

PROSES PARAMETRELERİ VE ÇÖZELTİ ÖZELLİKLERİNİN KOAKSİYAL ELEKTROPÜSKÜRTME YÖNTEMİ İLE ELDE EDİLEN NANOPARTİKÜLLERİN MORFOLOJİK ÖZELLİKLERİ ÜZERİNE ETKİSİ

Elif Atay, Aylin Altan*

Mersin Üniversitesi, Gıda Mühendisliği Bölümü, Mersin, Türkiye

Geliş / Received: 22.02.2019; Kabul / Accepted: 07.05.2019; Online baskı / Published online: 19.06.2019

Atay, E., Altan, A. (2019). Proses parametreleri ve çözelti özelliklerinin koaksiyal elektropüskürtme yöntemi ile elde edilen nanopartiküllerin morfolojik özellikleri üzerine etkisi. *GIDA* (2019) 44 (3): 534-551 doi: 10.15237/gida.GD19050

Atay, E., Altan, A. (2019). The effect of process parameters and solution properties on morphological characteristics of nanoparticles obtained by coaxial electrospraying. *GIDA* (2019) 44 (3): 534-551 doi: 10.15237/gida.GD19050

ÖZ

Elektropüskürtme yöntemi, gıda uygulamaları için nano ölçekli partiküllerin üretilmesini sağlayan bir enkapsülasyon yöntemidir. Proses parametreleri ve çözelti özelliklerinin değiştirilmesiyle farklı morfolojilere sahip nanopartiküller elde edilebilmektedir. Bu çalışmada, çörek otu yağı koaksiyal elektropüskürtme yöntemi kullanılarak enkapsüle edilmiştir. Proses parametreleri (kabuk çözelti akış hızı, uygulanan voltaj, iğne ile toplayıcı arasındaki mesafe) ile çözelti özelliklerinin (çözgen, kabuk ve çekirdek çözelti konsantrasyonu, yüzey aktif madde) elde edilen partiküllerin morfolojik yapıları üzerine etkilerinin belirlenmesi amaçlanmıştır. Çalışmadan elde edilen sonuçlar, kabuk çözelti konsantrasyonu, uygulanan voltaj ve iğne ile toplayıcı arasındaki mesafe değişimlerinin partikül morfolojisi üzerinde önemli bir etkiye sahip olduğunu göstermiştir. Nanopartiküller, zein konsantrasyonu %17.5 (a/h)'dan %21 (a/h)'e artırıldığında küreselliğini kaybetmiştir. İğne ile toplayıcı arasındaki mesafenin 10 cm'den 13.5 cm'e ve uygulanan voltajın 14 kV'dan 15 kV'a artması küresel ve homojen partiküllerin üretilmesini sağlamıştır. Koaksiyal elektropüskürtme yöntemi ile elde edilen partiküllerin çekirdek-kabuk yapısı konfokal mikroskop görüntüsü ile doğrulanmıştır.

Anahtar kelimeler: Koaksiyal elektropüskürtme yöntemi, nanopartikül, morfoloji, zein, çörek otu yağı.

THE EFFECT OF PROCESS PARAMETERS AND SOLUTION PROPERTIES ON MORPHOLOGICAL CHARACTERISTICS OF NANOPARTICLES OBTAINED BY COAXIAL ELECTROSPRAYING

ABSTRACT

Electrospraying method is an encapsulation method that allows to produce nanoscale particles for food applications. Nanoparticles with different morphologies can be obtained by changing process parameters and solution properties. In this study, black seed oil was encapsulated using coaxial electrospraying method. The aim of this study was to determine the effects of process parameters (flow rate of shell solution, voltage, distance between the spinneret tip and the collector) and solution properties (solvent type, polymer concentration of shell and core solution, surfactant) on morphological properties of zein-black seed oil nanoparticles. The results showed that the change in the concentration of shell solution, the applied voltage and the distance between the needle and the collector had a significant effect on the particle morphology. Nanoparticles lost their sphericity when the zein concentration was increased from 17.5% to 21% (w/v). The increase in distance between the needle and the collector and the applied voltage resulted in the production of spherical and homogeneous particles. The core-shell structure of the particles obtained by the coaxial electrospraying method was confirmed by the confocal microscope image.

Keywords: Coaxial electrospraying, nanoparticle, morphology, zein, black seed oil.

* Yazışmalardan sorumlu yazar / Corresponding author;

✉ aaltan@mersin.edu.tr,

☎ (+90) 324 361 0001

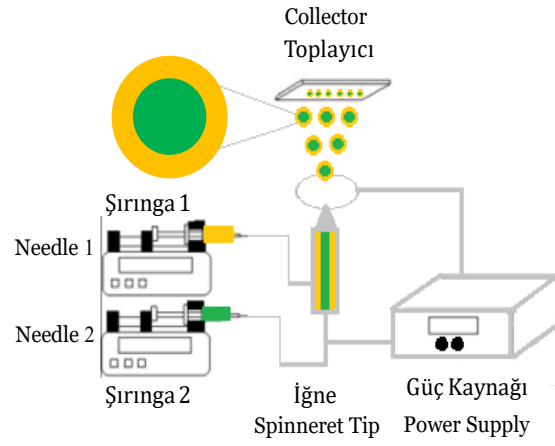
☎ (+90) 324 361 0032

GİRİŞ

Enkapsülasyon, aktif bir maddenin veya karışımın başka bir madde veya sistem ile kaplanması veya hapsedilmesi olarak tanımlanmaktadır (Sakin vd., 2010). Mikro/nano enkapsülasyon sayesinde belirlenen aktif bileşenin korunması, stabilizasyonu, kontrollü salımı sağlanmakta ve aktif madde istenilen zamanda faaliyet göstermektedir. Nanoenkapsülasyon 100 nm ve daha küçük biyolojik ve biyolojik olmayan yapıların enkapsüle edilmesidir. Bu ölçekteki yapıların benzersiz ve yeni fonksiyonel özelliklere sahip olduğunun belirlenmesi nanoteknolojiye gösterilen ilginin ve bu alanda yapılan çalışmaların artmasını sağlamıştır (Weiss vd., 2006).

Enkapsülasyon tekniği olarak kullanılan yöntemlerden bazıları püskürtmeli kurutma, emülsiyon-çapraz bağlama ya da koaservasyondur (López-Rubio ve Lagaron, 2012). Fakat kullanılan bu yöntemler ucuz olmalarına rağmen, yüksek sıcaklık ve kullanılan organik maddelerin hazırlama aşamasında enkapsüle edilmiş hassas bileşiğe zarar vermesi gibi dezavantajlara sahiptirler. Nanoenkapsülasyon için birçok farklı yöntem olmasına rağmen elektrohidrodinamik prosesler basit, kurulumu ucuz ve etkili yöntemlerdir. Elektrohidrodinamik proseslerden elektroçirime ve elektropüskürtme yöntemleri kardeş teknolojiler olarak bilinmektedir. Elektroçirime ve elektropüskürtme yöntemleri arasındaki fark kullanılan polimer çözeltisinin viskozitesi ve konsantrasyonuna dayanmaktadır. Elektropüskürtme yöntemi ile mikron, mikron altı ve nano seviyede partiküllerin ısı ileme tabii tutulmadan üretilmesi mümkündür (Drosou vd., 2017). Koaksiyal elektropüskürtme yöntemi ile yapılan enkapsülasyon sayesinde üretilen partiküllerin çekirdek kısmındaki aktif bileşenlerin kontrollü bir şekilde salımı sağlanarak fonksiyonelliği artırılabilir (Kriegel vd., 2008). Elektropüskürtme tekniğinde göze çarpan en önemli özellik nanopartiküllerde yüksek enkapsülasyon verimi ve üretimin tek basamakta gerçekleşebilmesidir. Elektropüskürtme yöntemi elektriksel kuvvetler aracılığıyla sıvıların atomizasyonunun gerçekleştirildiği bir yöntemdir. Bu yöntemde, yüksek elektrik potansiyeli altında tutulan kapiler püskürtücüden dışarıya akan

sıvının elektrik alan tarafından itilerek çok ince damlacıklar halinde dağılması sağlanmaktadır. Voltaj uygulandığında püskürtücü ucundaki yarıküre şeklindeki sıvı koni şeklini almaktadır. Voltajın artırılmasıyla oluşan koni destabilize olmakta ve elektrik alan maksimum olduğunda sıvının yüklü damlacıklar halinde dağılması sağlanmaktadır (Bhushani ve Anandharamakrishnan, 2014). Koaksiyal elektropüskürtme prosesi Şekil 1’de gösterilmiştir.



Şekil 1. Elektropüskürtme düzeneği
Figure 1. Electro-spraying system

Elektropüskürtme yönteminde çözelti özellikleri ve proses değişkenleri nanopartiküllerin özelliklerini ve morfolojilerini etkileyen önemli parametrelerdir. Çözelti özelliklerinden polimer konsantrasyonu, molekül ağırlığı, viskozite, yüzey gerilimi ve elektriksel iletkenlik; proses parametrelerinden uygulanan voltaj, iğne ile toplayıcı arasındaki mesafe, kullanılan çözeltinin akış hızı ve basınç, ortam parametrelerinden ise sıcaklık ve bağıl nem sistem koşullarını ve materyalin karakteristik özelliklerini etkilemektedir (Drosou vd., 2017).

Bu çalışma kapsamında zein proteini ile elektropüskürtme yöntemi kullanılarak çörek otu yağının enkapsülasyonu yapılmıştır. Mısırdan üretilen doğal bir polimer olan zein enkapsülasyon uygulaması için yüksek bir potansiyele sahiptir (Süngüç, 2013). Sentetik polimerin aksine son ürün açısından toksikliği düşük olduğu için avantajlıdır ve bu çalışma için tercih edilmiştir.

Çörek otu *Nigella sativa* ailesinden gelen, antimikrobiyal ve antioksidan özelliğe sahip “nimetler tohumu” olarak adlandırılan, Türkiye’de yetiştirilen önemli bitki türlerinden biridir (Nabil Mohammed vd., 2014). Çörek otu yağı doymamış yağ asitlerince zengin ve antioksidan özellik gösteren birçok bileşiği bünyesinde bulunduran bir yağdır. Çörek otuna olan ilgi geçmişte başlayıp, günümüzde artarak devam etmektedir. Çörek otu yağı hakkında günümüze kadar yapılan çalışmalara göre çörek otu yağının besleyici ve aroma yönünden zengin özelliğinin yanısıra antibakteriyel, antifungal koruyucu özellikleri nedeniyle gıda sanayinde kullanılabilecek çok önemli bir gıda olduğu belirlenmiştir (Bulca, 2014). Çörek otu tek başına çok fazla tüketilebilen bir gıda maddesi değildir. Ülkemizde çörek otu ekmek, çörek ve bazı peynir çeşitlerinde çeşni maddesi olarak kullanılmakta ve bunların dışında halk arasında ezilip bal ile karıştırılarak yaygın olmasa da tüketilmektedir. Şifa kaynağı çörek otu yağının enkapsüle edilmesiyle birçok gıda formülasyonunda yer alması ve tüketiminin artırılması sağlanabilir.

Bu çalışmanın amacı, koaksiyal elektropüskürtme yöntemi kullanılarak çörek otu yağının enkapsüle edilmesi ve proses parametreleri (kabuk çözelti akış hızı, uygulanan voltaj, iğne ile toplayıcı arasındaki mesafe) ile çözelti özelliklerinin (çözgen, kabuk ve çekirdek çözelti konsantrasyonu, yüzey aktif madde) üretilen nanopartiküllerin morfolojileri üzerine etkilerinin incelenmesidir.

MATERYAL VE YÖNTEM

Materyal

Nanopartikül yapısını elde etmek için kullanılan zein (Z3625), Tween 80 ve etanol Sigma-Aldrich (St. Louis, MO, USA); glasiyal asetik asit ise Carlo Erba (Rodano, İtalya) firmasından satın alınmıştır. Çekirdek çözeltisi olarak kullanılan çörek otu yağı, Çakıroğlu firmasından (Çakıroğlu Uçucu Yağ San. Tic. Ltd. Şti., Mersin) temin edilmiştir.

Çözeltilerin Hazırlanması

Elektropüskürtme yönteminde kabuk çözeltisi için polimer olarak zein, çekirdek çözeltisi için çörek otu yağı, çözgen olarak ise glasiyal asetik asit

ve etanol (h/h) kullanılmıştır. Kabuk çözelti konsantrasyonu %6-21 (a/h) arasında belirlenmiştir. Çekirdek çözeltisinde zein konsantrasyonu %10 (a/h) olarak sabit tutulmuş ve %30-100 (h/h) oranında çörek otu yağı ile karıştırılarak hazırlanmıştır. Hazırlanan kabuk ve çekirdek çözeltilerine yüzey aktif maddenin etkisinin belirlenmesi için %5 (h/h) oranında Tween 80 eklenmiştir (Pérez-Masiá vd., 2014).

Çözeltilerin Elektrik İletkenliğinin Belirlenmesi

Homojen ve küresel partiküllerin elde edildiği farklı konsantrasyonlardaki (%15-17.5, a/h) zein çözeltileri eşit oranda (h/h) etanol ve asetik asit çözgenleri kullanılarak hazırlanmış ve %5 (h/h) oranında yüzey aktif madde eklenmiştir. Yüzey aktif madde eklenmiş ve eklenmemiş zein çözeltilerinin elektrik iletkenliği iletkenlik ölçüm cihazı (CD-2005, Selecta, Spain) kullanılarak oda sıcaklığında belirlenmiştir. Analizler 3 tekerrürlü olarak yapılmıştır.

Yöntem

Elektropüskürtme Yöntemi

Çörek otu yağının enkapsülasyonu koaksiyal elektropüskürtme cihazı (NE 100, Inovenso, Türkiye) ile yapılmıştır. Koaksiyal elektropüskürtme cihazı iki şırınga pompası (NE-300, New Era Pump Systems Inc., USA), toplayıcı ve güç kaynağından oluşmaktadır. Çift iğneli sistemde kabuk çözeltisinin geçtiği iğnenin çapı 1.2 mm, çekirdek çözeltisinin geçtiği iğnenin çapı ise 0.8 mm’dir. Üretilen nanopartiküller alüminyum folyo üzerine toplanmıştır. Elektropüskürtme işlemi oda koşullarında gerçekleştirilmiştir.

Deney Tasarımı

Nanopartiküllerin elde edilmesinde kullanılan kabuk çözelti konsantrasyonu %6-21 (a/h), çekirdek çözelti konsantrasyonu %30-90 (h/h), çözgen oranı %25-98 (h/h) asetik asit ve %2-75 (h/h) etanol, kabuk çözelti akış hızı 0.8-1.2 mL/sa, uygulanan voltaj 14 ve 15 kV, iğne ile toplayıcı arasındaki mesafe ise 10 ve 13.5 cm olarak belirlenmiştir. Optimum kabuk çözelti konsantrasyonunun belirlenmesi için %6, 8, 10, 15, 17.5 ve 21 (a/h) zein konsantrasyonlarında

Çekirdek-kabuk yapıları nanopartiküllerin morfolojik özellikleri

deneyler yapılmıştır. Çözgenlerin oranının belirlenmesi amacıyla, farklı oranlarda asetik asit:etanol (98:2, 50:50, 75:25, 25:75) karışımı çalışılmıştır. Çözgen oranı ve kabuk çözelti konsantrasyonu belirlendikten sonra iğne ile toplayıcı arasındaki mesafenin belirlenmesi için iki farklı noktada (10 ve 13.5 cm) denemeler yapılmıştır. Çekirdek konsantrasyonunun

belirlenmesi için %30, 50, 60 ve 90 olmak üzere farklı çekirdek konsantrasyonları denenmiştir. Uygulanacak voltajın belirlenmesi için 14 ve 15 kV'larda üretimler yapılmıştır. Uygulanacak voltaj belirlendikten sonra kabuk çözelti akış hızına karar verilmesi için farklı (0.8, 1 ve 1.2 mL/sa) akış hızları çalışılmıştır. Deney tasarımı detaylı olarak Çizelge 1'de verilmiştir.

Çizelge 1. Deney tasarımı
Table 1. Experimental design

Kabuk konsantrasyonu (% zein) <i>Concentration of shell (% zein)</i>	Çekirdek konsantrasyonu (% ÇOY) <i>Concentration of core (% BSO)</i>	Kabuk akış hızı (mL/sa) <i>Flow rate of shell (mL/h)</i>	Mesafe (cm) <i>Distance (cm)</i>	Voltaj (kV) <i>Voltage (kV)</i>	Kabuk çözeltisi çözgeni (AA: EtOH) <i>Solvent of shell solution (AA: EtOH)</i>
6	100	2.5	13.5	14	100:0
8					
10					
15					
17.5					
21					
17.5	100	2.5	13.5	14	98:2 50:50 75:25 25:75
17.5	100	2.5	13.5 10	14	50:50
17.5	30 50 60 90	2.5	13.5	14	50:50
17.5	50	2.5	13.5	14 15	50:50
17.5	50	0.8 1 1.2	13.5	14	50:50

ÇOY, BSO, Çörek otu yağı (%); AA, asetik asit; EtOH, etanol

Alan Emisyonlu Taramalı Elektron Mikroskobu (FE-SEM)

Elektropüskürtme yöntemi ile elde edilen nanopartiküllerin morfolojik yapılarını analiz etmek için alan emisyonlu taramalı elektron mikroskobu (FE-SEM) (Supra 55, Zeiss, Germany) kullanılmıştır. Küçük parçalar halinde numune tutucusu üzerine yerleştirilen numuneler

platin kaplama işleminin ardından taramalı elektron mikroskobunda görüntülenmiştir. Nanopartiküllerin çapları Image J (Image J, NIMH, Maryland, USA) görüntü analiz programı kullanılarak hesaplanmıştır. Her bir görüntüde 100 farklı ölçüm yapılarak ortalama nanopartikül çapı hesaplanmıştır. Daha sonra partiküllerin görüntüleri aynı görüntü analiz programı

kullanılarak işlenmiştir. Bu programda eşik değeri filtresi uygulanarak görüntülerin kontrast ayarı yapılmıştır. Kontrast ayarı yapıldıktan sonra nanopartiküller analiz edilerek partikül çaplarının d_{\min} ve d_{\max} değerleri belirlenmiştir (Mazzoli ve Favoni, 2012). Belirlenen d_{\min} ve d_{\max} değerleri kullanılarak partiküllerin küresellik faktörü (SF) Eşitlik 1 ile hesaplanmıştır (Davarcı, 2012). Eşitlik 1'e göre hesaplanan küresellik faktörünün 0.05 değerinden küçük olması durumunda partikül küresel olarak kabul edilmektedir. Nanopartiküllerin çap ve küresellik dağılım histogram grafikleri Sigma Plot programı (Sigma Plot, 12.0, USA) kullanılarak çizilmiştir.

$$\text{Küresellik Faktörü (SF)} = \frac{d_{\max} - d_{\min}}{d_{\max} + d_{\min}} \quad (1)$$

Burada d_{\max} : maksimum çap (nm), d_{\min} : minimum çap (nm)'dir.

Lazer Taramalı Konfokal Mikroskopu

Elde edilen nanopartiküllerin morfolojik özellikleri incelendiğinde homojen ve küresel morfolojiye sahip olan bir örnekte enkapsülasyonun görüntülenmesi için lazer taramalı konfokal mikroskop (Zeiss LSM 700, Germany) kullanılmıştır. Nanopartiküller lam üzerine toplanmıştır. Kabuk çözeltisinde kullanılan zein polimerinin floresan özelliğinden faydalanılarak konfokal mikroskopta 488-553 nm dalga boylarında görüntüleme yapılmıştır.

SONUÇ VE TARTIŞMA

Elektropüskürtme yöntemi ile elde edilen partiküllerin morfolojik özellikleri enkapsüle edilmiş aktif bileşiğin korunması açısından önemlidir. Elde edilen partiküllerin boyutu, şekli ve morfolojisi enkapsüle edilen aktif bileşiğin salım kinetiğini etkilemektedir. Küresel şekle sahip partiküllerde, küresel olmayan partiküllere göre kontrollü salım gerçekleştiği için aktif bileşenin daha uzun süre kararlı bir şekilde depolanabildiği belirlenmiştir (Drosou vd., 2017). Elektropüskürtme yönteminde proses parametreleri ve çözelti özelliklerinin aktif bileşenin enkapsülasyonu ve elde edilen partiküllerin morfolojisi üzerinde etkisi büyüktür. Nanopartiküllerin morfolojilerini çözelti

özellikleri olarak; polimerin molekül ağırlığı, polimer çözeltisinin viskozitesi, yüzey gerilimi ve iletkenlik; proses değişkenleri olarak ise uygulanan voltaj, besleme hızı, besleme ünitesi ve toplayıcı arasındaki mesafe, ortam sıcaklığı ve rutubet etkilemektedir (Kriegel vd., 2008). Bu çalışma kapsamında hazırlanan deney tasarımı ile kabuk ve çekirdek çözelti konsantrasyonu, kullanılan çözgen oranı, kabuk çözelti akış hızı, uygulanan voltaj, iğne ile toplayıcı arasındaki mesafe ve yüzey aktif madde kullanımının üretilen nanopartiküllerin morfolojileri üzerine etkisi incelenmiştir.

Kabuk Çözelti Konsantrasyonunun Etkisi

Kabuk çözelti konsantrasyonunun partikül morfolojisine etkisini incelemek amacıyla %6 ile %21 (a/h) konsantrasyon aralığında zein çözeltileri kullanılarak aynı koşullar altında nanopartiküller elde edilmiştir. Zein konsantrasyonunun %6 olması ile küresel ve düzenli nanopartikül oluşumu gözlenmemiştir (Şekil 2a). Küresellik dağılım grafiği incelendiğinde %6 konsantrasyondaki zein çözeltisinden elde edilen nanopartiküllerin tamamının küresellik faktörünün (SF) 0.05 kritik limitinden büyük olduğu görülmektedir (Şekil 3a). Eşitlik 1'e göre hesaplanan küresellik faktörü; $SF < 0.05$ ise partikül küresel olarak kabul edilir (Davarcı, 2012). Daha yüksek küresellik faktörü değerleri Şekil 2a'da görüldüğü gibi anlamlı şekil deformasyonları anlamına gelmektedir. Polimer konsantrasyonu düşük olduğunda daha kısa polimer zincirlerinin olmasından dolayı viskozite azalmakta ve elektropüskürtme sistemi düzgün çalışmamaktadır (García-Moreno vd., 2017). Smeets ve diğerleri (2017) yaptıkları çalışmada düşük konsantrasyonlarda ve düşük viskozitelerde düzenli partikül oluşumu gözlenemeyeceğini belirtmişlerdir. Zein konsantrasyonu %8, 10 ve 15 (a/h) olduğunda farklı boyut ve şekillerde küresel olmayan nanopartiküllerin oluşumu gözlenmiştir (Şekil 2b-d). Bu konsantrasyonlarda elde edilen nanopartiküllerin küresellik dağılım grafikleri incelendiğinde nanopartiküllerin büyük çoğunluğunun küresellik faktörünün 0.05 değerinden büyük olduğu görülmektedir (Şekil 3b-d). Elde edilen partiküllerin morfolojilerini

çözeltilerin yüzey gerilimi ve çözeltileri hazırlarken kullanılan çözgenlerin buharlaşma hızı etkilemektedir. Kullanılan çözeltilerin yüzey geriliminin yüksek olması yassılaştırmış partiküllerin oluşmasına sebep olmaktadır. Yüzey aktif maddeler kullanılarak çözeltilerin yüzey geriliminin azaltılmasıyla elde edilen partiküllerin morfolojileri küresele dönmektedir. Çözgenin buharlaşma hızı düşük olduğunda da küresel partikül yerine yassılaştırmış partiküller elde edilmektedir. Buharlaşma hızı yüksek olan çözgenler kullanılarak partiküllerin morfolojileri küreselleştirilebilmektedir. Elektropüskürtme prosesinde küresel partiküllerin elde edilmesi için kullanılan polimerin molekül ağırlığına bağlı olarak optimum çözelti konsantrasyonunun belirlenmesi gerekmektedir (Smeets vd., 2017). Şekil 2e'de görüldüğü gibi zein konsantrasyonu %17.5'a (a/h) yükseldiğinde homojen ve küresel nanopartiküller elde edilmiştir. Şekil 3e incelendiğinde bu nanopartiküllerin küresellik faktörlerinin de 0.05 kritik değerinin altında olduğu belirlenmiştir. Konsantrasyonun artması partiküllerin morfolojilerini küreselleştirirken daha büyük boyutlu partiküllerin oluşmasına da neden olmaktadır (Drosou vd., 2017). Fakat konsantrasyon biraz daha artırıldığında (%21) nanopartiküller ile birlikte nanoliflerin oluşumu gözlenmeye başlamıştır (Şekil 2f). Bu durum sistemin elektropüskürtme yönteminden elektroçirime yöntemine geçtiğini göstermektedir. Elektroçirime ve elektropüskürtme yöntemleri arasındaki fark kullanılan polimer çözeltilerinin konsantrasyonuna dayanmaktadır. Çözelti konsantrasyonu yüksek olduğu zaman Taylor konisi olarak çıkan polimer jeti stabilize olup uzayarak lif oluşturmaktadır. Çözelti konsantrasyonu düşük olduğunda ise jet stabilize olmayıp ince damlacıklar oluşmaktadır (Bhushani ve Anandharamakrishnan, 2014). Çok düşük konsantrasyonlarda ve düşük viskozitede düzenli partikül oluşumu gözlenmezken, yüksek konsantrasyonlarda ve yüksek viskozitede de iğne ucunda tıkanmalar, jet yapısı oluşumunda zorluklar meydana gelmektedir.

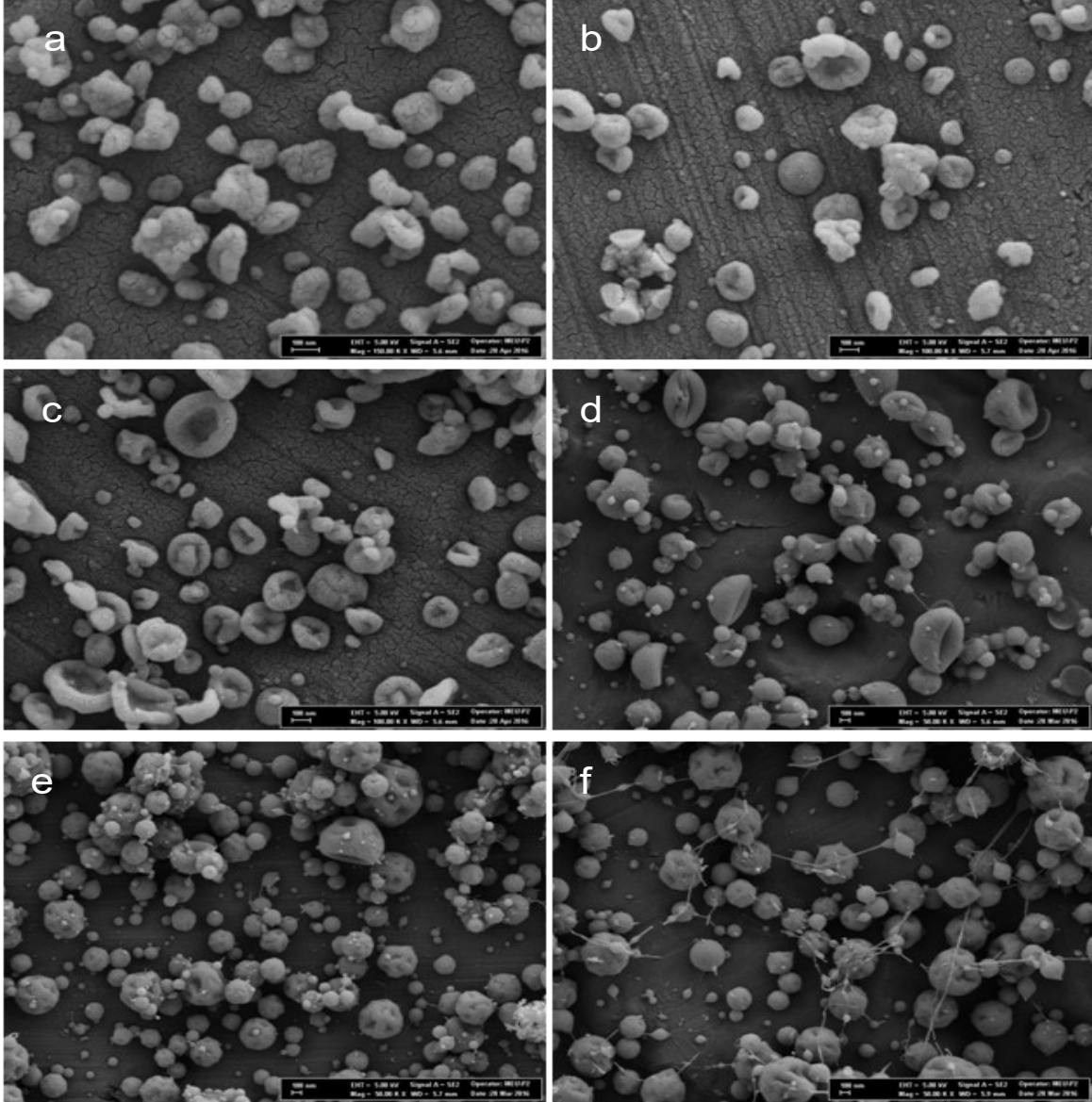
Çözgen Oranının Etkisi

Elektropüskürtme prosesinde zein çözeltilerini hazırlamak için kullanılan çözgenin partiküllerin

morfoloji üzerinde etkisini incelemek amacıyla 98:2, 50:50, 75:25, 25:75 oranlarında asetik asit:etanol kullanılmıştır. Farklı oranlarda kullanılan asetik asit ve etanol çözgen sistemi, elde edilen partiküllerin yüzeyi içe çökmüş, yapışkan yapıda ve küresel olmayan partikül morfolojileri ile birlikte homojen ve küresel şekilli partiküllerin oluşmasına sebep olmuştur. Asetik asit-etanol çözgen karışımının 98:2 oranında kullanılması partikül yerine boncuklu lif yapısının oluşmasına sebep olmuştur (Şekil 4a). Asetik asit oranı yüksek olduğunda çözeltide asetik asitin daha az ayrışmasından kaynaklı olarak çözeltilerin elektrik iletkenliği azalmaktadır (Zhang ve Kawakami, 2010). Elektrik iletkenliği düşük olduğunda ise proses sürekliliği bozulmakta ve düzenli partikül oluşumu gözlenmemektedir (Drosou vd., 2017). Asetik asit-etanol çözgen karışımının 75:25 oranında olmasıyla elde edilen nanopartiküller yapışkan yapıda ve küresel olmayan şekillerde görüntülenmiştir (Şekil 4c). Çözgende asetik asit oranının yüksek olmasından dolayı hem elektriksel iletkenlik hem de yüzey gerilimi düşmektedir (Zhang ve Kawakami, 2010). Yüzey gerilimi, elektropüskürtme sisteminde prosesin başlamasına katkı sağlamakta ve düşük olduğunda daha küresel partiküller elde edilmektedir (Drosou vd., 2017). Yüzey gerilimi düşük olduğunda küresel partikül elde edilememesinin sebebi çözgende asetik asit oranı arttığında yüzey gerilimi ile birlikte elektriksel iletkenliğinin de düşmesidir. Elektriksel iletkenliğin düşük olmasının olumsuz etkisi, yüzey geriliminin düşük olmasının olumlu etkisini yenmekte ve düzgün partikül oluşumu gözlenmemektedir. Asetik asit-etanol çözgen karışımının 25:75 oranında olması durumunda yapışkan olmayan morfolojide ve yarı küresel yapıda nanopartiküller elde edilmiştir (Şekil 4d). Bunun sebebi etanol oranının yüksek olmasından dolayı proses sırasında çözeltideki çözgenin daha kolay buharlaşmasının sağlanmasıdır. Kullanılan çözgenin buharlaşma hızı, ürünün kuruma süresini belirlediği için son derece önemlidir (Gómez-Mascaraque vd., 2017). Zhang ve Kawakami (2010) yaptıkları çalışmada çözeltiye etanol eklenmesinin elektropüskürtme sisteminin stabilitesini arttırdığını ve süreci iyileştirdiğini belirtmiştir. Sonuçlar değerlendirildiğinde homojen dağılım ve düzgün

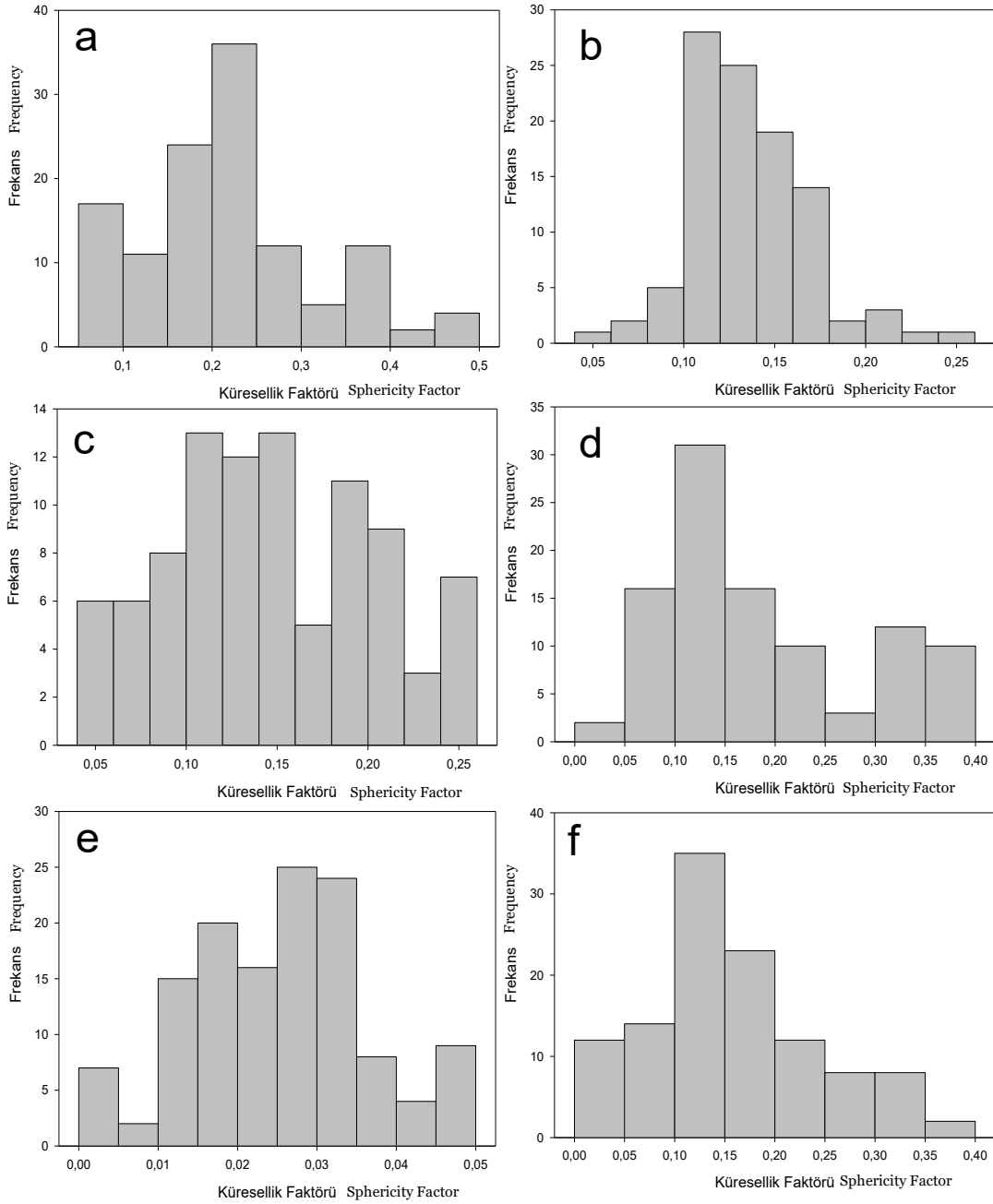
morfolojinin çözen olarak eşit oranda (h/h) asetik asit ve etanol kullanılmasıyla elde edildiği belirlenmiştir (Şekil 4b). Eşit oranda asetik asit ve etanol kullanılmasıyla elde edilen nanopartiküllerin küresellik dağılım grafiği

incelendiğinde küresellik faktörünün 0.05 değerinin altında yoğunlaştığı ve nanopartiküllerin çoğunluğunun küresel olduğu belirlenmiştir (Şekil 5).



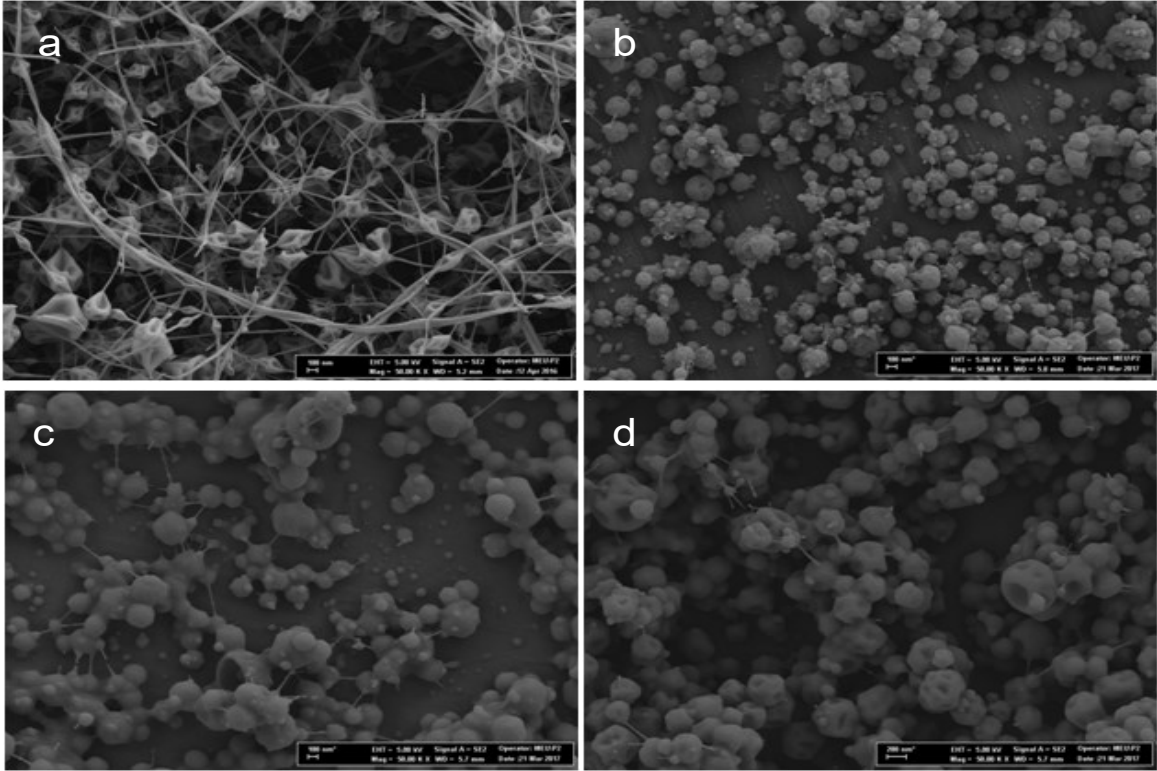
Şekil 2. Asetik asit içinde hazırlanmış farklı konsantrasyondaki zein kabuk çözeltisinden elde edilen nanopartiküllerin FE-SEM görüntüleri a)%6, b) %8, c)%10, d)%15, e)%17.5, f)%21 (çekirdek konsantrasyonu %100 çörek otu yağı, kabuk çözelti akış hızı 2.5 mL/sa, çekirdek çözelti akış hızı 0.72 mL/sa, mesafe 13.5 cm, voltaj 14 kV)

Figure 2. FE-SEM images of nanoparticles obtained from different concentration of zein shell solution prepared in acetic acid a)6%, b)8%, c)10%, d)15%, e)17.5%, f)21% (core concentration 100% of the black seed oil, flow rate of shell solution 2.5 mL/h, flow rate of core solution 0.72 mL/h, distance 13.5 cm, voltage 14 kV)



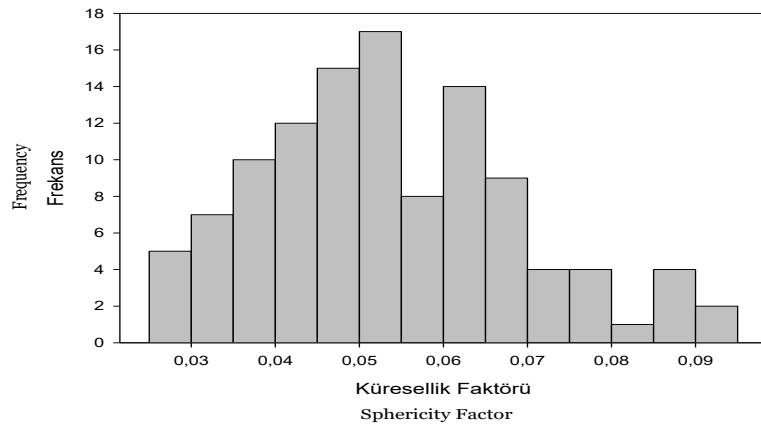
Şekil 3. Asetik asit içinde hazırlanmış farklı konsantrasyondaki zein kabuk çözeltisinden elde edilen nanopartiküllerin küresellik dağılım grafikleri a)%6, b) %8, c)%10, d)%15, e)%17.5, f)%21 (çekirdek konsantrasyonu %100 çörek otu yağı, kabuk çözelti akış hızı 2.5 mL/sa, çekirdek çözelti akış hızı 0.72 mL/sa, mesafe 13.5 cm, voltaj 14 kV)

Figure 3. Sphericity histogram graph of nanoparticles obtained from different concentration of zein shell solution prepared in acetic acid a)%6, b) %8, c)%10, d)%15, e)%17.5, f)%21 (core concentration 100% of the black seed oil, flow rate of shell solution 2.5 mL/h, flow rate of core solution 0.72 mL/h, distance 13.5 cm, voltage 14 kV)



Şekil 4. Farklı oranlarda kullanılan asetik asit (AA)-etanol (EtOH) çözen karışımlarından elde edilen nanolif/nanopartiküllerin FE-SEM görüntüleri a)98:2, b)50:50, c)75:25, d)25:75 (kabuk konsantrasyonu %17.5 zein, çekirdek konsantrasyonu %100 çörek otu yağı, kabuk çözelti akış hızı 2.5 mL/sa, çekirdek çözelti akış hızı 0.72 mL/sa, mesafe 13.5 cm, voltaj 14 kV)

Figure 4. FE-SEM images of nanofiber/nanoparticles obtained from solvent mixtures of acetic acid (AA)-ethanol (EtOH) at different ratio a) 98:2, b)50:50, c)75:25, d)25:75 (shell concentration 17.5% zein, core concentration 100% of the black seed oil, flow rate of shell solution 2.5 mL/h, flow rate of core solution 0.72 mL/h, distance 13.5 cm, voltage 14 kV)



Şekil 5. 50:50 oranında asetik asit (AA)-etanol (EtOH) karışımından elde edilen nanopartiküllerin küresellik dağılım grafiği

Figure 5. Sphericity histogram graph of nanoparticle obtained from solvent mixtures of 50:50 acetic acid (AA)-ethanol (EtOH)

Yüzey Aktif Madde Kullanımının Etkisi

Yüzey aktif maddelerin elektropüskürtme prosesi üzerindeki kritik rolünü gözlemek amacıyla kabuk ve çekirdek çözeltilerine yüzey aktif madde ilave edilmesiyle elde edilen partiküllerin SEM görüntüleri incelenmiştir. Sadece kabuk, sadece çekirdek ve hem kabuk hem de çekirdek çözeltilerine %5 (h/h) oranında yüzey aktif madde ilave edilmesiyle elde edilen SEM görüntüleri Şekil 6'da verilmiştir. Sadece kabuk çözeltilerine yüzey aktif madde eklenmesiyle elde edilen partiküllerin SEM görüntülerinde, nanopartiküllerin çapları prosenin kararlı hale gelmemesinden dolayı homojen dağılmamıştır (Şekil 6a). Şekil 6b'deki SEM görüntülerine göre sadece çekirdek çözeltilerine yüzey aktif madde eklenmesiyle elde edilen nanopartiküllerin yapışık ve lifli bir yapıda olduğu gözlenmiştir. Hem kabuk hem de çekirdek çözeltilerine yüzey aktif madde eklenmesiyle homojen ve küresel morfolojideki nanopartiküller elde edilmiştir (Şekil 6c). Yüzey aktif maddenin hem kabuk hem çekirdek çözeltilerine eklenmesi yüzey gerilimini düşürerek çekirdek-kabuk yapısının daha düzgün oluşmasını sağlamak ve yüzey kaviteleşmesini önlemektedir. Homojen ve küresel olmayan morfolojideki partiküllerin elde edilemediği çözeltilere yüzey aktif madde eklenmesiyle birlikte bu düzensiz yapının üstesinden gelinebilmektedir (García-Moreno vd., 2017). Nanopartiküllerin çap dağılımları 38 ile 369 nm arasında değişim göstermiştir. Elektropüskürtme prosenin başlayabilmesi için voltaj tarafından oluşturulan elektriksel kuvvetin yüzey gerilimini yenmesi gerekmektedir. Elektropüskürtme yöntemini geliştirmek ve iğne ucundan damlamayı sınırlandırmak için iyonlaşmayan yüzey aktif maddeler kullanılabilir (Gomez-Mascaraque vd., 2017). Yüzey aktif maddeler yüzey gerilimini düşürerek prosenin iyileştirilmesini ve kabul edilebilir voltajlarda gerçekleşmesini sağlamaktadırlar (Gomez-Mascaraque vd., 2016). Farklı zein konsantrasyonlarında (%15, 15.5, 16, 16.5, 17 ve 17.5 (a/h)) eşit oranda (h/h) etanol ve asetik asit kullanılarak hazırlanmış; daha sonra üzerine yüzey aktif madde (Tween 80) eklenmiş ve eklenmemiş çözeltilerinin elektrik iletkenlik değerleri Çizelge 2'de verilmiştir. Yüzey aktif madde eklenmemiş çözeltilerin iletkenlik değerleri 128.9 ± 0.80 ile

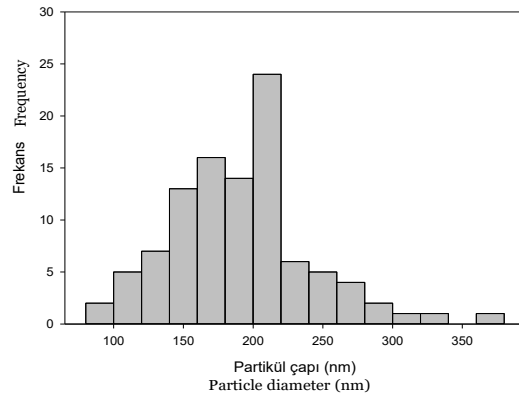
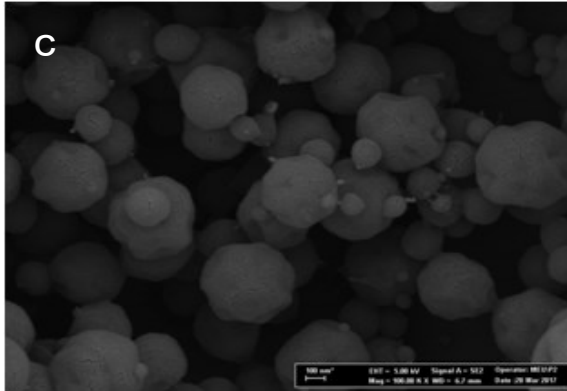
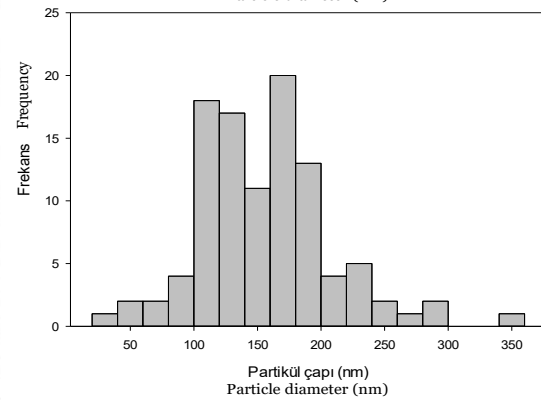
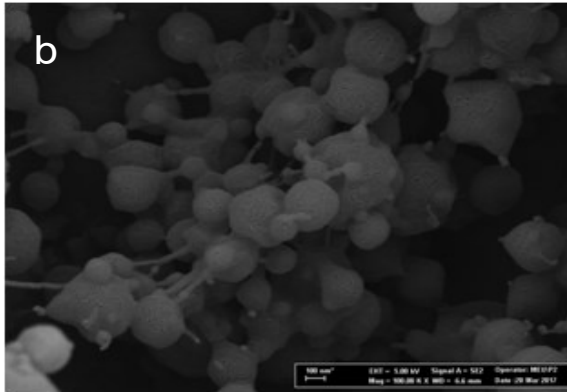
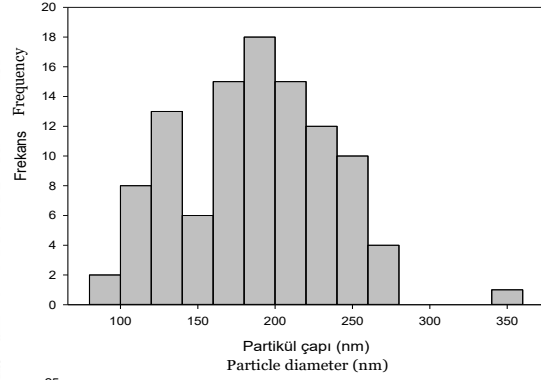
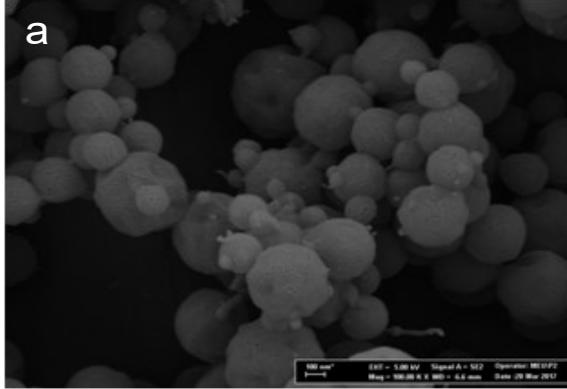
200.4 ± 1.23 $\mu\text{S}/\text{cm}$, yüzey aktif madde eklenmiş çözeltilerin iletkenlik değerleri ise 183.2 ± 0.88 ile 202.6 ± 0.51 $\mu\text{S}/\text{cm}$ arasında değişmiştir. Yüzey aktif madde eklenmemiş ve eklenmiş çözeltilerde zein konsantrasyonundaki artışın elektrik iletkenliğini önemli derecede ($p < 0.05$) artırdığı belirlenmiştir. Aynı konsantrasyondaki çözeltilere yüzey aktif madde eklenmesinin de çözeltilerin elektriksel iletkenlik değerini artırdığı belirlenmiştir. Literatürdeki çalışmalara bakıldığında çözeltilere Tween 20, Span 20 ve lesitin olmak üzere farklı yüzey aktif maddelerinin eklenmesi çözeltilerin elektriksel iletkenlik değerlerini artırmıştır (Pérez-Masiá vd., 2014). García-Moreno ve diğerleri (2017) yaptıkları çalışmada elektrik iletkenliği yüksek olan çözeltilerle daha iyi bir jet elde edilmesine bağlı olarak daha homojen yapıların elde edildiği sonucuna varmışlardır. Çözeltilerin elektriksel iletkenliğinin artırılması sayesinde daha düşük voltajlarda stabil bir proses ve partikül üretimi gerçekleştirilebilmektedir.

İğne ile Toplayıcı Arasındaki Mesafenin Etkisi

Besleme ünitesi ile toplayıcı arasındaki mesafenin elektropüskürtme prosesi ve elde edilen nanopartiküllerin morfolojisi üzerindeki etkisini incelemek amacıyla 10 ve 13.5 cm mesafede üretimler yapılmıştır. Farklı mesafelerde üretilen partiküllerin SEM görüntüleri Şekil 7'de verilmiştir. Elde edilen partiküllerin SEM görüntülerine göre mesafenin 10 cm'den 13.5 cm'e artırılması ile çözgenin tamamen buharlaştırılması sağlanarak daha küresel ve homojen partiküller elde edilmiştir (Şekil 7b). Şekil 7c incelendiğinde mesafenin artırılması ile elde edilen nanopartiküllerin küresellik faktörü dağılımının 0.05 kritik değerinden küçük olduğu görülmektedir. Besleme ünitesi ile toplayıcı arasındaki mesafe artırıldığında jetin izleyeceği yol da arttığı için oluşan nanopartikül çapı azalmakta, çözgen tamamen buharlaşmakta ve partiküller kuru bir şekilde oluşmaktadır. Mesafe çok artırıldığında ise partikül oluşumu gerçekleşmemektedir. Süngüç (2013) çalışmasında mesafenin optimum aralıkta olmadığı elde edilen ürünün morfolojisinde bozukluklar ve önemli derecede partikül

kayıplarının olabileceğini belirtmiştir. Besleme ünitesi ile toplayıcı arasındaki mesafe

arttırıldığında elektropüskürtme prosesinde nanopartikül çapı azalmaktadır.



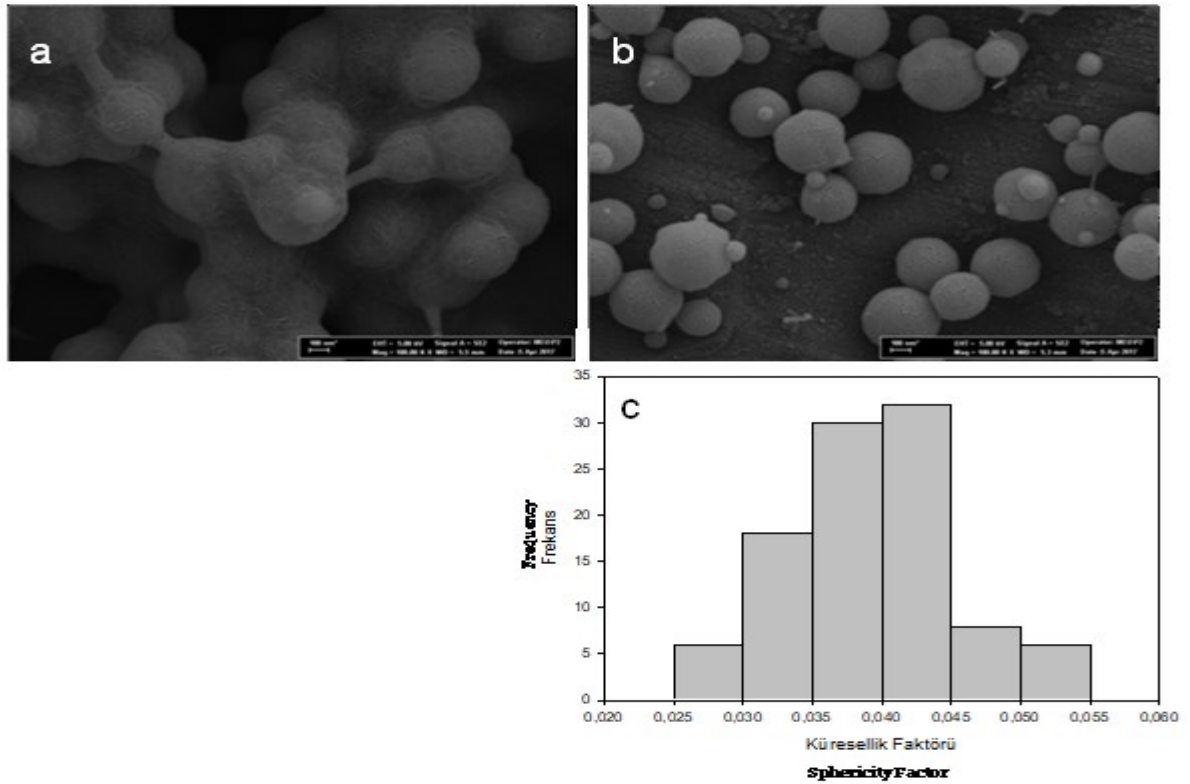
Şekil 6. Yüzey aktif maddesi (%5 (h/h)) eklenerek elde edilen nanopartiküllerin FE-SEM görüntüleri a)kabuk çözeltisi, b)çekirdek çözeltisi, c)kabuk ve çekirdek çözeltisi (kabuk konsantrasyonu %17.5 zein, çekirdek konsantrasyonu %100 çörek otu yağı, kabuk çözelti akış hızı 2.5 mL/sa, çekirdek çözelti akış hızı 0.72 mL/sa, mesafe 13.5 cm, voltaj 14 kV, çözgen oranı 50:50 (AA:EtOH))

Figure 6. FE-SEM images of nanoparticles obtained by adding surfactant (5%, v/v) a) shell solution, b)core solution, c)shell and core solution (shell concentration 17.5% zein, core concentration 100% of the black seed oil, flow rate of shell solution 2.5 mL/h, flow rate of core solution 0.72 mL/h, distance 13.5 cm, voltage 14 kV, solvent ratio 50:50 (AA:EtOH))

Çizelge 2. Çözeltilerinin elektrik iletkenlik değeri
Table 2. Electrical conductivity values of the solutions

Zein konsantrasyonu (%) Concentration of zein (%)	Yüzey aktif madde içermeyen çözeltilerin iletkenlik değeri ($\mu\text{S}/\text{cm}$) Conductivity values of solutions without surfactant ($\mu\text{S}/\text{cm}$)	Yüzey aktif madde içeren çözeltilerin iletkenlik değeri ($\mu\text{S}/\text{cm}$) Conductivity values of solutions with surfactant ($\mu\text{S}/\text{cm}$)
15.0	128.9 \pm 0.80 ^a	182.3 \pm 0.88 ^a
15.5	144.6 \pm 0.51 ^b	186.8 \pm 0.70 ^b
16.0	147.4 \pm 0.83 ^c	187.1 \pm 0.70 ^b
16.5	153.7 \pm 0.85 ^d	188.5 \pm 0.40 ^c
17.0	158.6 \pm 0.72 ^e	190.5 \pm 0.87 ^d
17.5	200.4 \pm 1.23 ^f	202.6 \pm 0.51 ^e

Farkli harfler istatistiksel olarak önemli farklılıkları göstermektedir ($p < 0.05$).

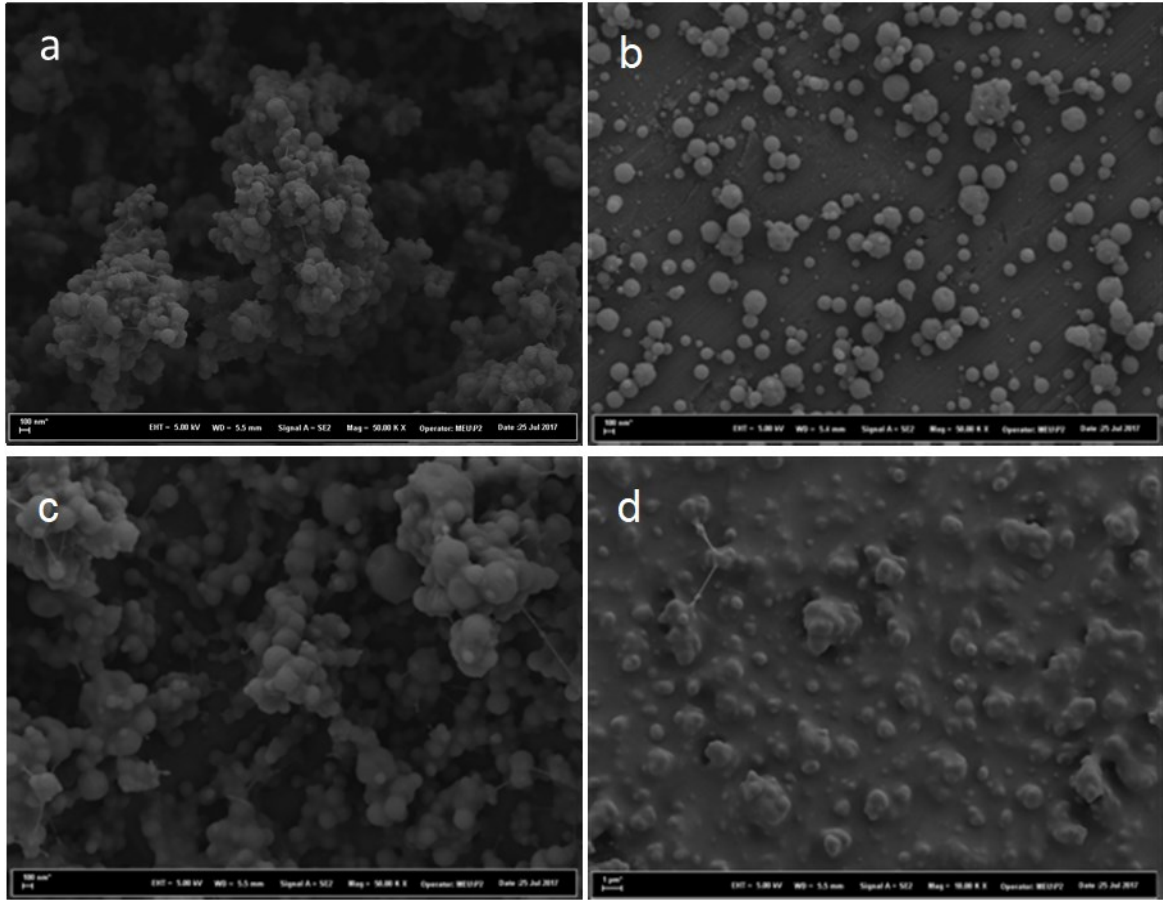


Şekil 7. Besleme ünitesi ile toplayıcı arasındaki mesafe değişimi sonucu elde edilen nanopartiküllerin FE-SEM görüntüleri a)10 cm, b)13.5 cm, c)13.5 cm’de elde edilen nanopartikülün küresellik dağılım grafiği (kabuk konsantrasyonu %17.5 zein, çekirdek konsantrasyonu %100 çörek otu yağı, kabuk çözelti akış hızı 2.5 mL/sa, çekirdek çözelti akış hızı 0.72 mL/sa, voltaj 14 kV, çözgen oranı 50:50 (AA:EtOH), hem kabuk hem çekirdek çözeltisinde %5 Tween 80)

Figure 7. FE-SEM images of the nanoparticles obtained from the change of distance between needle tip and the collector a)10 cm, b)13.5 cm, c) sphericity histogram graph of nanoparticle obtained at 13.5 cm (shell concentration 17.5% of the zein, core concentration 100% of the black seed oil, flow rate of shell solution 2.5 mL/h, flow rate of core solution 0.72 mL/h, voltage 14 kV, solvent ratio 50:50 (AA: EtOH), 5% Tween 80 in both shell and core solution)

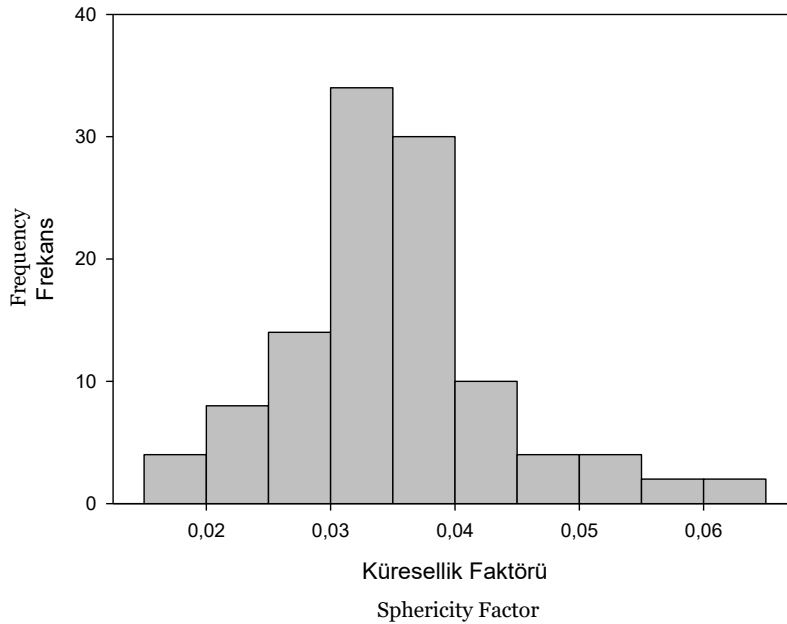
Çekirdek Çözelti Konsantrasyonunun Etkisi
Elektropüskürtme prosesi üzerinde çekirdek çözelti konsantrasyonunun etkisinin belirlenmesi amacıyla %30, 50, 60 ve 90 (h/h) olmak üzere farklı konsantrasyonlarda çörek otu yağı içeren çekirdek çözeltileri kullanılarak nanopartiküller elde edilmiştir. Şekil 8'e göre en küresel morfolojinin çekirdek çözeltisinde %50 (h/h) oranda çörek otu yağı kullanılmasıyla elde edilen nanopartiküllerde olduğu belirlenmiştir (Şekil 8b). Şekil 9 incelendiğinde çekirdek çözeltisinde %50

(h/h) oranda çörek otu yağı kullanılmasıyla elde edilen nanopartiküllerin küresellik faktörü dağılımının 0.05 değerinin altında yoğunlaştığı belirlenmiştir. Elektropüskürtme prosesinde %100 çörek otu yağı içeren çekirdek çözeltisi kullanıldığında iğne ucundan damlama miktarı artmaktadır. Çekirdek çözeltisinin yağ ve polimer çözeltisi karışımı ile hazırlanması sayesinde iğne ucundan damlama miktarında azalma ve üretimde süreklilik gözlenmiştir.



Şekil 8. Farklı oranlarda çekirdek çözelti konsantrasyonlarından elde edilen nanopartiküllerin FE-SEM görüntüleri a) %30 çörek otu yağı, b) %50 çörek otu yağı, c) %60 çörek otu yağı, d) %90 çörek otu yağı (kabuk konsantrasyonu %17.5 zein, kabuk çözelti akış hızı 2.5 mL/sa, çekirdek çözelti akış hızı 0.5 mL/sa, mesafe 13.5 cm, voltaj 14 kV, çözgen oranı 50:50 (AA:EtOH), hem kabuk hem çekirdek çözeltisinde % 5 Tween 80)

Figure 8. FE-SEM images of nanoparticles obtained from different concentrations of core solutions a) 30% black seed oil, b) 50% black seed oil, c) 60% black seed oil, d) 90% black seed oil (shell concentration 17.5% zein, flow rate of shell solution 2.5 mL/h, flow rate of core solution 0.5 mL/h, distance 13.5 cm, voltage 14 kV, solvent ratio 50:50 (AA:EtOH), 5% Tween 80 in both shell and core solution)



Şekil 9. %50 oranında çörek otu yağı içeren çekirdek çözelti konsantrasyonundan elde edilen nanopartiküllerin küresellik dağılım grafiği

Figure 9. Sphericity histogram graph of nanoparticle obtained from 50% black seed oil concentrations of core solutions

Uygulanan Voltajın Etkisi

İtici bir güç olan voltajın elektropüskürtme prosesi üzerindeki etkisini belirlemek amacıyla 14 ve 15 kV olmak üzere iki farklı voltajda elde edilen nanopartiküllerin morfolojisi Şekil 10'da verilmiştir. Voltajda yapılan 1 kV'lık değişim partiküllerin yapısının iyileşmesini ve küreselleşmesini sağlamıştır. 15 kV ile elde edilen nanopartiküllerin morfolojisinin homojen ve küresel olduğu belirlenmiştir (Şekil 10b). Şekil 10c incelendiğinde voltajın artmasıyla elde edilen nanopartiküllerin küresellik dağılım grafiğine göre; küresellik faktörlerinin 0.05 değerinin altında yoğunlaştığı görülmüştür. Voltaj değişimi iğne ucundaki jetin konumunu etkilemektedir. Voltaj düşük olduğunda iğne ucundan damlama şeklinde iç faz sızıntısı gerçekleşmekte ve yassılaştırmış partiküller elde edilmektedir. Uygulanan voltajın artırılması iğne ucundan damlamayı azaltmakta, çözeltinin yüzey geriliminin üstesinden gelmeyi kolaylaştırmakta ve elektropüskürtme prosenin daha düzgün gerçekleşmesini sağlamaktadır (Gomez-Mascaraque vd., 2016). Yüksek voltaj uygulanması

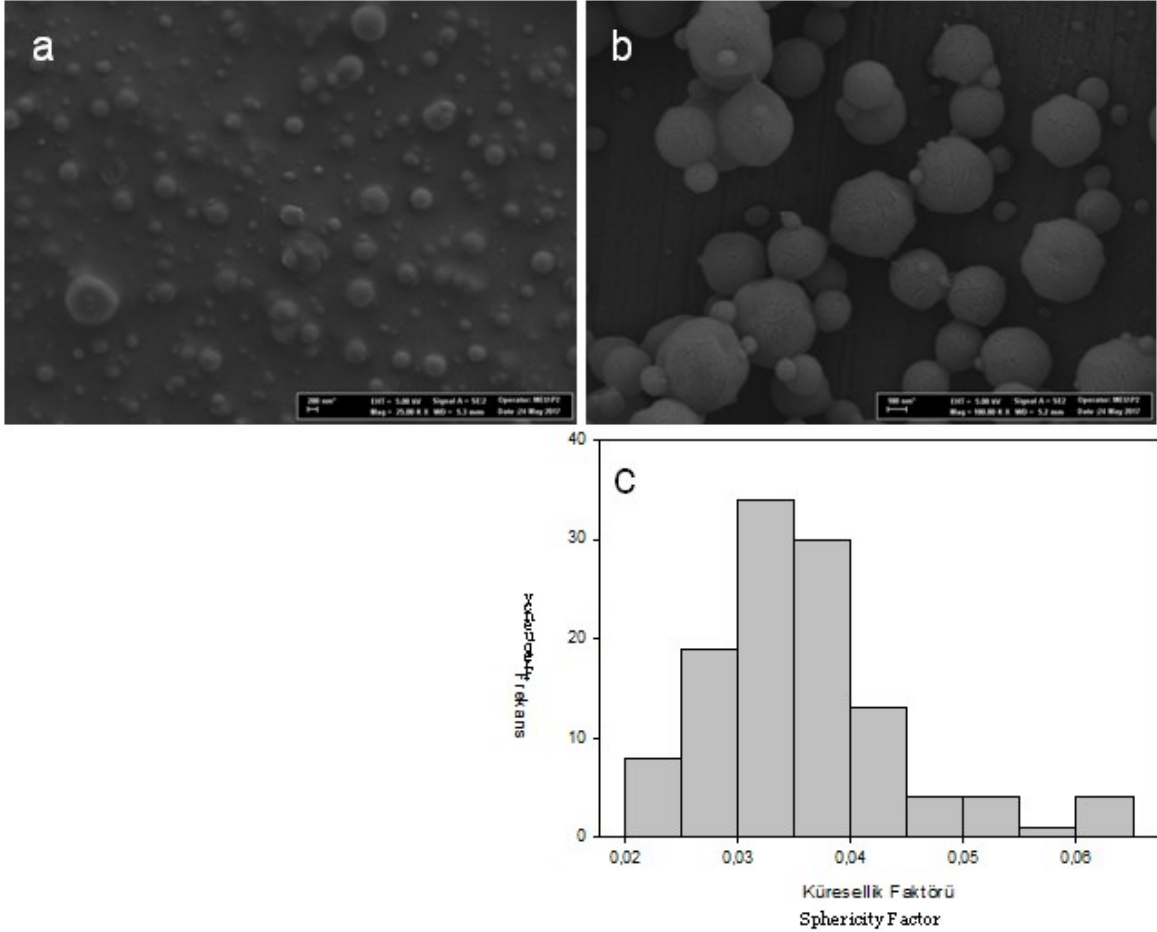
nanopartikül çapının da azalmasını sağlamaktadır (Süngüç, 2013). Eğer uygulanan voltaj proses için yeterli gelmezse, elektriksel itme kuvveti polimer çözeltisinin yüzey gerilimini aşamaz ve düzgün partiküller oluşamaz. Proseste voltajın artırılmasıyla artan elektriksel alan kuvveti sayesinde partiküllerin boyutu azalmaktadır (Süngüç, 2013).

Kabuk Çözelti Akış Hızının Etkisi

Elektropüskürtme prosesinde partiküllerin boyutunu doğrudan etkileyen bir diğer önemli parametre akış hızıdır. Farklı kabuk çözelti akış hızları ile elde edilen nanopartiküllerin FE-SEM görüntüleri Şekil 11'de verilmiştir. Akış hızı 0.8 mL/sa olduğunda partikül oluşumu gözlenmemiştir (Şekil 11a). Akış hızının 1 mL/sa'e artırılması ile partiküllerin morfolojileri küreselleşmiştir (Şekil 11b). Akış hızının daha da artırılması iğne ucundan çözelti akışının artmasına sebep olmuş ve partikül morfolojisi içerisinde küçük liflerin olduğu gözlenmiştir (Şekil 11c). Akış hızının artması ile iğne ucundan daha fazla çözelti akışı sebebiyle partiküllerin çapında artış

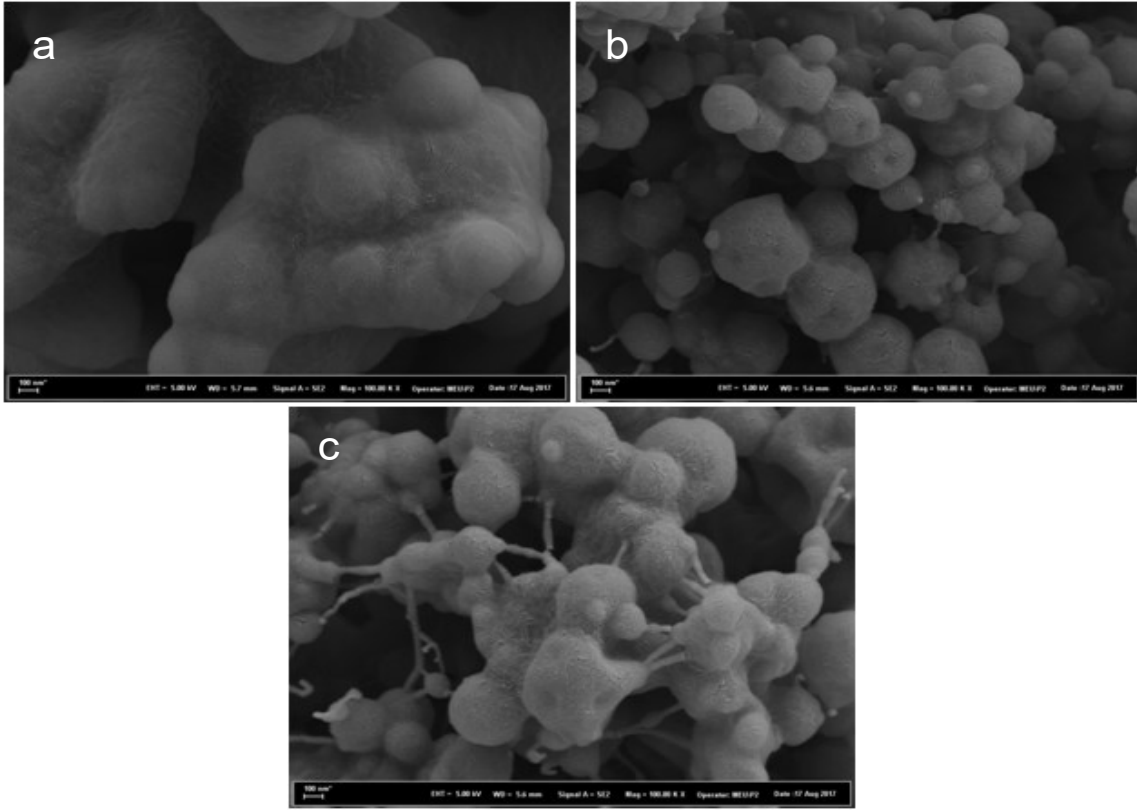
meydana gelmektedir. Akış hızı düşük olduğunda, iğne ucunda daha az çözelti akışından kaynaklı olarak nanopartikül çapında azalma meydana gelmektedir. Akış hızının azalmasıyla uygulanan

voltaj tüm polimerin elektriksel alana dahil olmasını sağlamakta, iğne ucunda oluşacak koni düzenli olmakta ve daha az damlama gerçekleşmektedir.



Şekil 10. Farklı voltaj uygulanmasının sonucunda elde edilen nanopartiküllerin FE-SEM görüntüleri a)14 kV, b)15 kV, c)15 kV'da elde edilen nanopartikülün küresellik dağılım grafiği (kabuk konsantrasyonu %17.5 zein, çekirdek konsantrasyonu %50 çörek otu yağı, kabuk çözelti akış hızı 2.5 mL/sa, çekirdek çözelti akış hızı 0.3 mL/sa, mesafe 13.5 cm, çözügen oranı 50:50 (AA:EtOH), hem kabuk hem çekirdek çözeltilisinde %5 Tween 80)

Figure 10. FE-SEM images of nanoparticles obtained as a result of different voltage application a)14 kV, b)15 kV, c) sphericity histogram graph of nanoparticle obtained at 15 kV (shell concentration 17.5% of the zein, core concentration 50% of the black seed oil, flow rate of shell solution 2.5 mL/h, flow rate of core solution 0.3 mL/h, distance 13.5 cm, solvent ratio 50:50 (AA: EtOH), 5% Tween 80 in both shell and core solution)



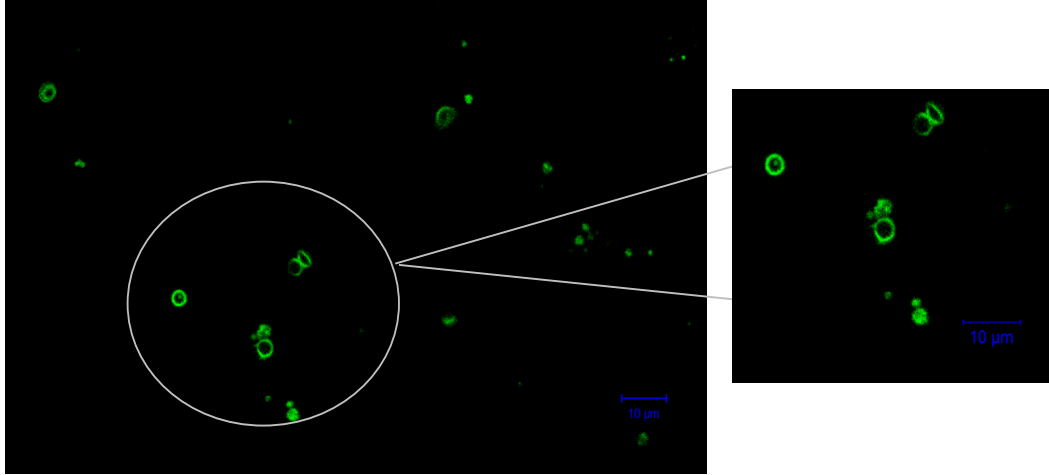
Şekil 11. Farklı kabuk çözelti akış hızları uygulanması sonucunda elde edilen nanopartiküllerin FE-SEM görüntüleri a) 0.8 mL/sa, b) 1 mL/sa, c) 1.2 mL/sa (kabuk konsantrasyonu %17.5 zein, çekirdek konsantrasyonu %50 çörek otu yağı, çekirdek çözelti akış hızı 0.4 mL/sa, mesafe 13.5 cm, voltaj 14 kV, çözgen oranı 50:50 (AA:EtOH), hem kabuk hem çekirdek çözeltisinde %5 Tween 80)

Figure 11. FE-SEM images of nanoparticles obtained as a result of application of different shell solution flow rates a) 0.8 mL/h, b) 1 mL/h, c) 1.2 mL/h (shell concentration 17.5% of the zein, core concentration 50% of the black seed oil, flow rate of core solution 0.4 mL/h, distance 13.5 cm, voltage 14 kV, solvent ratio 50:50 (AA: EtOH), 5% Tween 80 in both shell and core solution)

Nano boyutlardaki çekirdek-kabuk yapısı lazer taramalı konfokal mikroskopu kullanılarak görüntülenmiştir. Kabuk materyali olarak kullanılan zein proteini lazer taramalı konfokal mikroskop altında floresan özellik göstermektedir (Fernandez vd., 2009). Bu özelliğinden faydalanılarak nano boyuttaki partiküllerin sahip olduğu kabuk yapısı halka şeklinde görüntülenmiştir. Koaksiyal elektropüskürtme yöntemiyle elde edilen çekirdek-kabuk yapısının konfokal mikroskop görüntüsü Şekil 12'de gösterilmiştir.

Yapılan bu çalışma sonucunda proses parametreleri ve çözelti özelliklerinin homojen ve

küresel nanopartiküllerin elde edilmesi üzerindeki etkisi belirlenmiştir. Aynı sistem üzerinde proses parametreleri ve çözelti özelliklerinde değişiklikler yapıldığında materyalin karakteristik özelliklerinin etkileneceği ve farklı morfolojilerde nanopartiküllerin elde edilebileceği görülmüştür. Elektrohüdrodinamik proseslerin optimize edilmesiyle düzensiz, homojen ve küresel olmayan morfolojilerin iyileştirilebileceği belirlenmiştir. Elde edilen nanopartiküllerin morfolojilerinin homojen ve küresel olmasının, aktif bileşenin daha uzun süre korunması ve kontrollü salımının gerçekleşmesi açısından fayda sağlayacağı düşünülmektedir.



Şekil 12. Lazer taramalı konfokal mikroskop görüntüsü
Figure 12. Image of laser scanning confocal microscope

TEŞEKKÜR

Bu çalışma, Mersin Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri Birimince (BAP), 2017-2-TP2-2566 nolu proje ile desteklenmiştir. Çalışma kapsamında çekirdek çözeltisi olarak kullanılan çörek otu yağını temin eden Çakıroğlu Yağ (Çakıroğlu Uçucu Yağ San. Tic. Ltd. Şti., Mersin) firmasına teşekkür ederiz.

KAYNAKLAR

Bhushani, A., Anandhararmakrishnan, C. (2014). Electrospinning and electro spraying techniques: Potential food based applications. *Trends Food Sci Technol* 38: 21-33, doi.org/10.1016/j.tifs.2014.03.004.

Bulca, S. (2014). Çörek otunun bileşenleri ve bu yağın ve diğer bazı uçucu yağların antioksidan olarak gıda teknolojisinde kullanımı. *ADÜ Ziraat Derg* 11(2): 29 – 36.

Drosou, C., Krokida, M., Biliaderis, C. (2017). Encapsulation of bioactive compounds through electrospinning/electro spraying and spray drying: a comparative assessment of food-related applications. *Drying Technol* 35 (2): 139–162, doi.org/10.1080/07373937.2016.1162797.

Fernandez, A., Torres-Giner, S., Lagaron, J. (2009). Novel route to stabilization of bioactive antioxidants by encapsulation in electrospun fibers of zein prolamine. *Food Hydrocoll* 23: 1427–1432, doi.org/10.1016/j.foodhyd.2008.10.011.

Ganan-Calvo, A.M., Davila, J., Barrero, A. (1997). Current and droplet size in the electro spraying of liquids. Scaling laws. *J Aerosol Sci* 28(2): 249–275, doi.org/10.1016/S0021-8502(96)00433-8.

García-Moreno, P., Özdemir, N., Stephansen, K., Mateiu, R., Echegoyen, Y., Lagaron, J.M., Chronakis, I., Jacobsen, C. (2017). Development of carbohydrate-based nano-microstructures loaded with fish oil by using electrohydrodynamic processing. *Food Hydrocoll* 69: 273-285, doi.org/10.1016/j.foodhyd.2017.02.013.

Davarcı, F. (2012). Effects of some physical parameters on penetration, size and shape in alginate gel microencapsulation. İstanbul Üniversitesi Gıda Mühendisliği Bölümü Yüksek Lisans Tezi, İstanbul, Türkiye.

Gomez-Mascaraque, L., Morfin, R., Perez-Masia, R., Sanchez, G., Lopez-Rubio, A. (2016). Optimization of electro spraying conditions for the microencapsulation of probiotics and evaluation of their resistance during storage and in-vitro digestion. *Food Sci Technol* 69: 438-446, doi.org/10.1016/j.lwt.2016.01.071.

Gómez-Mascaraque, L., Ambrosio-Martín, J., Perez-Masiá, R., Lopez-Rubio, A. (2017). Impact of acetic acid on the survival of *L. plantarum* upon microencapsulation by coaxial electro spraying. *J Healthcare Eng* Article ID 4698079, 6 pages, doi.org/10.1155/2017/4698079.

- Kepekçi, D.B. (2011). Elektroğırme yöntemiyle Lnp Nanoliflerin Üretimi ve Karakterizasyonu. Afyon Kocatepe Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Malzeme Bilimi ve Mühendisliği Anabilim Dalı Yüksek Lisans Tezi, Ankara, Türkiye.
- Kriegel, C., Arrechi, A., Kit, K.M., McClements, D.J., Weiss, J. (2008). Fabrication, functionalization and application of electrospun biopolymer nanofibers. *Crit Rev Food Sci Nutr* 48: 775–797, doi: 10.1080/10408390802241325.
- López-Rubio, A., Lagaron, J.M. (2012). Whey protein capsules obtained through electrospaying for the encapsulation of bioactives. *Innov Food Sci Emerg Technol* 13: 200–206, doi.org/10.1016/j.ifset.2011.10.012.
- Mazzoli, A., Favoni, O. (2012). Particle size, size distribution and morphological evaluation of airborne dust particles of diverse woods by Scanning Electron Microscopy and image processing program. *Powder Technol* 225: 65-71, doi.org/10.1016/j.powtec.2012.03.033.
- Nabil Mohammed, K., Nuthalapati, V., Chidambaram, R. (2014). Anti-oxidant activity assessment of nanoencapsulated commercial black cumin seed oil. *Int J Pharma Res Rev* 3:1-7.
- Pérez-Masiá, R., Lagaron L.J., López-Rubio, A. (2014). Development and optimization of novel encapsulation structures of interest in functional foods through electrospaying. *Food Bioprocess Technol* 7:3236–3245.
- Pérez-Masiá, R., Lagaron L.J., López-Rubio, A. (2014). Surfactant-aided electrospaying of low molecular weight carbohydrate polymers from aqueous solutions. *Carbohydr Polym* 101: 249– 255, doi: 10.1016/j.carbpol.2013.09.032.
- Sakin, M., Koç, M., Kaymak-Ertekin, F. (2010). Mikroenkapsülasyon ve gıda teknolojisinde kullanımı. *Pamukkale Univ Müh Bilim Derg* Cilt 16, Sayı 1, 77-86.
- Smeets, A., Clasen, A., Mooter, G. (2017). Electrospaying of polymer solutions: Study of formulation and process parameters. *Eur J Pharm Biopharm* 119:114–124, doi.org/10.1016/j.ejpb.2017.06.010.
- Süngüç, C. (2013). Encapsulation of *Sarcopoterium spinosum* extract in zein particle by using electrospay method. İzmir İleri teknoloji Enstitüsü Yüksek Lisans Tezi İzmir, Türkiye.
- Weiss, J., Takhistov, P., McClements, D. J. (2006). Functional materials in food Nanotechnology. *J Food Sci* 71: R107–R116, doi.org/10.1111/j.1750-3841.2006.00195.x.
- Zhang, S., Kawakami, K. (2010). One-step preparation of chitosan solid nanoparticles by electrospay deposition. *Int J Pharm* 397: 211–217, doi.org/10.1016/j.ijpharm.2010.07.007.