



T.C.
SELÇUK ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ



**NİŞASTA ESASLI BİYOKOMPOZİT
FİLMLEİN ÜRETİMİ VE
KARAKTERİZASYONU**

Mualla YILDIZ

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Biyoteknoloji Anabilim Dalı

Ağustos-2021
KONYA
Her Hakkı Saklıdır

TEZ KABUL VE ONAYI

Mualla Yıldız tarafından hazırlanan “Nişasta Esaslı Biyokompozit Filmlerin Üretimi ve Karakterizasyonu” adlı tez çalışması 31/08/2021 tarihinde aşağıdaki jüri tarafından oy birliği ile Selçuk Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Biyoteknoloji Anabilim Dalı’nda YÜKSEK LİSANS TEZİ olarak kabul edilmiştir.

Jüri Üyeleri

İmza

Başkan

Doç. Dr. Ayşe KALEMTAŞ

.....

Danışman

Dr. Öğr. Üyesi Gülsüm AYDIN

.....

Üye

Dr. Öğr. Üyesi Ülkü SOYDAL

.....

Yukarıdaki sonucu onaylarım.

Prof. Dr. Sait GEZGİN
FBE Müdürü

Bu tez çalışması Selçuk Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri Koordinatörlüğü (BAP) tarafından 20201013 nolu proje ile desteklenmiştir.

TEZ BİLDİRİMİ

Bu tezdeki bütün bilgilerin etik davranış ve akademik kurallar çerçevesinde elde edildiğini ve tez yazım kurallarına uygun olarak hazırlanan bu çalışmada bana ait olmayan her türlü ifade ve bilginin kaynağına eksiksiz atıf yapıldığını bildiririm.

DECLARATION PAGE

I hereby declare that all information in this document has been obtained and presented in accordance with academic rules and ethical conduct. I also declare that, as required by these rules and conduct, I have fully cited and referenced all material and results that are not original to this work.

Mualla YILDIZ

31/08/2021

ÖZET

YÜKSEK LİSANS TEZİ

NİŞASTA ESASLI BİYOKOMPOZİT FİMLERİN ÜRETİMİ VE KARAKTERİZASYONU

Mualla YILDIZ

Selçuk Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü
Biyoteknoloji Anabilim Dalı

Danışman: Dr. Öğr. Üyesi Gülsüm AYDIN
2021, 57 Sayfa

Jüri

Dr. Öğr. Üyesi Gülsüm AYDIN
Doç. Dr. Ayşe KALEMTAŞ
Dr. Öğr. Üyesi Ülkü SOYDAL

Günümüzde endüstriyel ve birçok farklı alanda kullanılan biyopolimerlerin büyük bir kısmını biyobozunur ve doğal bir biyopolimer olan nişasta oluşturmaktadır. Nişasta biyoyumlu, biyobozunur, kolay ve bol bulunan, ucuz maliyetli ve çevre dostu bir polimerdir. Nişasta kullanılarak küre, jel, köpük ve film gibi farklı formda malzemeler üretilebilmektedir. Üretilen farklı formdaki bu malzemeler; kontrollü ilaç salımı, doku mühendisliği, gıda ambalajları ve yara örtüleri gibi çeşitli medikal uygulamalarda yaygın olarak kullanılır. Nişasta farklı özelliklere sahip olan organik bir polimer olmasına rağmen mekanik özellikleri bakımından zayıf bir polimerdir ve kullanıldığı uygulama alanlarının çoğunda saf formda tercih edilmez. Nişastaya farklı katkı maddeleri ilave edilerek yeni bir fonksiyonel özellik kazandırılabilir veya var olan özellikleri geliştirilebilir. Yapılan bu çalışmada jel dökme yöntemi kullanılarak nişasta esaslı filmler üretilmiştir. Filmlere farklı oranda *Hibiscus sabdariffa* (Hbs) özütü ve grafen oksit (GO) ilave edilerek antibakteriyel özellik kazandırılmasının yanı sıra filmlerin mekanik özelliklerinin geliştirilmesi amaçlanmıştır.

Filmlere farklı oranlarda Hbs (%1, %3, %5 v/v) ve GO (%0.5, %1, %1.5 w/w nişasta) eklenerek farklı kompozisyona sahip nişasta esaslı biyobozunur filmler üretilmiştir. Üretilen filmlerin kalınlık, şişme, çözünürlük, su içeriği, antibakteriyel aktivite ve mekanik özellikleri belirlenmiş, ayrıca mikroyapı ve FTIR analizleri yapılmıştır. Filmlere eklenen Hbs özütü filmlerin kalınlık değerlerinde istatistik olarak anlamlı bir değişiklik oluşturmazken şişme çözünürlük ve su içeriği değerlerinde konsantrasyona bağlı olarak artmalar meydana gelmiştir ayrıca filmlere eklenen Hbs özütünün konsantrasyonun artmasıyla birlikte filmlerin gerilme mukavemetlerinde ve yüzde uzama değerlerinde artmalar gözlemlenmiştir. Filmlere eklenen nano güçlendirici bir malzeme olan GO; konsantrasyona bağlı olarak şişme ve su içeriğinde artmalara sebep olurken çözünürlük değerlerinin düşmesine sebep olmuştur ayrıca gerilme mukavemeti ve yüzde uzama değerlerinde artış meydana getirmiştir ($p < 0,05$). Nişasta filmlere eklenen Hbs özütü ile birlikte Gram pozitif ve Gram negatif patojenik mikroorganizmalara karşı antibakteriyel etkiye sahip filmler elde edilmiştir. Film çözeltilerine eklenen GO ise filmlerin gerilme mukavemetini artırarak daha dayanıklı filmler elde edilmesini sağlamıştır. Bunlara ek olarak filmlere eklenen Hbs özütü ve GO konsantrasyona bağlı olarak daha az pürüzlü ve partiküllü yüzey özelliklerine sahip filmler üretilmiştir.

Elde edilen bulgular Hbs özütü ve GO katkılı biyokompozit nişasta filmlerin gıda ambalajı veya yara örtüsü gibi uygulamalarda kullanım potansiyelinin olabileceğini göstermektedir. Literatürdeki çalışmalar incelendiğinde nişasta – Hbs özütü – GO kompozisyonu bulunmamış olup ilk kez bu tez çalışması kapsamında bu bileşimde filmler üretilerek literatüre katkı sağlanmıştır.

Anahtar Kelimeler: Antibakteriyel aktivite, Bitki özütü, Biyopolimer, Nişasta, Grafen oksit, *Hibiscus sabdariffa*

ABSTRACT**MS THESIS****PRODUCTION AND CHARACTERIZATION OF STARCH BASED
BİOCOMPOSITE FILMS****Mualla YILDIZ****THE GRADUATE SCHOOL OF NATURAL AND APPLIED SCIENCE
OF SELÇUK UNIVERSITY THE DEGREE OF MASTER OF SCIENCE
IN BIOTECHNOLOGY****Advisor: Asst. Prof. Dr. Gulsum AYDIN
2021, 57 Pages****Jury****Dr. Öğr. Üyesi Gülsüm AYDIN
Doç. Dr. Ayşe KALEMTAŞ
Dr. Öğr. Üyesi Ülkü SOYDAL**

Today, starch, a biodegradable and natural biopolymer, constitutes a large part of the biopolymers used in industrial and many different fields. Starch is a biocompatible, biodegradable, abundant, low cost and environmentally friendly polymer. Different forms of materials such as spheres, gels, foams and films can be produced using starch. These materials in different forms are widely used in various medical applications such as controlled drug release, tissue engineering, food packaging and dressings. Although starch is an organic polymer with different properties, it is a polymer with poor mechanical properties and is not preferred in pure form in most of the application areas where. By adding different additives to starch, a new functional property can be gained or existing properties can be improved. In this study, starch-based films were produced using the gel casting method. By adding different concentrations of *Hibiscus sabdariffa* (Hbs) extract and graphene oxide (GO) to the films, it was aimed to improve the antibacterial and mechanical properties of the films.

Starch-based biodegradable films with different composition were produced by adding different proportions of Hbs (%1, %3, %5 v / v) and GO (%0.5, %1, %1.5 w / w starch) to the films. The thickness, mechanical properties, swelling, solubility, water content, antibacterial activity, SEM images and FTIR spectra of the films produced were analyzed. While the Hbs extract added to the films did not cause any significant difference in the thickness values of the films, the swelling solubility and water content values increased depending on the concentration, and the increase in the tensile strength and percent elongation values of the films were observed with the increase in the concentration of the Hbs extract added to the films. GO, a nano reinforcing material added to films; Caused an increase in swelling and water content depending on the concentration, while it caused a decrease in solubility values and an increase in tensile strength and percent elongation values ($p < 0.05$). Incorporation of Hbs extract added to the starch films, improved antibacterial activity of the films against Gram positive and Gram negative pathogenic microorganisms were obtained. GO added to film solutions, on the other hand, increased the tensile strength of the films, resulting in more durable films. In addition to these, films with less rough and particulate surface properties were produced depending on the Hbs extract and GO concentration added to the films.

The findings show that Hbs extract and GO incorporated composite starch films may have the potential to be used in applications such as food packaging or dressings. To the knowledge of the author starch - Hbs extract – GO biocomposite films are produced was for the first time within the scope of this thesis contributed to the literature.

Keywords: Antibacterial activity, Plant extracts, Biopolymer, Starch, Graphene oxide, *Hibiscus sabdariffa*

ÖNSÖZ

Bu çalışmanın her aşamasında büyük emeği geçen, yönlendirme ve bilgilendirmeleriyle çalışmamı şekillendiren, yol gösteren ve destek olan danışman hocam sayın Dr. Öğr. Üyesi Gülsüm AYDIN'a,

Tez çalışmam kapsamında analizlerin yapılmasında yardımlarını esirgemeyen laboratuvar arkadaşlarım Elif Büşra ZORLU' ya ve Hamdiye ALATLI' ya

Çalışmanın yürütülmesinde maddi destek sağlayan Selçuk Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri Koordinatörlüğü'ne

Her zaman fikirlerine ihtiyaç duyduğum, her konuda yanımda olan can dostum Enerji sistemleri Yük. Müh. Büşra ŞEN 'e

Hayatımın her alanında maddi ve manevi desteklerini benden esirgemeyen, varlıklarından güç aldığım annem Yıldız YILDIZ' a, kardeşlerim Neriman ALTINER ve Reyhan YILDIZ'a en içten teşekkürlerimi sunuyorum.

Mualla YILDIZ
KONYA-2021

İÇİNDEKİLER

TEZ KABUL VE ONAYI	v
TEZ BİLDİRİMİ	vi
ÖZET	iv
ABSTRACT.....	v
ÖNSÖZ	vi
İÇİNDEKİLER	vii
SİMGELER VE KISALTMALAR.....	ix
ŞEKİL LİSTESİ.....	x
ÇİZELGE LİSTESİ.....	xi
1. GİRİŞ	1
2. KAYNAK ARAŞTIRMASI	4
2.1. Biyopolimerler	4
2.2. Nişasta.....	5
2.2.1 Nişastanın kullanım alanları	8
2.2.1.1 Doku mühendisliği uygulamaları.....	9
2.2.1.2 Gıda sektörü uygulamaları.....	10
2.2.1.3 İlaç taşıma sistemleri	11
2.3 Biyobozunur Nişata Filmlere Takviyeler	12
2.3.1. Antimikrobiyal ajanlar	13
2.3.2. Esansiyel yağlar ve bitki özütleri.....	14
2.3.2.1 Hibiscus sabdariffa Bitkisi.....	15
2.3.3 Grafen Oksit.....	17
3. MATERYAL VE YÖNTEM.....	20
3.1. Materyaller	20
3.2. Yöntem.....	20
3.2.1. <i>H. sabdariffa</i> özütünün hazırlanması.....	20
3.2.2. Hibiscus özütü katkılı nişasta filmlerin hazırlanması	21
3.2.3. Grafen oksit ve <i>Hibiscus</i> özütü katkılı nişasta filmlerin hazırlanması	21
3.2.4. Filmlerin şişme- çözünürlük- su içeriği analizleri	23
3.2.5 Film kalınlıkları	24
3.2.6. Filmlerin su buharı geçirgenlik analizi	24

3.2.7. Filmlerin antibakteriyel aktivite analizi	25
3.2.8. Filmlerin fourier transform infrared spektrometre (FTIR) spektroskopisi analizi	26
3.2.9. Taramalı elektron mikroskobu (SEM) analizi	26
3.2.10. Filmlerin mekanik testleri	27
3.2.11. İstatistik analizleri	28
4. ARAŞTIRMA SONUÇLARI VE TARTIŞMA.....	28
4.1. Film Özellikleri	28
4.2. Antibakteriyel aktivite testi	29
4.3. Kalınlık	33
4.3.1. Farklı oranlarda Hbs özütü içeren nişasta esaslı filmlerin kalınlıkları	33
4.3.2 Farklı oranlarda GO içeren nişasta esaslı filmlerin kalınlık değerleri	34
4.4. Su buharı geçirgenlik (wvp) analizi	35
4.5. Şişme, çözünürlük ve su içeriği analizleri	36
4.5.1. Farklı kompozisyona sahip olan nişasta filmlerin şişme analizi	36
4.5.2. Filmlerin çözünürlük analizi	37
4.5.3 Filmlerin su içeriği analizi	39
4.6. Taramalı elektron mikroskobu (SEM) analizleri	40
4.6.1 Farklı oranlarda Hbs özütü içeren nişasta esaslı filmlerin SEM görüntüleri. 40	
4.6.2 Farklı oranlarda GO içeren nişasta filmlerin SEM görüntüleri	41
4.7. FTIR Analizi	42
4.7.1. Farklı oranlarda Hbs özütü içeren filmlerin FTIR analizi	43
4.7.2. Farklı oranlarda GO içeren filmlerin FTIR analizi	44
4.8. Mekanik testler	44
4.8.1. Farklı oranlarda Hbs özütü içeren nişasta filmlerin mekanik özellikleri.....	45
4.8.2. Farklı oranlarda GO içeren nişasta filmlerin mekanik özellikleri	46
5. SONUÇLAR VE ÖNERİLER.....	47
5.1. Sonuçlar	47
5.2 Öneriler	48
KAYNAKLAR	49
ÖZGEÇMİŞ	Hata! Yer işareti tanımlanmamış.

SİMGELER VE KISALTMALAR

Simgeler

dk	: Dakika
g	: Gram
m	: Metre
mm	: Milimetre
mL	: Mililitre
s	: Saniye
°C	: Santigrat Derece
ΔP	: Kısmi Su Buharı Basıncı Farkı
μL	: Mikrolitre

Kısaltmalar

ABD	: Amerika Birleşik Devletleri
BS	: <i>Bacillus subtilis</i>
EC	: <i>Escherichia coli</i>
FDA	: ABD Gıda ve İlaç Dairesi
FTIR	: Fourier Transform Infrared Spektrometresi
GO	: Grafen oksit
Hbs	: <i>Hibiscus sabdariffa L.</i> bitki özütü
KP	: <i>Klebsiella pneumoniae</i>
SA	: <i>Staphylococcus aureus</i>
TS	: Gerilme Mukavemeti
%E	: Yüzde Uzama

ŞEKİL LİSTESİ

Şekil 2.1. Biyopolimerlerin sınıflandırılması	5
Şekil 2.2. Nişastanın yapısında bulunan amilopektin ve amilozun yapısı	6
Şekil 2.3. Nişasta granüllerinin yapısı	7
Şekil 2.4. Nişastanın yaygın uygulama alanları	8
Şekil 2.5. <i>H. sabdariffa</i> 'da kalikslerin görünümü	15
Şekil 2.6. Grafen oksitin yapısı	18
Şekil 3.1. <i>H. sabdariffa</i> bitkisinin kurutulmuş kaliksleri	20
Şekil 3.2. Hibiscus özütü katkılı nişasta filmlerin hazırlanması	21
Şekil 3.3. Grafen oksit ve Hibiscus özütü katkılı nişasta filmlerin hazırlanması.....	22
Şekil 3.4. Film üretiminde kullanılan farklı bileşenlerin oranları	23
Şekil 3.4. Su buharı geçirgenlik analizinde kullanılan kaplara yerleştirilen % 5 Hbs özütü içeren nişasta filmler.....	25
Şekil 3.5. Antibakteriyel aktivite testinin temel aşamaları.....	26
Şekil 4.1. (a) %1, (b) %3 ve (c) %5 Hbs özütü içeren kuruma aşamasına bırakılmış nişasta filmler.....	28
Şekil.4.2. (a) % 1, (b) % 3 ve (c) % 5 oranında Hbs özütü içeren kurutulmuş nişasta filmlere ait kesitler.....	29
Şekil 4.3. (a) % 0.5, (b) % 1 ve (c) % 1.5 oranında GO içeren kurutulmuş nişasta filmlere ait kesitler.....	29
Şekil 4.4. Farklı oranlarda Hbs özütü içeren nişasta esaslı filmlerin oluşturduğu inhibisyon zonları (a) <i>K. pneumoniae</i> , (b) <i>B. subtilis</i> , (c) <i>S. Aureus</i> ve (d) <i>E. coli</i> . (0:%0 Hbs, 1:%1 Hbs, 2:%3 Hbs, 3:%5 Hbs).....	32
Şekil 4.5. Farklı oranlarda GO içeren nişasta esaslı filmlerin oluşturduğu inhibisyon zonları (a) <i>K. pneumoniae</i> , (b) <i>B. subtilis</i> , (c) <i>S. aureus</i> ve (d) <i>E. coli</i> . (1:% 0.5 GO, 2:% 1 GO, 2:% 1.5 GO.....	Hata! Yer işareti tanımlanmamış.
Şekil 4.6. Farklı oranlarda Hbs özütü içeren nişasta filmlerin kalınlık değerleri.....	33
Şekil 4.7. %5 Hbs özütü ve farklı oranlarda GO içeren nişasta esaslı filmlerin kalınlık değerleri	34
Şekil 4.8. Farklı oranlarda Hbs özütü içeren nişasta filmlerin SEM görüntüleri (2000x).....	41
Şekil 4.9. Farklı oranlarda GO içeren nişasta esaslı filmlerin SEM görüntüleri (2000x)	42
Şekil 4.10. Farklı oranlarda Hbs özütü içeren nişasta filmlerin FTIR spektrumları (a: % 0 Hbs, b: % 1 Hbs, c: % 3 Hbs, d: % 5 Hbs)	43
Şekil 4.11. Farklı oranlarda GO içeren nişasta esaslı filmlerin FTIR absorpsiyon spektrumları 44	

ÇİZELGE LİSTESİ

Çizelge 3.1. Farklı film kompozisyonlarına verilen isimlendirme.....	23
Çizelge 4.1. Farklı oranlarda Hbs özütü içeren nişasta esaslı filmlerin oluşturduğu inhibisyon zon çapları1	30
Çizelge 4.2. % 5 Hbs özütü ve farklı oranlarda GO içeren filmlerin oluşturduğu inhibisyon zon çapları1	30
Çizelge 4.3. Farklı oranlarda Hbs özütü içeren nişasta filmlerin su buharı geçirgenlik değerleri1	35
Çizelge 4.4. Farklı oranlarda Hbs özütü içeren nişasta filmlerin şişme değerleri (%) 1	37
Çizelge 4.5. Farklı oranlarda GO içeren nişasta esaslı filmlerin şişme değerleri (%)1	37
Çizelge 4.6. Farklı oranlarda Hbs özütü içeren nişasta esaslı filmlerin çözünürlük değerleri1 ..	38
Çizelge 4.7. Farklı oranlarda GO içeren nişasta esaslı filmlerin çözünürlük değerleri.....	39
Çizelge 4.8. Farklı oranlarda Hbs özütü içeren nişasta esalı filmlerin su içeriği (%)1	39
Çizelge 4.9. Farklı oranlarda GO içeren nişasta filmlerin su içeriği (%)1	40
Çizelge 4.10. Farklı oranlarda Hbs özütü içeren nişasta filmlerin TS ve % E degerleri1	45
Çizelge 4.11. Farklı oranlarda GO içeren içeren nişasta filmlerin TS ve % E degerleri1.....	46

1. GİRİŞ

Son zamanlarda ülkelerin nüfuslarındaki hızlı artış, sanayileşmenin, kentleşmenin, global küreselleşmenin ve gün geçtikçe hızla gelişen teknoloji kullanımının etkisiyle birlikte çevreye verilen zararda gözle görülür bir artış meydana gelmektedir. Bu durumdan meydana gelen endüstriyel, tarımsal ve kentsel atıklar çevre kirliliğinin tetiklenmesinde önemli rol oynamıştır (Topbaş ve ark., 1998). Çevre kirliliğinin büyük bir bölümünü sentetik kökenli plastikler oluşturmaktadır. Plastikler günümüzde birçok farklı endüstriyel alanda sıklıkla kullanılan polimerik malzemelerdir. Plastikler kömür, doğalgaz ve petrol gibi karbon temelli maddelerdir. Plastik malzemeler üretimlerinden tüketimlerine kadar geçen bütün süreç içerisinde işlenmesi kolay ve ekonomik açıdan uygun oluşu sebebi ile yaygın olarak kullanılan, modern dünyanın temel bir parçası haline gelmiş malzemelerdir ve otomotiv sektöründen tıbbi malzemelere kadar geniş bir kullanım alanına sahip malzemelerdir (El Kadi, 2010). Plastik malzemelerin sahip olduğu geniş kullanım alanı bir çok farklı endüstriyel alana fayda sağlaması ile birlikte doğada kendiliğinden kaybolması mümkün olmayan plastik atıklarının oluşmasına sebep olmaktadır. Bu sebepler göz önünde bulundurulduğunda bu atıkların kontrollünün sağlanması ve en uygun şekilde bertaraf edilmesi önemli bir konu haline gelmiştir. Plastiklerin geri dönüşümü ve yeniden kullanımının yeterli oranda gerçekleştirilememesi ile birlikte doğada biriken plastikler ekolojik sorunların artmasına sebep olmuştur (Emadian ve ark., 2017). Dünyada her yıl birçok farklı kullanım alanında ortalama 34 milyon ton plastik oluşmaktadır ve bu atıkların %93'ü depolama alanlarına ve okyanusa gönderilmektedir (Pathak ve ark., 2014). Avrupa Birliğine üye olan birçok ülkede plastik maddelerin çevreye olan zararını indirgeme kapsamında depolama konusuna yasaklar getirtiler bile oluşan plastik atığın yaklaşık olarak %50 oranında depolama alanlarına gönderilmektedir. Danimarka, Hollanda, İsveç, Almanya ve Avusturya atık plastik maddelerin çevreye olan zararını indirgeme kapsamında başlatılan geri dönüşüm uygulamalarında %80-100 arasında başarılı olmasına karşın çoğu Avrupa ülkesinde geri kazanım uygulamalarında başarı oranı sadece %28'dir (Commission, 2013). ABD aşırı plastik kullanımı sonucunda açığa çıkan plastik atıkların doğaya salınmasını engellemek için mücadele vermekle birlikte bu atıkların geri dönüşüm uygulamalarını artırmak için birtakım çalışmalar yapmaktadır. Gelişmekte olan birçok ülkede hala anlaşmalı olarak plastik atıkların uygun bir depolanması ve bertarafı yapılamamaktadır. Bu ülkelerin hızla ilerleme

kaydeden ekonomik ve endüstriyel gelişmelerine paralel olarak bu ülkelerdeki plastik kullanımları da diğer ülkelerin ortalama değerlerinin üzerindedir (Muenmee ve ark., 2016).

Günümüzde plastik atıkların geri dönüşüm uygulamaları için teknolojik olarak altyapımız yeterli gibi gözükse de 2050 yılında dünya nüfusunun yaklaşık olarak 9 milyar olacağı varsayımı göz önünde bulundurulduğunda artan nüfus ile birlikte gereksinim duyulan plastik üretimi ve buna paralel olarak plastik atık miktarında da artışlar meydana gelecektir (Emadian ve ark., 2017). Bütün bu problemler göz önünde bulundurulduğunda son yıllarda plastik atıkların depolanmasını önlemek ve bu atıkların çevreye verdiği zararı minimuma indirmek için biyolojik kökenli biyoplastik üretimi önemli bir konu haline gelmiştir (Hong ve ark., 2021). Özellikle son yıllarda kullanımı yaygınlaşan ve önemli bir malzeme haline gelen biyoplastiklere ilişkin farklı terimsel tanımlamalar vardır. ABD Tarım Bakanlığı'na göre biyoplastikler, "tamamen veya önemli bir kısmında biyolojik ürün, ormancılık malzemeleri ya da bitki, hayvan ve deniz ürünleri de olacak şekilde yenilenebilir yerli tarım malzemelerinden oluşan ticari veya endüstriyel ürünlerdir" (Bezirhan, 2012). Başka bir tanıma göre biyolojik tabanlı polimerlerden elde edilen plastikler "biyoplastikler" olarak tanımlanır. Biyoplastikler bakteri, mantar ve alg gibi canlı mikroorganizmaların yaşam döngüleri sonucunda veya bitkisel kaynaklardan saflaştırılarak elde edilebilirler (Luengo ve ark., 2003; Rajendran ve ark., 2012; Reddy ve ark., 2012).

Biyoplastikler çevreye herhangi bir zarar vermemeleri, doğada kendiliğinden bir biyolojik reaksiyon sonucunda bozulması yani biyobozunur oluşu ve petrole olan gereksinimi indirgemesi bakımından geleneksel plastiklerden ayrılır. Biyoplastikler üretimlerinin kolay olması, kolay şekil alabilmeleri, biyolojik olarak uyumlu olmaları ve herhangi bir toksik etkiye sebep olmamaları gibi birçok özelliğe sahiptirler (Luengo ve ark., 2003; Davis ve Song, 2006; KÖKSAL ve ark., 2019).

Günümüzde endüstriyel ve birçok farklı alanda kullanılan biyoplastiklerin büyük bir bölümünü biyobozunur ve doğal bir biyopolimer olan nişasta kökenli biyopolisakkaritler meydana getirmektedir (Uzunboy ve Türkmen, 2020). Nişasta ekonomik olarak uygun olan, doğada bol miktarda bulunan biyoyumlu bir biyopolisakkarittir (Mose ve Maranga, 2011). Nişasta bazlı biyopolimerlerin bertarafı, sentetik polimerlerin bertarafından daha kolay olabilmektedir ve bu sebeplerden ötürü

nişasta ekolojik bir çevrenin sürdürülmesinde umut verici bir biyopolimerdir (Roldán-Carrillo ve ark., 2003).

Yapılan bu çalışmada hem medikal alanda yara örtüsü hem de gıda sektöründe kaplama malzemesi olarak kullanılabilir özelliklere sahip olan nişasta bazlı filmlerin üretimi ve üretilen filmlerin karakterize edilmesi hedeflenmiştir. Yapılan bu çalışmada zayıf mekanik özelliklere sahip olan nişastanın mekanik özelliklerini iyileştirmek için filmlere grafen oksit eklenmiştir ve elde edilen filmlere antibakteriyel aktivite kazandırmak amacıyla yapıya *Hibiscus sabdariffa* bitkisi özütü eklenmiştir. Bu çalışmada üretilen filmler jel dökme metodu ile hazırlanmıştır ve hazırlanan filmlerin antibakteriyel aktiviteleri, şişme, çözünürlük, su içeriği, kalınlık, su buharı geçirgenliği analizleri, mekanik testleri, SEM ve FTIR analizleri yapılmıştır.

2. KAYNAK ARAŞTIRMASI

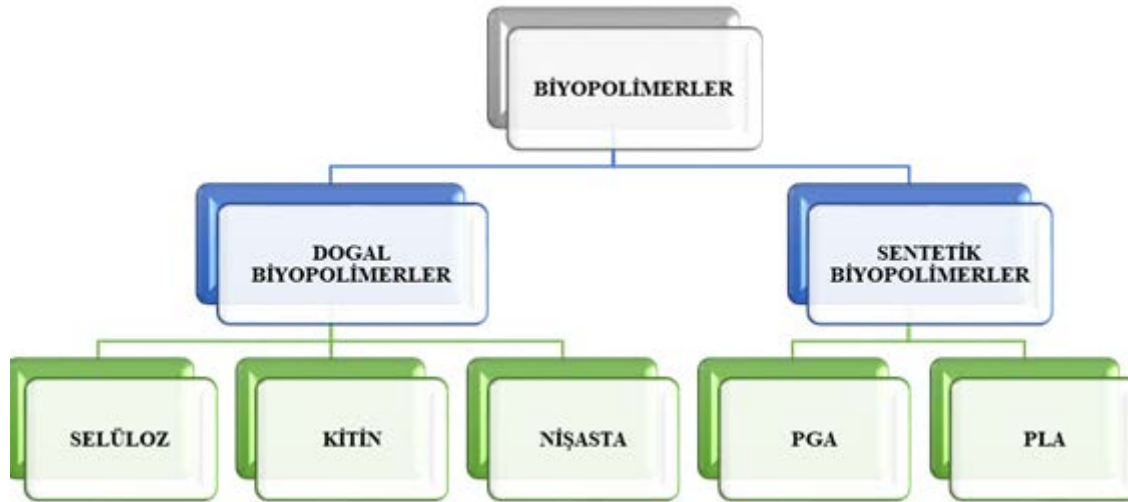
2.1. Biyopolimerler

Biyopolimerler yaşayan organizmalar tarafından oluşturulan, herhangi bir sentez sonucu oluşmamış, biyolojik olabileceği gibi canlıların yaşam döngüsü fonksiyonlarından bağımsız olarak doğada var olan organik polimerlerdir. Selüloz buna örnek olarak verilebilecek doğada en bol bulunan biyopolimerdir. Biyopolimerlerin büyük bir kısmı genelde canlıların yapısında yer alır. Bunun yanı sıra tırnak, yün ve saç protein yapısındaki doğal polimerlerdir. Ayrıca canlılarda polimerik yapıda olan karbonhidratlar, deoksiribonükleik asit ve ribonükleik asit bulunur. Canlıların hareketlilik, yaşlanma, duyu gibi özelliklerinden sorumlu olan bu polimerlere “biyopolimerler” denir (Baysal, 1994).

Araştırmacılar biyopolimerleri; “doğada, enzimatik reaksiyon ile karbondioksit ve su gibi küçük bileşenlere ayrılabilen biyobozunur polimerler olarak açıklamıştır (Armentano ve ark., 2013). Biyopolimerler genel olarak yeşil bitkiler, hayvanlar, bakteriler ve mantarların yaşam döngüsü sırasında doğal olarak üretilen polimerler olarak tanımlamıştır (Singh, 2011; Yoruç, 2017). Bu verilere dayanarak biyopolimerlerin biyolojik olarak parçalanmasından sonra doğaya herhangi bir zarar vermez oldukları çıkarımı yapılabilir. Bu özelliklerinden dolayı çoğu zaman yeşil materyaller olarak gruplandırılmışlardır. Sentetik polimerler ise petrokimyasal kökenlidir ve çoğu doğada biyolojik bir reaksiyon sonucunda bozunmaz. Bu nedenle günümüzde ekolojik dengeye sahip bir çevre oluşturmak için çevre dostu olan biyobozunur polimerlerin kullanılması yaygınlaşmıştır. Biyopolimerler; doğada temel bileşenlerine ayrıldıktan sonra geri dönüşümle tekrar karbon döngüsüne dahil olabilmektedirler. Günümüzdeki artış göz önünde bulundurulduğunda fosil kaynaklı işlenmemiş maddelerin korunması ve petrole olan gereksinimi azaltması büyük bir avantaj sunmaktadır. Kullanımı tamamlandıktan sonra atık hale gelen biyopolimerler tarımsal uygulamalarda kimyasal gübrelerin yerlerine kullanılabilirler ve böylelikle kimyasal gübre kullanım oranını azaltabilir. Günümüzde biyopolimerlerin hala az üretilmesinin nedeni oldukça pahalı olmasından kaynaklanmaktadır. Üretimin artmasıyla maliyetin düşeceği beklenmektedir (Jiménez ve ark., 2015).

Biyopolimerlerin kullanımının yaygınlaşmasıyla birlikte gün geçtikçe petrole olan gereksinim azalacak ve daha ekolojik bir çevre oluşumu sağlanacaktır (Gonçalves ve ark., 2021). Biyopolimerler; gıda sektöründe ambalaj ve kaplama malzemelerinde,

ilaç endüstrisinde bağlayıcı ve dolgu maddesi olarak, medikal ve cerrahi alanlardaki birçok uygulamada kullanılırlar. Biyopolimerlerin sınıflandırılması Şekil 2.1’de verilmiştir.

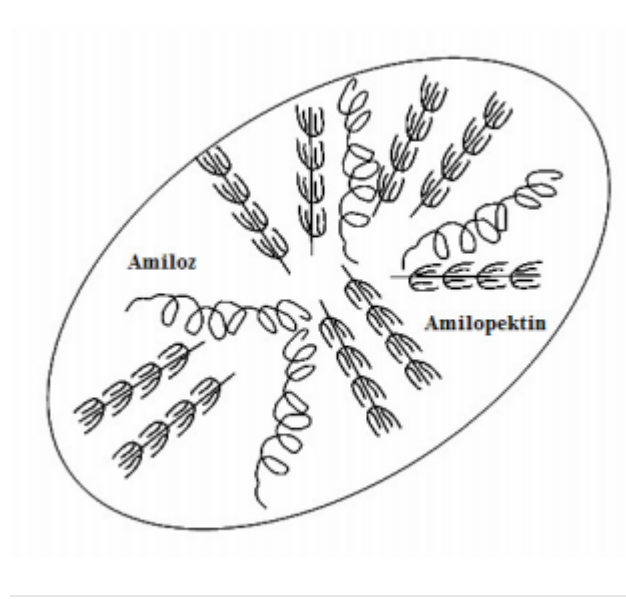


Şekil 2.1. Biyopolimerlerin sınıflandırılması (Liu ve ark., 2021)

Biyopolimerler hakkında birçok farklı gruplandırma olsa da biyopolimerler genel olarak doğal ve sentetik kökenli olmak üzere iki ana gruba ayrılır. Doğal biyopolimerler doğal kökenli olup; polisakkaritler/nişasta, aljinat, kitin/kitosan veya proteinler (soya, fibrin, ipek) ve güçlendirici/destekleyici olarak kullanılan doğal fibriller olmak üzere örneklendirilebilir. Sentetik biyopolimerler ise kontrollü şartlarda üretilen ve bu sebepten ötürü genel olarak sergileyeceği davranışları tahmin edilebilen; bozunma hızı ve mekanik özellikleri yinelenen yapılardır (Mohanty ve ark., 2002).

2.2. Nişasta

Ana kaynağına bağlı olmaksızın doğada var olan bütün nişastalar, amiloz ve amilopektin olarak adlandırılan polimerik yapıda karbonhidratlardan meydana gelmektedir. Amiloz birimleri, 500-2000 kadar glikoz molekülünün birbirine bağlanması ile oluşan düz zincirlerden, amilopektin birimi ise α -1,4 bağı 20-30 glikoz ünitelik çok sayıda yapının α -1,6 bağı ile bağlanması sonucu oluşan dallanmış zincirlerden meydana gelir. Bir amilopektin molekülü bünyesinde on binlerce glikoz ünitesi barındırabilir. Mısır, patates, pirinç, ve diğer bitkilerin kökleri ile gövdelerinde bol miktarda bulunmaktadır. D-glikoz yapısı, zincir yapısında bulunabileceği gibi halkalı yapıda da bulunabilmektedir. Halkalı yapıdaki D-glikoz ünitelerine D-

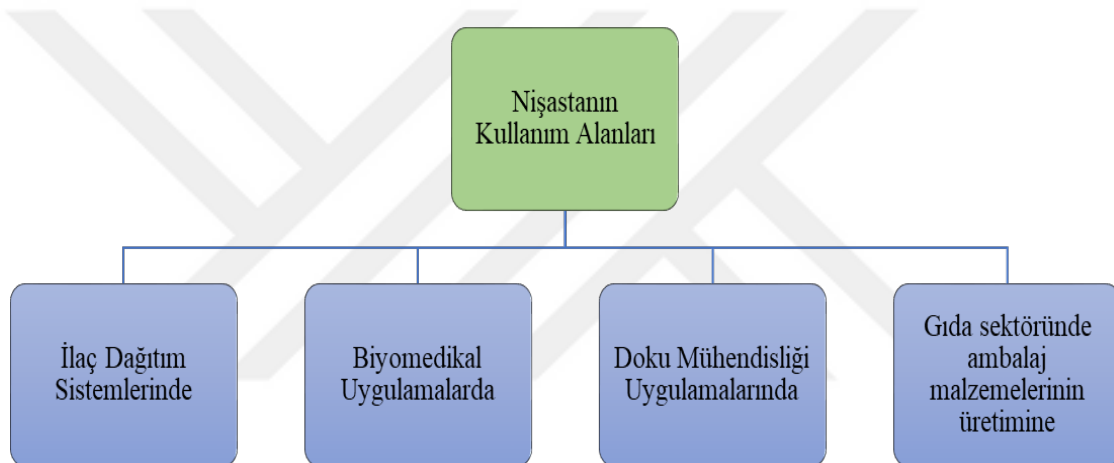


Şekil 2.3. Nişasta granüllerinin yapısı (Güzel, 2009)

Nişasta molekülleri dallanmış bir yapıya sahip oldukları için suyu bünyelerinde tutabilme özelliğine sahiptir. Nişasta moleküllerinin içerisindeki amiloz ve amilopektin ünitelerinin yüzey dağılımı oldukça düzenli bir yapıya sahiptir ancak nişasta moleküllerine su varlığında ısı uygulandığı takdirde amiloz ve amilopektin birimleri düzensiz bir yapıya dönüşür. Nişasta moleküllerinde bu yapısal düzensizliğin oluşması nişasta türüne bağlı olarak farklı sıcaklık parametrelerinde değişkenlik gösterir (Janssen ve Moscicki, 2009). Oda koşullarında nişasta molekülleri, polimer zincirlerinin birbirine sıkıca bağlı olduğu granüllerden meydana gelir. Suyun normal koşullarda içine giremediği granüllerdeki zincirler, nişasta moleküllerine uygulanan yüksek sıcaklık ile birlikte birbirlerinden dönüşümlü olarak ayrılırlar ve suyla etkileşimde bulunacak hale gelirler. Su ve yüksek sıcaklığın etkisiyle, nişastadaki polimerik yapılar birbirleriyle hidrojen bağları kurmak yerine su molekülleriyle birbirlerine bağlanırlar. Nişasta moleküllerinin yapısındaki bu değişimle birlikte yapısal düzenleri bozulur granül bölgeler küçülür ve amorflaşır. Bu duruma genel olarak jelatinizasyon ve jelatinizasyon aşamasının gözlemlenmeye başladığı sıcaklık değerine ise jelatinizasyon sıcaklığı denir. Nişastanın jelatinizasyona uğrayacağı sıcaklık değeri nişasta moleküllerinin elde edildiği kaynağa göre farklılık gösterir (İbanoğlu ve İbanoğlu, 2003).

2.2.1 Nişastanın kullanım alanları

Nişastanın çevre dostu ve doğal biyopolimer oluşu nişastadan elde edilen farklı formdaki yapıların birçok uygulama alanında kullanımına olanak sağlar. Nişasta gıda sektöründe kaplama malzemesi, ürünlerin viskozitesini artırıcı ajan veya besin içeriğini dengeleme amacıyla kullanılabilir. Eczacılıkta; farmasötik ajanların kontrollü salınımında, kapsül ve tablet formundaki farmasötik ilaçlarda bağlayıcı ajan olarak, kâğıt sanayisinde kâğıdın fiziksel özelliklerini iyileştirmek için, biyomedikal uygulamalarda farklı protezlerin üretiminde ve doku mühendisliği uygulamalarında doku iskelesi üretiminde sıklıkla kullanılır (Ölçer ve Betül, 2008). Nişastanın kullanım alanları Şekil 2.4’ de verilmiştir.



Şekil 2.4. Nişastanın yaygın uygulama alanları

Doğal bir polisakkarit olan nişasta yaygın kullanım alanına sahip olsa da bazı uygulama alanlarında kullanımını sınırlandıran zayıf mekanik özelliklere sahip olan bir biyopolimerdir. Nişasta molekülleri kullanılacağı alana göre yeni özellikler kazandırmak için kimyasal modifikasyon işlemleri uygulanabilir. Nişastanın modifikasyonu temel olarak nişastaya istenilen özelliklerin kazandırılması için uygulanır. Çapraz bağlama nişasta moleküllerinin mekanik özelliklerini iyileştirmek için yaygın olarak kullanılan bir yöntemdir (Chung ve ark., 2004).

Nişasta esaslı yapıların üretimi için, nişasta içerisindeki amiloz ve amilopektin granül yapısının tamamen dağılarak kedine özgü bir faz oluşturması gerekir. Bu işlem temelde iki farklı şekilde gerçekleştirilebilir. Bunlardan ilki yüksek sıcaklık ve yüksek nem eşliğinde nişastaya uygulanan jelatinizasyon işlemidir. İkincisi ise düşük nemli bir ortamda termomekanik etki yolu ile meydana gelen ekstrüzyon işlemidir

(Bastioli ve ark., 1990). Nişasta moleküllerinin mekanik özelliklerini iyileştirmek, zincir hareketliliğini sağlamak ve yapıya esneklik kazandırmak amacı ile gliserol, ksilitol, sorbitol, maltitol, sitrik asit, etilenglikol gibi polioller ile monosakkaritler gibi plastikleştirici özelliğe sahip olan farklı ilave maddeler kullanılır. Bu plastikleştirici ajanlar literatürde yaygın olarak kullanılan plastikleştirici maddelerdir (Biliaderis ve ark., 1999). Yukarıda verildiği gibi yapılan farklı çalışmalar ile nişastanın fonksiyonel özellikleri iyileştirilebilir ve bu da doğal bir polimer olan nişastanın uygulama alanlarını genişletir.

2.2.1.1 Doku mühendisliği uygulamaları

Doku mühendisliği, mühendislik ve yaşam bilimleri prensiplerini temel alarak, doku ve organların fonksiyonlarını yerine getirmek, geliştirmek, destek olmak, hasara uğramış bir dokunun onarımını sağlamak ya da tamamen yerini almak için tasarlanan biyolojik sistemler geliştiren multidisipliner bir alandır (Lanza ve ark., 2020). Doku iskelesi, hücrelerin üzerinde büyüüp gelişebileceği ve spesifik doku özelliklerini kazanabileceği yapılar olarak tasarlanmakta ve genellikle biyobozunur ve biyouyumlu, doğal ya da sentetik kökenli polimerik biyomalzemeler kullanılarak elde edilmektedir. Kullanılan polimerik biyomalzemelerin mekanik gücü kullanılan hedef bölgeye optimum derecede uygunluk göstermeli, dokunun yapı içerisinde gelişmesine izin vermeli ve çevre dokularla iletim sağlanabilmesi için gözenekli yapıda olmalıdır ve dokunun üç boyutlu yapısını taklit edebilmelidir (Thomas ve ark., 2016).

Nişasta doku mühendisliği uygulamalarında kullanım yeri bulan biyobozunur polimerlerden bir tanesidir. Bununla birlikte, saf nişasta malzemeleri mekanik özellikleri bakımından zayıf malzemelerdir ve işlenmesi oldukça zordur ve doku mühendisliği uygulamaları için gerekli uygun mekanik özellik performansını sergileyemezler. Nişastanın mekanik özelliklerini geliştirmek için uygulanan farklı stratejilerden birisi farklı polimerik malzemelerle kompozit yapılar oluşturulmasıdır.

Nişastanın farklı polimerik malzemelerle kompozit yapılar oluşturularak kullanıldığı birçok çalışma literatüre geçmiştir. (Salgado ve ark., 2004) tarafından yapılan bir çalışmada mısır nişastasası ve etilen vinil alkolden kompozit yapıları bir doku iskelesi üretilmiştir. Üretilen doku iskelesinin yapısal ve mekanik özellikleri karakterize edildiğinde iskelenin dokuların gelişmesinde uyum sağlayacak şekilde %60 gözenekli yapıya sahip olduğu, toksik bir etki oluşturmadığı, mekanik özellikleri bakımından zengin olduğu ve sonuç olarak nişasta bazlı doku iskelelerinin doku mühendisliği

uygulamaları için bir alternatif olarak değerlendirilmesi gerektiği görüşü ortaya konmuştur. Koski ve ark. (2018) tarafından yapılan başka bir çalışmada hidroksiapatit, polikaprolakton ve nişastadan kompozit yapıları doku iskeleleri üretilmiştir. İskelelerin özellikleri analiz edildiğinde yapıya nişasta eklenmesi ile birlikte yapının mekanik mukavemetinin iyileştiği, hücre çoğalmasını artırdığı ve nişastanın iskelelerde bağlayıcı sistem olarak kullanılabilmesi ve bunun yanı sıra nişastanın *in vitro* biyoyuymumluluğu geliştirdiği sonucuna varılmıştır.

2.2.1.2 Gıda sektörü uygulamaları

Gıda sektöründe üretilen ürünleri dış ortamdaki mikrobiyal tehlikelerden koruyan depolanmasını ve tüketimini kolaylaştıran özel malzemelerden üretilen kılıf, kap ya da sargılar gıda ambalajı olarak tanımlanır. Gıdanın kalitesi ve güvenliği sadece üretim aşamasında değil, paketlenme ve depolama aşamalarında da korunmalıdır. Ürünlerin depolanmasında ve ambalajlanmasında uygun koşulların sağlanması direk olarak ürünlerin kalitesini ve raf ömrünü uzatmaktadır (Şahin ve Akpınar-Bayizit, 2008). Tüketicilerin istekleri ve gıda sektörünün bu konudaki eğilimleri doğrultusunda ürünlerin ambalajlarının fonksiyonları gün geçtikçe daha da iyileşmektedir. Gıda sektöründe ambalaj malzemesi olarak kullanılan petrol tabanlı plastik materyaller sahip oldukları birçok özellik bakımından sıklıkla tercih edilmelerine rağmen buna ek olarak ortaya çıkardıkları çevresel riskler de önemli bir sorun haline gelmiştir (Alp ve ark., 2010). Bu olumsuzluklardan yola çıkılarak gıda kalitesini düşürmeden, gıdanın depolama ömrünü artıracak, düşük maliyetli ve ekolojik dengeye herhangi bir zararı olmayan çevre dostu materyal arayışına girilmiştir. Biyolojik olarak doğada kendiliğinden parçalanabilen ve yenilebilir filmler bu problemlerin çözümü olarak ortaya çıkmıştır (Şahin ve Akpınar-Bayizit, 2008). Nişasta, kitosan, aljinat ve selüloz gibi polimerler yüksek biyoyuymumluluk ve biyobozunurluk özelliklerinden dolayı gıda sektöründe ambalaj malzemesi olarak kullanılırlar. Öte yandan, gıda sektöründe kullanılan biyolojik olarak parçalanamayan sentetik kökenli polimerik malzemelere göre daha zayıf mekanik özellikler ve daha düşük nem bariyer özellikleri göstermeleri gibi bazı dezavantajlara sahiptir (Şen ve ark., 2017). Farklı plastikleştirici özelliklere sahip kimyasallarla plastikleştirilmesi veya hidrofilik karakterinin üstesinden gelmek için plastikleştirilmesi veya farklı malzemelerle kompozit yapı oluşturularak kullanılması gerekir. Sitrik asit ve gliserolün nişasta esaslı filmlerin suya duyarlılık

kapasitesini, termal stabilitesini ve gerilme mukavemetini iyileştirmek amacıyla plastikleştirici ajan olarak görev yaptığı yapılan çalışmalar ile kanıtlanmıştır (Menzel, 2020).

Nişasta bazlı yenilebilir kompozit filmler ve kaplamalar gıda güvenliğini ve stabilitesini artırabilir. Bir ürün içerisindeki bileşenler arasında ve ürün ile dış ortam arasındaki kütle transferini kontrol altına alabilir. Nişasta bazlı yenilebilir filmlere eklenen farklı çapraz bağlayıcı ajanlar, plastikleştirici maddeler, farklı polimerik malzemeler, kimyasal ajanlar ve antimikrobiyal ajanlarla nişasta bazlı biyobozunur gıda ambalajlarının kalitesi artırılabilir (García ve ark., 2009). Nişastadan elde edilen ve gıda sanayisinde kullanılan filmlerle ilgili literatüre geçmiş birçok çalışma vardır. Jaśkiewicz ve ark. (2020) yaptıkları bir çalışmada jel dökme metodu ile hazırlanan, çapraz bağlayıcı ajan olarak fitik asitin kullanıldığı nişasta filmlere hindiba bitki özütü ekleyerek Gram-negatif (*Pseudomonas fluorescens*, *Escherichia coli*) ve Gram-pozitif (*Bacillus subtilis*, *Staphylococcus aureus*) bakterilere ve ayrıca mantarlara (*Candida albicans*, *Aspergillus niger*) karşı antibakteriyel etkiye sahip, gıda güvenliği için uygun nem bariyer özelliğine sahip biyolojik olarak parçalanabilen filmler üretmişlerdir. Kim ve Pometto. (1994) tarafından yapılan başka bir çalışmada nişasta ve polietilenden elde edilen biyobozunur nişasta filmlerin bazı gıda ürünlerinin depolama ve kaplama gereksinimleri için birincil gıda kapları olarak bazı potansiyel kullanıma sahip olduğu görüşünü ortaya konmuştur. Bof ve ark. (2021) tarafından yapılan diğer bir çalışmada kitosan ve nişasta bazlı biyobozunur filmlerin karakteristik özellikleri incelenmiş ve su buharı bariyer özellikleri, mekanik özellikleri, UV bariyer özellikleri ve ekonomik oluşu bakımından bu filmlerin gıda ambalaj malzemesi olarak kullanımının uygun olduğu kanısına varılmıştır.

2.1.2.3 İlaç taşıma sistemleri

Yenilebilir ve doğal kaynaklardan elde edilen biyopolimerlerin doğada kendiliğinden bozunmaları, mekanik ve fiziksel özelliklerinin yanı sıra sergiledikleri yüksek biyoyuyumluluk ile sahip oldukları kullanım alanlarından bir tanesi de ilaç taşınım sistemleridir. Biyopolimerlerin ilaç taşınım sistemlerinde kullanılmasının temel sebebi ilacı hedef bölgeye taşıdıktan sonra vücutta absorbe edilmeleri ve bunun sonucunda vücuttan hızlı bir şekilde uzaklaşmalarıdır (Dev ve ark., 2010). Ayrıca, biyopolimerlerin biyolojik bir reaksiyon sonucunda bozulmalarıyla ortaya çıkan

bileşiklerin vücutta herhangi bir toksik etkisi yoktur. Bunun yanısıra ilacı doğrudan hedef bölgeye ileterek fazla dozda ilaç alınımını ve buna paralel olarak fazla dozda ilaç alınımından kaynaklanan ilacın yan etkilerini azaltırlar (Pavelić ve ark., 2001; Chai ve ark., 2010). İlaç taşıma sisteminde kullanılacak polimer türlerinin biyoyumluluk ve biyobozunurluk gibi belirli temel özelliklere sahip olması gerekir (Kleinstreuer ve ark., 2008; Yang ve ark., 2008). Biyoyumlu ve biyobozunur bir biyopolimer olan nişasta ilaç taşıma sistemlerinde yaygın olarak kullanılır. Literatürde nişastanın ilaç taşınım sistemlerinde kompozit yapılar halinde kullanıldığı birçok çalışma vardır. Desai (2007) tarafından yapılan bir çalışmada diklofenak sodyum ajanının kontrollü salınımı için nişasta ve pektin mikropartikülleri kullanmıştır. Yapılan çalışmanın sonucunda bu kompozisyonun diklofenak sodyum ajanının kontrollü ilaç salınımı için uygun olduğu sonucuna varmışlardır. Thomas ve ark. (2021) tarafından yapılan diğer bir çalışmada aljinat ve nişastadan elde edilen kompozit nanopartiküller ilaç dağıtım sistemlerinde kullanılmıştır. *In vitro* ilaç salınımı çalışmaları nanopartiküllerin %60 ile %75 arasında kapsülleme yeteneğine sahip olduğunu *in vitro* sitotoksitite testi ise geliştirilen nanopartiküllerin L929 hücre hattı ile biyoyumlu olduğunu ve geliştirilen nanopartiküllerin ilaç dağıtım sistemleri için umut verici bir yapıya sahip olduğu görüşünü ortaya koymuştur. Malafaya ve ark. (2001) tarafından yapılan başka bir çalışmada gözenekli yapıdaki nişasta nanopartiküllere yüklenmiş olan antienflamatuvar ajanın *in vitro* ilaç salınım çalışmaları sonucunda yapıdaki gözenek yoğunluğuyla orantılı olarak ilk salınım hızının yüksek olduğu daha sonra zamanla antienflamatuvar ajanın *in vitro* ilaç salınım çalışmaları sonucunda salınımın kontrollü bir şekilde yavaşladığı ortaya konmuştur.

2.3 Biyobozunur Nişasta Filmlere Takviyeler

Nişasta ekonomik olarak uygun, doğada bol bulunan ve çeyreye herhangi bir zarar vermeden kendiliğinden biyolojik bir reaksiyon sonucu parçalanabilen doğal bir biyopolimerdir ve petrol tabanlı malzemelerin çevreye olan zararını indirgemek için kullanımı yaygınlaşmış bir malzemedir (Xie ve ark., 2006). Nişasta molekülleri oldukça kompleks bir yapıya sahiptir ve tek başlarına karakterize edilmeleri oldukça zordur. Nişastanın yapısındaki zincirler arasında kuvvetli hidrojen bağları vardır. Bu hidrojen bağlarını zayıflatmak, nişasta moleküllerinin erime noktasını düşürmek, ve yapıya esneklik kazandırmak amacıyla plastikleştirici ajanlar kullanılır (Honarvar ve ark., 2016). Nişasta sahip olduğu birçok özellik ile çok yaygın kullanım alanına sahip olsa

bile fonksiyonel olarak mekanik özellikleri bakımından zayıf bir biyomalzemedir. Nişastanın mekanik özelliklerini iyileştirmek için birçok farklı yöntem vardır. Bu yöntemlerin başında mekanik olarak güçlü bir performans sergileyen farklı kimyasal ajanlarla ve farklı polimerik malzemelerle kompozit yapılar oluşturmak gelir. Kompozit yapılar genel olarak iki veya daha fazla malzemenin farklı özelliklerini bir araya getirerek yeni ve güçlendirilmiş farklı özellikte yeni bir yapının elde edilmesidir. Nişasta molekülleri ile birleştirilen üstün mekanik özelliklere sahip farklı polimer ve kimyasal ajanlar yardımı ile nişastanın mekanik özellikleri iyileştirilebilir ve böylelikle bazı alanlardaki kullanım kısıtlaması ortadan kalkar (Teixeira ve ark., 2014). Ayrıca nişastadan elde edilen biyobozunur yapıdaki filmlere antioksidanlar, antimikrobiyal ajanlar ve aromatik bileşikler katılarak elde edilen bu filmlere farklı mikroorganizmalara karşı antibakteriyel etki kazandırılabilir (Gómez-Aldapa ve ark., 2021).

2.3.1. Antimikrobiyal ajanlar

Doğal, biyoyumlu ve biyobozunur bir polisakkarit olan nişastadan yenilebilir filmler üretilebilir. Üretilen bu filmler yaygın olarak gıda sektöründe kaplama malzemesi olarak kullanılır. Üretilen bir filmin gıda sektöründe kaplama malzemesi olarak kullanılması için birçok niteliğe sahip olması gerekir. Bu özelliklerin en başında dış ortamdaki mikroorganizmalara karşı bariyer oluşturma özelliği gelir fakat saf formdaki nişasta bu niteliğe sahip değildir. Gıda ürünlerindeki bozulmaların temel sebebi gıdaların yüzeylerine mikroorganizmaların yerleşip burada gelişmesidir. Gıda sektöründe üretilen ürünlerin depolanması sırasında yüzeyde oluşan patojenik mikroorganizmalar, bakteriler, maya, küf ve mantarlar gıda güvenliği ve buna paralel olarak da insan sağlığı üzerinde olumsuz etkilere sahiptir. Bu durumun önüne geçmek için gıda sektöründe kullanılan kaplama malzemelerine benzoik asit, sorbik asit, propionik asit, organik asit ve antibiyotikler gibi çeşitli antimikrobiyal ajanlar uygulanır (Torres Ve Ark., 1985; Vojdanı Ve Torres, 1990). Gıda sektöründe antimikrobiyal ambalajlamada kullanılan en yaygın teknik antimikrobiyal film kaplamalardır. Gıda ile temas halinde bulunan antimikrobiyal film kaplamalar gıda yüzeyindeki belirli mikroorganizmaların üreme hızını düşürür veya mikroorganizmaların membran bütünlüğünü bozarak inhibe olmasını sağlar. Böylelikle gıdanın kalitesini ve raf ömrünü artırır, gıdanın tazeliğinin korunmasına yardımcı olur (Cha ve Chinnan, 2004).

2.3.2. Esansiyel yağlar ve bitki özütleri

Doğal kökenli biyobozunur özelliğe sahip olan filmlere kimyasal ve doğal katkı maddeleri ile antimikrobiyal özellik kazandırılabilir (Ayana ve Turhan, 2010). Kullanılan yapay bileşiklerin tüketimi ile oluşabilecek sağlık sorunları hakkında tüketicinin bilinçlenmesiyle, bu sentetik bileşenlerin doğal bileşenlere oranla etki mekanizmasının daha kuvvetli olmasına rağmen, doğal kökenli antimikrobiyal maddelerin kullanımına doğru bir eğilim olmuştur (Kechichian ve ark., 2010). Antimikrobiyal aktiviteye sahip doğal kökenli ilave maddelere olan kullanım talebinin artmasıyla birlikte, FDA tarafından GRAS olarak tanımlanan doğal bitki özütleri ve esansiyel yağlar son dönemlerde zengin bir araştırma kaynağı haline gelerek literatüre geçmiştir (Persico ve ark., 2009). Pelissari ve ark. (2009) nişasta ve kitosandan oluşan kompozit filmlere antibakteriyel özellik kazandırmak için esansiyel kekik yağı eklemiştir. Oluşan bu formülasyondaki filmin *Escherichia coli*, *Salmonella enteritidis*, ve *Staphylococcus aureus* olmak üzere üç farklı mikroorganizmaya karşı antimikrobiyal etkiye sahip olduğu ve ayrıca yapıya kekik yağının eklenmesi ile filmlerin daha esnek yapı kazandığı ortaya konmuştur. Radha Krishnan ve ark. (2015) tarafından yapılan diğer bir çalışmada mısır nişastasından elde edilen filmlere esansiyel baharat yağlarının eklenmesi ile birlikte çiğ etin stabilitesini arttıracak antimikrobiyal ve antioksidan aktivite kazandıkları ortaya konmuştur. Evangelho ve ark. (2019) yaptıkları bir çalışmada jel dökme metodu ile hazırladıkları mısır nişastası esaslı elde edilen filmlere portakaldan elde edilen esansiyel yağ eklenmiş ve filmlerin antibakteriyel aktivitesi, mekanik özellikleri ve bariyer özelliklerini değerlendirmişlerdir. Elde edilen filmlerin *Staphylococcus aureus* ve *Listeria monocytogenes*' e karşı yüksek antibakteriyel özellik gösterdiğini ve buna ek olarak filmlere ilave edilen esansiyel yağın filmlerin nem içeriğini, çözünürlüğünü ve su buharı geçirgenliğini artırdığını ortaya konmuştur. Nouri ve Nafchi (2014) nişasta filmlere farklı oranlarda betel yaprağı özütü ekleyerek elde ettikleri filmlerin antibakteriyel özellikleri, mekanik özellikleri ve ışık geçirgenliğini incelemiştir. Elde ettikleri sonuçlar, bitki özütünün yüzdesi arttıkça gerilme mukavemetinin azaldığını ve su buharı geçirgenliğinin azaldığını ortaya koymuştur. Bütün bunlara ek olarak bitki özütünün herhangi bir yüzdesine karşı duyarlı olmayan *Pseudomonas aeruginosa* dışında betel yaprağı özütünün konsantrasyonu arttıkça hem Gram pozitif hem de Gram negatif bakterilere karşı antibakteriyel aktiviteleri artmıştır. Ekramian ve ark. (2020) yaptıkları bir çalışmada metanol ile

hazırladıkları çörek otu özütünü nişasta filmlere ekleyerek gram pozitif ve gram negatif bakterilere karşı antimikrobiyal aktiviteye sahip biyobozunur yapıda filmler elde etmişlerdir. Corrales ve ark. (2009) yaptıkları bir çalışmada nişastaya üzüm çekirdeği özütü ekleyerek gram pozitif bakterilere karşı dirençli biyobozunur filmler elde etmişlerdir.

2.3.2.1 Hibiscus sabdariffa Bitkisi

H. sabdariffa Tayvan'ın doğu kesimlerinde, Sudan'da ve Tayland gibi tropikal iklimin egemen oldu bölgelerde yetiştirilen, ana kökeninin Afrika olduğu düşünülen kırmızı renkli ve oldukça göz alıcı bir bitki türüdür (Chang ve ark., 2006). *H. sabdariffa* "Malvaceae-Ebegümeçigiller" ailesinden, tüsüz, olup silindirik şeklindeki gövdesiyle birlikte 3 metreye kadar genişleyebilen tek veya birkaç yıllık yarı odunsu bir bitki türüdür. *Hibiscus* bitkisinin dünya çapında yaklaşık 500'den fazla farklı türü vardır ve her bölgede farklı isimlerle anılır. Karkade, kerkede, roselle, Sudan çayı, ekşi çay, nar çiçeği gibi birçok farklı isimle anılan *H. sabdariffa* genel olarak güneydoğu Asya ve Afrika'nın bazı tropik bölgelerinde yetişmektedir (Morton, 1974). Şekil 2.5' de *H. sabdariffa*'da kalikslerin görünümü verilmiştir.



Şekil 2.5. *H. sabdariffa*'da kalikslerin görünümü (Özdoğan, 2011)

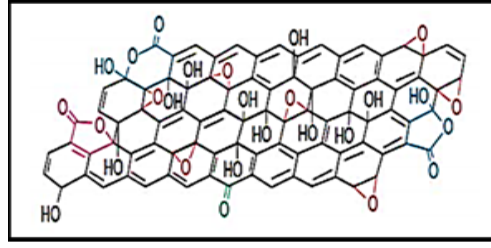
Dünyadaki birçok ülkede *H. sabdariffa* soğuk ve sıcak içeceklerin üretiminde kullanılır. Bu bitkinin günlük olarak ortalama tüketimi Nijerya' da 150-180mg/kg'dır. Batı Hindistan'da tatlandırıcı ve renklendirici olarak ve kahvede afrodisyak olarak

kullanılmaktadır (Ali ve ark., 2005). *H. sabdariffa* birçok bölgede acı sosların yapımında ve salatalarda ek madde olarak kullanılır. Malezyada yaygın olarak bilinen 'cuuries' isimli baharat karışımının yapımında bu bitki kullanılmaktadır. Yüksek protein içeriğinden dolayı besleyici özelliğe sahip olan *H. sabdariffa* Afrika bölgesinde yemeklerde besleyici madde olarak kullanılır (Mohd-Esa ve ark., 2010). Yerel ve alkolsüz içeceklerin üretiminde kendine yer bulmuş olan *H. sabdariffa* özütünün üzerinde yapılan araştırmaların sonucunda özütün sağlık üzerindeki birçok yararının ortaya çıkarılması ile birlikte gıda pazarlarında takviye madde olarak kullanılması yaygınlaşmıştır (Wang ve ark., 2000). *H. sabdariffa* mikroorganizmalara karşı antibakteriyel bir davranış sergiler ayrıca antifungal, hipokolesterolemik, antispazmodik, idrar söktürücü, antihipertansif madde, iltihaplanma önleyici ve immün modülatör bir bileşik olarak da kullanılır. *H. sabdariffa* dünya genelinde çoğu bölgede böbrek ve idrar kesesinde oluşan taşlar için geliştirilen konvansiyonel tedavi yöntemlerinde ilaç olarak kullanılır (Dafallah ve Al-Mustafa, 1996). *H. sabdariffa* bitkisi temel olarak yapısında antosiyaninler, flavonidler, polisakkarit ve organik asit barındırır. Çanak yapraklarının kurutulmasıyla elde edilen bitki özütlerinde fitosteroller, polifenoller, antosiyaninler, organik asitler ve diğer suda çözünebilir antioksidanların varlığı yapılan çalışmalar sonucunda ortaya konulmuştur. *H. sabdariffa* bitkisinin sahip olduğu birçok özelliğin temel nedeni yapısında var olan çeşitli biyoaktif bileşiklerle doğrudan ilgilidir (Riaz ve Chopra, 2018). 1995'te bir grup araştırmacı tarafından yürütülen bir çalışmanın sonucunda *H. sabdariffa* bitkisinin insanlarda kanseri ve yüksek kan basıncını engellediği sonucuna varılmıştır (Prasongwatana ve ark., 2008). (Wu ve ark., 2016) tarafından yapılan bir çalışmada *H. sabdariffa* bitkisinin anti kanser etkisine sahip antosiyaninleri içerdiği ortaya konmuştur. Su ve ark. (2018) tarafından yapılan bir diğer çalışmada ise *H. sabdariffa* bitkisinin zengin antosiyanin içeriğinin cilt kanserini önleyebileceği, tümör büyümesini ve akciğer metastazını inhibe edebileceği ortaya konmuştur. *Hibiscus* bitkisinin sahip olduğu diğer bir önemli özellik ise birçok farklı mikroorganizmaya karşı gösterdiği yüksek antibakteriyel aktivitedir. Son zamanlarda gıda sektöründe yenilikçi yaklaşımlardan biri biyobozunur polimerlerden üretilen kaplama malzemelerine antibakteriyel etki kazandırmak amacıyla bitki özütlerinin eklenmesidir. Bu kapsamda *H. sabdariffa* özütünün kullanıldığı birçok çalışma literatüre geçmiştir. Toro-Márquez ve ark. (2018) tarafından sığır etinin raf ömrünü uzatmak amacıyla yapılan bir çalışmada metanol ile hazırlanan *H. sabdariffa* özütünün *E. coli*, *S. enterica*, *S. aureus*, *L. monocytogenes* ve *B. cereus*' a karşı

antibakteriyel aktiviteye sahip olduğu ve bu bitki özütünün kullanılmasıyla birlikte etin raf ömründe uzama olduğu ileri sürülmüştür. Gómez-Aldapa ve ark. (2021) tarafından yapılan başka bir çalışmada jel dökme metodu ile hazırlanan mısır nişastası esaslı biyobozunur filmlere farklı oranlarda *H. sabdariffa* özütü eklenmiştir. Üretilen filmlerin antibakteriyel etkisi *L. monocytogenes*, *S. aureus*, *Salmonella spp* ve *E. coli* olmak üzere dört farklı bakteriye karşı test edilmiştir. Çalışmanın sonucunda bitki özütünün konsantrasyonu arttıkça antibakteriyel etkinin arttığı ayrıca filmlerin meknik özelliklerinin ve su buharı geçirgenliğinin önemli ölçüde iyileştiği açıklanmıştır. Zhai ve ark. (2017) tarafından yapılan diğer bir çalışmada polivinil alkol ve nişastadan elde edilen filmlere *Hibiscus* özütü eklenerek gıdaların tazeliğini eş zamanlı olarak izleyebilmeyi sağlayan kalorimetrik filmler geliştirilmiştir. Yapılan farklı bir çalışmada (Paim ve ark., 2017) kıymaya katılan farklı oranlarda *Hibiscus* özütünü gram negatif ve patojenik bir bakteri olan *E. coli*'ye karşı test ettiklerinde anti- *E. coli* aktivite gösterdiğini ve bu bitki özütünün doğal bir gıda katkı maddesi olarak kullanılmasının mümkün olduğu sonucuna varılmıştır.

2.3.3 Grafen Oksit

Grafen, altıgen yapı içerisinde düzenli bir yapıda bulunan karbon atomlarının sp² hibritleşmesi yaptığı ve doğada var olan tüm karbon allotroplarının temel birimi olan tek katmanlı bir yapıya sahip olan nano bir malzemedir. Sahip olduğu birçok özellik sayesinde günümüzde kullanımı gittikçe artan ve sürekli araştırılan popüler materyallerden birisidir (Wang ve ark., 2013; Ji ve ark., 2015). Moleküller arasındaki güçlü bağ yapısı ile birlikte eşsiz moleküler bir yapıda olan grafen mekanik, termal ve elektrokimyasal performansı bakımından üstün özelliklere sahiptir (Sengupta ve ark., 2011). Grafen oksit (GO) grafenden yapıca farklı olarak bünyesinde oksijen ve hidrojen atomları barındıran 2 boyutlu bir nano malzemedir (Park ve Ruoff, 2009). 19. yy başlarından bu yana kadar hummers, offeman, brodie ve staundenmaier gibi farklı yöntemlerle sentezlenen grafen oksit, yapısındaki fonksiyonel oksijen grupları ile birlikte grafenin oksitlemesiyle sentezlenen bir malzemedir (Botas ve ark., 2013). Grafenin oksitlenmesi ile elde edilen grafen oksitin yapısı Şekil 2.6'da verilmiştir.



Şekil 2.6. Grafen oksitin yapısı {Georgakilas, 2014 }

Grafen oksitin tüm fiziksel özellikleri yüzeyinde var olan fonksiyonel grupların uzaklaştırılması ile değiştirilebilir. Üzerinde yapılan işlemler sonucunda grafen oksit yalıtkan halden yarı iletken hale geçer. GO grafenden farklı olarak yapısında bulunan fonksiyonel oksijen gruplarının etkisiyle hidrofilik bir yapı kazanır ve bir çok çözücüde çözünebilir, Grafen ise yapısı gereği hidrofobiktir su içerisinde çözünmez (Marcano ve ark., 2010; Hu ve ark., 2015). Grafen oksit çözücülerde kolaylıkla çözünmesi, elektriksel iletkenliğinin iyi olması ve üstün mekanik özelliklere sahip olması nedeniyle birçok farklı alanda yapılan çalışmalarda yaygın olarak kullanılır (Park ve Ruoff, 2009; Marcano ve ark., 2010).

Sentetik plastik malzemelerin çevreye olan zararını minimum seviyeye indirmek amacıyla kullanımı gün geçtikçe artan biyoyoumlu, çevre dostu ve biyobozunur bir biyopolimer olan nişasta yaygın kullanım alanına sahiptir. Nişasta bir çok mükemmel özelliğe sahip olsa bile mekanik özellikleri bakımından zayıf bir malzemedir. Nişastanın kullanıldığı birçok uygulamada mekanik özelliklerini iyileştirmek için destekleyici farklı malzemelerle birlikte kullanılır. Özellikle son zamanlarda nişastadan elde edilen biyobozunur yapıdaki filmlere mekanik özelliklerini iyileştirmek amacıyla yaygın olarak kombinasyonu yapılan malzemelerden bir tanesi de grafen oksittir. Grafen oksitin nişasta molekülleri içerisinde dağılmasıyla oluşan bu iki madde arasındaki ara yüzey etkileşimleri ile birlikte nişastanın mekanik özellikleri iyileştirilebilir (Ma ve ark., 2013). Literatürde nişasta esaslı yapılara nano güçlendirici olarak grafen oksitin eklendiği birçok çalışma mevcuttur. Li ve ark. (2011) tarafından yapılan bir çalışmada giserol ile plastikleştirilmiş nişasta filmlere farklı oranlarda grafen oksit ilave edilerek jel dökme metodu ile filmler hazırlanmıştır. Bu filmlere grafen oksit ilave edilip analizler yapıldığında katkılı filmlerin katkısız filmlere oranla mekanik özelliklerinin ve termal stabilitesinin daha iyi olduğu ortaya konmuştur. Grafen oksitin nişasta filmlerin mekanik özelliklerini iyileştirme etkisinin yanında elektriksel iletkenlik üzerinde de etkisi vardır. Gürler ve Torğut (2021) tarafından yapılan bir çalışmada

nişastadan elde edilen filmlere katılan grafen oksitle birlikte filmlerin mekanik özelliklerinin yanı sıra elektriksel iletkenliğinin de arttığı ortaya konmuştur. Aqlil ve ark. (2017) tarafından yapılan diğer bir çalışmada nişasta ve ligninden elde edilen kompozit filmlere nano güçlendirici olarak grafen ilave edilmiştir. Elde edilen sonuçlar filmlerin mekanik özelliklerinin iyileştiğini, su buharı geçirgenliğinin azaldığını ve katkılı filmlerin termal stabilitesinin grafensiz filmlere göre daha iyi olduğunu ve grafen oksitin gelişmiş özelliklere sahip biyobozunur ambalaj üretmek için alternatif bir nano güçlendirici olduğu görüşünü doğrulamışlardır.



3. MATERYAL VE YÖNTEM

3.1. Materyaller

Bu çalışmada kullanılan nişasta ve gliserol (%99.5) Sigma-Aldrich'den, kurutulmuş *H. sabdariffa* bitkisi kaliksları Bağdat Baharatları Gıda San. ve Tic. Ltd. Şti'den temin edilmiştir. Çalışmada kullanılan grafen oksit Nanografi (Türkiye) firmasından temin edilmiştir.

Antibakteriyel aktivite testleri için *Staphylococcus aureus* (ATCC 25923), *Escherichia coli* (ATCC 25922), *Klebsiella pneumoniae* (ATCC 700603) ve *Bacillus subtilis* (ATCC 6633) kullanılmıştır. Nutrient Broth Merck'ten ve bakteriyolojik agar HIMEDIA'dan satın alınmıştır.

3.2. Yöntem

3.2.1. *H. sabdariffa* özütünün hazırlanması

H. sabdariffa bitkisinin kurutulmuş kaliksları ilk olarak blender yardımıyla toz haline getirilmiştir. Çalışmada kullanılacak bitki özütünün konsantrasyonu 1:10 (g/ml) olarak belirlenmiştir. Toz haline getirilen kurutulmuş *H. sabdariffa* bitkisinin kalikslarının üzerine belirlenen oranda distile su ilave edilmesi ile oluşan çözelti 10 dakika boyunca kaynatılmıştır. Daha sonra sulu çözelti oda sıcaklığında soğumaya bırakılmıştır. Soğutulan çözelti vakumlu filtrasyon düzeneği yardımı ile süzölmüştür. Elde edilen özüt taze bir şekilde, hazırlanan film solüsyonlarına ilave edilmiştir. *H. sabdariffa* bitkisinin kurutulmuş kaliksları Şekil 3.1' de verilmiştir.

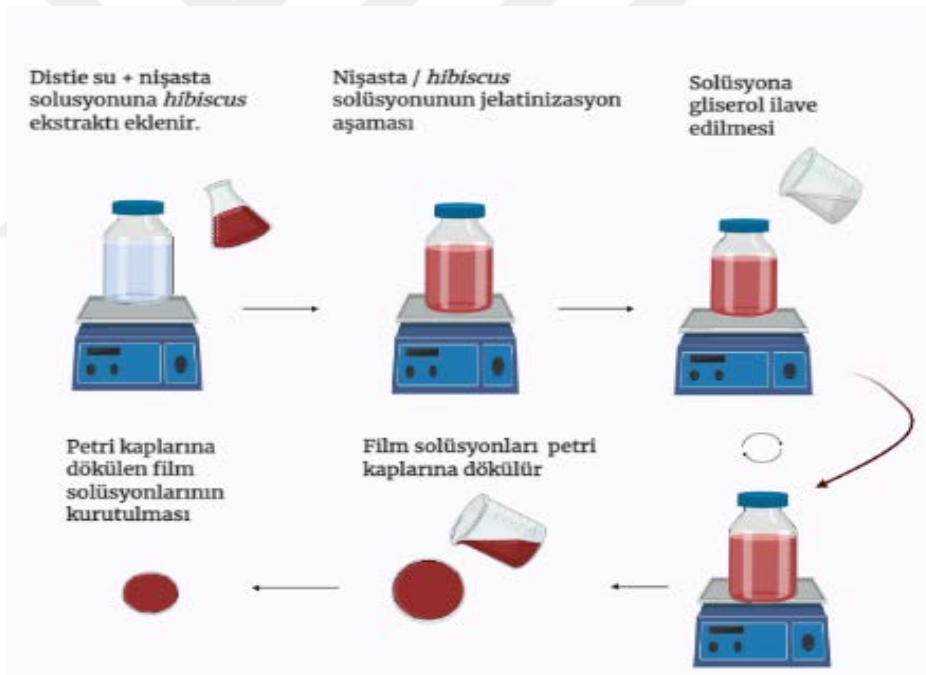


Şekil 3.1. *H. sabdariffa* bitkisinin kurutulmuş kaliksları

Hazırlanan bitki özütü taze olarak filmlere ilave edilmiştir, hemen kullanılmayacaksa buzdolabında muhafaza edilmiştir.

3.2.2. Hibiscus özütü katkı nişasta filmlerin hazırlanması

Jel dökme metodu ile hazırlanan biyobozunur nişasta filmlerin genel üretim aşamaları Şekil 3.2’ de verilmiştir. % 5 (w/v) nişasta distile suda çözülmüştür. Elde edilen homojen solüsyona farklı oranlarda (%1, 3 ve 5 v/v) bitki özütü eklenmiştir. Elde edilen solüsyon nişastanın jelatinize olması için 95°C sıcaklıkta mekanik karıştırıcıda 30 dakika boyunca karıştırılmıştır. Daha sonra sıcaklık 40°C’ ye düşürülerek kuru nişastanın % 40’ı oranında gliserol ilave edilmiştir. Son olarak hazırlanan solüsyonun tamamen homojenize olması için 30 dakika boyunca 70°C sıcaklıkta mekanik karıştırıcıda karışması sağlanmıştır.



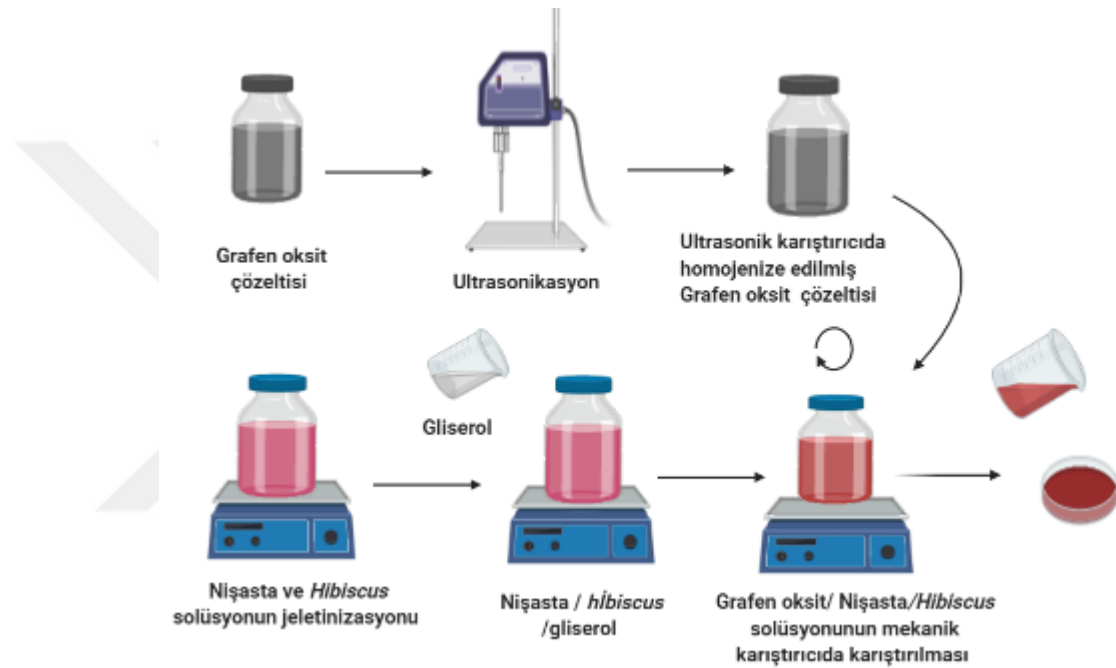
Şekil 3.2. Hibiscus özütü katkı nişasta filmlerin hazırlanması

Hazırlanan film solüsyonları 9 cm çapındaki petri kaplarına 20’ şer ml dökülerek 37°C sıcaklıkta 48 saat boyunca kurumaya bırakılmıştır.

3.2.3. Grafen oksit ve Hibiscus özütü katkı nişasta filmlerin hazırlanması

Grafen oksit ve Hibiscus özütü katkı nişasta filmlerin genel üretim prosedürü Şekil 3.3’ de gösterilmiştir. % 5 (w/w) nişasta distile suda çözülmüştür. Elde edilen homojen solüsyona %5 (v/v) oranında Hibiscus özütü ilave edilmiştir ve solüsyon 95°C

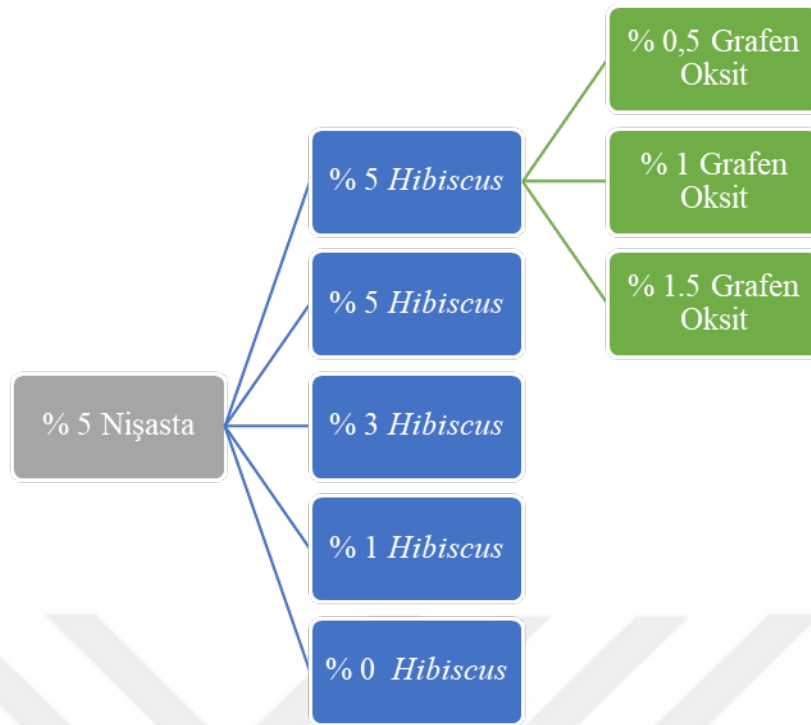
sıcaklıkta 30 dakika boyunca nişastanın jelatinizasyonu için mekanik karıştırıcıda karıştırılmıştır. Daha sonra sıcaklık 40°C'ye düşürülerek kuru nişastanın % 40 oranında gliserol eklenmiştir ve çözeltinin içinde gliserolün homojen bir şekilde dağılması sağlanmıştır. Elde edilen homojen solüsyona farklı oranlarda (% 0.5, 1 ve 1.5 w/w nişasta) ultrasonik homojenizatörde 120 dakika boyunca homojenize edilmiş grafen oksit çözeltisi ilave edilmiştir. Son olarak elde edilen solüsyon 180 dakika boyunca 70°C sıcaklıkta mekanik karıştırıcıda karıştırılmıştır.



Şekil 3.3. Grafen oksit ve *Hibiscus* özütü katkıli nişasta filmlerin hazırlanması

Hazırlanan grafen oksit ve *Hibiscus* özütü katkıli nişasta solüsyonları 9 cm çapındaki petri kaplarına eşit bir şekilde 20'şer ml dökülerek 48 saat boyunca 37°C sıcaklıkta kurutulmuştur.

Şekil 3.4' de üretilen filmlerde kullanılan malzemelerin oranları verilmiştir. Üretilen farklı film kompozisyonlarının nişasta miktarı (% 5 w/v) ve gliserol miktarı (% 40 w/w nişasta) sabit tutulmuştur. Farklı film kompozisyonlarına verilen isimlendirme Çizelge 3.1'de verilmiştir.



Şekil 3.4. Film üretiminde kullanılan farklı bileşenlerin oranları

Çizelge 3.1. Farklı film kompozisyonlarına verilen isimlendirme

Filmlerin isimlendirilmesi	Film kompozisyonu
0 Hbs	% 5 Nişasta + % 40 Gliserol
1 Hbs	% 5 Nişasta + % 40 Gliserol + % 1 Hbs
3 Hbs	% 5 Nişasta + % 40 Gliserol + % 3 Hbs
5 Hbs	% 5 Nişasta + % 40 Gliserol + % 5 Hbs
0 GO	% 5 Nişasta + % 40 Gliserol + % 5 Hbs
0,5 GO	% 5 Nişasta + % 40 Gliserol + % 5 Hbs + % 0.5 GO
1 GO	% 5 Nişasta + % 40 Gliserol + % 5 Hbs + % 1 GO
1,5 GO	% 5 Nişasta + % 40 Gliserol + % 5 Hbs + % 1.5 GO

Jel dökme metodu ile hazırlanan farklı formülasyona sahip olan nişasta filmlerden analiz türüne göre farklı boyutlarda diskler hazırlanarak analizleri yapılmıştır.

3.2.4. Filmlerin şişme- çözünürlük- su içeriği analizleri

Farklı formülasyonlardaki nişasta filmlerin şişme, çözünürlük ve su içeriği analizi için 1.5 cm çapında diskler hazırlanmıştır. Çıkarılan disklerin ilk ağırlıkları (W_1) tartılmıştır ve daha sonra bu diskler 70°C sıcaklıkta etüvde 24 saat boyunca kurutulmuştur. Bir gün boyunca kurutulan bu disklerin kuru ağırlıkları (W_2)

belirlenmiştir. Disk numunelerinin yaş ağırlığının (W_3) belirlenmesi için diskler içerisinde 20 ml su bulunan kaplara bırakılarak 24 saat boyunca bekletilmiştir. Bir gün boyunca suda bekletilen disklerin yaş (W_3) ağırlıkları tartılmıştır ve son olarak numuneler 70°C sıcaklıkta 24 saat kurutularak kuru ağırlıkları (W_4) belirlenmiştir. Elde edilen farklı ağırlık değerleri aşağıdaki formüllerde yerlerine konularak filmlerin su içeriği, şişme ve çözünürlük değerleri hesaplanmıştır.

$$\% \text{ Su içeriği} = (W_1 - W_2) / (W_1) \times 100 \quad (3.1)$$

$$\% \text{ Şişme} = (W_3 - W_2) / (W_2) \times 100 \quad (3.2)$$

$$\% \text{ Çözünürlük} = (W_2 - W_4) / (W_2) \times 100 \quad (3.3)$$

Her bir film kompozisyonu için şişme, çözünürlük ve su içeriği analizi en az 3 defa tekrar edilmiş ve bulunan değerlerin istatistiksel olarak analizleri yapılmıştır.

3.2.5 Film kalınlıkları

Farklı kompozisyonlarda üretilen filmlerin kalınlık değerlerinin hesaplanmasında bir dijital mikrometre (Mitutoyo, MDC-25SX, Japonya) kullanılmıştır. Her bir film örneğinin 5 farklı bölgesinden alınan kalınlık (mm) değerinin ortalaması belirlenmiştir. Alınan bu ortalama kalınlık değerleri mekanik testlerde ve su buharı geçirgenlik analizlerinde kullanılmıştır.

3.2.6. Filmlerin su buharı geçirgenlik analizi

Farklı kompozisyonlarda üretilen nişasta filmlerin su buharı geçirgenlik analizi için disk şeklinde kesilen film örnekleri Şekil 3.4' de verilen kaplara yerleştirildikten sonra $\% 75 \pm 1$ bağıl nem değerine ulaşmak için doymuş NaCl çözeltisi içeren ve iç sıcaklığı $25 \pm 1^\circ\text{C}$ sahip olan desikatöre yerleştirilmiştir. Her bir film formülasyonundan 10 cm^2 dairesel disk örnekleri kullanılmıştır.



Şekil 3.4. Su buharı geçirgenlik analizinde kullanılan kaplara yerleştirilen % 5 Hbs özütü içeren nişasta filmler

Su buharı geçirgenlik analizinde kullanılan kapların ağırlıkları 8 saat boyunca her iki saatte bir ve son ölçümleri ise 24. saatin sonunda alınmıştır. Su buharı geçirgenlik analizi her bir film örneği için 3 tekrarlı olarak çalışılmıştır ve elde edilen verilerin istatistiksel olarak analizleri yapılmıştır. Elde edilen değerler aşağıdaki formüllerde yerlerine konularak filmlerin WVTR ve WVP değerleri hesaplanmıştır.

$$WVP = (WVTR * L) / \Delta P \quad (3.4)$$

WVP: Su buharı geçirgenliği (g/msPa)

WVTR: Su buharı geçirgenliği oranı (g/m² s)

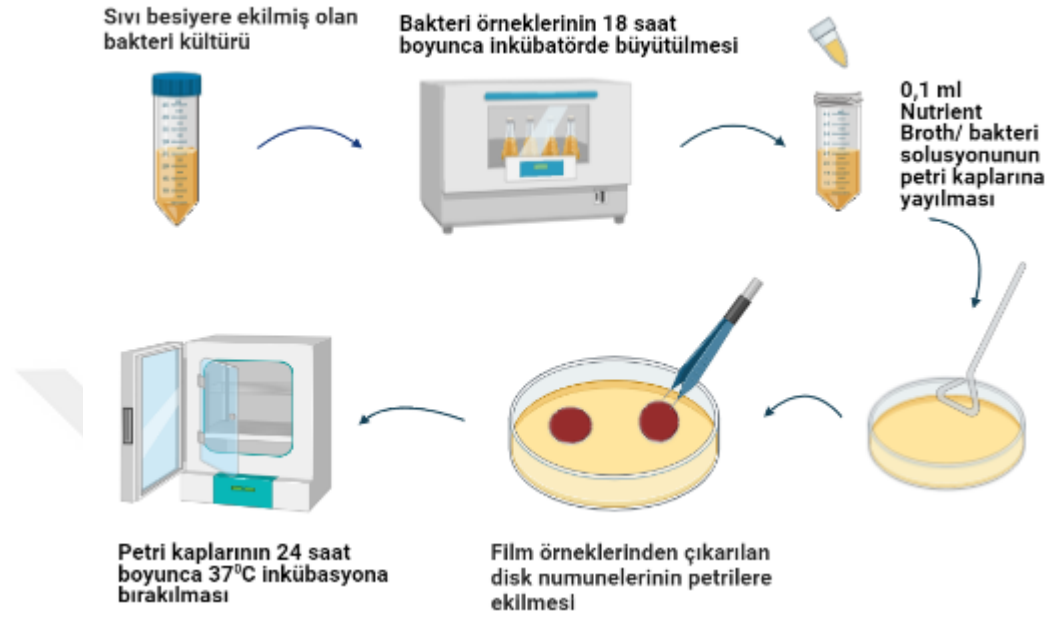
L: Ortalama film kalınlığı (m)

ΔP : Filmin her iki yüzü arasındaki kısmi su buharı basıncı farkı (7.922 x 10³ Pa)

3.2.7. Filmlerin antibakteriyel aktivite analizi

Farklı oranlarda Hbs özütü ve GO içeren nişasta filmlerin antibakteriyel etkisinin belirlenmesinde agar disk difüzyon yöntemi kullanılmıştır. Agar disk difüzyon yönetiminin genel aşamaları Şekil 3.5' de verilmiştir. Antibakteriyel aktivite iki Gram negatif (*E. coli* ve *K. pneumoniae*) bakteri ve iki Gram pozitif (*S. aureus* ve *B. subtilis*) olmak üzere dört farklı bakteriye karşı analiz edilmiştir. 18 saat boyunca çalkalamalı inkübatörde inkübasyona bırakılan bakteri kültürü serum fizyolojik kullanılarak belirli yoğunluğa (10⁶ kob/mL) seyreltildikten sonra 100 µL alınarak Nutrient Agar içeren petri kaplarına yayılmıştır. Farklı kompozisyonlarda üretilen

filmlerden çıkarılan 1 cm çapında disk numuneleri steril kabin içerisinde UV ışınları kullanılarak 10 dakika boyunca steril edildikten sonra diskler Nutrient Agar içeren petri kaplarının üzerine yerleştirilmiştir.



Şekil 3.5. Antibakteriyel aktivite testinin temel aşamaları

37°C sıcaklıkta 24 saat boyunca inkübasyona bırakılan disklerin etrafında oluşan zon çapları ölçülmüştür. Her bir film örneği için 3 kere tekrar edilen antibakteriyel aktivite testi sonucunda elde edilen verilerin istatistiksel olarak analizleri yapılmıştır.

3.2.8. Filmlerin fourier transform infrared (FTIR) spektroskopi analizi

Elde edilen farklı bileşenlere sahip nişasta filmlerin FT-IR absorpsiyon spektrumları Thermo Scientific Nicolet i550 model spektrometre cihazı kullanılarak 4000-400 cm^{-1} dalga boyu aralığında 4 cm^{-1} spektral çözünürlükte analiz edilmiştir.

3.2.9. Taramalı elektron mikroskobu (SEM) analizi

Farklı oranlarda Hbs ve GO içeren nişasta esaslı filmlerin yüzey morfolojisi numuneler altınla kaplandıktan sonra Zeiss Evo 10 model taramalı elektron mikroskobu cihazı kullanılarak 2000X büyütme oranında incelenmiştir.

3.2.10 Filmlerin mekanik testleri

Farklı oranlarda Hbs özütü ve GO içeren nişasta esaslı filmlerin gerilme mukavemeti (TS) ve kopmada uzama yüzdesinin (%E) belirlenmesinde Shimadzu AGS-X (Japan) mekanik test cihazı kullanılmıştır. Testler 50 mm x 10 mm boyutlarında kesilen film şeritleri kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Çeneler arası mesafe 35 mm olarak ayarlanmıştır ve 15 mm/dk hızla çekme işlemi gerçekleştirilmiştir. Her bir film türünden en az 5 örnek kullanılmıştır ve elde edilen ortalama değerler denklem (3.5) ve (3.6)' da yerlerine konularak filmlerin TS (MPa) ve %E değerleri hesaplanmıştır.

$$TS : (F_{\max}) / (L \times W) \quad (3.5)$$

F_{\max} : Kopma anındaki maksimum kuvvet

L: Numune kalınlığı (mm)

W: Numune genişliği (mm)

$$\%E : (\Delta L) / (L) \times 100 \quad (3.6)$$

ΔL : Kopma anındaki uzunluk farkı (mm)

L: Numune uzunluğu (mm)

3.2.11. İstatistik analizleri

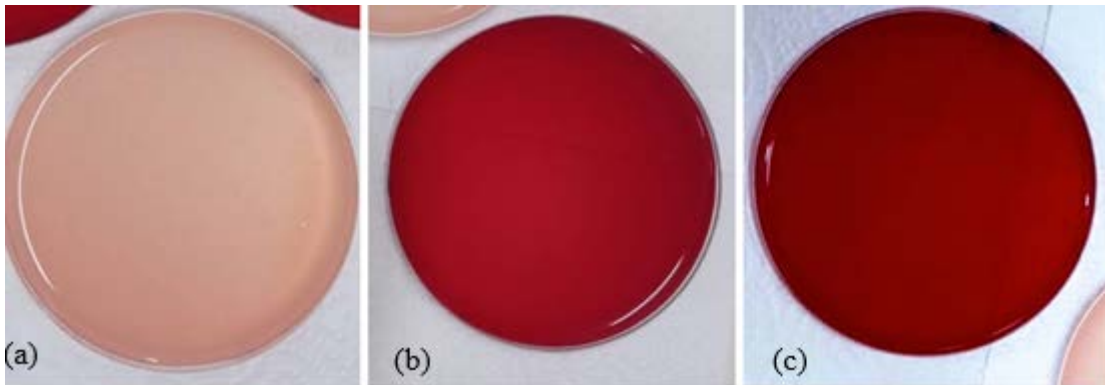
En az 3 tekrar halinde gerçekleştirilen analizlerin sonucunda elde edilen verilerin istatistiksel analizleri SPSS 17.0 istatistik programı kullanılarak yapılmıştır.

4. ARAŞTIRMA SONUÇLARI VE TARTIŞMA

4.1. Film Özellikleri

Çalışmanın başlangıcında jel dökme metodu kullanılarak hazırlanan, plastikleştirici olarak gliserolün sabit oranda kullanıldığı farklı konsantrasyonlarda (%2, %3, %5, %6) nişasta içeren filmler üretilmiştir. Üretilen bu filmlerin kırılgenlik ve petriden çıkarken yapısal bütünlüğünü koruması gibi özellikleri dikkate alındığında en uygun nişasta konsantrasyonu %5 olarak belirlenmiştir.

Gömez-Aldapa ve ark. (2021) tarafından yapılan bir çalışmada farklı oranlarda Hbs özütü içeren nişasta esaslı filmler üretilmiştir. Araştırmacılar filmlere eklenen özüt miktarı artıkça koyulaşan kırmızı renkte pürüzsüz yüzeye sahip olan nişasta filmler elde etmişlerdir. Buna paralel olarak yapılan bu çalışmada da filmlere farklı oranlarda eklenen Hbs miktarının %1'den %5'e doğru artmasıyla birlikte artan koyulukta kırmızı renkli ve pürüzsüz yüzeye sahip olan filmler elde edilmiştir. %5 Hbs özütü içeren filmlere %0.5, %1 ve %1.5 GO eklenmesiyle daha koyu renkte ve elastik yapıda filmler elde edilmiştir. Farklı oranlarda *Hibiscus* içeren nişasta solüsyonları petri kaplarına döküldüğünde de homojen bir yapıya sahip oldukları gözlemlenmiştir. Şekil 4.1'de kurumaya bırakılan farklı konsantrasyonlarda Hbs özütü içeren nişasta esaslı film solüsyonları gösterilmiştir.



Şekil 4.1. (a) %1, (b) %3 ve (c) %5 Hbs özütü içeren kuruma aşamasına bırakılmış nişasta filmler

Jel dökme metodu ile hazırlanan nişasta esaslı filmler oda koşullarında 48 saat boyunca kurutulmuştur. Kurutma aşamasından sonra petriden çıkarılan filmlere ait görseller Şekil 4.2 ve Şekil 4.3'de verilmiştir.



Şekil.4.2. (a) % 1, (b) % 3 ve (c) % 5 oranında Hbs özütü içeren kurutulmuş nişasta filmlere ait kesitler



Şekil 4.3. (a) % 0.5, (b) % 1 ve (c) % 1.5 oranında GO içeren kurutulmuş nişasta filmlere ait kesitler

Jel dökme metodu ile hazırlanan farklı kompozisyonlara sahip nişasta filmler oda sıcaklığında 48 saat boyunca kurutulmuştur. Elde edilen tüm farklı formülasyondaki filmler kurutma aşamasından sonra petri kaplarından yapısal bütünlüklerini koruyarak ayrılabilmiş ve diğer analizlerde kolaylıkla kullanılabilmişlerdir.

4.2. Antibakteriyel aktivite testi

Çeşitli mikroorganizmalara karşı antibakteriyel etkiye sahip olan bitki özütlerinin nişasta esaslı filmlere dahil edilmesiyle antibakteriyel aktiviteye sahip nişasta esaslı filmler elde edilebilmektedir. Filmlere kazandırılan bu özellik ile birlikte nişasta filmlerin antibakteriyel etki mekanizmasının ön planda olduğu uygulamalarda kullanım potansiyeli artmaktadır. Yapılan bu çalışmada nişasta filmlere eklenen farklı konsantrasyonlardaki (%1, %3, %5 v/v) bitki özütünün farklı mikroorganizmalara (*B. subtilis*, *K. pneumoniae*, *S. aureus*, *E. coli*) karşı değişen oranlarda antibakteriyel etki kazandırdığı gözlemlenmiştir. Yapılan analiz sonucunda antimikrobiyal etkinin yüksek konsantrasyonlarda ortaya çıktığı, düşük konsantrasyonlarda ise herhangi bir antibakteriyel etkinin meydana gelmediği veya oldukça düşük seyrettiği sonucuna varılmıştır. Hbs özütü içermeyen nişasta esaslı kontrol filmlerinde herhangi bir antibakteriyel etki görülmemiştir. %1 Hbs özütü içeren filmler antimikrobiyal etkinlik göstermede yetersiz kalırken, Hbs özütünün %3 den %5'e doğru artmasıyla birlikte inhibisyon zon çaplarında artış olmuştur. % 5 Hbs özütü içeren filmlere eklenen farklı

oranlarda grafen oksit ilave edilmesi ile birlikte *K. pneumoniae* ve *S. aureus*'a karşı ölçülen inhibisyon zonlarında artış meydana gelirken *B. Subtilis* ve *E. Coli*'ye karşı ölçülen inhibisyon zonlarında anlamlı oranda bir farklılık meydana gelmemiştir.

Fullerton ve ark. (2011) tarafından *H. sabdariffa*'nın antibakteriyel aktivitesini belirlemek için yapılan bir çalışmada özüt konsantrasyonunun artmasıyla doğru orantılı olarak antibakteriyel aktivitenin arttığı gözlenmiştir. Bu sonuç tarafımızdan yapılan çalışmanın sonucu ile paraleldir. Üretilen farklı kompozisyonlara sahip filmlerin test mikroorganizmalarına karşı oluşturduğu inhibisyon zon çapları Çizelge 4.1 ve Çizelge 4.2' de verilmiştir.

Çizelge 4.1. Farklı oranlarda Hbs özütü içeren nişasta esaslı filmlerin oluşturduğu inhibisyon zon çapları¹

Hbs özütü miktarı (%)	Zon çapı (mm)			
	<i>S. aureus</i>	<i>B. subtilis</i>	<i>E. coli</i>	<i>K. pneumoniae</i>
0	10,00 ± 0,00 ^{aA}	10,00 ± 0,00 ^{aA}	10,00 ± 0,00 ^{aA}	10,00 ± 0,00 ^{aA}
1	10,00 ± 0,00 ^{aA}	12,66 ± 0,33 ^{bB}	10,00 ± 0,00 ^{aA}	10,00 ± 0,00 ^{aA}
3	20,66 ± 1,45 ^{bA}	20,00 ± 1,00 ^{cA}	19,00 ± 0,57 ^{bA}	15,00 ± 1,52 ^{bB}
5	22,00 ± 0,66 ^{bA}	21,33 ± 0,88 ^{cA}	21,00 ± 1,00 ^{cA}	17,66 ± 1,20 ^{bB}

¹ İnhibisyon zonları mm cinsinden ölçülmüştür. Aynı satırdaki farklı büyük harflere ve aynı sütundaki farklı küçük harflere sahip değerler istatistiksel olarak anlamlı farklılıkları ifade etmektedir (p<0.05).

Çizelge 4.2. % 5 Hbs özütü ve farklı oranlarda GO içeren filmlerin oluşturduğu inhibisyon zon çapları¹

GO miktarı (%)	Zon çapı (mm)			
	<i>S. aureus</i>	<i>B. subtilis</i>	<i>E. coli</i>	<i>K. pneumoniae</i>
0	22,66 ± 0,66 ^{aA}	21,33 ± 0,88 ^{aA}	21,00 ± 1,00 ^{aA}	17,66 ± 1,20 ^{aB}
0,5	24,66 ± 0,33 ^{bA}	21,66 ± 0,33 ^{aB}	19,66 ± 0,33 ^{aC}	22,00 ± 0,57 ^{bB}
1	24,66 ± 0,88 ^{bA}	21,33 ± 0,33 ^{aB}	20,66 ± 0,33 ^{aB}	23,33 ± 1,00 ^{bA}
1,5	25,66 ± 0,33 ^{bA}	22,00 ± 0,57 ^{aB}	20,00 ± 1,00 ^{aB}	21,66 ± 0,88 ^{bB}

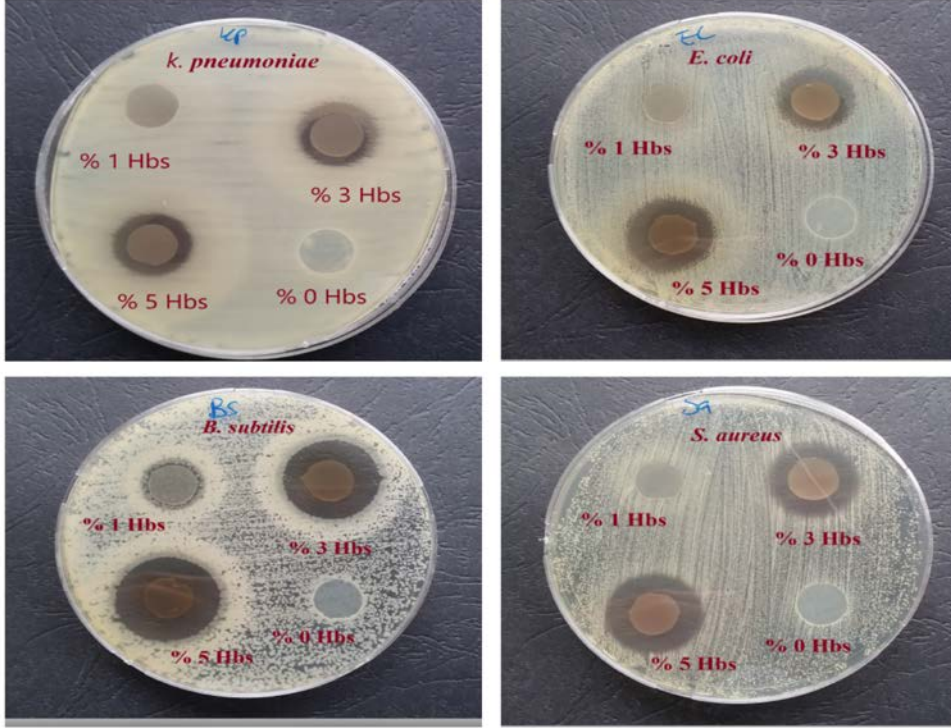
¹ İnhibisyon zonları mm cinsinden ölçülmüştür. Aynı sütundaki farklı küçük harflere sahip değerler istatistiksel olarak anlamlı farklılıkları ifade etmektedir (p<0.05).

Farklı mikroorganizmalara (*B. subtilis*, *K. pneumoniae*, *S. aureus*, *E. coli*) karşı yapılan antibakteriyel aktivite analizi sonucunda %3 ve % 5 Hbs özütü içeren filmlerde bitki özütüne karşı en duyarlı bakteri *S. aureus* iken filmlerin en az etki ettiği bakteri ise *K. pneumoniae* olarak belirlenmiştir. %5 Hbs özütü içeren nişasta esaslı filmlerde ölçülen en yüksek inhibisyon zon çapı 22 mm olarak gram pozitif bir bakteri olan *S. aureus*'a karşı ölçülmüştür. *H. sabdariffa* bitkisinden elde edilen bitki özütünün Gram negatif ve Gram pozitif bakterilere karşı gösterdiği antimikrobiyal aktivite konsantrasyona bağlı olarak artış göstermiştir.

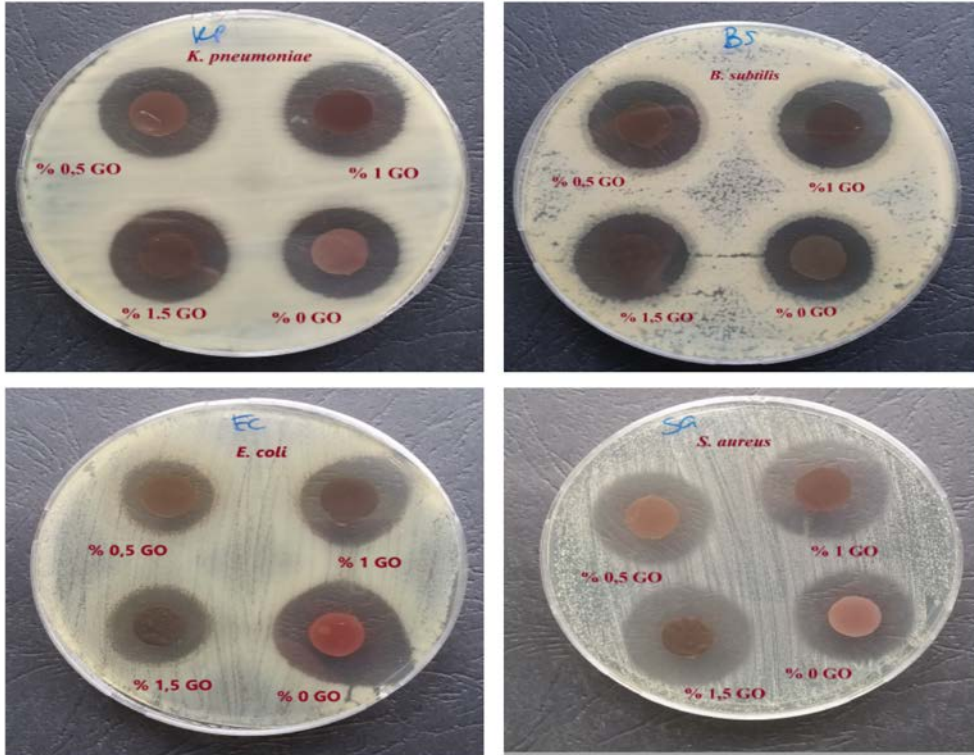
H. sabdariffa içerdiği fenolik bileşikler sayesinde birden fazla ilaca dirençli olan patojenik mikroorganizmalara karşı bakteriyosidal etki gösterir (Portillo Torres ve ark., 2019). Wang ve ark. (2013) Fenolik bileşiklerin hücre duvarına yapışarak, hücre membran bütünlüğünü bozduğu ve bu mekanizma aracılığıyla mikroorganizmaları inhibe ettiğini bildirmişlerdir.

% 5Hbs özütü ve farklı oranlarda GO içeren nişasta esaslı filmlerde ölçülen en yüksek inhibisyon zonu *S. aureus*'a karşı 25 mm olarak ölçülmüştür ve en düşük inhibisyon zonu 17 mm ile *K. pneumoniae*'ya karşı belirlenmiştir. Filmlerin etkili oldukları mikroorganizmalara karşı oluşturdukları inhibisyon zonlarına ait görüntüler Şekil 4.4 ve Şekil 4.5' de verilmiştir.

Elde edilen sonuçlar *H. sabdariffa* özütünün nişasta esaslı filmlere eklenmesiyle elde edilen antimikrobiyal filmlerin gıda ambalajı olarak kullanılabileceğini ve böylece gıda kökenli patojenik mikroorganizmaların insan sağlığı üzerindeki olumsuz etkilerini önlemek, gıdalarda oluşabilecek kontaminasyon riskini engellemek ve ayrıca gıdaların taze kalması ve raf ömrünün uzatılması gibi yararlar sağlayabileceğini ortaya koymaktadır.



Şekil 4.4. Farklı oranlarda Hbs özütü içeren nişasta esaslı filmlerin oluşturduğu inhibisyon zonları



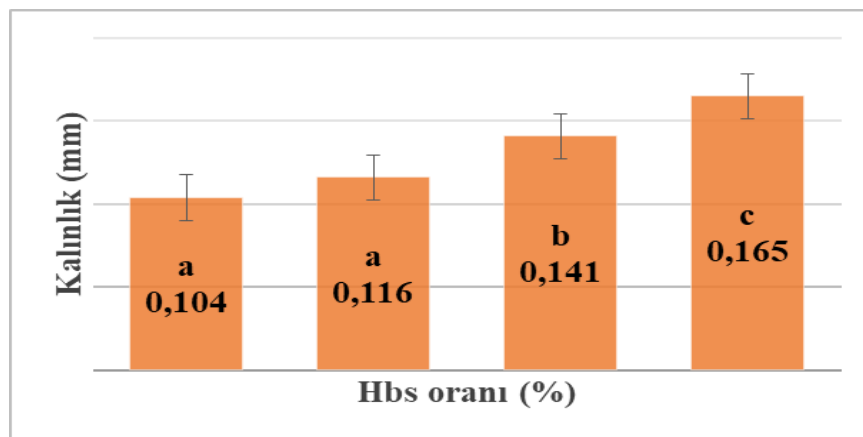
Şekil 4.5. Farklı oranlarda GO içeren nişasta esaslı filmlerin oluşturduğu inhibisyon zonları

4.3. Kalınlık

Filmlerin kalınlık deęerleri filmlerin mekanik özellikleri ve bariyer özellikleri gibi başlıca özelliklerini doğrudan etkileyen temel bir faktördür. Biyopolimer bazlı filmlerin kalınlığı bir çok farklı parametreye baęlı olarak deęişir. Oluşturulan biyopolimer bazlı filmlerin kalınlıkları filmi oluşturan bileşenlerin türüne, konsantrasyonuna, döküm aşamasında kullanılan plakaların boyutuna göre farklılık gösterebilir (Leerahawong ve ark., 2011). Hbs özütü ilave edilen ve edilmeyen nişasta filmlerin kalınlıkları Şekil 4.6 ve Şekil 4.7’de gösterilmiştir.

4.3.1. Farklı oranlarda Hbs özütü içeren nişasta esaslı filmlerin kalınlıkları

Biyobozunur nişasta filmlerin özelliklerini iyileştirmek için eklenen farklı bileşikler ve bitki özütleri elde edilen filmlerin kalınlık deęerlerinin farklılaşmasına sebep olabilir. Plastikleştirici olarak gliserolun kullanıldığı farklı oranlarda (%1, %3 ve %5 v/v) Hbs özütü içeren nişasta filmlerin kalınlık deęerleri 0.104 ile 0.165 mm arasında formülasyona baęlı olarak farklılık göstermektedir. %1 oranından bitki özütü içeren nişasta filmler bitki özütü içermeyen filmlerle karşılaştırıldığında aralarında istatistiksel olarak anlamlı bir fark gözlemlenmemiştir. Bitki özütünün konsantrasyonunun %3 den %5’e doğru artmasıyla birlikte nişasta filmlerin kalınlık deęerlerinde artış gözlemlenmiştir. ($p < 0.05$). Kalınlık analizi sonucunda elde edilen ortalama deęerler Şekil 4.6’da verilmiştir.

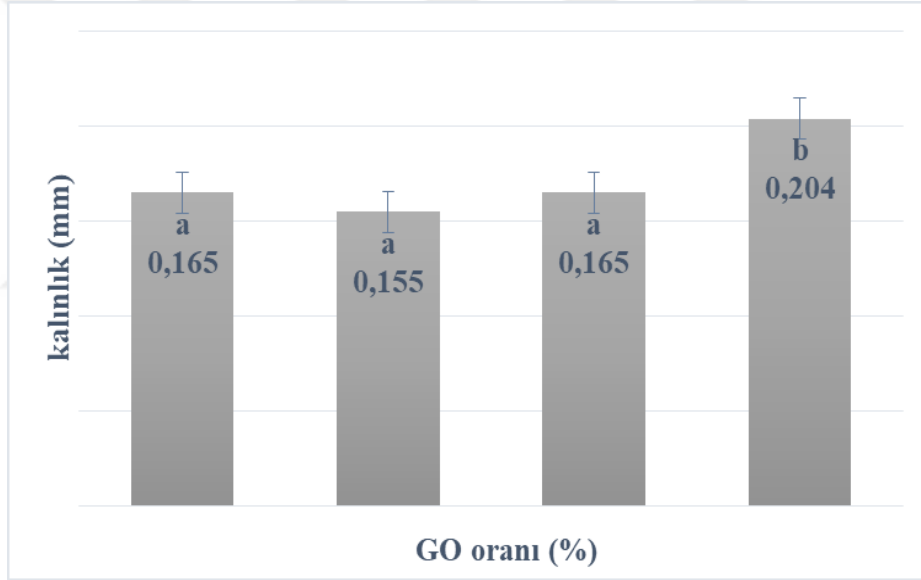


Şekil 4.6. Farklı oranlarda Hbs özütü içeren nişasta filmlerin kalınlık deęerleri

Farklı oranlarda Hbs özütü içeren nişasta esaslı filmlerin kalınlık analizi sonuçlarına bakıldığında filmlerin kalınlık değerlerinin bileşenlerin konsantrasyonuna bağlı olarak farklılık gösterdiği görülmektedir.

4.3.2 Farklı oranlarda GO içeren nişasta esaslı filmlerin kalınlık değerleri

%5 Hbs özütü içeren nişasta esaslı kompozit filmlere farklı oranlarda (% 0.5, % 1 ve % 1.5 w/w nişasta) GO eklenmesi ile birlikte filmlerin kalınlık değerlerinde GO konsantrasyonuna bağlı olarak değişimler gözlemlenmiştir. % 0,5, % 1 GO içeren filmlerin kalınlık değerleri GO içermeyen filmlere yakın iken % 1.5 GO içeren filmlerin kalınlık değerlerinde artış gözlemlenmiştir. GO içeren nişasta esaslı filmlerin ortalama kalınlık değerleri Şekil 4.7’de verilmiştir.



Şekil 4.7. %5 Hbs özütü ve farklı oranlarda GO içeren nişasta esaslı filmlerin kalınlık değerleri

Grafen oksitin nişasta solüsyonları içerisinde homojen bir şekilde dağılması sonucunda GO içeren nişasta filmler elde edilmiştir. Film yapılarına eklenen yüksek miktarda GO ile filmlerin kalınlık değerlerinde istatistiksel olarak anlamlı bir artış gözlemlenmiştir.

4.4. Su buharı geçirgenlik (WVP) analizi

Polimerik biyobozunur filmlerin kullanım potansiyelini belirleyen önemli faktörlerden bir tanesi de su buharı geçirgenlik kapasitesidir. Biyopolimerlerden elde edilen biyobozunur fimler gıda sanayisinde ambalaj malzemesi olarak kullanılacaksa buradaki temel amacı gıda ile çevresindeki atmosfer arasında gerçekleşen nem transferini önlemek veya azaltmaktır (Fabra ve ark., 2021). Biyomedikal uygulamalarda farklı türde yara örtülerinin üretiminde kullanılan biyopolimerik malzemelerin ise yaraya nemli bir ortam sağlayabilecek bariyer özelliklerine sahip olması gerekir (Torres ve ark., 2013).

Farklı oranlarda Hbs özütü içeren nişasta esaslı filmlerin su buharı geçirgenlik değerleri Çizelge 4.3'de verilmiştir. Jel dökme metodu ile hazırlanan nişasta esaslı biyobozunur filmler yapısal bütünlüğünü koruyarak bütün analizlerde rahatlıkla kullanılmıştır. Fakat %5 Hbs özütü içeren filmler ve farklı oranlarda GO içeren nişasta esaslı kompozit filmler su buharı geçirgenlik analizi sırasında düzenek içerisinde belirli bir süre sonra yapısal bütünlüklerini kaybetmişlerdir ve dolayısıyla su buharı geçirgenlik oranları belirlenememiştir.

Çizelge 4.3. Farklı oranlarda Hbs özütü içeren nişasta filmlerin su buharı geçirgenlik değerleri¹

Hbs özütü miktarı (%)	WVP($\times 10^{-12}$ g/msPa)
0	1,32 \pm 0,07 ^a
1	8,07 \pm 0,33 ^b
3	1,31 \pm 0,05 ^a

¹ Aynı sütundaki farklı harflere sahip değerler istatistiksel olarak anlamlı oranda farklıdır ($p < 0.05$).

Nişasta esaslı filmlerin su buharı geçirgenlik değerleri filmlerin formülasyonuna ve formülasyondaki bileşenlerin konsantrasyonuna bağlı olarak değişiklik göstermiştir. Filmlerden alınan su buharı geçirgenlik ölçümleri 1.32×10^{-12} ile 8.07×10^{-12} g/msPa aralığındadır. Düşük miktarda bitki özütü içeren filmlerin su buharı geçirgenliği bitki özütü içermeyen filmlere oranla daha yüksek olarak tespit edilmiş ancak yüksek oranda bitki özütü ilave edilen filmler ile katkısız filmler arasında herhangi bir fark gözlenmemiştir ($p < 0,05$).

Su buharının polimer boyunca ilerlemesi suyun önce yapıda bileşenlerine ayrılması daha sonra difüzyonu ile meydana gelmektedir ve bir çok parametreye bağlı

olarak deęişir. Yapılan alıřmada en iyi bariyer zellięi en yksek Hbs zt ieren filmlerde gzlemlenmiřtir. Bu bulgulara paralel olarak Gmez-Aldapa ve ark. (2021) tarafından yapılan bir alıřmada farklı oranlarda Hbs zt katkılı niřasta filmlerin bariyer zellikleri analiz edildięinde yksek bitki zt katkılı filmlerin en dřk su buharı geirgenlięi deęerine sahip olduęu belirlenmiřtir. Benzer řekilde Hassan ve ark. (2018) polivinil alkol / niřasta filmlere kattıkları farklı oranlarda zerdeal ile birlikte filmlerin su buharı geirgenlik deęerinin azaldıęı sonucuna varmıřlardır.

4.5. řiřme, znrlk ve su ierięi analizleri

Farklı oranlarda Hbs zt ve farklı oranlarda GO katkılı kompozit filmlerin řiřme, znrlk ve su ierięi analizi ayrı ayrı yapılmıřtır. Analiz sonucunda elde edilen bulgulara gre filmlerin řiřme, znrlk ve su ierięi, film yapısındaki bileřenlere ve bu bileřenlerin konsantrasyonuna gre farklılık gstermiřtir. řiřme, znrlk ve řu ierięi analizi sonucunda elde edilen deęerler farklı kompozisyonlara gre ayrılarak izelge 4.4, izelge 4.5, izelge 4.6, izelge 4.7, izelge 4.8 ve izelge 4.9' da verilmiřtir.

4.5.1. Farklı kompozisyona sahip olan niřasta filmlerin řiřme analizi

Niřastadan elde edilen biyobozunur filmlerin řiřme dereceleri izelge 4.4 ve izelge 4.5'de grleceęi zere filmlerin formlasyonuna ve formlasyondaki bileřenlerin konsantrasyonlarına baęlı olarak deęiřkenlik gstermiřtir. %1 oranından bitki zt ieren niřasta filmler bitki zt ieremeyen filmlerle karřılařtırıldıęında aralarında istatikselsel olarak anlamlı bir fark gzlemlenmemiřtir. Bitki ztnn konsantrasyonunun artmasıyla birlikte niřasta filmlerin řiřme deęerlerinde artıř gzlemlenmiřtir. Niřasta filmlere katılan bitki ztleri řiřme deęerlerinde artıřa sebep olabilir. Hassan ve ark. (2018) yaptıkları bir alıřmada niřasta ve polivinil alkolden oluřan kompozit filmlere ekledikleri zerdeal ile birlikte filmlerin řiřme derecelerinde anlamlı artıřlar gzlemlenmiřtir ve bu artıřın zerdealın bileřenlerinde bulunan hidroksil gruplarından kaynaklanıyor olabileceęi sonucuna varmıřlardır. Farklı oranlarda GO katkılı niřasta filmler incelendięinde yksek miktarda GO katkılı filmler ile katkısız filmler arasında istatikselsel olarak anlamlı bir fark grlmezken, dřk miktarda GO ieren filmlerin řiřme deęerlerinin katkısız filmlerden anlamlı oranda ($p < 0,05$) yksek

olduğu görülmüştür. Şişme değerlerinde görülen bu artışın grafen oksitin yapısında bulunan hidroksil gruplarından kaynaklanıyor olabileceği düşünülmektedir.

Çizelge 4.4. Farklı oranlarda Hbs özütü içeren nişasta filmlerin şişme değerleri (%) ¹

Hbs özütü miktarı (%)	Şişme değeri (%)
0	95,17 ± 1,35 ^a
1	91,17 ± 3,30 ^a
3	101,32 ± 1,32 ^b
5	99,52 ± 2,14 ^b

¹Farklı küçük harfler istatistiksel olarak anlamlı farkları göstermektedir (p<0,05).

Çizelge 4.5. Farklı oranlarda GO içeren nişasta esaslı filmlerin şişme değerleri (%)¹

GO miktarı (%)	Şişme değeri (%)
0	99,52 ± 2,14 ^a
0,5	118,15 ± 2,28 ^b
1	123,44 ± 1,10 ^b
1.5	95,71 ± 1,43 ^a

¹Farklı küçük harfler istatistiksel olarak anlamlı farkları göstermektedir (p<0,05).

4.5.2. Filmlerin çözünürlük analizi

Polimerlerin çözünmesinin temel olarak dört aşamadan oluştuğu bilinmektedir. İlk aşamada polimerin suyu absorplaması daha sonra şişmesi ve bunu takiben polimer zincirlerini bir arada tutan kuvvetli hidrojen bağları ve Van der Waals kuvvetlerinin birbirinden ayrışması bulunmaktadır. Biyokompozit filmlerin suda çözünürlüğü kullanım potansiyalini belirleyen önemli bir parametredir. Filmlerin çözünürlük değerleri sulu ortamdaki yapısal bütünlüklerini koruyabilmelerinin temel bir göstergesidir. Düşük çözünürlük değerleri suya olan yüksek direnç anlamına gelir ve

özellikle gıda ambalaj malzemesi olarak kullanılacak filmler için istenilen bir özelliktir (Gutiérrez Carmona ve Alvarez, 2018). Genel olarak filmlerin çözünürlük değerleri eklenen katkı maddelerin yapısına, konsantrasyonuna ve bu katkı maddelerinin hidrofilik ve hidrofobik indekslerine bağlı olarak farklılık gösterir (Ghasemlou ve ark., 2013). Çizelge 4.6 ve Çizelge 4.7' de farklı kompozisyonlara sahip nişasta esaslı filmlerin çözünürlük değerleri verilmiştir. Nişasta esaslı filmlere eklenen Hbs özütü miktarı arttıkça filmlerin çözünürlük değerlerinde istatistiksel olarak anlamlı artışlar meydana gelmiştir ($p < 0,05$). Ekramian ve ark. (2021) yaptıkları bir çalışmada çörek otu özütü ekledikleri filmlerin çözünürlük değerlerinde özüt miktarının artmasına paralel olarak artış gözlemlemişlerdir. Benzer şekilde Ju ve ark. (2019) moringo yaprağı özütü ekledikleri nişasta esaslı filmlerde eklenen özüt miktarı arttıkça filmlerin çözünürlük değerlerinin de arttığı sonucuna varmışlardır.

Farklı oranlarda GO içeren nişasta filmlerin çözünürlük değerleri incelendiğinde; % 0,5 ve % 1 oranında GO içeren filmlerin çözünürlük değerlerinin GO katkısız filmlerden anlamlı oranda ($p < 0,05$) düşük olduğu, %1,5 oranında GO içeren filmlerin çözünürlüklerinin ise katkısız filmlere benzer olduğu görülmüştür. Bu durumun; yüksek miktarda GO içeren filmlerde, GO'nun nişasta solüsyonu içerisinde tam olarak çözünmemiş olmasına bağlı olabileceği düşünülmektedir.

Çizelge 4.6. Farklı oranlarda Hbs özütü içeren nişasta esaslı filmlerin çözünürlük değerleri¹

Hbs özütü miktarı (%)	Çözünürlük değeri(%)
0	25,59 ± 1,08 ^a
1	30,35 ± 0,46 ^b
3	43,97 ± 0,13 ^c
5	51,22 ± 0,38 ^d

¹Farklı küçük harfler istatistiksel olarak anlamlı farkları göstermektedir ($p < 0,05$).

Çizelge 4.7. Farklı oranlarda GO içeren nişasta esaslı filmlerin çözünürlük değerleri ¹

GO miktarı (%)	Çözünürlük değerleri (%)
0	51,22 ± 0,38 ^a
0.5	49,11 ± 0,37 ^b
1	46,5 ± 0,62 ^c
1.5	51,24 ± 0,28 ^a

¹Farklı küçük harfler istatistiksel olarak anlamlı farkları göstermektedir (p<0,05).

4.5.3 Filmlerin su içeriği analizi

Farklı kompozisyona sahip olan filmlerin su içeriği değerlerinin filmi oluşturan bileşenlere ve bileşenlerin konsantrasyonuna göre farklılıklar gösterdiği gözlemlenmiştir. Filmlerin su içeriği değerleri Çizelge 4.8 ve Çizelge 4.9’da verilmiştir. Nişasta esaslı filmlere eklenen farklı oranlarda Hbs özütü ile birlikte filmlerin su içeriği değerlerinde anlamlı farklılıklar gözlemlenmiştir (p<0,05). Düşük bitki özütü konsantrasyonu filmlerin su içeriğini etkilemezken Hbs özütü miktarının artması ile birlikte filmlerin su içeriği değerlerinde artış meydana gelmiştir.

Çizelge 4.8. Farklı oranlarda Hbs özütü içeren nişasta esaslı filmlerin su içeriği (%)¹

Hbs özütü miktarı (%)	Su içeriği değerleri (%)
0	6,16 ± 0,19 ^a
1	6,41 ± 0,18 ^a
3	7,60 ± 0,08 ^b
5	9,85 ± 0,23 ^c

¹Farklı küçük harfler istatistiksel olarak anlamlı farkları göstermektedir (p<0,05).

Elde edilen bu bulgulardan da görüleceği üzere nişasta filmlere eklenen Hbs özütü nişasta filmlerin su moleküllerine olan eğilimini artırmıştır. Bu sonuçlara paralel olarak (Peralta ve ark. (2019) yaptıkları bir çalışmada nişasta ve jelatin filmlere kattıkları Hbs özütü ile birlikte hem nişasta filmlerin hem de jelatin filmlerin su içeriğinde artışlar gözlemlenmiştir ve bunun Hbs özütünün yapısında bulunan organik

asitler ve antosiyaninler gibi hidrofilik bileşiklerden kaynaklanabileceği sonucuna varmışlardır.

Çizelge 4.9. Farklı oranlarda GO içeren nişasta filmlerin su içeriği (%)¹

GO miktarı (%)	Su içeriği (%)
0	9,85 ± 0,23 ^a
0,5	10,82 ± 0,18 ^b
1	10,20 ± 0,18 ^{ab}
1,5	8,78 ± 0,25 ^c

¹Farklı küçük harfler istatistiksel olarak anlamlı farkları göstermektedir (p<0,05).

Farklı oranlarda GO içeren nişasta filmlerin su içeriği değerleri incelendiğinde; %0,5 ve %1 oranında GO içeren filmlerin su içeriği değerlerinin GO katkısız filmlerden anlamlı oranda (p<0,05) yüksek olduğu, %1,5 oranında GO içeren filmlerin su içeriğinin ise katkısız filmlerden anlamlı oranda (p<0,05) düşük olduğu görülmüştür. Su içeriği oranındaki artışların grafen oksitin yapısındaki hidrofilik gruplardan kaynaklanıyor olabileceği düşünülmektedir. Yüksek miktarda (%1,5) GO içeren filmlerdeki su içeriğinin düşük olmasının ise yüksek miktardaki grafen oksitin nişasta solüsyonu içerisinde homojen bir şekilde dağılmamış olmasından kaynaklanıyor olabileceği düşünülmektedir.

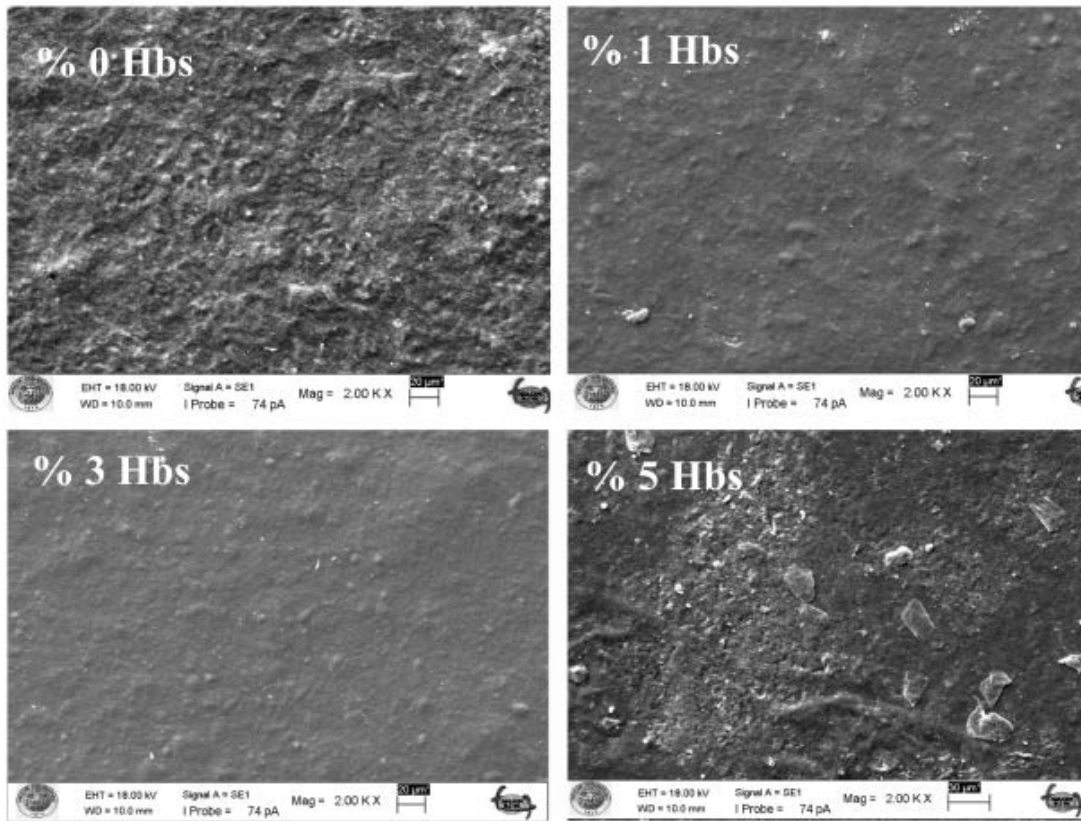
4.6. Taramalı elektron mikroskobu (SEM) analizleri

Taramalı elektron mikroskobu görüntüleri elde edilen filmlerin yüzey morfolojisi ve kompozisyonu hakkında bilgi verir. Yapısal bütünlüğe sahip olan filmler genel olarak homojen bir yüzeye sahiptir ve bu filmlerin iyi bir mekanik özellik sergilemesi beklenir (Mali ve ark., 2005). Farklı kompozisyonlara sahip olan nişasta filmlerin mikrografları Şekil 4.8 ve Şekil 4.9' da verilmiştir.

4.6.1 Farklı oranlarda Hbs özütü içeren nişasta esaslı filmlerin SEM görüntüleri

Gliserol ile plastikleştirilmiş, farklı oranlarda Hbs özütü içeren nişasta filmlerin mikrografları Şekil 4.8' de verilmiştir. Filmlerin yüzey özellikleri filmi oluşturan bileşenlerin birbirileri ile olan etkileşimleri ile ilgilidir. Üretilen nişasta esaslı katkısız

filmlerin SEM görüntüleri incelendiğinde genel olarak homojen yapıda olmakla birlikte film yüzeylerinin oldukça pürüzlü olduğu gözlenmiştir. Bu pürüzlülüğün nişastanın tam olarak jelatinize olmamasından kaynaklanıyor olabileceği düşünülmektedir. Filmlere %1 oranında Hbs özütü ilave edildiğinde pürüzlülük büyük ölçüde ortadan kalkmış ve daha homojen yapıda filmler elde edilmiştir. %3 Hbs özütü katkılı filmlerin ise homojen yapıda ancak %1 Hbs özütü katkılı filmlerden daha pürüzlü olduğu görülmüştür. Hbs özütü katkı oranı %5'e çıktığında ise filmler daha heterojen ve oldukça pürüzlü bir hale gelmiştir. Üretilen filmlerde gözlenen bu değişikliklerin Hbs özütünde bulunan antosiyaninlerin nişasta ile etkileşime girmesi sonucunda oluşabileceği söylenebilir (Peralta ve ark., 2019).

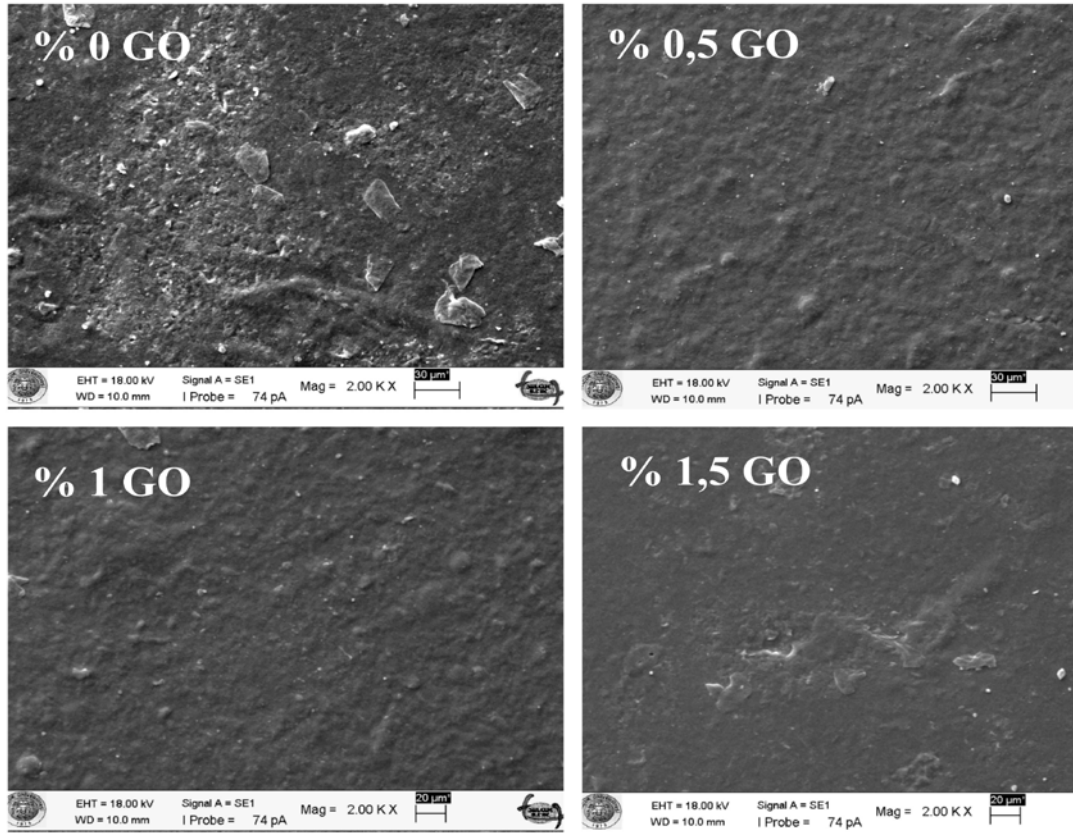


Şekil 4.8. Farklı oranlarda Hbs özütü içeren nişasta filmlerin SEM görüntüleri (2000x)

4.6.2 Farklı oranlarda GO içeren nişasta filmlerin SEM görüntüleri

Farklı oranlarda GO içeren nişasta esaslı filmlerin yüzey morfolojileri Şekil 4.19'da görülmektedir. Film yapısına eklenen GO konsantrasyonuna bağlı olarak yüzey morfolojilerinde değişimler gözlemlenmiştir. %5 Hbs özütü içeren, GO katkısız filmlerin yüzeyi oldukça pürüzlü ve partiküllü iken %0,5 ve %1 GO içeren filmlerin yüzeyleri daha az pürüzlü ve partiküllü bir yapıya sahiptir. %1,5 oranında GO içeren

filmler ise diğer tüm filmlerden daha pürüzsüz ve kompakt bir yapıya sahiptir. Bu durum yüksek orandaki grafen oksitin nişasta ile etkileşime girerek polimer matrisin daha düzenli bir yapı kazanmasına sebep olduğuna işaret etmektedir.



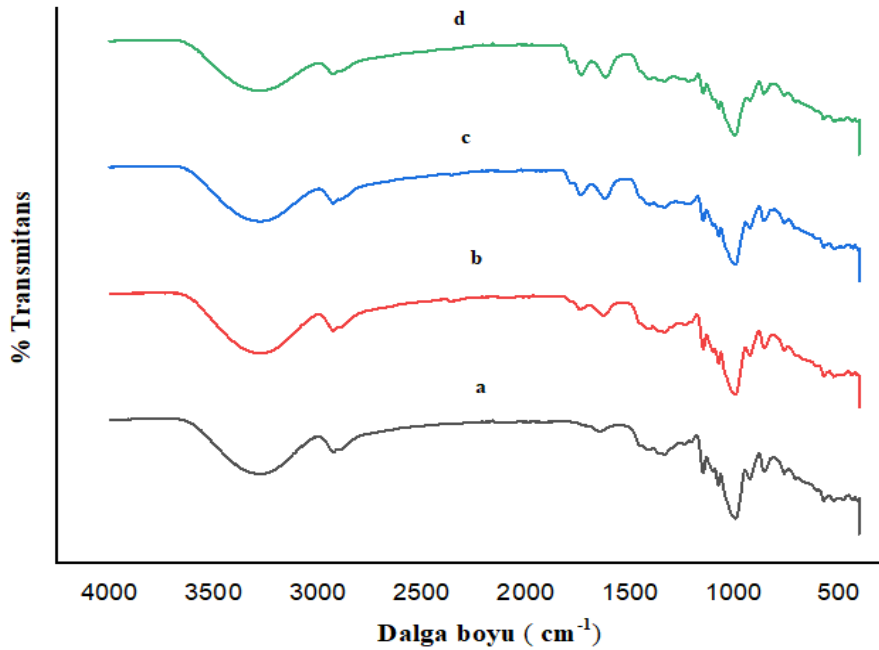
Şekil 4.9. Farklı oranlarda GO içeren nişasta esaslı filmlerin SEM görüntüleri (2000x)

4.7. FTIR Analizi

FTIR biyolojik materyallerin kimyasal analizleri için yaygın olarak kullanılan temel bir tekniktir. FTIR genel olarak numunede bulunan ana fonksiyonel grupların ve oluşan kimyasal bağların açığa çıkarılmasını sağlayarak numuneler hakkında bilgi edinilmesini sağlayan temel bir yöntemdir (Grimstvedt ve ark., 2019; Durak ve Depciuch, 2020). Yapılan bu çalışmada farklı bileşenlere sahip olan film yapılarındaki kimyasal bağlanmaların araştırılması için FTIR spektrometresi kullanılmıştır ve farklı bileşenlere sahip film yapılarının absorpsiyon spektrumları Şekil 4.10 ve Şekil 4.11’ de verilmiştir.

4.7.1. Farklı oranlarda Hbs özütü içeren filmlerin FTIR analizi

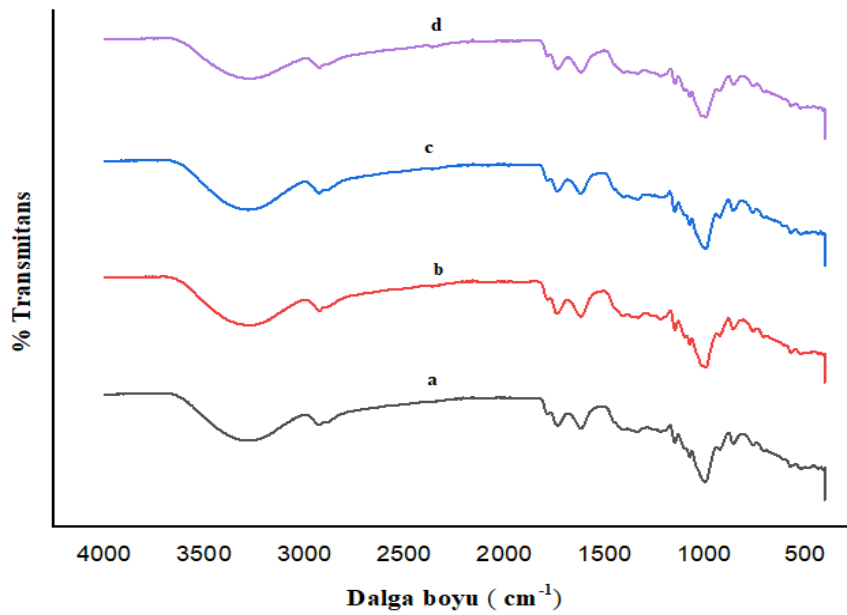
Farklı oranlarda Hbs özütü içeren nişasta esaslı filmlerin FTIR spektrumları Şekil 4.10'de verilmiştir. Farklı oranlarda Hbs özütü içeren filmlerde ve Hbs özütü içermeyen katkısız filmlerde $3000-3700\text{ cm}^{-1}$ ' de gözlenen güçlü absorpsiyon bantları film yapılarındaki O-H gruplarından kaynaklanmaktadır. Farklı oranlarda Hbs özütü içeren filmlerde 1650 ile 1700 cm^{-1} aralığında yeni piklerin oluştuğu gözlenmiştir. Bu yeni piklerin oluşması Hbs özütü ile nişasta arasında kimyasal bağ oluştuğunu ve film bileşenlerinin birbiri ile etkileşime girdiğini göstermektedir (Pereira Jr ve ark., 2015). Hbs özütü içermeyen filmlerden yüksek miktarda Hbs özütü içeren filmlere doğru sırasıyla C-H grubundan kaynaklı gerilim bantları 2925 cm^{-1} , 2932 cm^{-1} , 2930 cm^{-1} , ve 2931 cm^{-1} dalga boylarında gözlenmiştir. Hbs özütü içeren ve içermeyen filmlerde gözlenen 1185 cm^{-1} ve 1168 cm^{-1} aralığında oluşan pikler C=O grubunun varlığına işaret etmektedir. Sırasıyla % 0, % 1, % 3, % 5 oranda Hbs özütü içeren filmlerde 1517 cm^{-1} , 1531 cm^{-1} , 1530 cm^{-1} ve 1534 cm^{-1} gözlenen bantlar C-C gerilme titreşimlerinin en tipik göstergesidir.



Şekil 4.10. Farklı oranlarda Hbs özütü içeren nişasta filmlerin FTIR spektrumları (a: % 0 Hbs, b: % 1 Hbs, c: % 3 Hbs, d: % 5 Hbs)

4.7.2. Farklı oranlarda GO içeren filmlerin FTIR analizi

Farklı oranlarda GO ilave edilen filmlerin FTIR spektrumları Şekil 4.11’ de verilmiştir. FTIR spektrumları incelendiğinde; sırasıyla %0, %0.5, % 1, %1.5 oranlarında GO içeren filmlerde 3286 cm^{-1} , 3292 cm^{-1} , 3294 cm^{-1} ve 3265 cm^{-1} ’de gözlenen pikler O-H gruplarını ifade etmektedir, 2931 cm^{-1} , 2924 cm^{-1} , 2933 cm^{-1} ve 2938 cm^{-1} ’ de görülen pikler ise C-H grubuna ait olan gerilim bantlarıdır. 1504 cm^{-1} ve 1550 cm^{-1} aralığında gözlenen bantlar C-C gerilme titreşimlerini ifade etmektedir (Li ve ark., 2011).



Şekil 4.11. Farklı oranlarda GO içeren nişasta esaslı filmlerin FTIR absorpsiyon spektrumları

4.8. Mekanik testler

Polimerik filmlerin uygulama alanlarını doğrudan etkileyen temel özelliklerinden bir tanesi de mekanik özellikleridir ve mekanik özellikler doğrudan film formülasyonunun kimyasal yapısıyla ilişkilidir (Mutlu, 2011). Farklı formülasyona sahip olan nişasta esaslı filmlerin gerilme mukavemeti (TS) ve uzama yüzdesi (%E) değerleri Çizelge 4.10 ve Çizelge 4.11’ de verilmiştir.

4.8.1. Farklı oranlarda Hbs özütü içeren nişasta filmlerin mekanik özellikleri

Nişasta bazlı biyobozunur filmlere ilave edilen Hbs özütünün mekanik özelliklere olan etkisi kontrol grubu kullanılarak incelenmiştir ve elde edilen bulgular Çizelge 4.10' da verilmiştir. Bitki özütü içermeyen nişasta filmlerin TS ve %E değerleri sırasıyla 81.60 ± 3.69 MPa ve 36.62 ± 6.46 MPa olarak belirlenmiştir. Düşük bitki özütü konsantrasyonu (%1) TS ve %E değerleri üzerinde herhangi bir etki oluşturmazken özüt konsantrasyonunun hacimce % 3'ten % 5'e doğru artmasıyla birlikte filmlerin TS değerlerinde anlamlı azalmalar meydana gelmiştir ve filmlerin %E değerlerinde ise artışlar gözlemlenmiştir. Filmlerin gerilme mukavemeti (TS) Hbs özütü konsantrasyonunun artmasıyla önemli ölçüde azalmıştır ($p < 0,05$). Filmlerin gerilme mukavemeti filmlerin hazırlanması, yüzey özellikleri ve test edildiği ortam gibi çeşitli faktörlere bağlı olabilir. Gerilme mukavemetinin tersine uzama yüzdelerinde meydana gelen artış bitki özütünün eklenmesiyle birlikte film yapılarında meydana gelen moleküller arası etkileşimlerle ilgili olabilir (Poeloengasih ve Angraeni, 2014). Yapılan bir çalışmada Corrales ve ark. (2009) bezelye nişastasından elde edilen biyobozunur filmlere eklenen üzüm çekirdeği özütü ile birlikte filmlerin TS değerlerinde azalmalar gözlemlenirken, %E değerlerinde ise artışlar görülmüştür. Benzer bir şekilde yapılan farklı bir çalışmada Ju ve ark. (2019) nişasta filmlere eklenen farklı oranlarda moringo yaprağı özütü ile birlikte filmlerin TS değerlerinde azalmalar %E değerlerinde ise artışlar gözlenmiştir. Araştırmacılar TS değerlerinde meydana gelen artışın moringo yaprağı özütü ile nişasta molekülleri arasında oluşan moleküller arası etkileşimden kaynaklandığı ve moringo yaprağı özütünde bulunan fenolik bileşiklerin filmlerin esnekliğini artırmış olabileceği sonucuna varmışlardır.

Çizelge 4.10. Farklı oranlarda Hbs özütü içeren nişasta filmlerin TS ve % E degerleri¹

Hbs özütü miktarı (%)	TS (MPa)	% E
0	$81,17 \pm 3,69$ ^a	$36,62 \pm 6,46$ ^a
1	$81,60 \pm 1,52$ ^a	$38,27 \pm 1,78$ ^a
3	$59,52 \pm 1,96$ ^b	$62,27 \pm 1,76$ ^b
5	$55,43 \pm 2,13$ ^b	$60,66 \pm 2,74$ ^b

¹ Aynı sütundaki farklı harflere sahip değerler istatistiksel olarak anlamlı oranda farklıdır ($p < 0,05$).

4.8.2. Farklı oranlarda GO içeren nişasta filmlerin mekanik özellikleri

Farklı oranlarda GO içeren nişasta esaslı filmlerin TS ve % E değerleri Çizelge 4.11’ de verilmiştir. Nişasta filmlere eklenen GO ile birlikte filmlerin gerilme mukavemeti (TS) değerlerinde anlamlı artışlar gözlemlenmiştir. GO katkısız filmlerin TS değeri $55,43 \pm 2,13$ iken % 0.5 GO katkılı filmlerin ortalama gerilme mukavemeti $84,39 \pm 0,97$ MPa olarak belirlenmiştir. GO miktarının % 1’ den % 1.5’a doğru artmasıyla birlikte filmlerin TS değerlerinde azalmalar meydana gelmiştir. GO katkısız filmlerin yüzde uzama (%E) değeri $60,66 \pm 2,74$ olarak ölçülmüştür. % 0.5 ve % 1.5 GO içeren filmlerin yüzde uzama (%E) değerlerinde anlamlı oranda azalma meydana gelirken % 1 oranında GO içeren filmlerin yüzde uzama (%E) değerlerinde artış gözlemlenmiştir ($p < 0,05$).

Bu durumun grafen oksitin polar grupları arasındaki hidrojen bağlarından kaynaklandığı düşünülmektedir. Nano güçlendirici olan grafen oksitin polar gruplarının arasında bulunan güçlü hidrojen bağları ile nişasta matrisi arasında meydana gelen etkileşim nişasta esaslı kompozit filmlerin mekanik özelliklerinin iyileştirilmesine katkı sağlayabilir (Wu ve ark., 2019).

Çizelge 4.11. Farklı oranlarda GO içeren nişasta filmlerin TS ve % E değerleri¹

GO miktarı (%)	TS (MPa)	% E
0	$55,43 \pm 2,13$ ^a	$60,66 \pm 2,74$ ^a
0,5	$84,39 \pm 0,97$ ^b	$54,11 \pm 2,98$ ^b
1	$67,14 \pm 1,51$ ^c	$64,64 \pm 2,11$ ^c
1,5	$65,50 \pm 1,55$ ^c	$55,77 \pm 2,42$ ^b

¹ Aynı sütundaki farklı harflere sahip değerler istatistiksel olarak anlamlı oranda farklıdır ($p < 0,05$).

5. SONUÇLAR VE ÖNERİLER

5.1. Sonuçlar

Günümüzde endüstriyel ve birçok farklı alanda kullanılan biyopolimerlerin büyük bir kısmını biyobozunur ve doğal bir biyopolimer olan nişasta oluşturmaktadır. Nişasta ekonomik olarak uygun olması, doğada bol miktarda bulunması ve biyoyoumlu bir polimer olması sebebiyle;

- a. yara örtülerinin üretimi,
- b. farmasötik ajanların kontrollü salınımı,
- c. farklı protezlerin üretimi,
- d. doku mühendisliğinde doku iskelelerinin üretimi ve
- e. gıda sanayisinde yenilebilir ambalajlama uygulamaları gibi

birçok farklı alanda kullanılan organik bir polimerdir. Fakat kullanıldığı uygulamalarda mekanik özelliklerinin zayıf olmasından dolayı saf formda tercih edilmez. Nişastaya eklenen farklı polimerler ve nano güçlendiricilerle birlikte nişastanın mekanik özellikleri iyileştirilebilir. Yapılan bu çalışmada jel dökme metodu kullanılarak farklı oranlarda Hbs özütü ve farklı oranlarda GO katkılı nişasta esaslı biyobozunur filmler üretilmiştir. Üretilen bu filmler kurutulma aşamasından sonra petri kaplarından rahatlıkla çıkarılmış ve üretilen filmlerin karakterizasyonu yapılmıştır. Filmlerin bariyer özellikleri, su içeriği, şişme, çözünürlük ve mekanik özellikleri filmlerin kompozisyonlarına ve kompozisyondaki bileşenlerin miktarına bağlı olarak değişiklik göstermiştir. İyi özelliklere sahip olan filmler elde etmek için kullanılan katkı maddelerinin konsantrasyonlarının belirlenmesi büyük bir önem arz etmektedir. Filmlere eklenen Hbs özütü filmlerin kalınlık değerlerinde herhangi bir değişiklik oluşturmazken şişme, çözünürlük ve su içeriği değerlerinde konsantrasyona bağlı olarak artmalar meydana gelmiştir ayrıca filmlere eklenen Hbs özütünün konsantrasyonun artmasıyla birlikte filmlerin TS değerlerinde ve % E değerlerinde ise artmalar gözlemlenmiştir. Filmlere eklenen nano güçlendirici bir malzeme olan GO; konsantrasyona bağlı olarak şişme ve su içeriğinde artmalara sebep olurken çözünürlük

değerlerinin düşmesine sebep olmuştur ayrıca TS ve % E değerlerinde artış meydana getirmiştir. Nişasta filmlere eklenen Hbs özütü ile birlikte Gram pozitif ve Gram negatif patojenik mikroorganizmalara karşı antibakteriyel etkiye sahip filmler elde edilmiştir. Film çözeltilerine eklenen GO ise filmlerin gerilme mukavemetini artırarak daha dayanıklı filmler elde edilmesini sağlamıştır. Dolayısıyla üretilen filmlere içeriğindeki Hbs özütü aracılığı ile antibakteriyel özellik ve GO aracılığı ile de daha iyi mekanik özellik kazandırılmıştır. Üretilen bu nişasta esaslı biyobozunur kompozit filmler herhangi bir toksik etkiye sahip değildir ve birçok farklı alandaki uygulamalarda güvenilir bir şekilde kullanılabilir niteliktedir. Literatürdeki çalışmalar incelendiğinde nişasta – Hbs özütü – GO kompozisyonu bulunmamış olup ilk kez bu tez çalışması kapsamında bu bileşimde filmler üretilerek literatüre katkı sağlanmıştır.

5.2 Öneriler

Sentetik malzemelerin sahip olduğu geniş kullanım alanı birçok farklı endüstriyel alana fayda sağlaması ile birlikte doğada kendiliğinden kaybolması mümkün olmayan atıkların oluşmasına sebep olmaktadır. Yaygın olarak kullanılan sentetik malzemelerin yerini çevre dostu olan biyopolimerlerin almasının ekolojik düzenin sağlanmasına katkı sağlayacağı düşünülmektedir. Biyopolimerlerin farklı alanlarda kullanımının yaygınlaştırılması ve fonksiyonel özelliklerinin geliştirilmesi için daha fazla araştırmaların yapılması gerekmektedir.

Nişasta biyoyumlu ve biyobozunurluk gibi başlıca özelliklere sahip olan organik bir biyopolimerdir; fakat mekanik özellikleri bakımından zayıf bir malzemedir. Nişastanın mekanik özelliklerini geliştirmek ve yeni fonksiyonel özellikler kazandırmak amacıyla çalışmalar yapılması gerekmektedir. Çevre dostu organik bir polimer olan nişastanın kullanımının yaygınlaşmasının çevresel sorunların az da olsa ortadan kalkmasına destek olacağını düşünmekteyiz. Nişasta esaslı malzemelerin kullanımı yaygınlaşmalı ve ticari olarak üretimini geliştirilmelidir.

KAYNAKLAR

- Ali, B. H., Wabel, N. A. ve Blunden, G., 2005, Phytochemical, pharmacological and toxicological aspects of *Hibiscus sabdariffa* L.: a review, *Phytotherapy Research: An International Journal Devoted to Pharmacological and Toxicological Evaluation of Natural Product Derivatives*, 19 (5), 369-375.
- Alp, B., Demir, Ş., Mayda, S. ve Cesur, S., 2010, Polikaprolakton Temelli Biyobozunur Ambalaj Üretimi, UKMK-9, 9, *Ulusal Kimya Mühendisliği Kongresi*, 22-25.
- Andersson, L., 2001, Studies on starch structure and the differential properties of starch branching enzymes, 287, p.
- Aqlil, M., Moussema Nzengué, A., Essamlali, Y., Snik, A., Larzek, M. ve Zahouily, M., 2017, Graphene oxide filled lignin/starch polymer bionanocomposite: structural, physical, and mechanical studies, *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 65 (48), 10571-10581.
- Armentano, I., Bitinis, N., Fortunati, E., Mattioli, S., Rescignano, N., Verdejo, R., López-Manchado, M. A. ve Kenny, J. M., 2013, Multifunctional nanostructured PLA materials for packaging and tissue engineering, *Progress in Polymer Science*, 38 (10-11), 1720-1747.
- Ayana, B. ve Turhan, K. N., 2010, Gıda ambalajlamasında antimikrobiyel madde içeren yenilebilir filmler/kaplamalar ve uygulamaları, *Gıda*, 35 (2), 151-158.
- Bastioli, C., Romano, G. ve Migliaresi, C., 1990, Water sorption and mechanical properties of dental composites, *Biomaterials*, 11 (3), 219-223.
- Baysal, B., 1994, *Polimer Kimyası*’’ODTÜ Fen-Edebiyat Fakültesi yayınları, 442s, Ankara.
- Bezirhan, E., 2012, Nişasta-Bazlı Biyoplastik Atıklarının Kahverengi Çürükçül Fungus *Gloephyllum Trabeum* İle Biyolojik Parçalanabilirliğinin Araştırılması. Mersin Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Çevre Mühendisliği Ana Bilim Dalı, *Yüksek Lisans Tezi*, 5 sayfa, Mersin. .
- Biliaderis, C., Lazaridou, A. ve Arvanitoyannis, I., 1999, Glass transition and physical properties of polyol-plasticised pullulan–starch blends at low moisture, *Carbohydrate polymers*, 40 (1), 29-47.
- Bof, M. J., Locaso, D. E. ve García, M. A., 2021, Corn Starch-Chitosan Proportion Affects Biodegradable Film Performance for Food Packaging Purposes, *Starch-Stärke*, 2000104.
- Bogacheva, T., Wang, Y., Wang, T. ve Hedley, C., 2002, Structural studies of starches with different water contents, *Biopolymers: Original Research on Biomolecules*, 64 (5), 268-281.
- Botas, C., Álvarez, P., Blanco, P., Granda, M., Blanco, C., Santamaría, R., Romasanta, L. J., Verdejo, R., López-Manchado, M. A. ve Menéndez, R., 2013, Graphene materials with different structures prepared from the same graphite by the Hummers and Brodie methods, *Carbon*, 65, 156-164.
- Cha, D. S. ve Chinnan, M. S., 2004, Biopolymer-based antimicrobial packaging: a review, *Critical reviews in food science and nutrition*, 44 (4), 223-237.

- Chai, S., Zhang, J., Yang, T., Yuan, J. ve Cheng, S., 2010, Thermoresponsive microgel decorated with silica nanoparticles in shell: Biomimetic synthesis and drug release application, *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 356 (1-3), 32-39.
- Chang, Y.-C., Huang, K.-X., Huang, A.-C., Ho, Y.-C. ve Wang, C.-J., 2006, Hibiscus anthocyanins-rich extract inhibited LDL oxidation and oxLDL-mediated macrophages apoptosis, *Food and Chemical Toxicology*, 44 (7), 1015-1023.
- Chung, H.-J., Woo, K.-S. ve Lim, S.-T., 2004, Glass transition and enthalpy relaxation of cross-linked corn starches, *Carbohydrate polymers*, 55 (1), 9-15.
- Commission, E., 2013, Green Paper on a European Strategy on Plastic Waste in the Environment, *European Commission: Brussels, Belgium*.
- Corrales, M., Han, J. H. ve Tauscher, B., 2009, Antimicrobial properties of grape seed extracts and their effectiveness after incorporation into pea starch films, *International journal of food science & technology*, 44 (2), 425-433.
- Dafallah, A. A. ve Al-Mustafa, Z., 1996, Investigation of the anti-inflammatory activity of Acacia nilotica and Hibiscus sabdariffa, *The American journal of Chinese medicine*, 24 (03n04), 263-269.
- DALI, A. B., BAKLAGİL NİŞASTALARININ SİNDİRİMİ YAVAŞ NİŞASTAYA (SYN) VE ENZİME DİRENÇLİ NİŞASTAYA (EDN) DÖNÜŞTÜRÜLMESİ.
- Davis, G. ve Song, J., 2006, Biodegradable packaging based on raw materials from crops and their impact on waste management, *Industrial Crops and Products*, 23 (2), 147-161.
- Desai, K. G., 2007, Properties of tableted high-amylose corn starch–pectin blend microparticles intended for controlled delivery of diclofenac sodium, *Journal of Biomaterials Applications*, 21 (3), 217-233.
- Dev, A., Binulal, N., Anitha, A., Nair, S., Furuike, T., Tamura, H. ve Jayakumar, R., 2010, Preparation of poly (lactic acid)/chitosan nanoparticles for anti-HIV drug delivery applications, *Carbohydrate polymers*, 80 (3), 833-838.
- do Evangelho, J. A., da Silva Dannenberg, G., Biduski, B., El Halal, S. L. M., Kringel, D. H., Gularte, M. A., Fiorentini, A. M. ve da Rosa Zavareze, E., 2019, Antibacterial activity, optical, mechanical, and barrier properties of corn starch films containing orange essential oil, *Carbohydrate polymers*, 222, 114981.
- Durak, T. ve Depciuch, J., 2020, Effect of plant sample preparation and measuring methods on ATR-FTIR spectra results, *Environmental and Experimental Botany*, 169, 103915.
- Ekramian, S., Abbaspour, H., Roudi, B., Amjad, L. ve Nafchi, A. M., 2020, Influence of Nigella sativa L. Extract on Physico–Mechanical and Antimicrobial Properties of Sago Starch Film, *Journal of Polymers and the Environment*, 1-8.
- Ekramian, S., Abbaspour, H., Roudi, B., Amjad, L. ve Nafchi, A. M., 2021, Influence of Nigella sativa L. Extract on Physico–Mechanical and Antimicrobial Properties of Sago Starch Film, *Journal of Polymers and the Environment*, 29 (1), 201-208.
- El Kadi, S., 2010, Bioplastic production form inexpensive sources bacterial biosynthesis, cultivation system, production and biodegradability, *USA: VDM (Verlag Dr. Muller) Publishing House*.

- Emadian, S. M., Onay, T. T. ve Demirel, B., 2017, Biodegradation of bioplastics in natural environments, *Waste Management*, 59, 526-536.
- Fabra, M., Castro-Mayorga, J., Gómez-Mascaraque, L. ve López-Rubio, A., 2021, Novel coatings to improve the performance of multilayer biopolymeric films for food packaging applications, In: *Handbook of Modern Coating Technologies*, Eds: Elsevier, p. 259-280.
- Fullerton, M., Khatiwada, J., Johnson, J. U., Davis, S. ve Williams, L. L., 2011, Determination of antimicrobial activity of sorrel (*Hibiscus sabdariffa*) on *Escherichia coli* O157: H7 isolated from food, veterinary, and clinical samples, *Journal of medicinal food*, 14 (9), 950-956.
- García, M. A., Pinotti, A., Martino, M. N. ve Zaritzky, N. E., 2009, Characterization of starch and composite edible films and coatings, In: *Edible films and coatings for food applications*, Eds: Springer, p. 169-209.
- Ghasemlou, M., Aliheidari, N., Fahmi, R., Shojaee-Aliabadi, S., Keshavarz, B., Cran, M. J. ve Khaksar, R., 2013, Physical, mechanical and barrier properties of corn starch films incorporated with plant essential oils, *Carbohydrate polymers*, 98 (1), 1117-1126.
- Gómez-Aldapa, C. A., Díaz-Cruz, C. A., Castro-Rosas, J., Jiménez-Regalado, E. J., Velazquez, G., Gutierrez, M. C. ve Aguirre-Loredo, R. Y., 2021, Development of Antimicrobial Biodegradable Films Based on Corn Starch with Aqueous Extract of *Hibiscus sabdariffa* L, *Starch-Stärke*, 73 (1-2), 2000096.
- Gonçalves, I., Hernández, D., Cruz, C., Lopes, J., Barra, A., Nunes, C., da Silva, J. A. L., Ferreira, P. ve Coimbra, M. A., 2021, Relevance of genipin networking on rheological, physical, and mechanical properties of starch-based formulations, *Carbohydrate polymers*, 254, 117236.
- Grimstvedt, A., Wiig, M., Einbu, A. ve Vevelstad, S. J., 2019, Multi-component analysis of monethanolamine solvent samples by FTIR, *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 83, 293-307.
- Gutiérrez Carmona, T. J. ve Alvarez, V. A., 2018, Bionanocomposite films developed from corn starch and natural and modified nano-clays with or without added blueberry extract.
- Gürler, N. ve Torğut, G., 2021, Graphene-reinforced potato starch composite films: Improvement of mechanical, barrier and electrical properties, *Polymer Composites*, 42 (1), 173-180.
- Hassan, A., Niazi, M. B. K., Hussain, A., Farrukh, S. ve Ahmad, T., 2018, Development of anti-bacterial PVA/starch based hydrogel membrane for wound dressing, *Journal of Polymers and the Environment*, 26 (1), 235-243.
- Honarvar, Z., Hadian, Z. ve Mashayekh, M., 2016, Nanocomposites in food packaging applications and their risk assessment for health, *Electronic physician*, 8 (6), 2531.
- Hong, L. G., Yuhana, N. Y. ve Zawawi, E. Z. E., 2021, Review of bioplastics as food packaging materials, *AIMS Materials Science*, 8 (2), 166-184.

- Hu, X., Yu, Y., Wang, Y., Zhou, J. ve Song, L., 2015, Separating nano graphene oxide from the residual strong-acid filtrate of the modified Hummers method with alkaline solution, *Applied Surface Science*, 329, 83-86.
- İbanoğlu, E. ve İbanoğlu, Ş., 2003, Yüksek hidrostatik basınç uygulamasının mısır nişastasının jelatinizasyonu üzerine etkileri, *Gıda*, 28 (3).
- Janssen, L. ve Moscicki, L., 2009, Thermoplastic starch: a green material for various industries, John Wiley & Sons, p.
- Jaśkiewicz, A., Budryn, G., Nowak, A. ve Efenberger-Szmechtyk, M., 2020, Novel Biodegradable Starch Film for Food Packaging with Antimicrobial Chicory Root Extract and Phytic Acid as a Cross-Linking Agent, *Foods*, 9 (11), 1696.
- Ji, X., Cui, L., Xu, Y. ve Liu, J., 2015, Non-covalent interactions for synthesis of new graphene based composites, *Composites Science and Technology*, 106, 25-31.
- Jiménez, A., Fabra, M. J., Talens, P. ve Chiralt, A., 2015, Polysaccharides as valuable materials in food packaging, *Functional polymers in food science*, 211.
- Ju, A., Baek, S.-K., Kim, S. ve Song, K. B., 2019, Development of an antioxidative packaging film based on khorasan wheat starch containing moringa leaf extract, *Food science and biotechnology*, 28 (4), 1057-1063.
- Kechichian, V., Ditchfield, C., Veiga-Santos, P. ve Tadini, C. C., 2010, Natural antimicrobial ingredients incorporated in biodegradable films based on cassava starch, *Lwt-Food Science and Technology*, 43 (7), 1088-1094.
- Kim, M. ve Pometto, A., 1994, Food packaging potential of some novel degradable starch-polyethylene plastics, *Journal of Food Protection*, 57 (11), 1007-1012.
- Kleinstreuer, C., Zhang, Z. ve Li, Z., 2008, Modeling airflow and particle transport/deposition in pulmonary airways, *Respiratory physiology & neurobiology*, 163 (1-3), 128-138.
- Koski, C., Onuikwe, B., Bandyopadhyay, A. ve Bose, S., 2018, Starch-hydroxyapatite composite bone scaffold fabrication utilizing a slurry extrusion-based solid freeform fabricator, *Additive Manufacturing*, 24, 47-59.
- KÖKSAL, Ö., ER, B. A., ARDALI, Y. ve SAĞLAM, M., 2019, Biyoplastiklerin Biyodegradasyonu, *Sinop Üniversitesi Fen Bilimleri Dergisi*, 4 (2), 151-167.
- Lanza, R., Langer, R., Vacanti, J. P. ve Atala, A., 2020, Principles of tissue engineering, Academic press, p.
- Leerahawong, A., Tanaka, M., Okazaki, E. ve Osako, K., 2011, Effects of plasticizer type and concentration on the physicochemical properties of edible film from squid *Todarodes pacificus* mantle muscle, *Fisheries Science*, 77 (6), 1061-1068.
- Li, R., Liu, C. ve Ma, J., 2011, Studies on the properties of graphene oxide-reinforced starch biocomposites, *Carbohydrate polymers*, 84 (1), 631-637.
- Liu, S., Ji, X.-X. ve Zhu, J.-F., 2021, Recent Progress in the Synthesis and Biomedical Properties of Natural Biopolymer Composites, *Current Medicinal Chemistry*.
- Luengo, J. M., García, B., Sandoval, A., Naharro, G. ve Olivera, E. R., 2003, Bioplastics from microorganisms, *Current opinion in microbiology*, 6 (3), 251-260.

- Ma, T., Chang, P. R., Zheng, P. ve Ma, X., 2013, The composites based on plasticized starch and graphene oxide/reduced graphene oxide, *Carbohydrate polymers*, 94 (1), 63-70.
- Malafaya, P., Elvira, C., Gallardo, A., San Roman, J. ve Reis, R., 2001, Porous starch-based drug delivery systems processed by a microwave route, *Journal of Biomaterials Science, Polymer Edition*, 12 (11), 1227-1241.
- Mali, S., Grossmann, M. V. E., García, M. A., Martino, M. N. ve Zaritzky, N. E., 2005, Mechanical and thermal properties of yam starch films, *Food Hydrocolloids*, 19 (1), 157-164.
- Marcano, D. C., Kosynkin, D. V., Berlin, J. M., Sinitskii, A., Sun, Z., Slesarev, A., Alemany, L. B., Lu, W. ve Tour, J. M., 2010, Improved synthesis of graphene oxide, *ACS Nano*, 4 (8), 4806-4814.
- Menzel, C., 2020, Improvement of starch films for food packaging through a three-principle approach: Antioxidants, cross-linking and reinforcement, *Carbohydrate polymers*, 250, 116828.
- Mohanty, A. K., Misra, M. ve Drzal, L., 2002, Sustainable bio-composites from renewable resources: opportunities and challenges in the green materials world, *Journal of Polymers and the Environment*, 10 (1), 19-26.
- Mohd-Esa, N., Hern, F. S., Ismail, A. ve Yee, C. L., 2010, Antioxidant activity in different parts of roselle (*Hibiscus sabdariffa* L.) extracts and potential exploitation of the seeds, *Food Chemistry*, 122 (4), 1055-1060.
- Morton, J. F., 1974, Renewed interest in Roselle (*hibiscus sabdariffa* L.), the long-forgotten" florida cranberry", *Proceedings of the Florida State Horticultural Society*, 415-425.
- Mose, B. R. ve Maranga, S. M., 2011, A review on starch based nanocomposites for bioplastic materials, *Journal of Materials Science and Engineering. B*, 1 (2B), 239.
- Muenmee, S., Chiemchaisri, W. ve Chiemchaisri, C., 2016, Enhancement of biodegradation of plastic wastes via methane oxidation in semi-aerobic landfill, *International Biodeterioration & Biodegradation*, 113, 244-255.
- Mutlu, P., 2011, Starch Modified Biodegradable Polyurethane Film.
- Nouri, L. ve Nafchi, A. M., 2014, Antibacterial, mechanical, and barrier properties of sago starch film incorporated with betel leaves extract, *International Journal of Biological Macromolecules*, 66, 254-259.
- ÖLÇER, H. ve Betül, A., 2008, Starch: Biosynthesis, granule structure and genetic modifications, *Dumlupınar Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Dergisi* (016), 1-12.
- Özdoğan, F., 2011, *Hibiscus sabdariffa*'nın Fitoterapi Açısından Değerlendirilmesi, *Gazi Üniversitesi Sağlık Bilimleri Enstitüsü Farmokognozi Anabilim Dalı, Yüksek Lisans Tezi*.
- Paim, M. P., Maciel, M. J., Weschenfelder, S., Bergmann, G. P. ve Avancini, C. A. M., 2017, Anti-*Escherichia coli* effect of *Hibiscus sabdariffa* L. in a meat model, *Food Science and Technology*, 37 (4), 647-650.

- Park, S. ve Ruoff, R. S., 2009, Chemical methods for the production of graphenes, *Nature nanotechnology*, 4 (4), 217-224.
- Pathak, S., Sneha, C. ve Mathew, B. B., 2014, Bioplastics: its timeline based scenario & challenges, *Journal of Polymer and Biopolymer Physics Chemistry*, 2 (4), 84-90.
- Pavelić, Ž., Škalko-Basnet, N. ve Schubert, R., 2001, Liposomal gels for vaginal drug delivery, *International Journal of Pharmaceutics*, 219 (1-2), 139-149.
- Pelissari, F. M., Grossmann, M. V., Yamashita, F. ve Pineda, E. A. G., 2009, Antimicrobial, mechanical, and barrier properties of cassava starch– chitosan films incorporated with oregano essential oil, *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 57 (16), 7499-7504.
- Peralta, J., Bitencourt-Cervi, C. M., Maciel, V. B., Yoshida, C. M. ve Carvalho, R. A., 2019, Aqueous hibiscus extract as a potential natural pH indicator incorporated in natural polymeric films, *Food Packaging and Shelf Life*, 19, 47-55.
- Pereira Jr, V. A., de Arruda, I. N. Q. ve Stefani, R., 2015, Active chitosan/PVA films with anthocyanins from Brassica oleraceae (Red Cabbage) as time–temperature indicators for application in intelligent food packaging, *Food Hydrocolloids*, 43, 180-188.
- Persico, P., Ambrogi, V., Carfagna, C., Cerruti, P., Ferrocino, I. ve Mauriello, G., 2009, Nanocomposite polymer films containing carvacrol for antimicrobial active packaging, *Polymer Engineering & Science*, 49 (7), 1447-1455.
- Poeloengasih, C. D. ve Anggraeni, F. D., 2014, Exploring the characteristics of sago starch films for pharmaceutical application, *Starch-Stärke*, 66 (11-12), 1103-1108.
- Portillo-Torres, L. A., Bernardino-Nicanor, A., Gómez-Aldapa, C. A., González-Montiel, S., Rangel-Vargas, E., Villagómez-Ibarra, J. R., González-Cruz, L., Cortés-López, H. ve Castro-Rosas, J., 2019, Hibiscus acid and chromatographic fractions from Hibiscus sabdariffa calyces: Antimicrobial activity against multidrug-resistant pathogenic bacteria, *Antibiotics*, 8 (4), 218.
- Prasongwatana, V., Woottisin, S., Sriboonlue, P. ve Kukongviriyapan, V., 2008, Uricosuric effect of Roselle (Hibiscus sabdariffa) in normal and renal-stone former subjects, *Journal of Ethnopharmacology*, 117 (3), 491-495.
- Radha Krishnan, K., Babuskin, S., Rakhavan, K., Tharavin, R., Azhagu Saravana Babu, P., Sivarajan, M. ve Sukumar, M., 2015, Potential application of corn starch edible films with spice essential oils for the shelf life extension of red meat, *Journal of Applied Microbiology*, 119 (6), 1613-1623.
- Rajendran, N., Puppala, S., Sneha Raj, M., Ruth Angeeleena, B. ve Rajam, C., 2012, Seaweeds can be a new source for bioplastics, *Journal of Pharmacy Research*, 5 (3), 1476-1479.
- Reddy, M., Misra, M. ve Mohanty, A., 2012, Bio-based materails in the new bio-economy. American Institue of Chemical Engineering (AIChE), *Chemical Engineering Proses (CEP)*, www.aiche.org/cep (online erişim Haziran 2012).
- Riaz, G. ve Chopra, R., 2018, A review on phytochemistry and therapeutic uses of Hibiscus sabdariffa L, *Biomedicine & Pharmacotherapy*, 102, 575-586.

- Roldán-Carrillo, T., Rodríguez-Vázquez, R., Díaz-Cervantes, D., Vázquez-Torres, H., Manzur-Guzmán, A. ve Torres-Dominguez, A., 2003, Starch-based plastic polymer degradation by the white rot fungus *Phanerochaete chrysosporium* grown on sugarcane bagasse pith: enzyme production, *Bioresource Technology*, 86 (1), 1-5.
- Salgado, A., Coutinho, O. P. ve Reis, R. L., 2004, Novel starch-based scaffolds for bone tissue engineering: cytotoxicity, cell culture, and protein expression, *Tissue Engineering*, 10 (3-4), 465-474.
- Sedyadi, E., Aini, S. K., Anggraini, D. ve Ekawati, D. P., 2016, Starch-Glycerol Based Edible Film and Effect of Rosella (*Hibiscus Sabdariffa* Linn) Extract and Surimi Dumbo Catfish (*Clarias gariepinus*) Addition on Its Mechanical Properties, *Biology, Medicine, & Natural Product Chemistry*, 5 (2), 33-40.
- Sengupta, R., Bhattacharya, M., Bandyopadhyay, S. ve Bhowmick, A. K., 2011, A review on the mechanical and electrical properties of graphite and modified graphite reinforced polymer composites, *Progress in Polymer Science*, 36 (5), 638-670.
- Su, C.-C., Wang, C.-J., Huang, K.-H., Lee, Y.-J., Chan, W.-M. ve Chang, Y.-C., 2018, Anthocyanins from *Hibiscus sabdariffa* calyx attenuate in vitro and in vivo melanoma cancer metastasis, *Journal of Functional Foods*, 48, 614-631.
- Şahin, O. I. ve Akpınar-Bayizit, A., 2008, Nanokompozit filmlerin gıda sanayi uygulamaları, *Türkiye*, 10, 21-23.
- Şen, F., Uzunsoy, İ., Baştürk, E. ve Kahraman, M. V., 2017, Antimicrobial agent-free hybrid cationic starch/sodium alginate polyelectrolyte films for food packaging materials, *Carbohydrate polymers*, 170, 264-270.
- Teixeira, E. d. M., De Campos, A., Marconcini, J., Bondancia, T., Wood, D., Klamczynski, A., Mattoso, L. ve Glenn, G., 2014, Starch/fiber/poly (lactic acid) foam and compressed foam composites, *Rsc Advances*, 4 (13), 6616-6623.
- Thomas, D., Gaspar, D., Soroushova, A., Milcovich, G., Spanoudes, K., Mullen, A. M., O'Brien, T., Pandit, A. ve Zeugolis, D. I., 2016, Scaffold and scaffold-free self-assembled systems in regenerative medicine, *Biotechnology and Bioengineering*, 113 (6), 1155-1163.
- Thomas, D., Mathew, N. ve Nath, M. S., 2021, Starch modified alginate nanoparticles for drug delivery application, *International Journal of Biological Macromolecules*, 173, 277-284.
- Topbaş, T., Brohi, R. ve Karaman, R., 1998, Çevre Kirliliği, TC Çevre Bakanlığı Yayınları, Ankara, *TSE (1997). TS*, 266, 6-10.
- Toro-Márquez, L. A., Merino, D. ve Gutiérrez, T. J., 2018, Bionanocomposite films prepared from corn starch with and without nanopackaged Jamaica (*Hibiscus sabdariffa*) flower extract, *Food and Bioprocess Technology*, 11 (11), 1955-1973.
- Torres, F. G., Commeaux, S. ve Troncoso, O. P., 2013, Starch-based biomaterials for wound-dressing applications, *Starch-Stärke*, 65 (7-8), 543-551.

- TORRES, J. A., MOTOKI, M. ve KAREL, M., 1985, Microbial stabilization of intermediate moisture food surfaces I. Control of surface preservative concentration, *Journal of Food Processing and Preservation*, 9 (2), 75-92.
- Uzunboy, N. ve Türkmen, C., Biyobozunur plastiğın mineralizasyonuna evsel arıtma çamurunun etkisi, *Eurasian Journal of Biological and Chemical Sciences*, 3 (2), 83-92.
- VOJDANI, F. ve TORRES, J. A., 1990, Potassium sorbate permeability of methylcellulose and hydroxypropyl methylcellulose coatings: Effect of fatty acids, *Journal of Food Science*, 55 (3), 841-846.
- Wang, C.-J., Wang, J.-M., Lin, W.-L., Chu, C.-Y., Chou, F.-P. ve Tseng, T.-H., 2000, Protective effect of Hibiscus anthocyanins against tert-butyl hydroperoxide-induced hepatic toxicity in rats, *Food and Chemical Toxicology*, 38 (5), 411-416.
- Wang, Q., Du, Y., Feng, Q., Huang, F., Lu, K., Liu, J. ve Wei, Q., 2013, Nanostructures and surface nanomechanical properties of polyacrylonitrile/graphene oxide composite nanofibers by electrospinning, *Journal of Applied Polymer Science*, 128 (2), 1152-1157.
- Wu, C.-H., Huang, C.-C., Hung, C.-H., Yao, F.-Y., Wang, C.-J. ve Chang, Y.-C., 2016, Delphinidin-rich extracts of Hibiscus sabdariffa L. trigger mitochondria-derived autophagy and necrosis through reactive oxygen species in human breast cancer cells, *Journal of Functional Foods*, 25, 279-290.
- Wu, Z., Huang, Y., Xiao, L., Lin, D., Yang, Y., Wang, H., Yang, Y., Wu, D., Chen, H. ve Zhang, Q., 2019, Physical properties and structural characterization of starch/polyvinyl alcohol/graphene oxide composite films, *International Journal of Biological Macromolecules*, 123, 569-575.
- Xie, F., Yu, L., Liu, H. ve Chen, L., 2006, Starch modification using reactive extrusion, *Starch-Stärke*, 58 (3-4), 131-139.
- Yang, W., Peters, J. I. ve Williams III, R. O., 2008, Inhaled nanoparticles—a current review, *International Journal of Pharmaceutics*, 356 (1-2), 239-247.
- Zhai, X., Shi, J., Zou, X., Wang, S., Jiang, C., Zhang, J., Huang, X., Zhang, W. ve Holmes, M., 2017, Novel colorimetric films based on starch/polyvinyl alcohol incorporated with roselle anthocyanins for fish freshness monitoring, *Food Hydrocolloids*, 69, 308-317.