

Sol-Jel yöntemi kullanarak aloe vera içerikli mikrokapsül aktarılan kumaşların antibakteriyel ve koku salım özellikleri

Fragrance release and antibacterial features of fabrics applied microcapsules containing aloe vera oil via sol-gel process

Nurhan ONAR CAMLIBEL^{1*}, Murat Can BERBEROĞLU², İlker KANDEMİR³

¹Tekstil Mühendisliği Bölümü, Mühendislik Fakültesi, Pamukkale Üniversitesi, Denizli, Türkiye.

nonar@pau.edu.tr

²Taha Giyim AŞ, LC Waikiki, İstanbul, Türkiye.

muratcanberberoglu95@gmail.com

³GAMATEKS Tekstil Sanayi ve Ticaret AŞ, Denizli, Türkiye.

ilkerkand@gmail.com

Geliş Tarihi/Received: 13.02.2021

Düzeltilme Tarihi/Revision: 13.08.2021

doi: 10.5505/pajes.2021.16142

Kabul Tarihi/Accepted: 27.09.2021

Araştırma Makalesi/Research Article

Öz

Bu çalışmada kompleks koaservasyon yöntemi ile aloe vera içeren mikrokapsüller %92 verimle üretilmiştir. Bu üretim aşamasında katyonik ve anyonik polimer olarak sırasıyla jelatin ve arap zamkı, yüzey aktif madde olarak sodyum dodesil sülfat ve çapraz bağlayıcı ve kılıf sertleştirici madde olarak glutaraldehit kullanılmıştır. Optik mikroskop ile küresel kapsüllerin varlığı gösterilmiştir. Elde edilen mikrokapsüller sırasıyla çapraz bağlayıcı olarak silan içerikli başlatıcı maddeler ve dimetildihidroksietilen üre kullanarak sol-jel yöntemi ve konvansiyonel yöntemle pamuklu kumaşlara aktarılmıştır. Kumaşlar 100 °C'de 5 dk. kurutulduktan sonra 120 °C'de 4 dk. fikse edilmiştir. İki farklı yöntemle mikrokapsül aktarılan kumaşların koku salım özelliklerinin kullanım ve aşınma dayanımlarının konvansiyonel yöntemle mikrokapsül aktarılan kumaşlara göre geliştiği tespit edilmiştir. Ayrıca aloe vera yağı içerikli mikrokapsül içeren nanosoller ile kaplanan kumaşların *S. aureus* bakterisine karşı etkin antibakteriyel aktivite gösterdiği saptanmıştır.

Anahtar kelimeler: Sol-Jel yöntemi, Aloe vera yağı, Koku salım, Antibakteriyel aktivite, Kompleks koaservasyon, Mikrokapsül.

Abstract

In the study, microcapsules containing aloe vera oils were produced with 92% yield by complex coacervation method. In the process, gelatin and Arabic gum as cationic and anionic polymer, sodium dodecyl sulfate as surface active agent and glutaraldehyde as crosslinking and hardening agent were used. The presence of spherical microcapsules were demonstrated by optical microscope. The microcapsules were applied to cotton fabric by sol-gel and conventional process containing respectively silane based precursors and dimethyldihydroxy ethylene urea as crosslinking agent. The fabric samples were dried at 100 °C for 5 min. and then cured at 120 °C for 4 min. The fragrance release durability against wearing (4 weeks), washing and abrasion of the fabrics were subjectively evaluated. Fragrance release durability properties against wearing and abrasion for the fabric samples treated by sol-gel process improved in comparison with that of the fabric samples treated by conventional process. Besides effective antibacterial activity against *S.aureus* bacteria of the fabric samples coated with nanosols containing microcapsules with aloe vera content were determined.

Keywords: Sol-Gel process, Aloe vera oils, Fragrance release, Antibacterial activity, Complex coacervation, Microcapsule.

1 Giriş

Mikrokapsülasyon çeşitli katı, sıvı veya gaz formunda etken veya öz maddelerin korunmak veya taşınmak amacıyla polimerik kılıf ile sarılarak hapsedilmesi işlemidir [1],[2]. Kapsülasyon yöntemi ile vitamin, ilaç gibi tıbbi özelliği olan maddelerin yanında böcek kovucu, antimikrobiyal, kromik, kozmetik ve güç tutuşur özellikteki malzemelerin de uzun süre korunması ve kontrollü salımı mümkündür. Mikrokapsüllerin çapları birkaç milimetreden nanometer boyutunda olabilmektedir ve koaservasyon, arayüz polimerizasyonu ve polimer-polimer uyumsuzluğu gibi kimyasal veya püskürtmek kurutma gibi mekanik yöntem gibi çok çeşitli üretim yöntemleri ile üretilebilmektedirler. Mikrokapsüller mekanik etki, sıcaklık etkisi, çözenler, enzimler, kimyasallar ve pH değişimi ile salım özellikleri gösterebilmektedir. Kompleks koaservasyon yöntemi katyonik ve anyonik suda çözülebilir

polimerlerin öz malzemesi etrafında toplanarak katılaştırılması esasına dayanır [3].

Bitki ekstraktları ve uçucu yağlar içeren mikrokapsüllerin kompleks koaservasyon yöntemi ile üretilmesi yaygın olarak araştırılmaktadır. Bitki ekstraktları ve uçucu yağlar kapsülünü kumaşa aktarılabilir insanlarda rahatlatma ve mutluluk hissi uyandıran ve antibakteriyel etkinlik gösteren aromaterapik tekstiller üretilir [4]. Literatürde aloe vera [5], kenevir [6], kekik [7], A. İndica, zerdeçal yaprakları ve Hint fesleğeni kökü karışımı [8], karanfil, ökalıptus ve çay ağacı özütünden elde edilen uçucu yağların [9] antibakteriyel etkinlikleri araştırılmıştır.

Emdirme, baskı, sıvama kaplama ve püskürtme gibi pek çok teknik mikrokapsüllerin tekstillere aktarılması için kullanılmıştır. Fakat halen mikrokapsüllerin kumaş üzerindeki etkinlikleri ve dayanımları yeterince geliştirilememiştir. Mikrokapsüllerin kumaşa aktarılmasında fiksaj maddesi, fiksaj koşulları ve sıcaklığı, mikrokapsülün üretim yöntemi ve kılıf

*Yazışılan yazar/Corresponding author

malzemesinin cinsi gibi pek çok faktör mikrokapsüllerin etkinliklerini bakımından önemlidir. Literatürde mikrokapsüllerin etkinliklerinin artırılması amacıyla mikrodalga ve UV katalizöründe fiksaj [10]-[12], akrilik reçenesi ile yıkama ve yumuşatma banyosunda mikrokapsüllerin aktarılması [13],[14], fiksaj maddesi olarak akrilik reçenesi, poliüretan polimeri ve dimetildihidroksi etilen üre (DMDHEU) kullanımı ve mikrodalga, ısı ve kızılötesi fiksaj koşulları [10], ev tipi çamaşır makinesinde süksinik asit [15], butantetrakarboksilik asit ve akrilik asit reçenesi ile mikrokapsüllerin aktarılması [14], baskı [16] ve emdirme [17] tekniği ile mikrokapsüllerin aktarılması araştırılmıştır. Sousa ve diğ. silika kapsülleri içerisine uçucu yağları tutuklayarak salım özelliklerini incelemiştir [18]. Mulyani ve Sunendar böcek kovucu tekstil üretimi için lavanta yağı içeren silika kapsüllerini sol-jel emülsiyon yöntemi ile üretmişlerdir [19]. Bu çalışmalarda sol-jel yöntemi ile üretilen silika kılıfı içerisine etken madde hapsedilirken mikrokapsülenmiş uçucu yağların kumaşa bağlanmasında sol-jel yönteminin kullanımına dair literatürde çalışmaya rastlanmamıştır. Bu çalışma ile literatürdeki bu boşluk doldurulmaya çalışılmıştır.

Sol jel prosesi çeşitli metal tuzu ve metal alkoksiti başlatıcı maddelerin bir alkol veya su gibi çözücü içerisinde çözülmesi ve asit veya baz katalizöründe hidrolizi ve ısı işlem sonrası kondenzasyonunu içerir. Son yıllarda sol jel teknolojisi tekstil materyallerine çoklu fonksiyonel özellikler kazandırmak için yaygın olarak araştırılmaktadır. Nanoteknolojik bir uygulama olan sol-jel teknolojisi ile yüksek etkinlik ve dayanıklılık, kimyasal maddenin düşük konsantrasyonda kullanımı, düşük sıcaklıklarda uygulama, tek adımda birden fazla fonksiyonunun tekstil malzemesine kazandırılması, çevre dostu uygulama olması, basit uygulama ve özel ekipman gerektirmeden tekstil işletmesine uygulanabilirlik gibi avantajlar elde edilmiştir [17],[20]. Kondenzasyon sonrası kumaş gibi çeşitli yüzeyler üzerinde film tabakası oluşmaktadır. Bu film tabakası içerisine mikrokapsüller hapsedilerek yıkama ve aşınmaya dayanıklı mikrokapsüller üretmek mümkündür.

Bu çalışmada kompleks koaservasyon yöntemi ile üretilen aloe vera içeren mikrokapsüller sol-jel yöntemi ile pamuklu kumaşlara aktarılmış ve mikrokapsüllerin 4 hafta süresince kullanım, yıkama ve aşınma sonrası subjektif koku salım özellikleri ve kantitatif antibakteriyel aktiviteleri araştırılmıştır.

2 Materyal ve metot

2.1 Materyal

Bu çalışma iki aşamadan oluşmaktadır, birinci aşamada kompleks koaservasyon yöntemine göre aloe vera içeren mikrokapsüller üretilmiş ve ikinci aşamada pamuklu kumaş mikrokapsül içeren nanosoller ile emdirme-kurutma-fiksaj yöntemine göre kaplanmıştır. Bu çalışmada kullanılan tüm kimyasal maddeler reaktif derecededir ve kullanılan kimyasal maddeler ve kumaşın özellikleri Tablo 1'de verilmiştir. İlk aşamada mikrokapsüllerin üretiminde etken madde olarak aloe vera yağı, kılıf maddesi üretiminde anyonik polimer olarak arap zamkı, katyonik polimer olarak jelatin A, anyonik yüzey aktif madde olarak sodyum dodesil sülfatın %10'luk çözeltisi, çapraz bağlayıcı olarak gluteralehit ve pH ayarı için sitrik asit kullanarak kompleks koaservasyon yöntemine göre mikrokapsüller üretilmiştir. 2. aşamada 30x20 cm boyutunda kasar ve ağartma işlemi görmüş panama dokuma %100 pamuklu kumaşlar aloe vera içeren mikrokapsüller ile sol-jel

yöntemine göre kaplanmıştır. Sol-jel yöntemi ile kaplamada başlatıcı madde olarak tetraetoksisisilan, 3-glisidil oksipropil trimetoksisisilan, asit katalizörü olarak sülfürik asit ve çözücü olarak distile su kullanılmıştır. Ayrıca karşılaştırma amaçlı olarak aloe vera yağı içeren mikrokapsüller DMDHEU esaslı ticari çapraz bağlayıcı ürün olan Rucon FAS ile emdirme-kurutma-fiksaj yöntemine göre pamuklu kumaşlara aktarılmıştır.

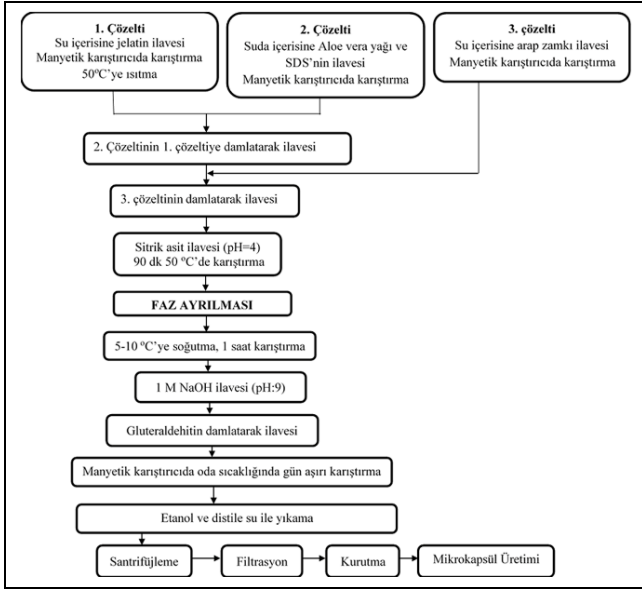
Tablo 1. Kullanılan kimyasal maddeler ve kumaşın özellikleri.

Table 1. The properties of chemical agents and fabric used.

	Özellikleri	Kullanım Amacı
Kumaş	%100 pamuklu kumaş, atkı sıklığı 22 tel/cm ve çözgü sıklığı 22 tel/cm, gramaj: 239 g/m ² , çözgü yönü kopma mukavemeti: 94.23 kgf, kopma uzaması: % 23.71, ASTM D5035-90, sökülüş şerit	Mikrokapsül aktarmak için yüzey
Aloe vera yağı	Sarı sabir yağı, Kırıntı Baharat Ltd. Şti., Kocaeli	Etken madde
Arap zamkı	C ₁₅ H ₂₀ NNaO ₄ , Carlo Erba, Fransa	Kılıf üretimi için anyonik polimer
Jelatin A	C ₆ H ₁₂ O ₆ , Neogen Company, UK	Kılıf üretimi için katyonik polimer
Sodyum dodesil sülfat	SDS, CH ₃ (CH ₂) ₁₁ OSO ₃ Na, Sigma	Anyonik yüzey aktif madde
Gluteralehit	C ₅ H ₈ O ₂ , %25, Merck, Almanya	Çapraz bağlayıcı
Sitrik asit	C ₆ H ₇ O ₈ , Emir Kimya, Ankara	pH ayarlayıcı
Tetraetoksisisilan	TEOS, Si(OC ₂ H ₅) ₄ , %98, Sigma-Aldrich	Başlatıcı madde
3-glisidil oksipropil trimetoksisisilan	GPTMS, >C ₉ H ₂₀ O ₅ Si, %98, Sigma-Aldrich	Başlatıcı madde
Sülfürik asit	H ₂ SO ₄ , %95-98, Tekken Kimya	Asit katalizörü
Rucon FAS	DMDHEU, Rudolf Duraner AŞ, Bursa	Ticari çapraz bağlayıcı ürün

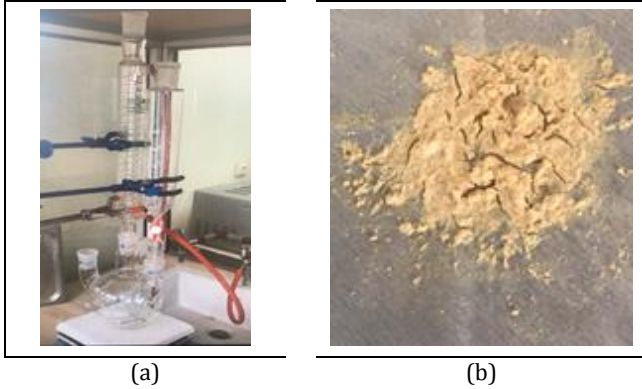
2.2 Kompleks koaservasyon yöntemine göre mikrokapsül üretimi

Aloe vera içeren mikrokapsül üretimi kompleks koaservasyon yöntemi ile gerçekleştirilmiştir. İlk aşamada 1.5 g jelatin A, 50 ml distile suda, 1.5 g arap zamkı 100 ml distile suda ve 0.3 g SDS ve 10 ml aloe vera yağı 50 ml distile suda çözülmüş ve manyetik karıştırıcıda 1500 rpm'de karıştırılmıştır. Jelatin çözeltisi 50 °C'ye ısıtılmış ve bu çözeltiye damlatma hunisi aracılığı ile küçük damlalar formunda yağ çözeltisi ve ardından arap zamkı çözeltisi eklenmiştir Sitrik asit ilavesi ile elde edilen çözeltinin pH derecesi (pH=4) ayarlanmış ve bu çözelti stabil hale gelinceye kadar 50 °C'de 90 dk. karıştırılmıştır. Bu aşamada faz ayrılması ve koaservat oluşumu gerçekleşmiştir. Çözelti oda sıcaklığına düştükten sonra buz banyosuna alınarak sıcaklığının 5-10 °C'ye düşmesi sağlanmıştır ve 1 sa. daha manyetik karıştırıcıda karıştırılmıştır. 1 sa. sonrasında çözeltinin pH'ı 1M NaOH ile 9'a ayarlanmış ve damlatma hunisi ile 1 g gluteralehit çözeltisi (%25) damla damla çözeltiye eklenmiştir. Çözelti oda sıcaklığında manyetik karıştırma altında 24 sa. bekletilmiştir. Ertesi gün elde edilen çözelti distile su ve etanol ile yıkanmış, santrifüjlenmiş, filtre kağıdı ile süzülüş ve etüvde 30 °C'de 24 sa. kurutulmuştur. Kurutulan tozların ağırlığı tartılmış ve mikrokapsülasyon verimi hesaplanmıştır. Mikrokapsül üretimi için işlem akışı Şekil 1'de ve mikrokapsül üretim düzeneği ve üretilen mikrokapsüllerin görüntüsü Şekil 2'de verilmiştir [21].



Şekil 1. Kompleks koaservasyon yöntemine göre mikrokapsül üretimi için işlem akışı.

Figure 1. Flow chart for microcapsule production by complex coacervation method.

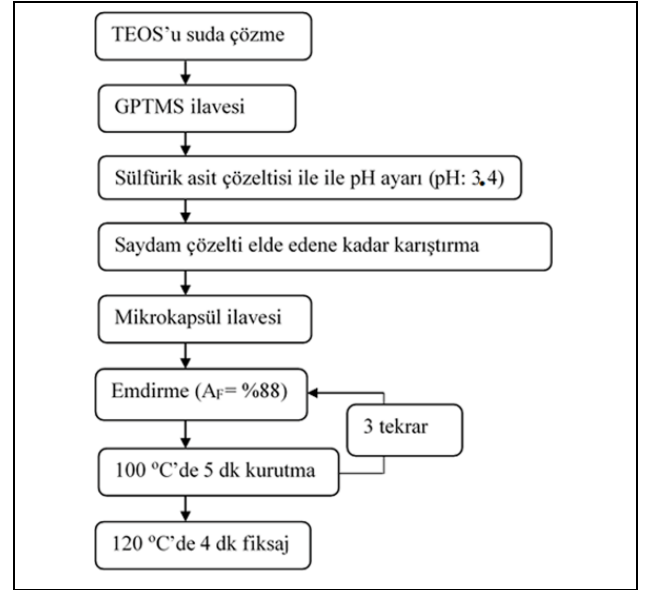


Şekil 2(a): Mikrokapsül üretim düzeneği.
(b): mikrokapsüllerin görüntüsü.

Figure 2 (a): Microcapsule production equipment.
(b): images of microcapsules.

2.3 Sol-jel yöntemi ile mikrokapsüllerin kumaşa aktarılması

Mikrokapsüller silan esaslı GPTMS ve TEOS başlatıcı maddeleri kullanarak hazırlanan nanosol içerisine ilave edilerek pamuklu kumaşa aktarılmıştır. Tablo 2 ve Şekil 2'de nanosollerin hazırlanmasında kullanılan reçeteler ve işlem akışı gösterilmiştir. 100 ml distile su içerisinde 5 ml TEOS çözülmüş ve 10 dk. manyetik karıştırıcıda karıştırılmıştır, ardından 5 ml GPTMS ilave edilmiş ve homojen ve saydam çözelti elde edilmiştir. Sonraki aşamada 5 mol/l H₂SO₄ çözeltisi ile pH 3.4'e ayarlanmış ve bu nanosol çözeltisine 50 g/l mikrokapsül ilavesi yapılmıştır. Farklı kurutma ve fiksaj koşulları denenmiş ve optimize edilmiştir. Mikrokapsül aktarılan kumaşların 150 °C'de fiksajlarında mikrokapsüllerin deforme olduğu ve etkisini kaybettiği gözlenmiştir. Dolayısıyla %88 AF ile nanosol çözeltileri ile emdirilen kumaşlar 100 °C'de 5 dk. kurutulmuş ve 120 °C'de 4 dk. fiksaj edilmiştir [22].



Şekil 3. Mikrokapsül içeren nanosoller ile pamuklu kumaşın kaplanması için işlem akışı.

Figure 3. Flow chart for coating of cotton fabric by nanosols containing microcapsules.

Ayrıca pamuklu kumaşlar ticari konvansiyonel çapraz bağlayıcı olan Rucon FAS ile karşılaştırma amaçlı olarak kaplanmıştır. Bu işlemde 100 ml su içerisinde 10 g Rucon FAS çözülmüş ve 5 g aloe vera yağı içeren mikrokapsül eklenmiştir. Çözelti manyetik karıştırıcıda karıştırılmış ve pamuklu kumaşlara emdirilmiştir (AF: %88). Emdirilen kumaş 100 °C'de 5 dk. kurutulmuş ve 120 °C'de 4 dk. fiksaj edilmiştir.

2.4 Karakterizasyon

2.4.1 Mikrokapsüllerin karakterizasyonu

Üretilen mikrokapsüllerin Optik mikroskop (Optika, Stereo) kullanarak 40X büyütme ile görüntüleri alınmıştır. Üretilen mikrokapsüllerin üretim verimi aşağıdaki denkleme göre hesaplanmıştır [22].

$$\%Verim = \frac{\text{Kapsül içerisindeki gerçek madde miktarı}}{\text{Kapsül içerisindeki teorik madde miktarı}} \times 100$$

$$= \frac{11.8092}{1.5 + 1.5 + 9.88} \times 100 = \%92$$

$$M_{aloevera} = d_{aloevera} \times V_{aloevera} = 0.988 \times 10 \text{ ml} = 9.88 \text{ g}$$

Mikrokapsül içerisindeki teorik madde miktarı kullanılan aloe vera yağı (10 ml), arap zamkı (1.5 g) ve jelatin miktarı (1.5 g) toplanarak bulunmuştur. Kapsül içerisindeki gerçek madde miktarı (11.8092 g) belirlenmesi için üretilen toz yapıdaki mikrokapsüller vakumlu etüvde 80 °C'de gün aşırı kurutulmuş ve desikatörde 2 sa. bekletilip tartılmıştır.

Mikrokapsüllerin içerdiği yağ miktarının hesaplanmasında UV-Vis spektrofotometre (Perkinelmer, Lambda 25, USA) kullanarak 280 nm dalga boyunda aloe vera yağının kalibrasyon eğrisi elde edilmiştir. Bu amaçla 0.1 ml aloe vera yağı 100 ml etanol içerisinde çözülerek stok çözelti hazırlanmıştır. Bu çözeltiden 10 ml'lik balonjellere 1; 1.5; 2 ve 5 ml aloe vera yağı çözeltisi alınarak 10 ml etanol içerisinde seyreltilmiştir. Böylelikle 0.1; 0.15; 0.2; 0.5 ve 1 ml/l konsantrasyonda çözeltiler hazırlanmıştır. Kör çözelti olarak etanol kullanarak UV-Vis spektrometre cihazında ölçüm yapılmıştır. Bu çözeltilerin 200-700 nm aralığında absorbans

değerleri ölçülmüştür. Bu veriler kullanılarak dalga boyu-absorbans grafikleri (kalibrasyon eğrisi) ve regresyon denklemi oluşturulmuştur. Kalibrasyon eğrisi kullanarak üretilen mikrokapsüller içerisindeki yağ miktarını belirleyebilmek için 1 g mikrokapsül 10 ml etanol içerisine ilave edilmiş ve ultrasonik homojenizatörde 6 dk. işlem yapılmış, böylece mikrokapsüllerin parçalanması sağlanmıştır. Bu çözelti 4000 rpm'de 10 dk. sanrifüjlenerek supernatantın ayrılması sağlanmış ve supernatant çözeltisinin absorbans değerleri UV-Vis spektrofotometrede ölçülmüştür. Bu çözelti spektrofotometrenin kuvarz kabı içerisine konmuş, 280 nm dalga boyundaki absorbans değeri ölçülmüştür. Bu absorbans değerine karşılık gelen konsantrasyon değeri aloe veranın kalibrasyon eğrisinden faydalanarak bulunmuştur. Böylece mikrokapsüllerin yağ içerikleri belirlenmiştir.

2.4.2 Kumaşların karakterizasyonu

İşlem görmeyen ve sol-jel yöntemi kullanarak mikrokapsül aktarılan kumaşların SEM görüntüleri ve kapsül ve lif çapları tarama elektron mikroskopunda (SEM, Zeiss supra 40 VP) İLTAM laboratuvarlarında ölçülmüştür. Kumaşların antibakteriyel aktiviteleri ASTM E2149 standardına göre dinamik çalkalama şişesi yöntemine uygun olarak analiz edilmiştir. Antibakteriyel işlem görmüş ve görmemiş kumaşların bakteri ortamında 24 sa. çalkalama sonrasındaki bakteri sayımları yapılmış ve işlem görmemiş kumaşa göre % Bakteri azalması aşağıdaki formüle göre hesaplanmıştır.

$$\%Azalma = \frac{A - B}{A} \times 100$$

A = İşlem görmemiş kumaşın 24 sa. temas sonrası bakteri sayısı,

B = Antibakteriyel kumaşın 24 sa. temas sonrası bakteri sayısı.

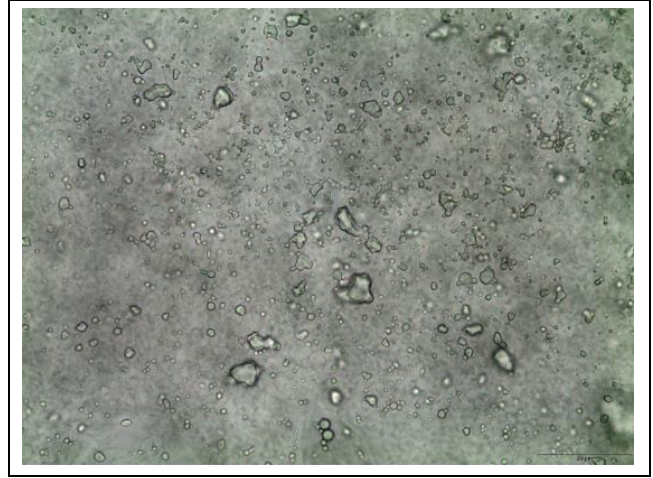
Konvansiyonel yöntemle ve sol-jel yöntemine göre mikrokapsül aktarılan kumaşların koku salım özellikleri 4 hafta boyunca haftada 1 kere tecrübesiz, 20-24 yaş aralığındaki kadın ve erkek 5 değerlendirici tarafından değerlendirilmiştir. Tırnakla kumaş "X" (3x3 cm) şeklinde kazanmış ve 15 dk. aralıkla 5 değerlendirici tarafından koklanmış ve ortalama değerler alınmıştır. 1: koku yok ve 5: mükemmel koku olarak derecelendirilip puanlanma yapılmıştır [22]-[25]. ASTM D4966 standardına göre Martindale cihazında (Martindale, M235, Amerika Birleşik Devletleri) 3000 devir aşındırma sonrası kumaşların koku salım özellikleri tekrar subjektif olarak değerlendirilmiştir. TS EN ISO 105-C06 standardına uygun olarak 5 yıkama sonrası kumaşların koku salım özelliklerinin yıkama dayanımı ölçülmüştür. Bu amaçla 4x10 cm boyutlarında kesilen kumaşlar 40 °C'de 30 dk. Rotawash cihazında 5 g/l Ece referans deterjan A içeren 150 ml çözelti içerisinde yıkanmıştır. 5 yıkama sonrası koku değerlendirmesi yapılmıştır. Yıkanan numuneler 24 sa. içerisinde değerlendirilmiştir. Değerlendirmeden önce kokunun buharlaşmasını stabilize etmek için numuneler bir odada 1 sa. askıda tutulmuştur. Stabilize odasına değerlendiricilerin girmesine izin verilmemiştir. Numuneler değerlendirme odasındaki bir değerlendiriciye getirilmiştir. Koku dereceleri SPSS programında parametrik olmayan veriler için varyans analiz yöntemi olan Mann-Whitney U testi ile analiz edilmiştir.

3 Sonuçlar ve tartışma

3.1 Mikrokapsüllerin analiz sonuçları

Kompleks koaservasyon yöntemine göre üretilen mikrokapsüllerin optik mikroskopta 40X büyütmedeki

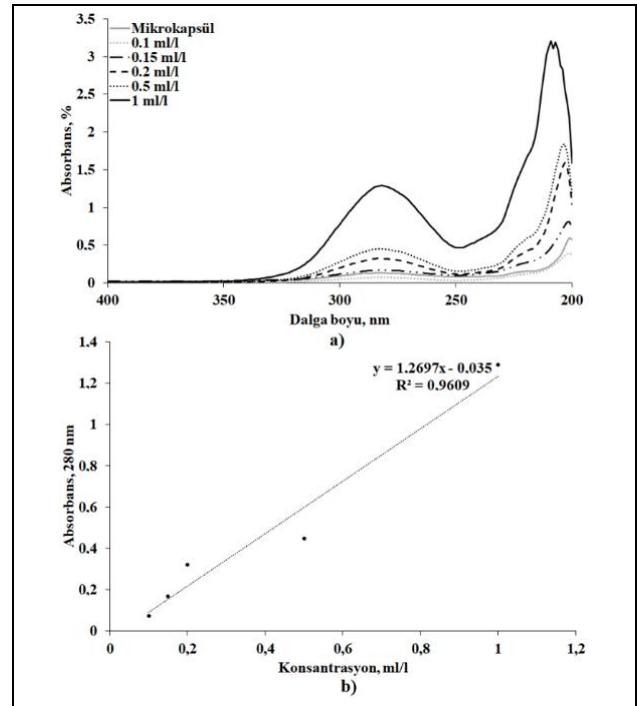
görüntüsü Şekil 4'te verilmiştir. Küresel kesiksiz öz/kalıt yapısında mikrokapsüllerin üretildiği tespit edilmiştir.



Şekil 4. Mikrokapsüllerin 40x büyütmede optik mikroskop görüntüsü.

Figure 4. Images of microcapsules with 40X magnification by optical microscope.

Mikrokapsüllerin üretim verimi %92 olarak bulunmuştur. Üretilen mikrokapsüllerin yağ içeriğinin belirlenmesi için aloe vera yağı için kalibrasyon eğrisi oluşturulmuştur. Elde edilen absorbans eğrileri ve 280 nm'de ölçülen kalibrasyon grafiği Şekil 5'te verilmiştir. Kalibrasyon eğrisinden faydalanarak üretilen mikrokapsüllerin yağ içeriği 0.13 ml/L olarak hesaplanmıştır.



Şekil 5(a): Aloe vera yağı ile 200-400 nm bölgesinde elde edilen absorbans eğrileri. (b): Aloe vera yağının kalibrasyon eğrisi grafiği.

Figure 5(a): Absorbance curve of aloe vera oil at 200-400 nm, (b): Calibration graph of aloe vera oil.

3.2 Kaplanan kumaşların SEM görüntüsü

Şekil 6'da verilen işlemsiz ve sol-jel yöntemi ile kaplanan pamuklu kumaşın SEM görüntüleri kumaşların üzerinde mikrokapsüllerin varlığını kanıtlamıştır. Ayrıca lif üzerindeki mikrokapsüllerin 12 µm çapında olduğu, işlem görmeyen kumaşlarda liflerin 12 µm kalınlığında iken sol-jel yöntemi ile silika esaslı filmle kaplanan kumaşlardaki liflerin ortalama 16 µm kalınlığında olduğu tespit edilmiştir. Bu da bize liflerin üzerindeki silika film tabakasının varlığını göstermiştir.

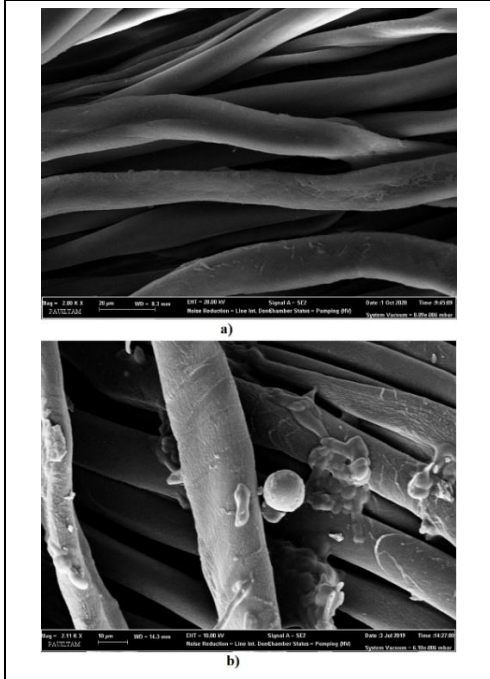
3.3 Kumaşların antibakteriyel aktivite test sonuçları

Tablo 2'de sol-jel yöntemi ile mikrokapsül aktarılan pamuklu kumaşların gram negative *E. coli* ve gram pozitif *S. aureus* bakterilerine karşı antibakteriyel aktivite test sonuçları ve Şekil 7'de antibakteriyel aktivite petri kabı görüntüleri verilmiştir. Bu sonuçlara göre aloe vera içeren mikrokapsül aktarılan kumaşlar *E.coli* bakterisine karşı yetersiz antibakteriyel aktivite gösterirken, *S. aureus* bakterisine karşı yüksek antibakteriyel aktivite göstermiştir.

Tablo 2. *E.coli* ve *S.aureus* bakterisine karşı antibakteriyel aktivite sonuçları.

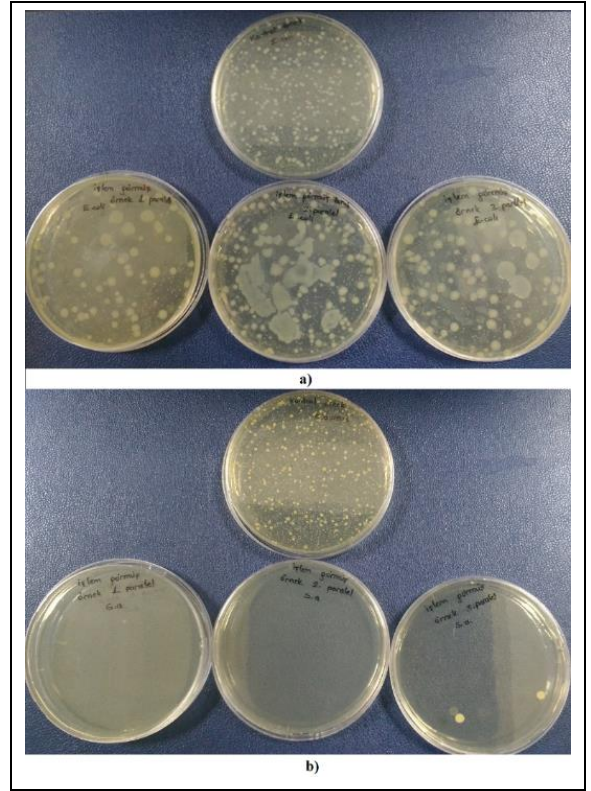
Table 2. Antibacterial activity results of fabric samples against *E. coli* and *S.aureus*.

	Ortalama Bakteri Sayısı, Adet		Bakteri Azalması, %	
	<i>E.coli</i>	<i>S.aureus</i>	<i>E.coli</i>	<i>S.aureus</i>
İşlemsiz kumaş	245000	255000	-	-
Kaplanan kumaş	143500	2.50	41.43	99.99



Şekil 6. SEM görüntüleri. (a):İşlemsiz kumaş. (b):Kaplanan kumaş.

Figure 6. SEM images. (a): Untreated fabric. (b): Coated fabric.

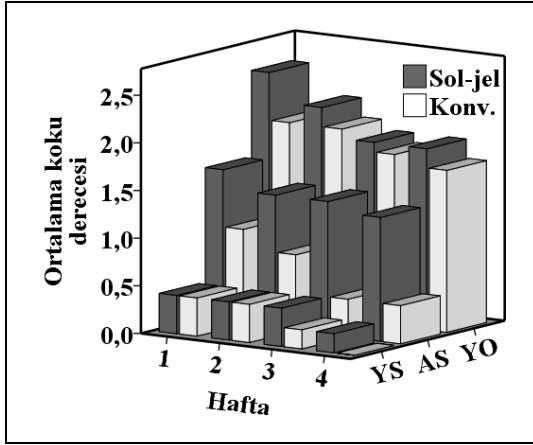


Şekil 7. *E.coli*. (a):*S. Aureus*. (b):Bakterisine karşı antibakteriyel aktivite testi görüntüleri. Yukarda: İşlemsiz kumaş, aşağıda: kaplanan kumaş, 3 tekrarlı.

Figure 7. Antibacterial test images of fabric samples against *E. Coli*. (a): *S. Aureus*. (b): Above: untreated fabric, below: Coated fabric with 3 replications.

3.4 Kumaşların koku salım özelliklerinin subjektif değerlendirilmesi

Sol-jel yöntemi ve konvansiyonel yöntemle göre kaplanan kumaşların koku salım özelliklerinin yıkamadan önce, sonra ve aşındırma testi sonrası haftalık subjektif değerlendirme sonuçları Şekil 8'de verilmiştir. Genel olarak aloe vera içeren mikrokapsüllerin konvansiyonel yöntem yerine sol-jel yöntemi ile aktarıldığı kumaş örneklerinin 4 haftalık süreç boyunca daha yüksek koku salım değerleri gösterdiği tespit edilmiştir. Ayrıca 3000 devir aşındırma ve 5 tekrarlı yıkama işlemi sonrasında her iki yöntemle göre mikrokapsül aktarılan kumaşların 4 haftalık süreçte koku salım değerlerinin azaldığı ve sol-jel yöntemi ile bu azalma değerlerinin daha düşük olduğu bulunmuştur. Sol-jel yöntemi ile mikrokapsül aktarılan kumaşların aşındırma işlemine karşı 4 haftalık süreçteki koku dayanımının konvansiyonel yöntemle göre belirgin artış gösterdiği ortaya konulmuştur. Her iki aktarma yönteminde de tekrarlı yıkama işlemi sonrası koku kaybı oldukça yüksektir. Parametrik olmayan veriler için varyans analiz yöntemi Mann-Whitney U testi değerlendirmelerine göre ise sırasıyla yıkamadan önce, yıkamadan sonra ve aşındırma işlemi sonrası sol-jel ve konvansiyonel yöntemle elde edilen koku dereceleri arasındaki karşılaştırmada elde edilen önemlilik dereceleri 0.065; 0.469 ve 0.001 olarak bulunmuştur. Dolayısıyla özellikle aşındırma işlemine karşı koku dayanımının sol-jel yöntemi ile kaplamada konvansiyonel yöntemle göre önemli farklılık gösterdiği, yıkama öncesi ve sonrası ise yöntemler arasında önemli farklılık olmadığı tespit edilmiştir.



Şekil 8. Yıkama ve aşındırma işlemi öncesi ve sonrası sol-jel yöntemi ve konvansiyonel yöntemle işlem gören kumaşların subjektif koku salım değerlendirme sonuçları. YÖ: Yıkamadan önce, YS: Yıkamadan sonra, AS: Aşındırma sonrası

Figure 8. Subjective fragrance release evaluation results of fabric samples treated with sol-gel and conventional process before and after washing and abrasion process. YÖ: Before washing, YS: After washing, AS: After abrasion.

4 Sonuçlar

Elde edilen sonuçlar genel olarak özetlenirse;

kompleks koaservasyon yöntemi ile mikrokapsül üretimi başarı ile gerçekleştirilmiş, optik mikroskop görüntüleri mikrokapsül oluşumunu kanıtlamış,

%92 verim ile mikrokapsül üretimi başarıyla gerçekleştirilmiş, mikrokapsüller kumaşlara sol-jel yöntemi ile başarı ile aktarılmış, SEM görüntüleri kumaş üzerinde mikrokapsül varlığını doğrulamış,

mikrokapsül aktarılan kumaşların aloe vera yağı içeriği sayesinde *S.aureus* bakterisine karşı etkin antibakteriyel aktivite gösterdiği bulunmuş,

konvansiyonel yöntem ve sol-jel yöntemine göre mikrokapsül aktarılan kumaşların koku dereceleri incelendiğinde sol-jel yöntemi ile mikrokapsül aktarılan kumaşların koku derecelerinin daha yüksek olduğu, aşınma dayanımlarının da konvansiyonel yöntemden önemli miktarda yüksek olduğu, fakat her iki yöntemin de yıkama dayanımının düşük olduğu tespit edilmiştir.

Sonuç olarak sol-jel yöntemi ile kumaşlara aloe vera içeren mikrokapsül aktarılmasının kumaşlara antibakteriyel aktivite kazandırdığı ve koku salım özelliklerinin dayanımını geliştirme konusunda potansiyele sahip olduğu bulunmuştur. İleri ki çalışmalarda sol-jel yöntemi modifikasyonu ile bu dayanım özelliklerinin geliştirilebileceği önerilebilir.

5 Conclusions

The results could be summarized as following;

The microcapsule production was achieved by complex coacervation method. The images by optical microscope proved the microcapsule forming.

The microcapsule production was carried out by 92% yield.

The microcapsules were successfully applied to cotton fabric by sol-gel process. The presence of microcapsules on the fabric samples were determined by SEM micrographs.

The fabric samples coated by nanosols containing microcapsules conveying aloe vera oils presented effective antibacterial activity.

The fabrics coated by sol-gel process have higher fragrance grade, significantly higher abrasion durability in comparison with conventional process. But all fabric samples exhibited low washing durability.

In conclusion, it was found out that the application of microcapsules containing aloe vera oils on fabric samples by sol-gel process gained antibacterial properties to the fabric samples and has potential to improve the durability of their fragrance release properties. It also could be proposed the development of durability of fragrance release properties of the fabric samples applied microcapsules by the modification of sol-gel process in the future plan.

6 Teşekkür

Bu çalışma TÜBİTAK 2209B sanayiye yönelik lisans araştırma projeleri destekleme programı tarafından 1139B411801841 no.lu proje ve Pamukkale Üniversitesi, Bilimsel Araştırma Projeleri Koordinasyon Birimi Koordinatörlüğü tarafından 2019FEBE059 No.lu proje ile desteklemiştir.

7 Yazar katkı beyanı

Gerçekleştirilen çalışmada Nurhan ONAR ÇAMLİBEL, fikrin oluşması, tasarımın yapılması ve literatür taraması, elde edilen sonuçların değerlendirilmesi, kullanılan malzemelerin temin edilmesi ve sonuçların incelenmesi başlıklarında, yazım denetimi ve içerik açısından makalenin kontrol edilmesi; Murat Can BERBEROĞLU ve İlker KANDEMİR kullanılan malzemelerin temin edilmesi, deneylerin gerçekleştirilmesi ve verilen toplanması başlıklarında katkı sunmuşlardır.

8 Etik kurul onayı ve çıkar çatışması beyanı

Hazırlanan makalede etik kurul izni alınmasına gerek yoktur.

Hazırlanan makalede herhangi bir kişi/kurum ile çıkar çatışması bulunmamaktadır.

9 Kaynaklar

- [1] Umer H, Nigam H, Tamboli AM, Nainar MSM. "Microencapsulation: Process, techniques and applications". *International Journal of Research in Pharmaceutical and Biomedical Sciences*, 2(2), 474-481, 2011.
- [2] Başal G, Karagönlü S. "Medikal Tekstiller İçin Antimikrobiyel Ajan İçeren Mikrokapsüllerin Hazırlanması". *Pamukkale Üniversitesi Mühendislik Bilimleri Dergisi*, 19(4), 174-178, 2013.
- [3] Kaş SH. *İlaç Taşıyıcı Partiküler Sistemler*. Editor: Gürsoy AZ. Kontrollü Salım Sistemleri İçinde, 65-99, İstanbul, Türkiye. Kontrollü Salım Sistemleri Derneği Yayınları, No: 1, 2002.
- [4] Ghayempour S, Montazer M. "Micro/nanoencapsulation of essential oils and fragrances: Focus on perfumed, antimicrobial, mosquito-repellent and medical textiles". *Journal of Microencapsulation*, 33(6), 497-510, 2016.
- [5] Ali SW, Purwar R, Joshi M, Rajendran S. "Antibacterial properties of Aloe vera gel-finished cotton fabric". *Cellulose*, 21(3), 2063-2072, 2014.

- [6] Nissen L, Zatta A, Stefanini I, Grandi S, Sgorbati B, Biavati B, Monti A. "Characterization and antimicrobial activity of essential oils of industrial hemp varieties (*Cannabis sativa* L.)". *Fitoterapia*, 81(5), 413-419, 2010.
- [7] Arana-Sanchez A, Estarron-Espinosa M, Obledo-Vazquez EN, Padilla-Camberos E, Silva-Vazquez R, Lugo-Cervantes E. "Antimicrobial and antioxidant activities of Mexican oregano essential oils (*Lippia graveolens* H. B. K.) with different composition when microencapsulated in β -cyclodextrin". *Letters in Applied Microbiology*, 50, 585-590, 2010.
- [8] Saraswathi R, Krishnan PN, Dilip C. "Antimicrobial activity of cotton and silk fabric with herbal extract by micro encapsulation". *Asian Pasific Journal of Tropical Medicine*, 128-132, 2010.
- [9] Joshi M, Wazed Ali S, Purwar R. "Ecofriendly antimicrobial finishings of textiles using bioactive agents based on natural products". *Indian Journal of Fibre & Textile Research*, 34, 295-304, 2009.
- [10] Li S, Boyter H, Stewart N. "Ultraviolet (UV) Curing Processes for Textile Coloration". *AATCC Review*, 4(8), 2004.
- [11] Li S, Boyter JrH, Qian L. "UV curing for encapsulated aroma finish on cotton". *Journal of the Textile Institute*, 96(6), 407-411, 2005.
- [12] U.S. Patent and Trademark Office. "Fabric Containing Compositions". Washington DC, USA, US4234627, 1980.
- [13] Schilling KJ. "Fabric Containing Compositions". Washington, DC, US. Patent and Trademark Office, US. 4, 1980.
- [14] Aracil MÁB, Bou-Belda E, Monllor P, Gisbert J. "Binder effectiveness of microcapsules applied onto cotton fabrics during laundry". *The Journal of The Textile Institute*, 107(3), 300-306, 2006.
- [15] Wijesirigunawardana PB, Perera BGK. "Development of a cotton smart textile with medicinal properties using lime oil microcapsules". *Acta Chimica Slovenica*, 65(1), 150-159, 2018.
- [16] Golja B, Šumiga B, Forte Tavčer P. "Fragrant finishing of cotton with microcapsules: comparison between printing and impregnation". *Coloration Technology*, 129(5), 338-346, 2013.
- [17] Pan NC, Ammayappan L, Khan A, Chakraborty S. "Performance of chitosan: jasmine oil microcapsule on jute fabric". *Indian Journal of Fibre & Textile Research*, 43(3), 375-380, 2018.
- [18] Sousa FL, Santos M, Rocha SM, Trindade T. "Encapsulation of essential oils in SiO₂ microcapsules and release behaviour of volatile compounds". *Journal of microencapsulation*, 31(7), 627-635, 2014.
- [19] Mulyani WE, Sunendar B. "Synthesis and characterization of silica-lavender microencapsulation by sol gel-emulsion method for anti mosquito textile". *In Advanced Materials Research*, 789, 215-218, 2013.
- [20] Ismail WNW. "Sol-gel technology for innovative fabric finishing-A Review". *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, 78(3), 698-707, 2016.
- [21] Gashti MP, Pakdel E, Alimohammadi F. *Nanotechnology-Based Coating Techniques for Smart Textiles*. In Active Coatings for Smart Textiles, 243-268, Woodhead Publishing, 2016.
- [22] Bezerra FM, Carmona OG, Carmona CG, Lis MJ, de Moraes FF. "Controlled release of microencapsulated citronella essential oil on cotton and polyester matrices". *Cellulose*, 23(2), 1459-1470, 2016.
- [23] Türkoğlu GC. *Tekstil Materyallerine Fonksiyonel Özellik Kazandıran Çeşitli Kapsüllerin Elde Edilmesi ve Karakterizasyonu*. Yüksek Lisans Tezi, Dokuz Eylül Üniversitesi, Denizli, Türkiye, 2013.
- [24] Kandemir İ. *Mikrokapsülasyon ve Sol-Jel Teknolojileri Kullanılarak Koku Salımlı ve Antibakteriyel Kumaş Geliştirilmesi*. Yüksek Lisans Tezi, Pamukkale Üniversitesi, Denizli, Türkiye, 2020.
- [25] Specos MM, García JJ, Tornesello J, Marino P, Vecchia MD, Tesoriero MD, Hermida LG. "Microencapsulated citronella oil for mosquito repellent finishing of cotton textiles". *Transactions of the Royal Society of Tropical Medicine and Hygiene*, 104(10), 653-658, 2010.