



REVISTA PERIÓDICA

COLOQUIO DE INVESTIGACIÓN MULTIDISCIPLINARIA

JOURNAL CIM – REVISTA DIGITAL

ISSN 2007 8102

Volumen 11. Núm. 1, Octubre 2023



latindex



DIFUSIÓN VÍA RED DE CÓMPUTO

http://cim.orizaba.tecnm.mx/?page_id=161



Nanofibras de celulosa obtenidas mediante hidrólisis ácida y ultrasonificación a partir de residuos de piña

R. Carmona-García¹, A. Aguirre-Cruz¹, M. Valera-Zaragoza², L. Pérez-Picaso², M. A. García-Muñoz^{1*}

¹Tecnológico Nacional de México/Instituto Tecnológico de Tuxtepec, Av. Dr. Víctor Bravo Ahuja S/N., Col. 5 de mayo, C.P. 68350, Tuxtepec, Oaxaca, México.

²Universidad del Papaloapan Campus Tuxtepec, Instituto de Ciencias Químicas, Av. Circuito Central No. 200, Col. Parque Industrial, C.P. 68301, Tuxtepec, Oaxaca, México.

*garcia_m9@hotmail.com

Área de participación: Ingeniería Química

Resumen

El aprovechamiento de recursos agroindustriales para generar nanomateriales ha cobrado gran interés, particularmente la nanocelulosa. El objetivo de este trabajo fue obtener nanofibras de celulosa (NFC) a partir de cáscara de piña mediante hidrólisis ácida asistida por ultrasonificación, previamente sometidos a pretratamientos alcalinos y blanqueado. Se evaluó la morfología y estructura mediante microscopía óptica, electrónica de barrido (FE-SEM) y espectroscopía infrarroja con transformada de Fourier (FTIR). Los resultados FTIR mostraron que los pretratamientos eliminaron la mayoría de los materiales no celulósicos, generando fibras menores a 20 μm de diámetro. Por otro lado, la hidrólisis ácida y ultrasonificación ayudó a realizar la despolimerización de las macromoléculas de celulosa, hasta obtener residuos mixtos de tamaños menores a 1 μm como se observa en FE-SEM, sugiriendo la obtención de nanofibras o nanocristales. Por lo tanto, la implementación de estos tratamientos son una alternativa para la obtención de nanocelulosa a partir de residuos agroindustriales.

Palabras clave: nanocelulosa, residuos de piña, hidrólisis ácida.

Abstract

The use of agroindustrial resources to generate nanomaterials has gained great interest, particularly nanocellulose. The objective of this work was to obtain cellulose nanofibers (CNF) from pineapple peel through acid hydrolysis assisted by ultrasonication, previously subjected to alkaline pretreatments and bleaching. The morphology and structure were evaluated by optical and scanning electron microscopy (FE-SEM) and Fourier transform infrared spectroscopy (FTIR). The FTIR results showed that the pretreatments eliminated most of the non-cellulosic materials, generating fibers smaller than 20 μm in diameter. On the other hand, acid hydrolysis and ultrasonication helped to carry out the depolymerization of the cellulose macromolecules, until obtaining mixed residues of sizes less than 1 μm as observed in FE-SEM, suggesting the obtaining of nanofibers or nanocrystals. Therefore, the implementation of these treatments is an alternative to obtaining nanocellulose from agroindustrial waste.

Keywords: nanocellulose, pineapple waste, acid hydrolysis.

1. Introducción

Actualmente, la búsqueda de alternativas sostenibles a partir de recursos renovables y desechos agroindustriales ha ido en aumento. Además, la utilización de biomasa como materia prima para la obtención de energía y la generación de nuevos materiales se convierte en objeto de una intensa investigación académica e industrial [1]. En este contexto, la utilización de celulosa, obtenida a partir de residuos agroindustriales ha cobrado gran interés, pudiendo sustituir materiales derivados del petróleo, ya que presenta numerosas aplicaciones en la industria agrícola, farmacéutica, papel, cosméticos, pinturas, revestimientos, alimentaria, textil, así como, refuerzo en matrices compuestas [2]. La celulosa, es considerada como uno de los biopolímeros más abundantes en la naturaleza, es renovable, biodegradables y no tóxico, es el principal componente estructural que confiere resistencia y estabilidad a las paredes celulares de las plantas [3], se encuentra como una red de

microfibrillas incrustadas en una matriz no celulósica [4]. Estructuralmente está constituida de cadenas lineales de unidades monoméricas de anhidroglucosa unidas a través de enlaces glucosídicos β -(1,4) [5]. La microfibrilla de celulosa está constituida de una parte amorfa y cristalina distribuidas de forma aleatoria, la región amorfa se encuentra en desorden dentro de la estructura, por esta razón es de fácil rompimiento ante un ataque con ácido o enzimas y la región cristalina se encuentra muy cohesionada por enlaces de puentes de hidrógeno, por lo que su separación se torna más compleja [6]. Por otro lado, la piña (*Ananas Comosus L.*) es una de las frutas tropicales más producidas a nivel mundial, según la base de datos estadísticos corporativos de la Organización para la Agricultura y la Alimentación (FAOSTAT), para el 2020 se produjeron alrededor de 28 millones de toneladas, cuyo máximo productor fue Costa Rica. La Secretaría de Agricultura y Desarrollo Rural (SADER) reportó que México produjo ese mismo año, un millón 209 mil toneladas de este fruto ubicándose en noveno lugar a nivel mundial. La piña tiene una composición porcentual de: pulpa 33%, corazón 6%, cascara 41% y corona 20%. Durante la industrialización (productos enlatados) generan en promedio 59.4% de residuos (44.4% de cáscara y 15% de corazón) resultando un aproximado 560 mil toneladas anuales a nivel nacional [7], convirtiéndose en un problema grave de contaminación ambiental, por lo que una alternativa que puede contribuir a la disminución de esta problemática es la utilización de estos desechos lignocelulósicos como materia prima para la obtención de microfibras o nanofibras de celulosa. La cáscara de piña se compone principalmente de celulosa, hemicelulosa, lignina y pectina [8], por lo que es necesario realizar varios procesos químicos para extraer microfibrillas altamente purificadas de la pared celular de este fruto, por lo general, dichos procesos se basan en sucesivas reacciones químicas, enzimáticas y/o tratamientos mecánicos [5]. Por lo tanto, el objetivo de este trabajo fue evaluar el efecto del método combinado de hidrólisis ácida-ultrasonificación sobre la morfología y estructura de las fibras de piña, para la extracción y purificación de NFC. Esto representa una alternativa más para contribuir a la disminución de los problemas ambientales generados por la acumulación de este residuo, así como, la valorización de residuos mediante la obtención de materias primas que impulsen el desarrollo tecnológico de nuevos materiales.

2. Desarrollo experimental

2.1 Materiales

Se usaron residuos (cáscara) de piña de la empresa Conservas “La Bonita” ubicada en la localidad de Benemérito Juárez Loma Bonita Oax., Mex. Se utilizaron los siguientes reactivos grado analítico: hidróxido de sodio (NaOH), peróxido de hidrógeno (H_2O_2), ácido sulfúrico (H_2SO_4) y glicerol grado biológico como agente plastificante, adquiridos de la empresa Sigma-Aldrich Co.

2.2 Pretratamiento de las fibras

La fibra se aisló de la cáscara de piña según el método descrito por Faria et al., [2], el cual consiste en lavar los residuos de piña fresca para eliminar impurezas, triturar y secar a 80 °C por 12 h. Posteriormente, una vez obtenidas las fibras secas, se sometieron a un pretratamiento alcalino. Por cada 5 g de fibra se adicionaron 100 mL de una solución de NaOH al 5% a 70 °C en agitación durante 60 min, posteriormente la muestra se lava y filtra con agua destilada hasta alcanzar pH neutro. La muestra obtenida se sometió a un proceso térmico a 100 °C durante 60 min y se repite el proceso de lavado y filtrado. Posteriormente, las fibras obtenidas se blanquearon durante 120 min a 60°C, utilizando por cada 5 g de fibra 100 mL de una solución de peróxido de hidrógeno al 24% e hidróxido de sodio al 4%, en la relación 1:1 (v/v). Las fibras blanqueadas se sometieron a un proceso de hidrólisis ácida, por cada 5 g de fibra obtenida se utilizó 100 mL de una solución de H_2SO_4 al 40% a 60 °C en agitación constante durante 120 min. La reacción se terminó usando agua destilada en la relación 1:5 (v/v). El exceso de ácido sulfúrico se retirará de la suspensión resultante a través de centrifugados continuos a 5000 r.p.m. durante 10 min seguido de una neutralización con NaOH 1M, hasta alcanzar un pH neutro.

2.3 Obtención de las nanofibras de celulosa (NFC) mediante ultrasonido

La suspensión neutra de celulosa/agua destilada, fue colocada en un vaso de precipitado en una relación 1:5 (v/v) y sometida a un proceso de ultrasonificación en un equipo ultrasónico marca Hielscher modelo UP400St (400W y 24 kHz), con una sonda ultrasónica de titanio tipo bocina (modelo S24d22). Las condiciones de sonicación fueron 240 W de potencia y 33% de amplitud

durante 15 min, con intervalos de 5 min. Al finalizar el tiempo de sonicación, se obtuvo una suspensión traslúcida, el cual se almacenó en refrigeración a 4°C para su posterior utilización.

2.4 Caracterización morfológica y estructural de las NFC

La morfología de la superficie de la NFC fue observada mediante un microscopio de luz polarizada marca LEICA modelo DM750P, además de un microscopio electrónico de barrido con emisión de campo marca TESCAN modelo MIRA 3LMU, para este último, las muestras fueron secadas y recubrieron de oro con un bombardeo iónico de capa fina y observadas con una aceleración de voltaje de 10 kV.

El análisis estructural se llevó a cabo en un Espectrómetro Infrarrojo con Transformada de Fourier (FTIR) marca DYNASCAN modelo Spectrum 100, Perkin Elmer, utilizando un interferómetro de reflectancia total atenuada (ATR). Los espectros fueron obtenidos con una resolución de 4 cm^{-1} y 8 scans en un rango de 600 a 4000 cm^{-1} .

3. Resultados y discusión

3.1. Obtención de fibras

La Figura 1 muestra la cáscara de piña fresca y la fibra obtenida después de haber sido sometidas a reducción de tamaño mediante molienda, lavados continuos para eliminar impurezas y secado. Como se observa, la fibra presenta un color marrón claro, atribuidos a los diversos componentes como hemicelulosa, lignina y sustancias extractivas como lo reporta Mahardika et al., [9]. Cabe hacer mención que hasta este paso las fibras no han sido sometidos a ningún proceso químico.



Figura 1. Fotografías de la cáscara de piña antes y después de su procesamiento.

Después de la obtención de la fibra de piña, se realizaron una serie de pretratamientos químicos para llevar a cabo la obtención y purificación de la celulosa, con la finalidad de eliminar algunos componentes como: lignina, hemicelulosas, ceras, pectinas, proteínas, sales minerales solubles y cenizas que tiene la cáscara de piña [3], que permitirá llevar a cabo una hidrólisis ácida más controlada y eficiente. Es importante mencionar que para realizar el seguimiento de purificación de nanofibras de celulosa por microscopia óptica se utilizó azul de metileno para teñir las muestras, con la finalidad de generar un mejor contraste y visualización de las fibras.

En la Figura 2, se muestran los resultados después de realizar el primer pretratamiento químico con álcali diluido de NaOH, las reacciones químicas entre la solución alcalina y el material lignocelulósico involucran principalmente celulosa, hemicelulosa y lignina. Las reacciones con la lignina conducen a la disolución y degradación de estas, el pretratamiento alcalino puede romper eficientemente los enlaces éster por entrecruzamiento de xilano y lignina a través de la solvatación y saponificación como lo reportan Harmsen, [9] y Ng et al., [5], mientras, los componentes como pectinas y hemicelulosas se hidrolizaron por la acción de dichas soluciones alcalinas [4]. Mediante microscopia óptica se puede observar que cada fibra con un diámetro aproximado de 300 μm está constituida por unidades más pequeñas de microfibras, lográndose observar espacios entre ellas sugiriendo la remoción de componentes no celulósicos tales como: hemicelulosa, lignina, ceras, cenizas, etc., observándose una superficie mas expuesta dado por el tratamiento alcalino como lo reporta Pereira et al., [10]. Morfologías similares después del tratamiento alcalino fueron reportadas por Vilay et al., [11].

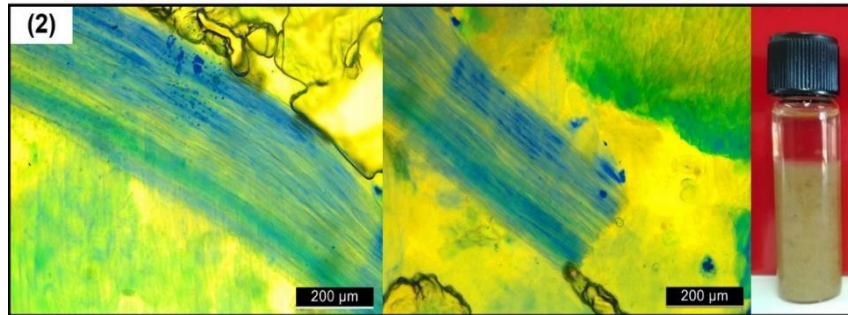


Figura 2. Fibras de celulosas obtenidas después del tratamiento alcalino.

La Figura 3 muestra los resultados después de realizar el blanqueo de las fibras con H_2O_2 , durante este paso se obtiene la despigmentación y el grado de blancura deseado, además, se eliminan los extractivos restantes. Se obtiene una disminución significativamente del tamaño y diámetro de las fibras, de aproximadamente 200 y 50 µm, respectivamente. Por otro lado, se observan a detalle el efecto de los tratamientos iniciales ya que se logran obtener una ligera desfibrilación de fibras celulosa.

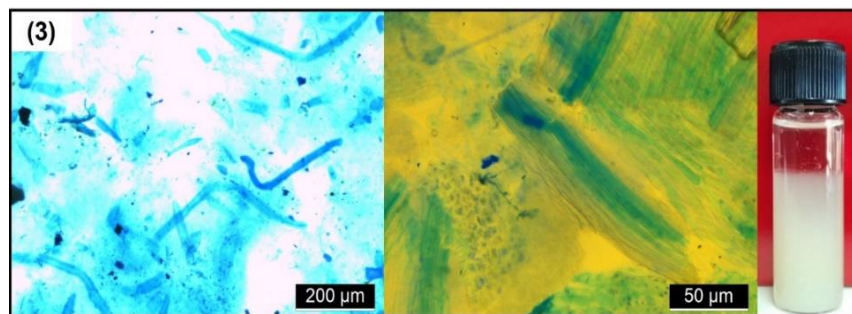


Figura 3. Fibras de celulosas obtenidas después del blanqueamiento

Los pretratamientos antes realizados permitieron realizar una hidrólisis ácida más controlada y eficiente derivada de la remoción de componentes no celulósicos, de lo contrario, la hidrólisis ácida daba como resultado una solución oscura atribuida no sólo de la degradación de celulosa, sino también, a la presencia de lignina residual como lo reporta Faria et al., [2]. Durante la hidrólisis ácida, el H_2SO_4 se usa para hidrolizar la región amorfa de la celulosa, en estas regiones, la celulosa puede desintegrarse por escisión hidrolítica del enlace glucosídico, de lo contrario, las fracciones de celulosa altamente ordenadas permanecerán sin romperse ya que son menos susceptibles a los ataques ácidos. Dicho efecto se observa en la Figura 4, mostrando fracciones mixtas de microfibras, además, una cantidad considerable de remanentes sugiriendo la formación de nanofibras y/o nanocristales durante este proceso. La concentración de ácido sulfúrico es uno de los factores más importantes que afectan la extracción de nanofibras de celulosa durante la hidrólisis ácida. Una concentración demasiado alta de ácido sulfúrico puede conducir a la degradación de la celulosa a azúcares, por el contrario, una concentración demasiado baja de ácido sulfúrico provocaría la dispersión de las fibras y la formación de agregado [12,13].

Por último, en la Figura 5 se observa la suspensión de nanopartículas de celulosa estable y homogénea dado por el proceso de ultrasonificación. Dichos resultados se analizan tanto por microscopía óptica y electrónica, se puede observar una cantidad considerable de fracciones más pequeñas de celulosa, dados por el proceso de ultrasonificación. Los efectos químicos de la ultrasonificación se derivan principalmente de los puntos calientes que se forman durante la cavitación acústica, es decir, la formación, el crecimiento y el colapso de burbujas en un líquido [14]. Después del proceso de ultrasonificación se obtienen una dispersión de tamaño uniforme de las nanofibras y/o nanocristales de celulosa, observándose detalladamente los restos de

fragmentos obtenidas por la hidrólisis ácida asistida por la ultrasonicación. Los efectos de la ultrasonicación sobre la degradación de enlaces de los polisacáridos han sido reportados por Tischer et al., [15]

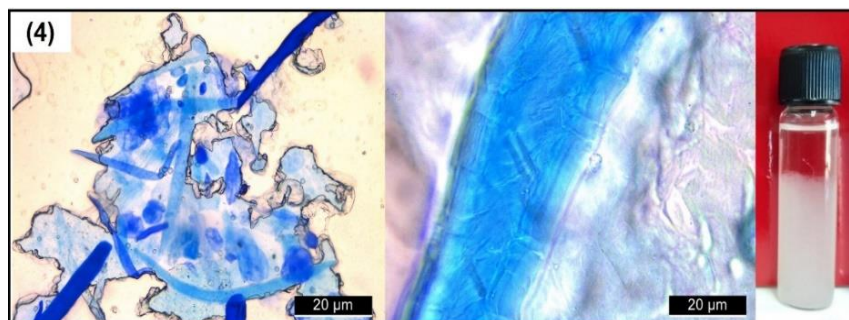


Figura 4. Fibras de celulosas obtenidas después de la hidrólisis ácida

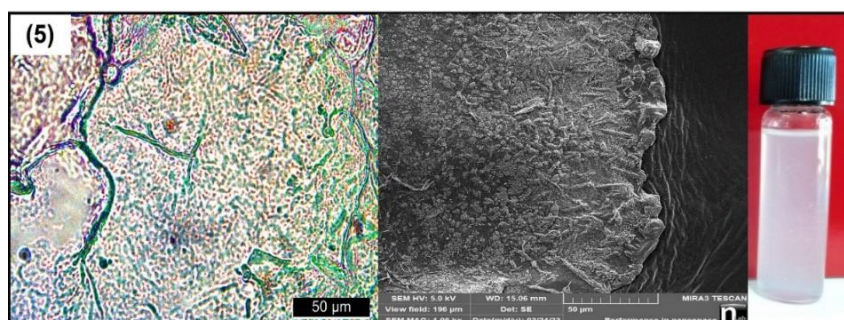


Figura 5. Fibras de celulosas obtenidas después de la ultrasonicación.

Finalmente, cabe hacer mención que el proceso de obtención de la celulosa mediante tratamientos químicos, si bien, es uno de los más utilizados a nivel industrial por los rendimientos generados (mayores al 30%) [6], el uso de ácido concentrado fuerte como el ácido sulfúrico tiene grandes inconvenientes ya que es extremadamente corrosivo, oxidante y peligroso, tanto para el personal que lo manipula como para el medio ambiente, debido al gran volumen de residuos ácidos que genera [16]. Para este trabajo se obtuvo un rendimiento del 22% de celulosa blanqueada, el cual es la etapa final de purificación de celulosa ya que después de esta etapa la mayoría de los residuos no celulósicos se han eliminado. Dicho rendimiento está en función de la naturaleza de la materia prima, para el caso de los residuos de piña tienen alto contenido de azúcares solubles, pectinas, ceras, etc., como se mencionó anteriormente, sin embargo, puede considerarse como una alternativa viable para la obtención de nanocelulosa.

3.2.2 Análisis estructural

Los resultados del análisis FTIR-ATR de las muestras obtenidas después de cada tratamiento se muestran en la Figura 6. Como se observa, todos los espectros muestran una banda amplia y definida entre 3250 y 3350 cm^{-1} y otra banda pequeña a 2920 cm^{-1} , atribuidas a vibraciones de estiramiento de los grupos O-H y C-H respectivamente [17]. Para la fibra no tratada (ST) se observa una banda a 1740 cm^{-1} atribuidas a los grupos acetil y éster urónico de la hemicelulosa o enlaces éster del grupo carboxílico de los ácidos feluricos o p-cumáricos de lignina y/o hemicelulosas [18]. Esta banda disminuye y desaparece a través de la hidrólisis alcalina (TA), blanqueamiento (BL) hasta la hidrólisis ácida (HA), indicativo de la remoción total de hemicelulosa y lignina de las muestras obtenidas. De igual forma, se observa una banda pequeña en la muestra no tratada a 1514 y 1248 cm^{-1} , atribuida a las vibraciones de estiramiento -C=C- de los anillos aromáticos de lignina [19] y desaparece con los tratamientos posteriores dado que el proceso de hidrólisis ácida destruye gravemente los enlaces celulosa-lignina. En las muestras tratadas con TA y BL, se observan dos bandas a 1161 y 1105 cm^{-1} , siendo esta última más intensa en la HA, dichas

señales corresponden a las vibraciones moleculares del C3 de la celulosa y a las vibraciones C-O-C de los enlaces glucosídicos respectivamente [20]. Por otro lado, la formación de bandas a 896, 1052, 1105, 1160, 1315 y 1430 cm^{-1} después de la hidrólisis ácida (HA) y la ultrasonificación (US) indica el incremento de la cristalinidad de las muestras tratadas [21], sugiriendo la formación de nanofibras y/o nanocristales después de estos procesos. Finalmente, el espectro de ultrasonificación muestra una banda amplia a 1640 cm^{-1} indicativo del pico de absorción de agua del grupo OH.

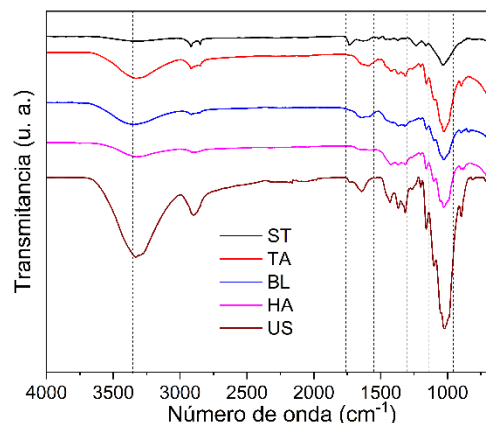


Figura 7. Espectro FTIR-ATR de los materiales obtenidos después de cada tratamiento. Sin tratamiento (ST), hidrólisis alcalina (TA), blanqueamiento (BL), hidrólisis ácida (HA) y ultrasonificación (US).

Conclusiones

En el siguiente trabajo de investigación se obtuvo la generación de nanofibras y/o nanocristales de celulosas a partir de desechos agroindustriales a través de la implementación de pretratamiento químicos asistidos con ultrasonificación. Dichos pretratamientos permitieron la purificación de las materias primas hasta la obtención celulosa, así como, una dispersión y homogenización de los materiales (nanofibras y/o nanocristales) obtenidos, como se observó mediante FE-SEM. El proceso de purificación se pudo comprobar a través del seguimiento mediante microscopía óptica y FTIR después de cada etapa.

Trabajo futuro

Se evaluarán diferentes condiciones de hidrólisis ácida para mejorar los resultados obtenidos.

Agradecimientos

Se agradece al Consejo Nacional de Humanidades Ciencia y Tecnología por la beca otorgada para realizar la estancia sabática y lograr estos resultados parciales.

Bibliografía

- [1] R. M. dos Santos, W. P. Flauzino Neto, H. A. Silvério, D. F. Martins, N. O. Dantas, and D. Pasquini, "Cellulose nanocrystals from pineapple leaf, a new approach for the reuse of this agro-waste," *Ind Crops Prod*, vol. 50, pp. 707–714, Oct. 2013, doi: 10.1016/j.indcrop.2013.08.049.
- [2] L. U. S. Faria, B. J. S. Pacheco, G. C. Oliveira, and J. L. Silva, "Production of cellulose nanocrystals from pineapple crown fibers through alkaline pretreatment and acid hydrolysis under different conditions," *Journal of Materials Research and Technology*, vol. 9, no. 6, pp. 12346–12353, Nov. 2020, doi: 10.1016/j.jmrt.2020.08.093.
- [3] A. Dufresne, J.-Y. Cavaille, and M. R. Vignon, "Mechanical Behavior of Sheets Prepared from Sugar Beet Cellulose Microfibrils," John Wiley & Sons, Inc, 1997.

- [4] R. Zuluaga, J. L. Putaux, J. Cruz, J. Vélez, I. Mondragon, and P. Gañán, "Cellulose microfibrils from banana rachis: Effect of alkaline treatments on structural and morphological features," *Carbohydr Polym*, vol. 76, no. 1, pp. 51–59, Mar. 2009, doi: 10.1016/j.carbpol.2008.09.024.
- [5] L. Y. Ng, T. J. Wong, C. Y. Ng, and C. K. M. Amelia, "A review on cellulose nanocrystals production and characterization methods from *Elaeis guineensis* empty fruit bunches," *Arabian Journal of Chemistry*, vol. 14, no. 9. Elsevier B.V., Sep. 01, 2021. doi: 10.1016/j.arabjc.2021.103339.
- [6] R. H. Pérez, A. Álvarez Castillo, A. Olarte Paredes, and A. M. Salgado Delgado, "Obtención de nanocelulosa a partir de residuos postcosecha," *Mundo Nano. Revista Interdisciplinaria en Nanociencias y Nanotecnología*, vol. 16, no. 30, pp. 1e–47e, Aug. 2021, doi: 10.22201/ceiich.24485691e.2023.30.69662.
- [7] Morales-Guzmán Y., "Valorización del residuo agroindustrial de la piña (*Ananas comosus*) para la obtención de productos biotecnológicos," *Tesis. Universidad Autónoma del Estado de Morelos*, 2021.
- [8] X. Hu, K. Hu, L. Zeng, M. Zhao, and H. Huang, "Hydrogels prepared from pineapple peel cellulose using ionic liquid and their characterization and primary sodium salicylate release study," *Carbohydr Polym*, vol. 82, no. 1, pp. 62–68, Aug. 2010, doi: 10.1016/j.carbpol.2010.04.023.
- [9] P. F. H. (Paulien) Harmsen, *Literature review of physical and chemical pretreatment processes for lignocellulosic biomass*. Wageningen UR, Food & Biobased Research, 2010.
- [10] P. H. F. Pereira, H. L. Ornaghi, V. Arantes, and M. O. H. Cioffi, "Effect of chemical treatment of pineapple crown fiber in the production, chemical composition, crystalline structure, thermal stability and thermal degradation kinetic properties of cellulosic materials," *Carbohydr Res*, vol. 499, Jan. 2021, doi: 10.1016/j.carres.2020.108227.
- [11] V. Vilay, M. Mariatti, R. Mat Taib, and M. Todo, "Effect of fiber surface treatment and fiber loading on the properties of bagasse fiber-reinforced unsaturated polyester composites," *Compos Sci Technol*, vol. 68, no. 3–4, pp. 631–638, Mar. 2008, doi: 10.1016/j.compscitech.2007.10.005.
- [12] Y. Tang, S. Yang, N. Zhang, and J. Zhang, "Preparation and characterization of nanocrystalline cellulose via low-intensity ultrasonic-assisted sulfuric acid hydrolysis," *Cellulose*, vol. 21, no. 1, pp. 335–346, Feb. 2014, doi: 10.1007/s10570-013-0158-2.
- [13] J. S. Fan and Y. H. Li, "Maximizing the yield of nanocrystalline cellulose from cotton pulp fiber," *Carbohydr Polym*, vol. 88, no. 4, pp. 1184–1188, May 2012, doi: 10.1016/j.carbpol.2012.01.081.
- [14] W. Li, J. Yue, and S. Liu, "Preparation of nanocrystalline cellulose via ultrasound and its reinforcement capability for poly(vinyl alcohol) composites," *Ultrason Sonochem*, vol. 19, no. 3, pp. 479–485, 2012, doi: 10.1016/j.ultsonch.2011.11.007.
- [15] P. C. S. F. Tischer, M. R. Sierakowski, H. Westfahl, and C. A. Tischer, "Nanostructural reorganization of bacterial cellulose by ultrasonic treatment," *Biomacromolecules*, vol. 11, no. 5, pp. 1217–1224, May 2010, doi: 10.1021/bm901383a.
- [16] L. Brinchi, F. Cotana, E. Fortunati, and J. M. Kenny, "Production of nanocrystalline cellulose from lignocellulosic biomass: Technology and applications," *Carbohydrate Polymers*, vol. 94, no. 1. pp. 154–169, Apr. 15, 2013. doi: 10.1016/j.carbpol.2013.01.033.

- [17] A. Mandal and D. Chakrabarty, "Isolation of nanocellulose from waste sugarcane bagasse (SCB) and its characterization," *Carbohydr Polym*, vol. 86, no. 3, pp. 1291–1299, Aug. 2011, doi: 10.1016/j.carbpol.2011.06.030.
- [18] R. M. dos Santos, W. P. Flauzino Neto, H. A. Silvério, D. F. Martins, N. O. Dantas, and D. Pasquini, "Cellulose nanocrystals from pineapple leaf, a new approach for the reuse of this agro-waste," *Ind Crops Prod*, vol. 50, pp. 707–714, Oct. 2013, doi: 10.1016/j.indcrop.2013.08.049.
- [19] W. Chen, H. Yu, Y. Liu, Y. Hai, M. Zhang, and P. Chen, "Isolation and characterization of cellulose nanofibers from four plant cellulose fibers using a chemical-ultrasonic process," *Cellulose*, vol. 18, no. 2, pp. 433–442, Apr. 2011, doi: 10.1007/s10570-011-9497-z.
- [20] J. P. de Oliveira *et al.*, "Cellulose fibers extracted from rice and oat husks and their application in hydrogel," *Food Chem*, vol. 221, pp. 153–160, Apr. 2017, doi: 10.1016/j.foodchem.2016.10.048.
- [21] S. Rashid and H. Dutta, "Characterization of nanocellulose extracted from short, medium and long grain rice husks," *Ind Crops Prod*, vol. 154, Oct. 2020, doi: 10.1016/j.indcrop.2020.112627.