SPP and a previously prepared solution of CMC dissolved in water were added as described in Table 1. Control samples without SPP were used to identify possible colour interference caused by the polymer matrix. Water was added to the formulations without CMC to correct the proportion (30 mL). Afterwards, the solutions were taken to a water bath (Solab, SL 155, Brazil) (90 °C, 1 h). After cooled to room temperature, the film-forming solutions were placed in disposable Petri dishes (0.34 g/cm²) and dried in a forced air oven (Solab, SL 102, Brazil) (40 °C, 12 h). The time and temperature were chosen based on preliminary tests, considering the lowest moisture content that did not affect the structure of the film.

Table 1. Amount of SPP, CMC solution (1,5%), and water added.

Sample	Sweet Potato Powder (g)	1.5% CMC Solution (g)
ST-Control	0	0
ST/SPP-2	2	0
ST/SPP-3	3	0
ST/CMC-Control	0	30
ST/CMC/SPP-2	2	30
ST/CMC/SPP-3	3	30

2.2.3 Characterisation of the films

Before characterisation, the films were stored for 48 h in a desiccator containing a saturated solution of calcium nitrate (52.2% relative humidity, 25 °C).

2.2.4 Moisture content (MC)

Moisture content was gravimetrically determined by the difference between the mass of the sample before and after oven drying at 105 °C IAL (2008).

2.2.5 Thickness

The thickness was manually measured in at least six distinct regions, except for the edges, using a digital micrometre (Zhang et al., 2019).

2.2.6 Total soluble matter (TSM)

TSM was determined based on the method described by Gontard et al. (1994). 2 cm diameter film disks were cut, weighed (mi), and immersed in 50 mL of distilled water for 24 h. The samples were filtered, dried (105 °C for 24 h), and weighed again (mf). TSM was calculated through the difference between mi and mf.

2.2.7 Colorimetric response to different pH values

The films were cut into 3 cm 9 3 cm pieces and submerged in 5 mL of different buffer solutions with pH values ranging from 1 to 11 for 10 min and photographed (Choi et al., 2017).

2.2.8 Mechanical properties

The tensile strength (TS), elongation at break (EB), and elastic modulus (EM) of the films were determined according to ASTM standard method D882–91 by a TA XT plus texture analyser (Stable Micro Systems, UK), operated with a crosshead speed of 1 mm/s and a gauge length of 50 mm. The preconditioned films were cut into rectangular strips (50 mm x 10 mm), and each sample was analysed at least 5 times at room temperature.

2.2.9 Ground beef spoilage trial

The effectiveness of the indicator film for detecting the deterioration of ground beef during spoilage was assessed through the methodology described by Kurek et al. (2019), with some modifications. The system was prepared with 20 g of ground beef placed in sterile Petri dishes. On the inner surface of the Petri dish, a 2 x 2 cm square of the indicator film was fixed without contact with the meat (Fig. S1). Meat samples without the film were used as controls. The samples were stored for 10 days at 4 °C and periodically evaluated (0, 3, 5, 7, and 10 days) for pH and microbiological quality of the meat and colour of the indicator films.

The pH of the ground beef was measured with a digital potentiometer (Ionlab, PHS-3E, Brazil) after the meat was mixed with distilled water in a processor in a ratio of 1:4 (meat:water) for 3 min. The colour variation was recorded through photographic records.

2.2.10 Microbiological growth during storage (4 °C)

In order to assess the microbiological growth during the refrigerated storage and evaluate the correlation with the spoilage process, the main deteriorating and pathogenic microorganisms occurring in meat were evaluated, according to the tests determined by the Brazilian normative instruction that establishes microbiological standards of food (Brasil, 2022). The initial and final count of *Salmonella* sp., positive-coagulase *Staphylococcus aureus* (36 °C), aerobic mesophilic microorganisms (36 °C), total coliforms (35 °C), and *Escherichia coli* on the ground beef was analysed following the methodologies recommended by APHA (2001), as described in Appendix S1

2.2.11 Statistical analysis

All tests were performed in triplicate for each sample, and the results were presented as means ± standard deviations. Data were analysed by STATISTICA 7.0 program (Statsoft, Inc., Tulsa, Okla., USA). The effect of the film formulation was compared by the Analysis of

variance (ANOVA) F test. Significant differences between the means were estimated using Tukey's test, considering differences significant at $P < 0.05$.

3 RESULTS AND DISCUSSION

3.1 Powder sensitivity to pH changes

As expected, the SPP gradually changed from a pink to green when the pH increased from 1 to 11 (Fig. 1). The maximum absorption peak had a positive correlation with the increase of pH, as previously reported (Chen et al., 2020b). At pH values lower than 4, the sample showed an intense pink colour, with maximum absorption peaks between 525 and 538 nm. As the pH increased and achieved the range from 5 to 9, the colour changed to purple, with the maximum peak around 575 nm. At pHs 10 and 11, the solution had a green colour, and the maximum absorption peak reached the range between 600 and 625 nm.

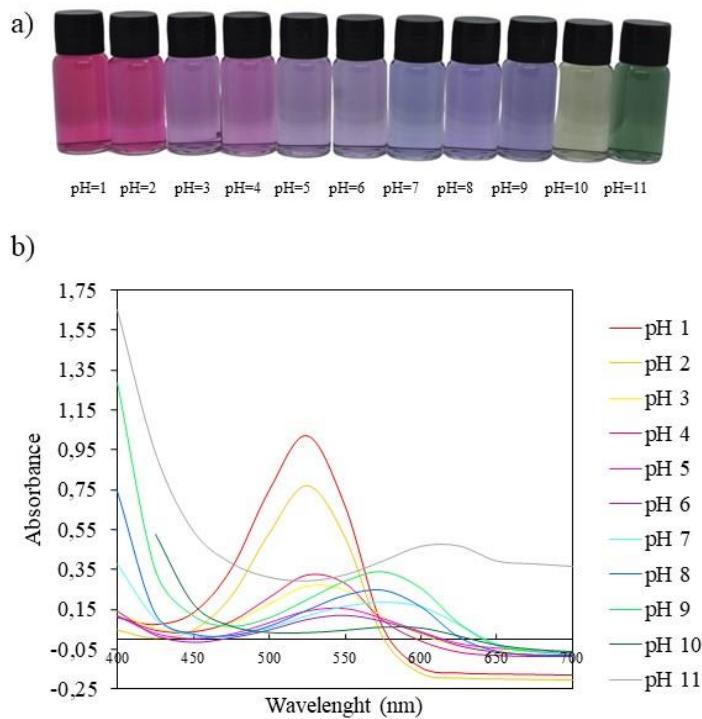


Figure 1. a) Color variation and b) UV-VIS spectra of SPP (pH 1-11).

The change of the maximum absorption peak due to the pH change is typical of anthocyanins and is called bathochromic shift. The light absorption band in the visible spectrum range changes from a small to a large wavelength, with consequent colour change

from red to purple/blue (Damodaran et al., 2010). This phenomenon is expected and caused by the changes in the chemical structure of anthocyanin due to the substitution of the hydroxyl and methoxyl groups. When the number of hydroxyl groups increases, anthocyanin tends to have a bluish colour. On the other hand, when the number of methoxyl groups raises, the colour tends to red (Francis, 1982). Similar results have been previously reported for anthocyanin extract of roselle (Zhang et al., 2019), and from purple-fleshed sweet potato (Choi et al., 2017; Jiang et al., 2020), proving that the use of SPP as a natural pH indicator without a previous extraction step is promising.

3.2 Characterisation of the films

The results of moisture, thickness, transparency, total soluble matter, and WVTR are summarised in Table 2. The moisture, thickness, and transparency of the films with different amounts of powder significantly differed, comparing the films with the same polymeric matrix (Table 2). As expected, the thinnest films were the control samples, and the thickness of the films was positively correlated with the concentration of the powder, which is related to the increase of the concentration of solids in the formulation. A similar effect was observed for the transparency of the films, which decreased with the addition of the powder, and is inversely related to the thickness and to the incorporation of pigmented particles that naturally established a barrier to the light, as previously reported (Alizadeh-Sani et al., 2021). The moisture, on the other hand, was inversely proportional to the amount of powder added, which was related to polar nature of the powder, which could form intermolecular hydrogen bonds with the hydrophilic groups of the polymeric matrices (starch and CMC) (Jiang et al., 2020). The total soluble matter content increased with the incorporation of the SPP and the CMC solution, which is expected and justified by the raise of the available hydrophilic sites to interact with water (Prietto et al., 2017).

Table 2. Moisture, thickness, transparency, and total soluble matter of the films.

Film sample	Thickness (mm)	Transparency (A ₆₀₀ mm ⁻¹)	Moisture Content (%)	Total soluble matter (%)
ST-Control	0.14 ^e ± 0.01	182.72 ^b ± 4.90	25.83 ^a ± 0.17	43.36 ^d ± 1.79
ST/SPP-2	0.23 ^b ± 0.01	117.63 ^c ± 10.09	18.14 ^c ± 0.30	45.88 ^{cd} ± 0.57
ST/SPP-3	0.27 ^a ± 0.00	89.08 ^d ± 2.00	17.52 ^d ± 0.25	49.51 ^b ± 0.53

ST/CMC-Control	$0.13^e \pm 0.01$	$356.29^a \pm 15.11$	$23.79^b \pm 0.23$	$47.34^{bc} \pm 1.76$
ST/CMC/SPP-2	$0.17^d \pm 0.00$	$165.57^b \pm 4.33$	$18.23^c \pm 0.06$	$56.49^a \pm 1.31$
ST/CMC/SPP-3	$0.20^c \pm 0.01$	$94.01^{cd} \pm 8.68$	$17.44^d \pm 0.07$	$57.98^a \pm 1.20$

a-e Different letters in the same column indicate significant differences ($p < 0.05$).

3.3 Colorimetric response of films to different pH values

Figure 2 shows the colorimetric response of the films in different pH buffer solutions.

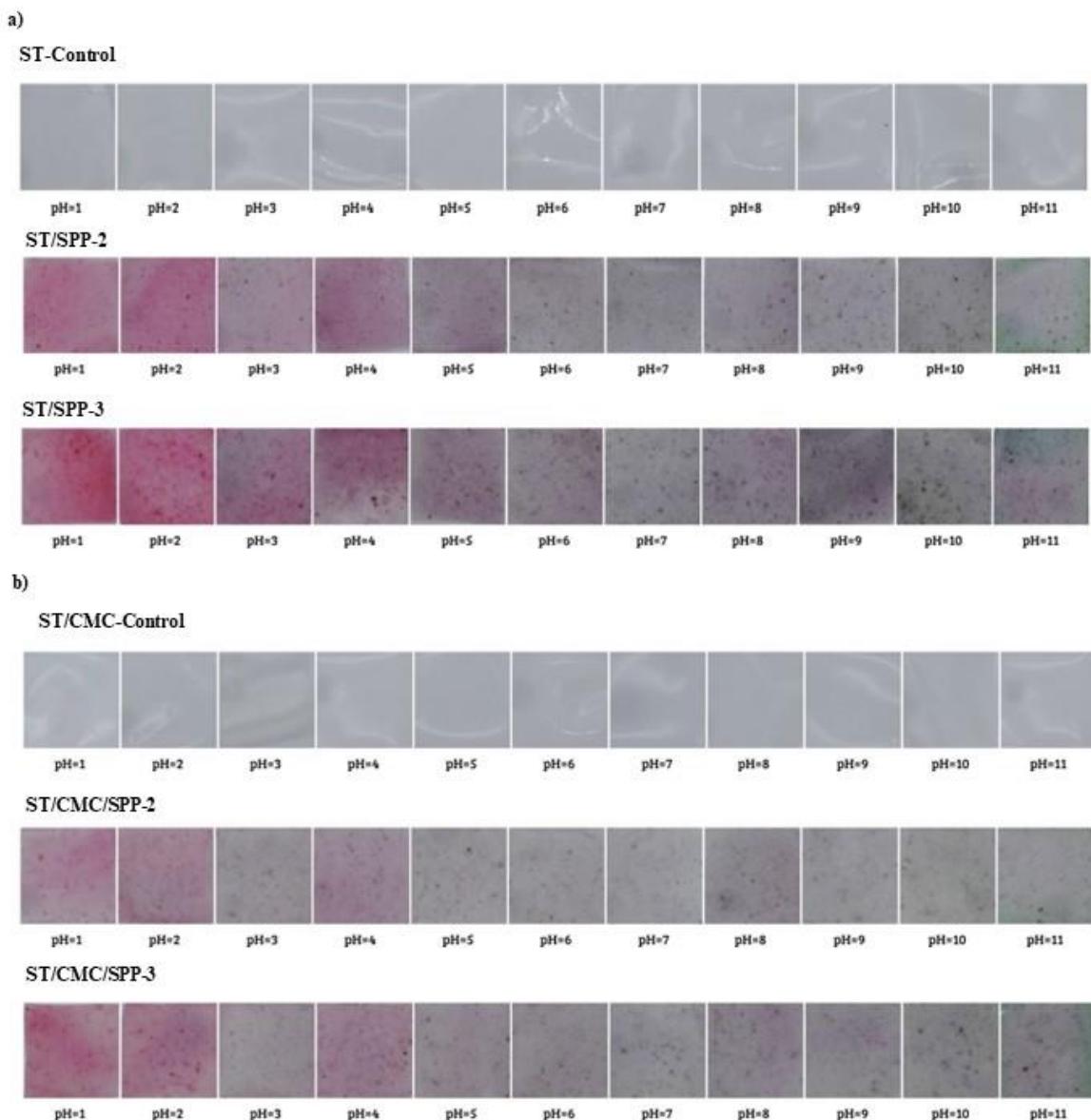


Figure 2. Colour variation of the films in buffer solutions of different pH values (a) formulations without and (b) formulations with CMC.

The colour stability of the control samples suggests that the polymer matrix did not interfere with the colour change of the films and can be successfully used for the dye immobilisation. Previous studies have successfully used these polymers to immobilise anthocyanins, but with a previous extraction step (Kurek et al., 2019; Jiang et al., 2020).

Additionally, the colour of the developed films changed with the pH variation, ranging from pink to purple, tending to green as the pH increased from 1 to 11, as previously observed for SPP. This colour response suggests that the developed film can be used to identify pH changes in food (Zhao et al., 2022).

The observed colour change was positively correlated with the amount of powder added for the same matrix. This is visible comparing samples ST/SPP-2 with ST/ SPP-3 and ST/CMC/SPP-2 with ST/CMC/SPP-3. The samples with 3 g of powder showed a slightly more pronounced colour change than those with 2 g of powder.

Very little difference on colour change was observed between the two polymer matrices used. However, comparing the formulations with the same amount of powder but different matrices (ST/SPP-2 with ST/ CMC/SPP-2 and ST/SPP-3 with ST/SPP-3), those with only starch showed a slightly darker colour.

3.4 Mechanical properties

The mechanical properties of pH-sensitive indicator films are presented in Table 3.

Table 3. Mechanical properties of the films.

Film sample	TS (MPa)	EB (%)	EM (Mpa)
ST-Control	5.23 ^a ± 0.59	31.61 ^d ± 0.23	1.060 ^a ± 0.039
ST/SPP-2	2.59 ^c ± 0.08	41.7286 ^c ± 1.67	0.153 ^c ± 0.007
ST/SPP-3	2.17 ^c ± 0.05	40.77 ^c ± 1.52	0.098 ^d ± 0.007
ST/CMC- Control	5.44 ^a ± 0.23	57,09 ^b ± 1.70	0.315 ^b ± 0.018
ST/CMC/SPP-2	4.35 ^b ± 0.23	68,47 ^a ± 2.53	0.157 ^c ± 0.007
ST/CMC/SPP-3	3.95 ^b ± 0.49	68.74 ^a ± 0.36	0.107 ^d ± 0.005

^{a-e} Different letters in the same column indicate significant differences (p < 0.05).

CMC addition resulted in increase of EB for all samples, while TS increased for the samples with SPP. CMC is a fibre chemically compatible with starch and frequently used as reinforcing material. These polymers interact by in intermolecular hydrogen bonds, which leads to improvement in mechanical properties (Ma et al., 2008; Jiang et al., 2022). This interaction decreases the mobility of the starch chain, and consequently improves its resistance to tensile stress (Averous et al., 2001; Li et al., 2008; Tavares et al., 2019). The elastic modulus of the films was not significantly influenced ($P < 0.05$) by the addition of CMC. These results suggest that the films made by the combination of starch and CMC may be better for the suggested application.

For the samples with the same polymeric matrix, the addition of SPP resulted in decrease of the TS, and increase of the EB, although the concentration of SPP did not significantly influence any of these parameters ($P < 0.05$). EM was negatively correlated with the concentration of SPP. Probably, SPP had a plasticizing effect, resulting in more flexible and less resistant films. This effect may be associated with structural changes promoted by SPP in the starch matrix, which became less dense and consequently more easily moved under stress (Mali et al., 2011).

3.5 Ground beef spoilage trial

One of the most important factors associated with the quality and safety of meat is the growth of microorganisms (Lambert et al., 1991). Based on that, a ground beef spoilage trial was performed to assess the correlation of microorganism growth, the pH changes of the ground beef, and the colour change of the indicator film.

The initial pH of the fresh ground meat was 5.54 ± 0.06 (Fig. 3c), a value that is between the expected pH range of fresh meat (5.3 a 6.5) (Feitosa, 1999). The meat showed a characteristic red colour (Fig. 3c) and a regular flavour. After 3 days of storage (4 °C), the colour of the meat became darker, the pH raised to 6.42 ± 0.14 , and the colour of the indicator films responded slightly changing from bright purple to a tone tending to grey, which was more visible for ST/ CMC/SPP-3 film (Fig. 3a). On the fifth day of storage, the meat started to show clear signs of deterioration: colour and odour changed, the pH increased to 7.46 ± 0.14 , and the indicator films began to show a green tone, more visible for both ST/CMC formulations. After 7 days, the pH reached 7.92 ± 0.05 and the indicators responded turning green. At the end of the trial, no significant difference ($P < 0.05$) was observed for the pH and the indicator remained green.

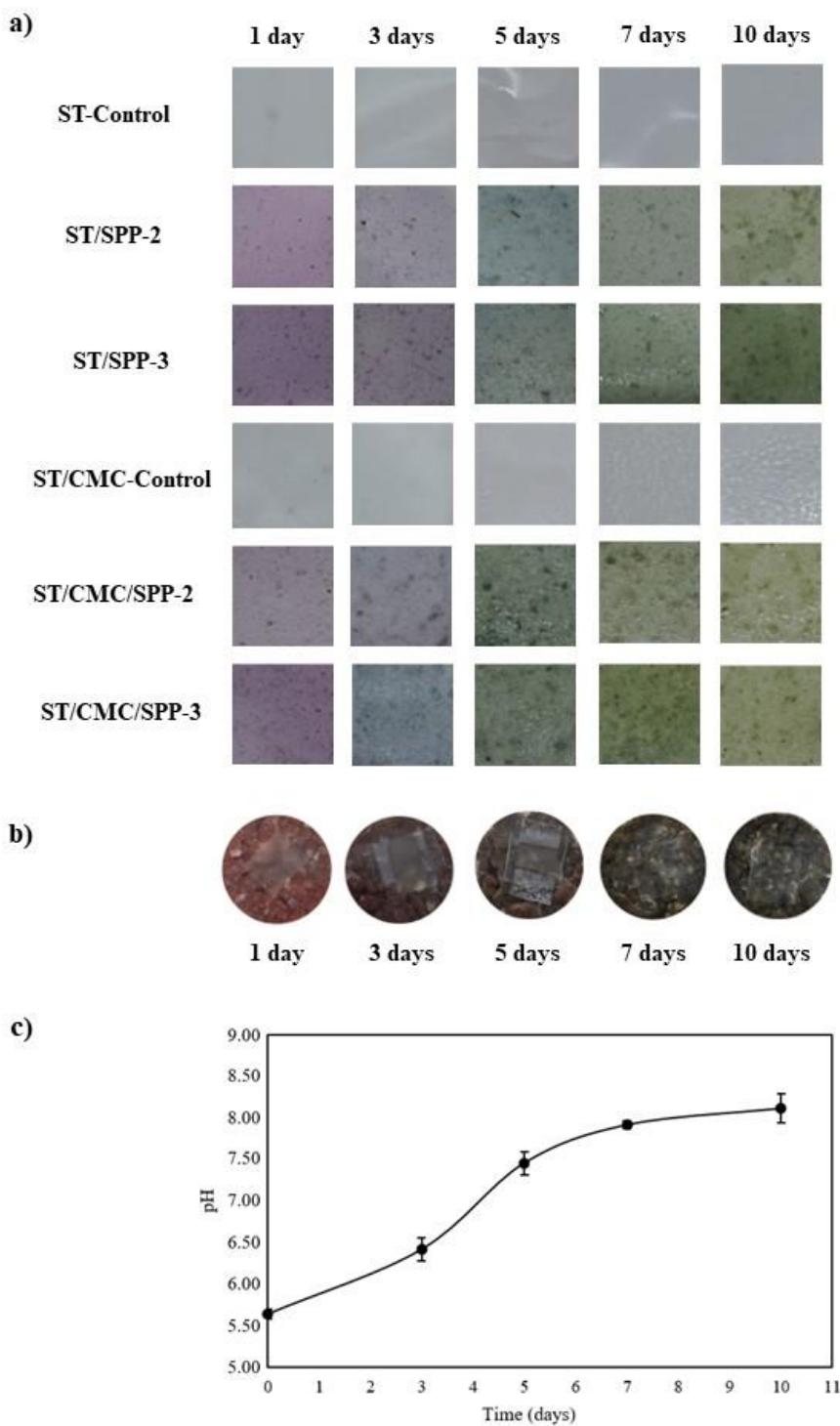


Figure 3. (a) Visual colour change of the films (b) Colour change of the ground beef, and (c) pH change of the ground beef over the storage time.

These pH changes were probably caused by putrefaction, one of the most common forms of spoilage of protein-rich foods. This process results from the action of

microorganisms on nitrogenous compounds, such as amino acids and nucleotides, forming substances responsible for the pH changes, with a putrid odour. As a result, there are perceptible sensory changes, such as the observed changes in the colour, texture, and odour of the meat (Franco & Landgraf, 2004). Additionally, the notable colour change of the sensor can be explained by the chemical changes occurred in anthocyanin structure, that results in visible colour changes and suitable for the development of smart packaging based on pH indicators (Zhao et al., 2022).

The colour of the control films was visually stable during the trial, evidencing that none of the polymeric matrices influenced the colour change of the indicator film (Fig. 3a). Besides all indicator films changed their colour during the spoilage trial, the colour change was slightly more evident to ST/CMC/SPP-3 film.

Based on the parameters of the legislation (Brazil, 2022), after 10 days of storage, the quality of the ground beef was unacceptable, making it inappropriate for consumption, due to the high concentration of *Escherichia coli* (Table 4). The other quantitative analyzes resulted in an increase of the respective microorganism population, although they remained within the standards required by Brazilian legislation. The same was observed for the analysis of total Coliforms (35 °C), indicating a considerable decrease in the hygienic sanitary quality during the storage of ground beef under refrigeration. Such results confirm that ground beef is a suitable food for the development of microorganisms, which was the main cause of the observed pH change that resulted in a change in the colour of the indicator film, from purple to green, as illustrated in Fig. 3a

Table 4. Microbiological quality of ground beef before and after refrigerated storage (4 °C) and the maximum limit according to Brazilian standard for ground beef.

	Salmonella sp.	Positive- coagulase Staphylococcus aureus (Log CFU g⁻¹)	Aerobic mesophilic microorganisms (Log CFU g⁻¹)	Escherichia coli (MPN g⁻¹)	Total coliforms (35 °C) (MPN g⁻¹)
<i>0 days</i>	Absent in 25 g	<1.00 ± 0.00	1.98 ± 0.03	<3.00	<3.00
<i>10 days</i>	Absent in 25 g	5.92 ± 0.14	6.73 ± 0.10	150	210
<i>Maximum Limit (Brasil, 2022)</i>	Absent in 25 g	≤ 10	≤ 10 ⁴	≤ 10	-

Based on that, it is possible to suggest that the pH increase and sensorial changes of the ground beef was influenced by the microbial growth. The colour of the pH indicator films changed with the advance in the spoilage process of the ground beef.

4 CONCLUSIONS

Biodegradable pH indicator films based on SPP immobilised in starch or starch and CMC were successfully developed. The colour of both tested polymeric matrices was stable at the pH range tested and during the ground beef spoilage trial. The colour of all formulations changed when submerged in buffer solutions of different values and during the spoilage of the ground beef, visually changing from purple to green with the pH increase. Besides the colour change ability, SSP showed a plasticizing effect when added to the polymer matrices, proving to be an interesting alternative to the production of pH indicator films. The mechanical properties of the films were improved by the addition of CMC. The visually perceived colour change was slightly affected by the amount of powder added, with a better perception with the higher amount of powder. Additionally, the formulation with CMC started to show a clear grey tone as early as the third day of study, suggesting the formulation ST/CMC/SPP-3 may be the best formulation for the development of a smart packaging system. Finally, the spoilage trial confirmed that the developed indicator film can inform the consumer about the freshness of the food through contact with the internal packaging atmosphere, indicating its promising use as a freshness indicator for ground beef.

5 ACKNOWLEDGMENTS

This work was financed by the Brazilian National Council for Scientific and Technological Development (CNPq) and the Coordination for the Improvement of Higher Educational Personnel (CAPES).

6 REFERENCES

- Alizadeh-Sani, M., Tavassoli, M., Mohammadian, E. et al. (2021). pH-responsive color indicator films based on methylcellulose/chitosan nanofiber and barberry anthocyanins for real-time monitoring of meat freshness. *International Journal of Biological Macromolecules*, 166, 741–750.
- APHA (2001). *Compendium of methods for the microbiological examination of foods*, 4th edn. USA: APHA International.

- Averous, L., Fringant, C. & Moro, L. (2001). Plasticized starch-cellulose interactions in polysaccharide composites. *Polymer*, 42, 6565–6572.
- Biesalski, H.K., Dragsted, L.O., Elmadfa, I. et al. (2009). Bioactive compounds: definition and assessment of activity. *Nutrition*, 25, 1202–1205.
- Bogataj, D., Hudoklin, D., Bogataj, M., Dimovski, V. & Colnar, S. (2020). Risk Mitigation in a Meat Supply Chain with Options of Redirection. *Sustainability*, 12(20), 8690.
- Brasil. Ministério da Saúde. Agência Nacional de Vigilância Sanitária. (2022). *Instrução Normativa N° 161, de 1º de Julho de 2022. Estabelece os padrões microbiológicos dos alimentos*. Diário Oficial da União, n° 126, de 6 de julho de 2022.
- Brody, A.L., Bugusu, B., Han, J.H., Sand, C.K. & McHugh, T.H. (2008). Innovative food packaging solutions. *Journal of Food Science*, 73, 107–116.
- Chen, X., Zhu, L., Liang, R. et al. (2020a). Shelf-life and bacterial community dynamics of vacuum packaged beef during long-term super-chilled storage sourced from two Chinese abattoirs. *Food Research International*, 130, 108937.
- Chen, S., Wu, M., Lu, P., Gao, L., Yan, S. & Wang, S. (2020b). Development of pH indicator and antimicrobial cellulose nanofibre packaging film based on purple sweet potato anthocyanin and oregano essential oil. *International Journal of Biological Macromolecules*, 149, 271–280.
- Choi, I., Lee, J.Y., Lacroix, M. & Han, J. (2017). Intelligent pH indicator film composed of agar/potato starch and anthocyanin extracts from purple sweet potato. *Food Chemistry*, 218, 122–128.
- Damodaran, S., Parkin, K.L. & Fennema, O.R. (2010). *Fennemas's Food Chemistry*. Pp. 599–603, 4th edn. Boca Raton, USA: CRC Press.
- Esmaeili, H., Cheraghi, N., Khanjari, A. et al. (2020). Incorporation of nanoencapsulated garlic essential oil into edible films: a novel approach for extending shelf life of vacuum-packed sausages. *Meat Science*, 166, 108135.
- Feitosa, T. (1999). *Contaminação, conservação e alteração da carne*. 34 24. Embrapa-CNPAT. <https://www.ptonline.com/articles/how-to-get-better-mfi-results>.
- Franco, B.D.G.M. & Landgraf, M. (2004). *Microbiologia dos Alimentos*. São Paulo, BR: Atheneu.
- Francis, F.J. (1982). Analysis of anthocyanins. In: *Anthocyanins as food colors* (edited by P. Markakis). Pp. 181–207. New York, NY: Academic Press.
- Gontard, N., Duchez, C., Cuq, J. & Guilbert, S. (1994). Edible composite films of wheat gluten and lipids: water vapour permeability and other physical properties. *International Journal of Food Science and Technology*, 29, 39–50.

- Guimarães, A., Abrunhosa, L., Pastrana, L.M. & Cerqueira, M.A. (2018). Edible films and coatings as carriers of living microorganisms: a new strategy towards biopreservation and healthier foods. *Comprehensive Reviews in Food Science and Food Safety*, 17, 594– 614.
- IAL, Instituto Adolfo Lutz (2008). *Métodos físicos-químicos para análise de Alimentos*. Pp. 98, 4th edn. São Paulo, BR: Instituto Adolfo Lutz.
- Jantanasakulwong, K., Wongsuriyasak, S., Rachtanapun, P. et al. (2018). Mechanical properties improvement of thermoplastic corn starch and polyethylene-grafted-maleicanhydride blending by Na⁺ ions neutralization of carboxymethyl cellulose. *International Journal of Biological Macromolecules*, 120, 297–301.
- Jiang, G., Hou, X., Zeng, X. et al. (2020). Preparation and characterization of indicator films from carboxymethyl-cellulose/starch and purple sweet potato (*Ipomoea batatas (L.) lam*) anthocyanins for monitoring fish freshness. *International Journal of Biological Macromolecules*, 143, 359–372.
- Jiang, J., Zhang, X., Gao, S., Li, M. & Hou, H. (2022). Effects of adding methods and modification types of cellulose on the physicochemical properties of starch/PBAT blown films. *International Journal of Biological Macromolecules*, 223, 1335–1343.
- Kamkar, A., Molaei-aghaee, E., Khanjari, A. et al. (2021). Nanocomposite active packaging based on chitosan biopolymer loaded with nano-liposomal essential oil: its characterizations and effects on microbial, and chemical properties of refrigerated chicken breast fillet. *International Journal of Food Microbiology*, 342, 109071.
- Kurek, M., Hlupic, L., Scetar, M., Bosiljkov, T. & Galic, K. (2019). Comparison of two pH responsive color changing bio-based films Cotaining wasted fruit pomace as a source of colorants. *Journal of Food Science*, 84, 2490–2498.
- Lambert, A.D., Smith, J.P. & Dodds, K.L. (1991). Shelf-life extension and microbiological safety of fresh meat-a review. *Food Microbiology*, 8, 267–297.
- Li, D., Wang, P., Luo, Y., Zhao, M. & Chen, F. (2017). Health benefits of anthocyanins and molecular mechanisms: update from recent decade. *Critical Reviews in Food Science and Nutrition*, 57, 1729–1741.
- Li, Y., Shoemaker, C.F., Ma, J., Shen, X. & Zhong, F. (2008). Paste viscosity of rice starches of different amylose content and carboxymethylcellulose formed by dry heating and the physical properties of their films. *Food Chemistry*, 109, 616–623.
- Lim, S., Xu, J., Kim, J. et al. (2013). Role of anthocyanin-enriched purple-fleshed sweet potato in colorectal cancer prevention. *Molecular Nutrition and Food Research*, 57, 1908–1917.
- López-Rubio, A., Almenar, E., Hernandez-Muñoz, P., Lagarón, J.M., Catalá, R. & Gavara, R. (2004). Overview of active polymer-based packaging technologies for food applications. *Food Reviews International*, 20, 357–387.

Luchese, C.L., Sperotto, N., Spada, J.C. & Tessaro, I.C. (2017). Effect of blueberry agro-industrial waste addition to corn starch-based films for the production of a pH-indicator film. *International Journal of Biological Macromolecules*, 104, 11–18.

Ma, X., Chang, P.R. & Yu, J. (2008). Properties of biodegradable thermoplastic pea starch/carboxymethyl cellulose and pea starch/ microcrystalline cellulose composites. *Carbohydrate Polymers*, 72, 369–375.

Mali, S., Sakanaka, L.S., Yamashita, F. & Grossmann, M.V.E. (2011). Water sorption and mechanical properties of cassava starch films and their relation to plasticizing effect. *Carbohydrate Polymers*, 60, 283-289.

Mansur, T.K., de Campos, A., Luchesi, B.R., Resende, A.A., de Oliveira, J.E. & Marconcini, J.M. (2020). Effect of carboxymethyl cellulose concentration on mechanical and water vapor barrier properties of corn starch films. *Carbohydrate Polymers*, 246, 116521.

Mir-Cerdà, A., Nuñez, O., Granados, M., Sentellas, S. & Saurina, J. (2023). An overview of the extraction and characterization of bioactive phenolic compounds from Agri-food waste within the frame-work of circular bioeconomy. *Trends in Analytical Chemistry*, 161, 116994. Muthuraj, R., Misra, M. & Mohanty, A.K. (2018). Biodegradable compatibilized polymer blends for packaging applications: a literature review. *Journal of Applied Polymer Science*, 135, 35.

Neves, D., Andrade, P.B., Videira, R.A., de Freitas, V. & Cruz, L. (2022). Berry anthocyanin-based films in smart food packaging: a mini-review. *Food Hydrocolloids*, 133(March), 107885.

Prietto, L., Mirapalhete, T.C., Pinto, V.Z. et al. (2017). pH-sensitive films containing anthocyanins extracted from black bean seed coat and red cabbage. *LWT*, 80, 492–500. Rukchon, C., Nopwinyuwong, A., Trevanich, S., Jinkarn, T. & Suppakul, P. (2014). Development of a food spoilage indicator for monitoring freshness of skinless chicken breast. *Talanta*, 130, 547–55.

Santos, L.G. & Martins, V.G. (2023). Optimization of the green extraction of polyphenols from the edible flower Clitoria ternatea by high-power ultrasound: a comparative study with conventional extraction techniques. *Journal of Applied Research on Medicinal and Aromatic Plants*, 34, 100458.

Sun, X.D. & Holley, R.A. (2012). Antimicrobial and Antioxidative strategies to reduce pathogens and extend the shelf life of fresh red meats. *Comprehensive Reviews in Food Science and Food Safety*, 11, 340–354.

Tang, W., Zhang, Y.G., Liu, Y.J. et al. (2018). Quantifying cultivation technique and growth dynamics of purple-fleshed sweetpotato (*Ipomoea batatas* L.) in China. *Field Crops Research*, 227, 41–48.

Tavares, K.M., de Campos, A., Mitsuyuki, M.C., Luchesi, B.R. & Marconcini, J.M. (2019). Corn and cassava starch with carboxymethyl cellulose films and its mechanical and hydrophobic properties. *Carbohydrate Polymers*, 223, 1150.

Yam, K.L., Takhistov, P.T. & Miltz, J. (2005). Intelligent packaging: concepts and applications. *Journal of Food Science*, 70, 1–10.

Yam, K.L., Takhistov, P.T. & Miltz, J. (2010). Intelligent Packaging. In: *The Wiley Encyclopedia of Packaging Technology* (edited by K.L. Yam). Pp. 605–616, Vol. 47, 3rd edn. New Jersey, USA: John Wiley & Sons.

Zhang, J., Zou, X., Zhai, X., Huang, X.W., Jiang, C. & Holmes, M. (2019). Preparation of an intelligent pH film based on biodegradable polymers and roselle anthocyanins for monitoring pork freshness. *Food Chemistry*, 272, 306–312.

Zhao, L., Liu, Y., Zhao, L. & Wang, Y. (2022). Anthocyanin-based pH-sensitive smart packaging films for monitoring food freshness. *Journal of Agriculture and Food Research*, 9, 100340.

Zhu, F. & Sun, J. (2019). Physicochemical and sensory properties of steamed bread fortified with purple sweet potato flour. *Food Bioscience*, 30, 10041.

APPENDIX S1

Purple-flashed sweet potato freeze drying

The purple-fleshed sweet potatoes were carefully washed with brushes under running water, selected, sanitized with sodium hypochlorite solution (200 ppm for 10 minutes) and washed in running water. Then, they were manually peeled and cut to 3 x 3 cm thick pieces. After sanitization, the purple-fleshed sweet potatoes were manually peeled, cut into 3 x 3 cm thick pieces, and boiled in hot water (90 °C, 10 min) - 1:3 (potato: water). The mixture was processed in an industrial blender for 10 min and packaged in hermetic plastic pots. The samples were frozen at -18 °C for 7 days for freeze-drying (Lioto®, model L101). Then, the samples were reduced to a fine powder using an analytical mill (IKA®, model A11) and sieved using a Stainless-Steel Test Sieve (710 µm) and stored in an airtight package under refrigeration until further analysis.

The yield of the freeze-dried calculated by the difference between the initial potato mass and the SPP mass after the freeze-drying process was $26,19 \pm 3,25\%$ and it resulted in a stable powder purple powder.

Characterization of SPP

a) Proximate Composition

The proximate composition of SPP was evaluated from the determination of moisture – M (%), protein – P (%), lipid – L (%), ash – A (%), total dietary fiber – DF (%) and starch content, following the procedures described by IAL (2008), with minor adaptations. The total carbohydrate content – TC (%) was determined by difference.

b) Total Monomeric Anthocyanin Content

The total monomeric anthocyanin (TMA) content of SPP was determined using the procedures described by Lee et al. (2005) and Du et al. (2021), with some modifications. The extraction was performed from 1.5 g of SPP using 30 mL of acidified ethanolic aqueous

solution (60% v/v) in an ultrasound bath for 2 h. Samples were centrifuged at an RCF of 3570 × g for 20 min at 4°C. Supernatants were filtered. From the supernatant, TMA was determined using the differential pH method (pH 1.00 and pH 4.50), with cyanidin 3-glycoside as a reference.

After, 2.0 mL of the extract was added to 3.0 mL of 0.025 M potassium chloride buffer solution (pH 1.0) and, in another test tube, 2.0 mL of the extract was added to 3.0 mL of 0.4 M sodium acetate buffer solution (pH 4.5). The mixtures were homogenized, kept at rest for 15 minutes and filtered. Then, the absorbances were measured at 530 and 700 nm (Model WUV – M51, WEBLABORSP, Mogi das Cruzes, São Paulo, Brazil). The content of monomeric anthocyanins was determined by Equations the following equations:

$$A = (A_{520 \text{ nm}/\text{pH } 1.00} - A_{700 \text{ nm}/\text{pH } 1.00}) - (A_{520 \text{ nm}/\text{pH } 4.50} - A_{700 \text{ nm}/\text{pH } 4.50})$$

$$TMA = \left(\frac{A}{\epsilon X L} \right) \times MM \times 100 \times df$$

In which: A is the absorbance corrected by the difference between the absorbances recorded in the readings at pH 1.00 and pH 4.50. TMA is the total monomeric anthocyanin content. ϵ is the anthocyanin molar extinction coefficient; L is the optical path length (1 cm); MM is the anthocyanin molecular mass; df is the sample dilution factor.

Microbiological growth during storage (4 °C)

Escherichia coli and Total Coliforms - APHA (American Public Health Association). Compendium of Methods for the Microbiological Examination of Foods. 5th ed., American Public Health Association (APHA), Washington, DC, 2015. Chapter 9, p. 103-120.

Enumeration of E. coli and total coliforms was determined by the most probable number (MPN) technique. First, the sample was inoculated in multiple tubes with Lauryl

Sulfate Tryptose Broth at 35 °C/24 – 18 h. The tubes that showed gas formation were replicated for E. coli broth (EC) and Brilliant Green Bile Broth (CVB), incubated at 45 °C/24 h and 35 °C/24 – 48 h, respectively. For EC tubes with gas production, Eosin Methylene Blue Agar (EMB) exhaustion streaks were made and incubated at 35 °C/24 h. The growth of black colonies, with or without metallic sheen, were considered suspicious of E. coli and then, identified biochemically through the Triple Iron Agar, Simmons Citrate, Indole, Methyl Red and Voges-Proskauer Test. From confirmation, E. coli was expressed in MPN/g. For total coliforms, CVB tubes with gas growth were considered for enumeration in MPN/g.

Aerobic mesophilic microorganisms - "APHA (American Public Health Association). Compendium of Methods for the Microbiological Examination of Foods. 5th ed., American Public Health Association (APHA), Washington, DC, 2015. Chapter 8, p. 95-102.

The enumeration of aerobic mesophilic microorganisms was performed by plate counting using the pour plate technique, using PCA Agar (Plate Cont Agar), with incubation at 35 °C/48 h.

***Salmonella* spp.** - APHA (American Public Health Association).Compendium of Methods for the Microbiological Examination of Foods. 5th ed., American Public Health Association (APHA), Washington, DC, 2015. Chapter 36, p. 445-476.

Salmonella spp. enumeration was performed by the absence or presence of the microorganism. The test was carried out with pre-enrichment in buffered peptone water for 18 hours at 37 °C, development in Rappaport Vassiliadis broth (41.5 °C/24 h) and Selenite-Cystine broth (36 °C/24 h) and detection by streaking on Hektoen Enteric Agar and BPLS Agar (Sucrose Lactose Phenol Red Bright Green). For confirmation, biochemical and serological tests were performed.

Coagulase-positive *Staphylococcus aureus* - APHA (American Public Health Association). Compendium of Methods for the Microbiological Examination of Foods. 5th ed., American Public Health Association (APHA), Washington, DC, 2015. Chapter 39, p. 509-526.

The enumeration of coagulase-positive *Staphylococcus aureus* was determined using the spread plate technique on Baird Parker Agar (BP), supplemented with egg yolk added with sodium tellurite, incubated at 35 – 37 °C/48 h. The count was performed from the development of typical colonies, black in color and presence of an opaque halo. Confirmation was performed from coagulase assays using plasma coagulase (rabbit plasma with EDTA).



Figure S1. Model system for the ground beef spoilage trial.

Table S1. Proximate composition and Total Monomeric Anthocyanins of SPP.

Parameter	Content*
Moisture (%)	2.76 ± 0,06
Protein (%)	2.51 ± 0,08
Fat (%)	0.60 ± 0,06
Total dietary fiber (%)	14.08 ± 0,53
Ash (%)	1.27 ± 0,03
Total Carbohydrate (%)	78.78 ± 0,15
Starch content (%)	58.57 ± 0,15
Total Monomeric Anthocyanin (mg.100 g ⁻¹)	60.58 ± 0.05

*Values expressed as mean ± standard deviation

References

- APHA. (2001). *Compendium of methods for the microbiological examination of foods* (4th ed). USA: APHA International.
- Du, H. et al. (2021). Effects of mulberry pomace on physicochemical and textural properties of stirred-type flavored yogurt. *Journal of Dairy Science*, v. 104, n. 12, p. 12403–12414.
- Lee, J.; Durst, R. W.; Wrolstad, R. E. (2003). Determination of total monomeric anthocyanin pigment content of fruit juices, beverages, natural colorants, and wines by the pH differential method: Collaborative study. *Journal of AOAC International*, v. 88, n. 5, p. 1269–1278.

3 CONCLUSÕES GERAIS

O tratamento empregado na batata doce de polpa roxa teve efeitos significativos em sua composição, resultando em um pó liofilizado com teores menores de carboidrato, fibra alimentar, proteína, lipídeos, cinzas e amido. Por outro lado, o PLBD apresentou teor maior de antocianina quando comparado à batata-doce in natura, além de ter variações perceptíveis de cor ao ser exposto às soluções de diferentes valores de pH. Tal efeito se manteve nos filmes desenvolvidos utilizando o PLBD como fonte de antocianina, cuja coloração variou visivelmente de rosa para tons esverdeados com o aumento de pH de 1 a 11. Além da capacidade de alteração de cor, a adição do PLBD exerceu um efeito plastificante sobre no filme, mostrando-se uma estratégia interessante para o desenvolvimento de filmes indicadores de pH. Ambas as matrizes poliméricas utilizadas tiveram sua coloração estável, não exercendo influência na variação de cor dos filmes. Entretanto, a adição do CMC resultou em melhora nas propriedades mecânicas dos filmes e a alteração de cor foi levemente mais evidente nos filmes com maior quantidade de pó adicionada. Todos os filmes desenvolvidos tiveram sua coloração alterada durante o teste de aplicação em sistema modelo após aumento no teor de microrganismos na carne moída e sua consequente alteração de pH. Entretanto, o filme com adição de CMC e maior concentração de SPP respondeu de forma mais rápida, sugerindo ser a melhor formulação para a aplicação sugerida. Dessa forma, o desenvolvimento de um filme indicador biodegradável, a partir de batata-doce de polpa roxa sem a etapa prévia de extração de antocianina, mostrou-se promissor, resultando em filmes capazes de indicar a alteração de qualidade de carne moída. Para estudos futuros, sugere-se a aplicação do sensor desenvolvido em outras matrizes alimentícias a fim de validar seu comportamento frente a diferentes cenários.

4 REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

ALIZADEH-SANI, Mahmood *et al.* pH-sensitive (halochromic) smart packaging films based on natural food colorants for the monitoring of food quality and safety. **Trends in Food Science and Technology**, v. 105, n. August, p. 93–144, 2020. Disponível em: <https://doi.org/10.1016/j.tifs.2020.08.014>.

BAO, Yiwen *et al.* Novel pH sensitivity and colorimetry-enhanced anthocyanin indicator films by chondroitin sulfate co-pigmentation for shrimp freshness monitoring. **Food Control**, v. 131, n. July 2021, 2022.

BECERRIL, Raquel; NERÍN, Cristina; SILVA, Filomena. Bring some colour to your package: Freshness indicators based on anthocyanin extracts. **Trends in Food Science and Technology**, v. 111, n. January, p. 495–505, 2021.

CHEONG, J. J.; AHMAD, F.; TENGKU ROZAINA, T. M. Effects of cooking methods on physicochemical properties, antioxidant properties and sensory acceptability of purple sweet potato (*Ipomoea batatas*). **Food Research**, v. 6, n. 6, p. 257–266, 2022.

ETXABIDE, Alaitz; KILMARTIN, Paul A.; MATÉ, Juan I. Color stability and pH-indicator ability of curcumin, anthocyanin and betanin containing colorants under different storage conditions for intelligent packaging development. **Food Control**, v. 121, n. May 2020, 2021.

EZATI, Parya *et al.* Intelligent pH-sensitive indicator based on starch-cellulose and alizarin dye to track freshness of rainbow trout fillet. **International Journal of Biological Macromolecules**, v. 132, p. 157–165, 2019.

FAO. **The State of Food and Agriculture 2019. Moving forward on food loss and waste reduction.** Rome: Licence: CC BY-NC-SA 3.0 IGO, 2019.

FDA. U.S. Food and Drug Administrarion. **Confused by Date Labels on Packaged Foods?** 2019. Disponível em: <https://www.fda.gov/consumers/consumer-updates/confused-date-labels-packaged-foods>.

GUO, Min *et al.* Intelligent double-layer fiber mats with high colorimetric response sensitivity for food freshness monitoring and preservation. **Food Hydrocolloids**, v. 101, n. October 2019, p. 105468, 2020.

JIANG, Guangyang *et al.* Preparation and characterization of indicator films from carboxymethyl-cellulose/starch and purple sweet potato (*Ipomoea batatas* (L.) Lam) anthocyanins for monitoring fish freshness. **International Journal of Biological Macromolecules**, v. 143, p. 359–372, 2020.

JIANG, Tian *et al.* The botanical profile, phytochemistry, biological activities and protected-delivery systems for purple sweet potato (*Ipomoea batatas* (L.) Lam.): An up-to-date review. **Food Research International**, p. 111811, 2022.

KERRY, J. P.; O'GRADY, M. N.; HOGAN, S. A. Past, current and potential utilisation of active and intelligent packaging systems for meat and muscle-based products: A review. **Meat Science**, [s. l.], v. 74, n. 1, p. 113–130, 2006.

KUSWANDI, Bambang. **Freshness Sensors for Food Packaging.** Elsevier, 2017. E-book. Disponível em: <http://dx.doi.org/10.1016/B978-0-08-100596-5.21876-3>.

LIU, Yaowen *et al.* Fabrication and characterization of pH-responsive intelligent films based on carboxymethyl cellulose and gelatin/curcumin/chitosan hybrid microcapsules for pork quality monitoring. **Food Hydrocolloids**, v. 124, p. 107224, 2022.

MIAO, Yaqiong *et al.* Exopolysaccharide riclin and anthocyanin-based composite colorimetric indicator film for food freshness monitoring. **Carbohydrate Polymers**, v. 314, p. 120882, 2023.

MIR-CERDÀ, Aina *et al.* An overview of the extraction and characterization of bioactive phenolic compounds from agri-food waste within the framework of circular bioeconomy. **TrAC - Trends in Analytical Chemistry**, v. 161, 2023.

MOAZAMI GOODARZI, Mohsen *et al.* Development of an easy-to-use colorimetric pH label with starch and carrot anthocyanins for milk shelf life assessment. **International Journal of Biological Macromolecules**, v. 153, p. 240–247, 2020.

OMS. **Food Safety**. 2022. Disponível em: <https://www.who.int/news-room/fact-sheets/detail/food-safety>.

ONU. **Transformando Nosso Mundo: A Agenda 2030 para o Desenvolvimento Sustentável**. 2015. Disponível em: <https://brasil.un.org/pt-br/sdgs>.

RAKIĆ, Violeta *et al.* pH-induced structural forms of cyanidin and cyanidin 3-O-β-glucopyranoside. **Dyes and Pigments**, v. 165, n. June 2018, p. 71–80, 2019.

ROY, Swarup; RHIM, Jong Whan. Anthocyanin food colorant and its application in pH-responsive color change indicator films. **Critical Reviews in Food Science and Nutrition**, v. 61, n. 14, p. 2297–2325, 2021.

SANTOS, Luan Gustavo; MARTINS, Vilásia Guimarães. Optimization of the green extraction of polyphenols from the edible flower *Clitoria ternatea* by high-power ultrasound: a comparative study with conventional extraction techniques. **Journal of Applied Research on Medicinal and Aromatic Plants**, v. 34, n. January, p. 100458, 2023.

SILVA, Nayane Matias *et al.* Adição de extrato de casca de jaboticaba no desenvolvimento de embalagem inteligente para queijo prato. **Brazilian Journal of Development**, [s. l.], v. 6, n. 4, p. 19512–19532, 2020.

TANAKA, Masaru *et al.* Functional components in sweetpotato and their genetic improvement. **Breeding Science**, v. 67, n. 1, p. 52–61, 2017.

TARONE, Adriana Gadioli; CAZARIN, Cinthia Baú Betim; MAROSTICA JUNIOR, Mario Roberto. Anthocyanins: New techniques and challenges in microencapsulation. **Food Research International**, v. 133, p. 109092, 2020.

UNEP, United Nations Environment Programme. **Food Waste Index Report 2021**. Nairobi: 2021.

WANGMO, Lungten *et al.* A novel sensor based on bead-counting of purple sweet potato tapioca pearl for freshness monitoring of shrimp. **Food Chemistry**, v. 368, p. 130863, 2022. Disponível em: <https://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S0308814621018690>.

XU, Jianteng *et al.* Characterisation and stability of anthocyanins in purple-fleshed sweet potato P40. **Food Chemistry**, v. 186, p. 90–96, 2015.

YAM, Kit L.; TAKHISTOV, Paul T.; MILTZ, Joseph. Intelligent Packaging: Concepts and Applications. **Journal of Food Science**, v. 70, n. 1, p. 1–10, 2005.

YIN, Wenqi *et al.* Recent advances in biomolecule-based films and coatings for active and smart food packaging applications. **Food Bioscience**, v. 52, n. November 2022, p. 102378, 2023.

ZHANG, Xinyue *et al.* Intelligent colorimetric film incorporated with anthocyanins-loaded ovalbumin-propylene glycol alginate nanocomplexes as a stable pH indicator of monitoring pork freshness. **Food Chemistry**, v. 368, n. April 2021, p. 130825, 2022.

ZHANG, Junjun *et al.* Preparation of an intelligent pH film based on biodegradable polymers and roselle anthocyanins for monitoring pork freshness. **Food Chemistry**, v. 272, n. April 2018, p. 306–312, 2019.

ZONG, Zihao *et al.* Preparation and characterization of a novel intelligent starch/gelatin binary film containing purple sweet potato anthocyanins for *Flammulina velutipes* mushroom freshness monitoring. **Food Chemistry**, v. 405, n. PB, p. 134839, 2023.