

Sodyum Aljinat/Kuarternize Karboksimetil Selüloz Biyofilmlerin Hazırlanması ve Karakterizasyonu

Ferhat ŞEN^{1*}, Mustafa ZOR²

^{1,2}Zonguldak Bülent Ecevit Üniversitesi, Nanoteknoloji Mühendisliği Anabilim Dalı, Zonguldak, Türkiye

Makale Tarihiçesi

Gönderim: 31.03.2023

Kabul: 17.07.2023

Yayın: 15.08.2023

Araştırma Makalesi



Öz – Polimerik malzeme kullanımının giderek artması bir takım atık depolama ve çevresel sorunları da beraberinde getirmektedir. Bu nedenle biyomalzemelere olan ilgi gün geçtikçe artmaktadır. Bu çalışmada, sodyum aljinat/kuarternize karboksimetil selüloz biyofilmlerin geliştirilmesi ve karakterizasyonu amaçlanmıştır. Bu amaç için ilk olarak kuarternize karboksimetil selüloz (CMC) sentezlenmiş ve farklı oranlarda sodyum aljinat ve kuarternize CMC içeren biyofilmler hazırlanmıştır. Hazırlanan biyofilm malzemelerinin antibakteriyel özellikleri inhibisyon zonu (disk difüzyon) yöntemi ile belirlendi. Ultraviyole (UV) ve görünür bölge spektrofotometresi kullanılarak 190-1100 nm dalga boyu aralığında malzemelerin ışık geçirgenlikleri belirlendi. Ayrıca biyofilmlerin jel içeriği soxhlet ekstraksiyonu yöntemi ile belirlendi. Geliştirilen biyofilmlerin antimikrobiyal özelliklerinin kuarternize CMC kullanılmasıyla geliştirildiği görülmektedir. Tüm dalga boylarında formülasyonlar içerisinde kuarternize CMC oranının artması ile ışık geçirgenliğinin azaldığı açık bir şekilde görülmektedir. Yüksek jel içerikleri biyofilm formülasyonlarında kullanılan sodyum aljinat ve kuarternize CMC'nin uyum içerisinde, organik çözücülere karşı kararlı bir yapıda olduklarını göstermektedir. Elde edilen tüm sonuçlar değerlendirildiğinde, üretilen biyofilmlerin antimikrobiyal yüzeylere gereksinim duyulan malzemelerde kaplama olarak kullanılabileceğini anlaşılmaktadır.

Anahtar Kelimeler – Kuarternize karboksimetil selüloz, sodyum aljinat, biyofilmler, karakterizasyon

Preparation and Characterization of Sodium Alginate/Quaternized Carboxymethyl Cellulose Biofilms

^{1,2}Department of Nanotechnology Engineering, Zonguldak Bülent Ecevit University, Zonguldak, Turkey

Article History

Received: 31.03.2023


Accepted: 17.07.2023

Published: 15.08.2023

Research Article

Abstract – The increasing use of polymeric materials brings along some waste storage and environmental problems. Therefore, the interest in biomaterials is increasing day by day. In this study, it was aimed to develop and characterize sodium alginate/quaternized carboxymethyl cellulose biofilms. For this purpose, firstly, quaternized carboxymethyl cellulose (CMC) was synthesized and biofilms containing different ratios of sodium alginate and quaternized CMC were prepared. The antibacterial properties of the prepared biofilm materials were determined by the zone of inhibition (disk diffusion) method. The light transmittance of the materials was determined in the wavelength range of 190-1100 nm using ultraviolet (UV) and visible region spectrophotometer. In addition, the gel content of the biofilms was determined by the soxhlet extraction method. It is seen that the antimicrobial properties of the developed biofilms are improved by using quaternized CMC. It is clearly seen that the light transmittance decreases with the increase of quaternized CMC ratio in formulations at all wavelengths. High gel contents indicate that sodium alginate and quaternized CMC used in biofilm formulations are stable against organic solvents in harmony. When all the results obtained are evaluated, it is understood that the produced biofilms can be used as coatings on materials that need antimicrobial surfaces.

Keywords – Quaternized carboxymethyl cellulose, sodium alginate, biofilms, characterization

¹  ferhatsen@beun.edu.tr

²  mustafa.zor@beun.edu.tr

*Sorumlu Yazar / Corresponding Author

1. Giriş

İnsanoğlu mühendislik süreçlerinde farklı malzemelerin imalatı için sentetik polimerlere neredeyse tamamen bağımlıdır. Petrol bazlı polimerik malzemelerin çevreye olan zararı biyopolimerleri oldukça önemli hale getirmektedir. Doku mühendisliği, ilaç salınımı, yara iyileştirme gibi birçok sağlık uygulamaları için biyobozunur özelliğe sahip sentetik ve doğal kaynaklı biyomalzemeler üzerinde çalışmalar gerçekleştirilmektedir (Bedian ve ark. 2017; Babu ve ark., 2013). Aljinik asit ve karboksimetil selüloz biyobozunur özelliğe sahip biyopolimerlere örnek olarak verilebilir.

Aljinik asitin sodyum tuzu olan sodyum aljinat kahverengi alglerin hücre duvarlarından ekstrakte edilmekte ve doğada bol miktarda bulunmaktadır. Toksik olmaması, biyoyumlu olması ve suda çözünebilir olması en önemli özelliklerindedir (Yun ve ark, 2020; Zhang ve ark., 2018; Zhao ve ark., 2022). Sodyum aljinat özellikler gıda endüstrisinde stabilizör, kıvamlaştırıcı ve jel oluşturmak için kullanılır (Yang ve ark., 2011; Şen ve ark., 2017).

Karboksimetil selüloz (CMC), selülozun anyonik ve suda çözünebilir bir türevidir. CMC ve selüloz arasındaki moleküler olarak tek fark selüloz yapısında bulunan bazı hidroksil gruplarındaki hidrojen atomlarının yerine anyonik karboksimetil gruplarının bulunmasıdır. Yapısında β -1,4-glikosidik bağlar bulunur (Rahman ve ark., 2021). CMC krem, losyon ve diş macunu gibi ürünlerde bağlayıcı, kıvamlaştırıcı ve stabilizatör olarak kullanılmaktadır. Ayrıca tekstil, boya, yapıştırıcı, kağıt, seramik ve gıda gibi bir çok endüstride üstün özellikleri nedeniyle kullanım alanı bulmaktadır (Benchabane ve Bekkour, 2008). Bu üstün özellikleri arasında suda çözünebilir olması, yapışabilir olması, pH'a duyarlı olması, toksik olmaması ve jel oluşturabilmesi sayılabilir (Javanbakht ve Shaabani, 2019).

Kuarternize grupların antimikrobiyal aktivite gösterdiği ile ilgili literatürde birçok çalışma bildirilmiştir. Kitosan bunların en önemli örnekleri arasında gösterilebilir. Kitosanın doğası gereği kimyasal yapısında bulunan amin gruplarındaki protonlar nedeniyle doğal antimikrobiyal ajan olarak kullanılmaktadır (Tan ve ark., 2013). Ayrıca kitosan asetik asitte çözüldüğünde katyonik bir polielektrolit haline gelmektedir (Luo ve Wang, 2014). Bu şekilde gerçekleştirilen kuarternize işlemleriyle kitosanın antimikrobiyal özelliği geliştirilebilmektedir.

Yu ve ark. (2012) ahşap malzeme yüzeyine 2-(dimetilamino)etil metakrilat aşılama ve yüzeyi alkil halojenür ile muamele ederek ahşap yüzeyinde kuarternize gruplar oluşturmuşlardır. Onlar elde edilen ahşap malzemelerin *Escherichia coli*'ye karşı etkili olduğunu ve hastane ve rehabilitasyon merkezleri gibi özel uygulamalarda antimikrobiyal performansına sahip hijyenik ahşap yüzey olarak kullanılabileceğini bildirmişlerdir. Başka bir çalışmada, He ve ark. (2022) kuarternite amonyum metakrilat bileşiklerini sentezlemiş bunları dental reçinelerle ilave ederek dental reçine kompozitler elde etmişlerdir. Onlar elde edilen dental reçine kompozitlerin antimikrobiyal özelliğe sahip olduğunu bildirmişlerdir. Bir diğer çalışmada, Yin ve ark. (2018) kuarternite karboksimetil kitosan sentezlemiş ve bunu PVA ve bakır iyonlarıyla karıştırarak polimerik filmler elde etmişlerdir. Onlar elde edilen filmlerin *Escherichia coli*'ye karşı %99.92 ve *Staphylococcus aureus*'a karşı %98.30 oranında etkili olduğunu, ambalajlama ve biyomedikal uygulamalarda kullanılabileceğini bildirmişlerdir.

Ramakrishnan ve Kulandhaivelu (2021) sodyum aljinat ve CMC kullanarak gıda ambalaj materyali olarak biyopolimer film geliştirmişlerdir. Geliştirilen biyofilmlerin kalınlığı, nem içeriği, yüzey morfolojisi, nem bariyeri özelliği, optik özelliği ve mekanik özelliği incelenmiştir. Ancak elde edilen biyofilmlerin antimikrobiyal özellikleri ile ilgili bir çalışma gerçekleştirilmemiştir. Han ve ark. (2018) ise sodyum aljinat, CMC ve tarçın esansiyel yağı kullanarak biyofilm hazırlamışlar ve tarçın esansiyel yağı ile biyofilmlere antimikrobiyal özellik kazandırdıklarını bildirmişlerdir. Bu çalışmada; ilk olarak CMC kuarternite edildi ve farklı oranlarda soydum aljinat ve kuarternite CMC içeren biyofilmler hazırlandı. CMC'nin kuarternite

edilmesiyle biyofilmlere antimikrobiyal özellik kazandırılması hedeflendi. Hazırlanan biyofilmlerin antimikrobiyal aktiviteleri, ışık geçirgenlikleri ve jel içerikleri incelendi.

2. Materyal ve Yöntem

2.1. Materyal

Bu çalışmada karboksimetil selüloz (CMC) olarak düşük viskoziteli (50-200 cP, %4 H₂O'da ve 25 °C'de) karboksimetil selüloz sodyum tuzu, sodyum aljinat olarak ise kahverengi alglerden elde edilen aljinik asit sodyum tuzu kullanılmıştır. CMC, soydum aljinat, soydum hidroksit ve glisidiltrimetilamonyum klorür (GTMAC) Sigma Aldrich'ten satın alınmıştır.

2.2. Kuarternize Karboksimetil Selülozun Sentezi

Kuarternize CMC, Šimkovic ve ark.'nın (2023) yöntemi modifiye edilerek sentezlenmiştir. 5 g CMC, 3,25 g GTMAC, 1,5 mL 1 M NaOH ve 1,625 g destile su bir beherde karıştırılmıştır. Karışım 5 saat 60°C'lik su banyosunda bekletildi. Süre sonunda karışıma 100 mL etil alkol eklenerek kuarternize CMC çöktürülmüştür. Kuarternize CMC süzülde ve 3 kez etil alkol ile yıkanarak reaksiyona girmeyen GTMAC ve soydum hidroksit ortamda uzaklaştırıldı. Kuarternize CMC 50°C'lik etüvde 24 saat kurutularak elde edildi.

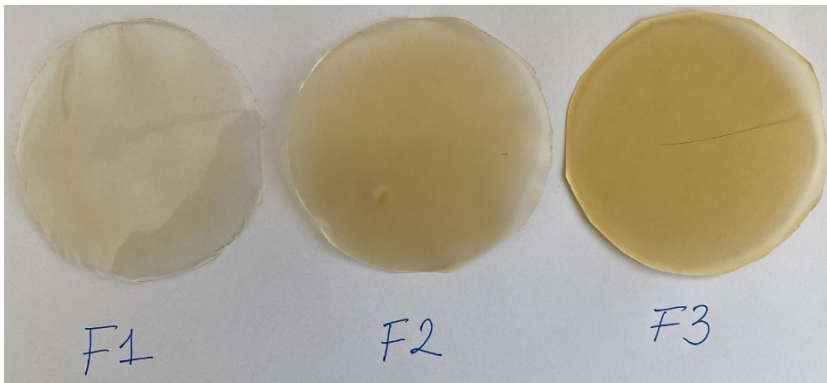
2.3. Soydum Aljinat/Kuarternize CMC Biyofilmlerin Hazırlanması

Tablo 1'de belirtilen oranlarda soydum aljinat ve kuarternize CMC bir beherde tartıldı ve 50 mL destile su ile karıştırılarak çözündürülmüştür. Elde edilen homojen çözelti bir petri kabına dökülerek 50°C'lik etüvde 24 saat bekletilerek kurutulmuştur. Soydum aljinat/kuarternize CMC biyofilmler petri kabından ayrılarak elde edildi (Şekil 1.).

Tablo 1

Soydum aljinat/kuarternize CMC filmlerin formülasyonu

Numune	Sodyum aljinat (g)	Karboksimetil selüloz (g)
F1	3	-
F2	2	1
F3	1	2



Şekil 1. Soydum aljinat/kuarternize CMC biyofilmler

2.4. Karakterizasyon

2.5. Antimikrobiyal Aktivite

Hazırlanan biyofilmlerin antimikrobiyal aktivitesini belirlemek için inhibisyon zonu metodu kullanıldı. Yöntemde gram negatif bir bakteri olan *E. Coli* ve gram pozitif bir bakteri olan *S. Aureus* patojenleri kullanıldı. Öncelikle bakteri kültürleri Tryptic Soy Broth'ta (TSB) 24 saat 37 °C'de inkübe edilerek aktiveleştirildi.

Aktifleşmiş kültürlerden 0,1 mL alınarak Mueller-Hinton agar içeren petrilere yayma plak yöntemiyle ekim yapıldı. Hazırlanan biyofilmlerden 6 mm çapında numuneler kesilerek petrilere yerleştirildi. Petrilere 24 saat 37 °C’de inkübe edildi. İnkübasyon sonrasında numuneler etrafında oluşan inhibisyon zonlarının çapı ölçüldü.

2.6. Işık Geçirgenliği

Hazırlanan biyofilmlerin ışık geçirgenlikleri ultraviyole (UV) ve görünür bölge spektrofotometresi kullanılarak gerçekleştirildi. Ölçüm 190-1100 nm dalga boyu aralığında PG T80+ marka UV ve görünür bölge spektrofotometresi kullanılarak gerçekleştirildi.

2.7. Jel içeriği

Hazırlanan biyofilmlerin jel içeriği soxhlet ekstraksiyonu yöntemi ile belirlendi. Tartılan biyofilmler soxhlet aparatındaki kartuşa yerleştirildi ve 6 saat aseton ile ekstraksiyon yapıldı. Süre sonunda biyofilmler etüvde 24 saat 50 °C’de kurutulduktan sonra tekrar tartıldı. Numunelerin %jel içerikleri aşağıdaki eşitlikten hesaplandı.

$$\%Jel \text{ içeriği} = m_1/m_0 \times 100$$

m_0 : Başlangıçta biyofilmin ağırlığı

m_1 : Ekstraksiyon sonrası biyofilmin ağırlığı

3. Bulgular ve Tartışma

3.1. Biyofilmlerin antimikrobiyal aktivitesi

Elde edilen biyofilmlerin antimikrobiyal aktiviteleri, gram negatif bir bakteri olan *E. Coli* ve gram pozitif bir bakteri olan *S. Aureus* patojenlerine karşı oluşturulmuş oldukları inhibisyon zonları ölçülerek belirlendi. Elde edilen sonuçlar Tablo 2’de gösterilmiştir. Biyo malzemeler bakteriler için besin kaynağı olması nedeniyle biyo malzemelerden üretilen biyofilmlerin yüksek oranda antimikrobiyal özellik göstermesi beklenemez (Van H ve Michiels, 2010). Ancak bu çalışmada CMC kuarternize edilerek elde edilen biyofilmlere antimikrobiyal özellik kazandırılması amaçlanmaktadır. Kuarternize fonksiyonel grup içeren bileşiklerin antimikrobiyal özellik gösterdiği ile ilgili literatürde çalışmalar mevcuttur (El-Refaie ve ark., 2023). Elde edilen sonuçlar incelendiğinde, formülasyonlarda kuarternize CMC oranının artmasıyla antimikrobiyal aktivitenin arttığı açık bir şekilde görülmektedir. Yalnızca sodyum aljinat içeren F1 numunesinin inhibisyon zonunun mikrobiyal yük açısından oldukça temiz olduğu, kuarternize CMC içeren F2 ve F3 numunelerinin inhibisyon zonlarının ise kısmen mikrobiyal yük içermesine rağmen zon çaplarının daha yüksek olduğu belirlenmiştir. Sonuç olarak, elde edilen biyofilmlerin kuarternize CMC kullanılmasıyla antimikrobiyal özelliklerinin geliştirildiği görülmektedir.

Tablo 2
Biyofilmlerin inhibisyon zonları

Numune	<i>E. Coli</i> (mm)	<i>S. Aureus</i> (mm)
F1	11	11
F2	15	13
F3	16	14

3.2. Biyofilmlerin ışık geçirgenliği

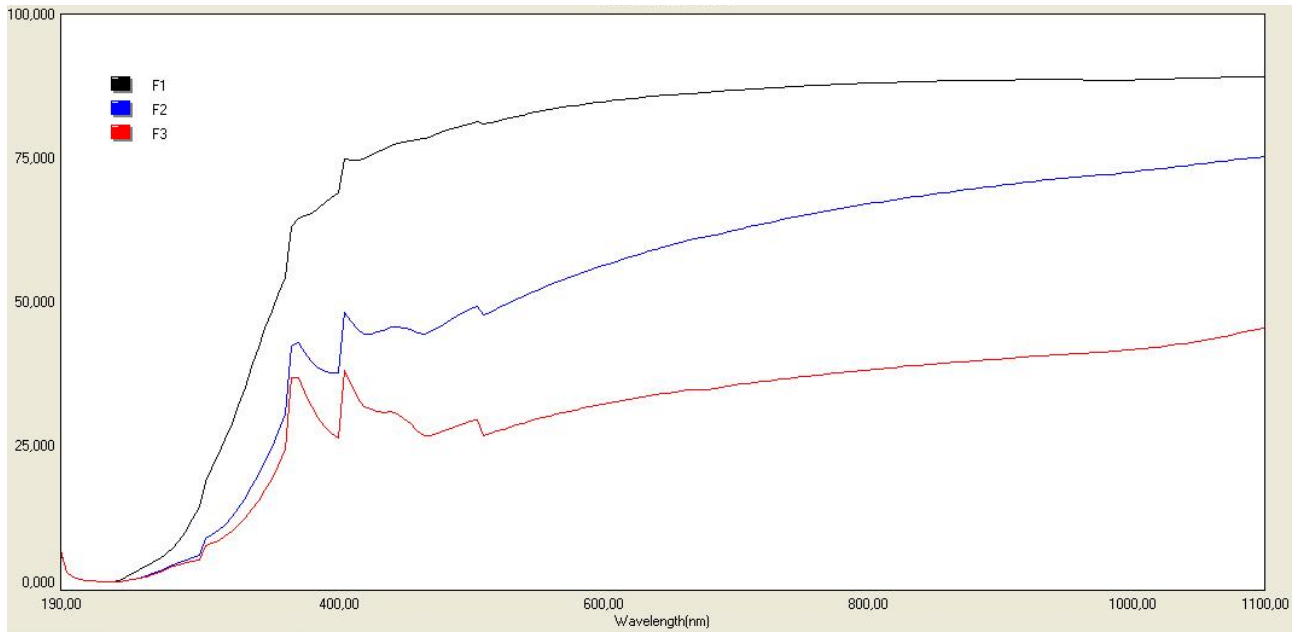
Işık geçirgenliği polimerik film malzemeleri için oldukça önemli bir kriterdir. Örneğin, ışık ile bozulan gıdaların ambalajlanmasında kullanılan polimerik filmlerin opak olması tercih edilirken, ışık ile bozulmayan gıdaların ambalajlanmasında ürünün tüketici tarafından görünebilmesi için ışık geçiren şeffaf polimerik filmlerin kullanılması tercih edilmektedir. Elde edilen biyofilmlerin farklı dalga boylarındaki ışık geçirgenlikleri Tablo 3’te, ışık geçirgenlik spektrumları ise Şekil 2’de görülmektedir. Sonuçlar incelendiğinde,

tüm dalga boylarında formülasyonlar içerisinde kuarternize CMC oranının artması ile ışık geçirgenliğinin azaldığı açık bir şekilde görülmektedir. Elde edilen sonuçlara paralel olarak CMC'nin ışık geçirgenliğini azalttığı Ramakrishnan ve Kulandhaivelu (2021) tarafından da bildirilmiştir.

Tablo 3

Biyofilmlerin ışık geçirgenlikleri

Numune	400nm T (%)	500nm T (%)	600nm T (%)	700nm T (%)
F1	69	80	85	87
F2	38	49	56	63
F3	27	30	32	36



Şekil 2. Biyofilmlerin ışık geçirgenlik spektrumları

3.3. Biyofilmlerin jel içeriği

Soxhlet ekstraksiyon yöntemi ile yapılan biyofilmlerin jel içeriği testinin sonuçları Tablo 4'de gösterilmiştir. Tüm biyofilmlerin jel oranlarının yüksek olduğu belirlendi. Bu değerler F1 için %89,01, F2 için %90,54, F3 için %86,82 olarak hesaplandı. Elde edilen yüksek jel içerikleri biyofilm formülasyonlarında kullanılan sodyum aljinat ve kuarternize CMC'nin uyum içerisinde, organik çözücülere karşı kararlı bir yapıda olduklarını göstermektedir.

Tablo 4

Biyofilmlerin jel içerikleri

Numune	Jel içerikleri (%)
F1	89,01
F2	90,54
F3	86,82

4. Sonuçlar

Bu çalışmada, sodyum aljinat/kuarternize karboksimetil selüloz biyofilmlerin geliştirilmesi ve karakterizasyonu amaçlandı. Bu amaç için ilk olarak kuarternize karboksimetil selüloz (CMC) sentezlendi ve farklı oranlarda soydum aljinat ve kuarternize CMC içeren biyofilmler hazırlandı. Antimikrobiyal test sonuçları biyofilmler içerisinde sentezlenen kuarternize CMC oranının artmasıyla antimikrobiyal aktivitenin arttığını gösterdi. Işık geçirgenliği test sonuçları kuarternize CMC'nin biyofilmlere opaklık kazandırdığını gösterdi. Ayrıca tüm numunelerin jel içeriklerinin %86-90 aralığında olduğu tespit edildi. Elde edilen tüm sonuçlar üretilen biyofilmlerin antimikrobiyal yüzeylere gereksinim duyulan malzemelerde kaplama olarak kullanılabilmesini göstermektedir. Ayrıca biyofilmlerin antimikrobiyal gıda ambalaj materyali olarak kullanılabilmesi için yeni araştırmaların gerçekleştirilmesi önerilmektedir.

Yazar Katkıları

Ferhat ŞEN: Çalışmayı planlamış, tasarlamış, deney-analizleri gerçekleştirmiş ve makaleyi yazmıştır.

Mustafa ZOR: Çalışmayı planlamış, tasarlamış, deney-analizleri gerçekleştirmiş ve makaleyi yazmıştır.

Çıkar Çatışması

Yazarlar çıkar çatışması bildirmemişlerdir.

Kaynaklar

- Babu, R.P., O'Conno, K. ve Seeram, R. (2013). Current progress on bio-based polymers and their future trends. *Progress in Biomaterials*, 2, 8-24. <https://doi.org/10.1186/2194-0517-2-8>
- Bedian, L., Villalba-Rodríguez, A.M., Hernández-Vargas, G., Parra-Saldivar, R. ve Iqbal, H.M.N. (2017). Bio-based materials with novel characteristics for tissue engineering applications - A review. *International Journal of Biological Macromolecules*, 98, 837-846. <https://doi.org/10.1016/j.ijbiomac.2017.02.048>
- Benchabane, A. ve Bekkour, K. (2008). Rheological properties of carboxymethyl cellulose (CMC) solutions. *Colloid and Polymer Science*, 286, 1173-1180. <https://doi.org/10.1007/s00396-008-1882-2>
- Han, Y., Yu, M. ve Wang, L. (2018). Physical and antimicrobial properties of sodium alginate/carboxymethyl cellulose films incorporated with cinnamon essential oil. *Food Packaging and Shelf Life*, 15, 35-42. <https://doi.org/10.1016/j.fpsl.2017.11.001>
- He, X., Ye, L., He, R., He, J., Ouyang, S. ve Zhang, J. (2022). Antibacterial dental resin composites (DRCs) with synthesized bis-quaternary ammonium monomethacrylates as antibacterial agents. *Journal of the Mechanical Behavior of Biomedical Materials*, 135, 105487. <https://doi.org/10.1016/j.jmbbm.2022.105487>
- Javanbakht, S., Shaabani, A. (2019). Carboxymethyl cellulose-based oral delivery systems. *International Journal of Biological Macromolecules*, 133, 21-29. <https://doi.org/10.1016/j.ijbiomac.2019.04.079>
- Kenawy, E.R.S., Kamoun, E.A., Elsigeny, S.M., Haikal, S., El-Shehawy, A.A ve Mahmoud, Y.A.G. (2023). Physically cross-linked PVA-quaternized chitosan-Ag NPs composite hydrogel membranes for potential topical wound healing applications: Synthesis, physicochemical properties, and in vitro bioevaluation. *Journal of Applied Pharmaceutical Science*, 13, 23-35. <http://doi.org/10.7324/JAPS.2023.62346>
- Luo, Y. ve Wang, Q. (2014). Recent development of chitosan-based polyelectrolyte complexes with natural polysaccharides for drug delivery. *International Journal of Biological Macromolecules*, 64, 353-367. <https://doi.org/10.1016/j.ijbiomac.2013.12.017>
- Rahman, M.S., Hasan, M.S., Nitai, A.S., Nam, S., Karmakar, A.K., Ahsan, M.S., Shiddiky, M.J.A. ve Ahmed, M.B. (2021). Recent developments of carboxymethyl cellulose. *Polymers*, 13, 1345. <https://doi.org/10.3390/polym13081345>
- Ramakrishnan, R. ve Kulandhaivelu, S.V. (2021). Preparation and properties of sodium alginate/carboxymethyl cellulose films for packaging application. *Chiang Mai Journal of Science*, 1634.1644. https://epg.science.cmu.ac.th/ejournal/dl.php?journal_id=11570
- Šimkovic, I., Gucmann, F. ve Hricovíni, M. (2023). Properties of quaternized and crosslinked carboxymethylcellulose films. *Cellulose*, 30, 2023-2036. <https://doi.org/10.1007/s10570-022-05031-5>

- 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. <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2017.04.079>
- Tan, H., Ma, R., Lin, C., Liu, Z. ve Tang, T. (2013). Quaternized chitosan as an antimicrobial agent: Antimicrobial activity, mechanism of action and biomedical applications in orthopedics. *International Journal of Molecular Sciences*, 14, 1854-1869. <https://doi.org/10.3390/ijms14011854>
- Van Houdt R. ve Michiels C. W. (2010). Biofilm formation and the food industry, a focus on the bacterial outer surface. *Journal of Applied Microbiology*, 109, 1117-1131. <https://doi.org/10.1111/j.1365-2672.2010.04756.x>
- Yang, J.S., Xie, Y.J. ve He, W. (2011). Research progress on chemical modification of alginate: a review. *Carbohydrate Polymers*, 84, 33-39. <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2010.11.048>
- Yin, M., Lin, X., Ren, T., Li, Z., Ren, X. ve Huang, T.S. (2018). Cytocompatible quaternized carboxymethyl chitosan/poly(vinyl alcohol) blend film loaded copper for antibacterial application. *International Journal of Biological Macromolecules*, 120, 992-998. <https://doi.org/10.1016/j.ijbiomac.2018.08.105>
- Yu, H., Fu, Y., Li, G. ve Liu, Y. (2013). Antimicrobial surfaces of quaternized poly[(2-dimethyl amino)ethyl methacrylate] grafted on wood via ARGET ATRP. *Holzforschung*, 67, 455-461. <https://doi.org/10.1515/hf-2012-0077>
- Yun, X., Zhang, Q., Luo, B., Jiang, H., Chen, C., Wang, S. ve Min, D. (2020). Fabricating flexibly resistive humidity sensors with ultra-high sensitivity using carbonized lignin and sodium alginate. *Electroanalysis*, 32, 2282-2289. <https://doi.org/10.1002/elan.202060128>
- Zhang, J., Wang, X.X., Zhang, B., Ramakrishna, S., Yu, M., Ma, J.W., ve Long, Y.Z. (2018). In situ assembly of well-dispersed Ag nanoparticles throughout electrospun alginate nanofibers for monitoring human breath-Smart fabrics. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 10, 19863-19870. <https://doi.org/10.1021/acsami.8b01718>
- Zhao, Q., Jiang, Y., Duan, Z., Yuan, Z., Zha, J., Wu, Z., Huang, Q., Zhou, Z., Li, H., He, F., Su, Y., Tan, C. ve Tai, H. (2022). A Nb₂CT_x/sodium alginate-based composite film with neuron-like network for self-powered humidity sensing. *Chemical Engineering Journal*, 438, 135588, <https://doi.org/10.1016/j.cej.2022.135588>