

Graphine Oxide-NH₂-Fe-Zn-DAC Nanocomposite Synthesis and Characterization: System's Effective Capability in Pb(II) Ions Removal

Soghra Fathalipour^{1*}, Sima Pourbeyram², Bakhshali Masoumi², and
Arezo Babamiri²

1. Shahid Bakeri High Education Center of Miandoab, Urmia University, Urmia, Iran

2. Department of Chemistry, Payame Noor University, Tehran, 19395-4697, Iran

Received: 8 May 2026, accepted: 23 September 2026

ABSTRACT

Hypothesis: Bimetallic nanoparticles have attracted attention due to synergistic properties and green synthesis. Graphene oxide (GO) is an ideal substrate for nanoparticle immobilization, but nanosheet aggregation and separation issues limit its application. Yucca cellulose can overcome these limitations. This study aims to green-synthesize a nanocomposite based on Yucca dialdehyde cellulose covalently immobilized onto functionalized GO containing Fe-Zn nanoparticles, along with a preliminary investigation of Pb (II) removal.

Methods: Cellulose extracted from Yucca was oxidized to dialdehyde cellulose with sodium periodate. Fe-Zn nanoparticles were deposited onto graphene oxide (synthesized by the modified Hummers method) using green tea extract. The resulting nanohybrid was functionalized with ethylenediamine and covalently attached to dialdehyde cellulose. The GO-NH₂-Fe-Zn-DAC nanocomposite was characterized using various techniques, and its performance in removing Pb(II) ions was investigated.

Findings: FTIR confirmed the covalent bonding between aminated graphene oxide and dialdehyde cellulose. FE-SEM revealed the distribution of quasi-spherical nanoparticles with sizes of 30-50 nm on graphene oxide. XRD confirmed the presence of Fe-Zn nanoparticles, and zeta potential analysis demonstrated the colloidal stability of the final nanocomposite (-82.1 mV compared to -28 mV for pristine graphene oxide). The enhanced saturation magnetization (2.36 emu/g, approximately 3.4 times that of GO-Fe-Zn), along with low coercivity (<120 Oe) and low M_r/M_s ratio (<0.5), confirmed the favorable soft ferromagnetic properties of the nanocomposite. In a preliminary Pb(II) removal test, the nanocomposite removed 84% of lead ions within 60 min, and its equilibrium adsorption capacity was estimated to be approximately 210 mg/g. The synthesized nanocomposite, featuring biodegradability, high colloidal stability, soft ferromagnetic behavior, magnetic separability, and a green synthesis route, holds great promise for the remediation of heavy metal-contaminated wastewater and magnetic separation applications.

Keywords:

nanocomposite,
Yucca dialdehyde cellulose,
functionalized graphene
oxide,
iron/zinc bimetallic
nanoparticles,
green synthesis

(*)To whom correspondence should be addressed.

E-mail: s.fathalipour@urmia.ac.ir,

Please cite this article using:

Fathalipour S., Pourbeyram S., Masoumi B., and Babamiri A., Graphine oxide-NH₂-Fe-Zn-DAC Nanocomposite Synthesis and Characterization: System's Effective Capability in Pb(II) Ions Removal, *Iran. J. Polym. Sci. Technol. (Persian)*, **38**, 487-500, 2026.

سنتز و شناسایی نانوکامپوزیت GO-NH₂-Fe-Zn-DAC با قابلیت حذف Pb²⁺

دسترسی پذیر در نشانی: <http://jips.ippi.ac.ir>

مجله علوم و تکنولوژی پلیمر،

سال سی و هشتم، شماره ۶،

صفحه ۵۰۰-۴۸۷، ۱۴۰۴

ISSN: 1016-3255

Online ISSN: 2008-0883

DOI: 10.22063/JIPST.2026.35881.2462

صغرا فتحعلی پور^{۱*}، سیما پوربیرام^۲، بخشعلی معصومی^۲، آرزو بابامیری^۲

۱- ارومیه، دانشگاه ارومیه، مرکز آموزش عالی شهید باکری میاندوآب، گروه گیاهان دارویی، صندوق پستی

۲- تهران، دانشگاه پیام نور، گروه شیمی، کد پستی ۱۹۳۹۵-۴۶۹۷

دریافت: ۱۴۰۵/۲/۱۸، پذیرش: ۱۴۰۵/۷/۱

چکیده

فرضیه: نانوذرات دوفلزی به دلیل خواص هم افزایی و سنتز سبز با استفاده از عصاره های گیاهی، توجه گسترده ای را جلب کرده اند. گرافن اکسید بستر ایده آلی برای تثبیت نانوذرات است، اما مشکلات انبوهش و جداسازی نانوصفحه ها، کاربرد آن را محدود می کند. سلولوز یوکا می تواند بر این محدودیت ها غلبه کند. این مطالعه با هدف سنتز سبز نانوکامپوزیت بر پایه سلولوز دی آلدئید یوکا که به صورت کووالانسی روی نانوذرات گرافن اکسید عامل دار دارای آهن-روی تثبیت شده است، همراه با بررسی اولیه حذف یون سرب انجام شده است.

روش ها: سلولوز استخراج شده از یوکا با سدیم پریدات به سلولوز دی آلدئید اکسید شد. نانوذرات آهن-روی با عصاره چای سبز روی گرافن اکسید سنتز شده نشانده و نانوهیبرید حاصل با اتیلن دی آمین عامل دار و به سلولوز دی آلدئید متصل شد. نانوکامپوزیت GO-NH₂-Fe-Zn-DAC با روش های مختلف مشخصه یابی و عملکرد آن در حذف یون سرب بررسی شد.

یافته ها: FTIR پیوند کووالانسی بین گرافن اکسید آمین دار و سلولوز دی آلدئید را تأیید کرد. FE-SEM توزیع نانوذرات تقریباً کروی با اندازه ۵۰-۳۰ nm را روی گرافن اکسید نشان داد. XRD وجود هم زمان نانوذرات آهن-روی و پتانسیل زتا پایداری کلئیدی نانوکامپوزیت نهایی (۸۲/۱ mV) در مقایسه با ۲۸ mV- برای گرافن اکسید خالص را نشان دادند. مغناطش اشباع افزایش یافته (۲/۳۶ emu/g، تقریباً ۳/۴ برابر GO-Fe-Zn)، همراه با میدان وادارندگی کم (کمتر از ۱۲۰ اورستد) و نسبت کم M_r/M_s (کمتر از ۰/۵)، ویژگی های فرومغناطیس نرم مطلوب نانوکامپوزیت را تأیید کرد. در بررسی مقدماتی حذف سرب، نانوکامپوزیت توانست ۸۴٪ از یون های سرب را به مدت ۶۰ min حذف کند و ظرفیت جذب تعادلی آن حدود ۲۱۰ mg/g برآورد شد. نانوکامپوزیت سنتز شده به دلیل زیست تخریب پذیری، پایداری کلئیدی زیاد، خواص فرومغناطیس نرم، قابلیت جداسازی مغناطیسی و سنتز سبز، گزینه ای امیدوارکننده برای تصفیه پساب های دارای فلزات سنگین و کاربردهای جداسازی مغناطیسی به شمار می آید.

واژه های کلیدی

نانوکامپوزیت،

سلولوز دی آلدئید یوکا،

گرافن اکسید عامل دار شده،

نانوذرات دوفلزی آهن-روی،

سنتز سبز

* مسئول مکاتبات، پیام نگار:
s.fathalipour@urmia.ac.ir,

مقدمه

در سال‌های اخیر، نانوذرات دوفلزی به دلیل خواص هم‌افزایی ناشی از ترکیب دوفلزی، توجه زیادی را به خود جلب کرده‌اند [۱،۲]. نانوذرات آهن-روی (Fe-Zn) از جمله این ترکیبات هستند که به دلیل فعالیت سطحی زیاد، قابلیت تشکیل کمپلکس با یون‌های فلزی و خواص ضدباکتریایی، گزینه‌های مناسبی برای تثبیت روی بسترهای پلیمری به‌شمار می‌آیند [۲،۳]. از سوی دیگر، روش‌های سنتز سبز با بهره‌گیری از عصاره‌های گیاهی، به دلیل سازگاری با محیط زیست، سادگی و هزینه‌های کم، جایگزین روش‌های شیمیایی متداول شده‌اند [۴]. عصاره چای سبز سرشار از ترکیبات پلی‌فنولی و فلاونوئیدهاست که می‌توانند به‌عنوان عوامل کاهنده و پایدارکننده نانوذرات فلزی عمل کنند. این عصاره ضمن کاهش اثرهای زیست‌محیطی، به تولید نانوذرات با اندازه و شکل‌شناسی کنترل‌شده منجر می‌شود [۵،۶].

گرافن اکسید (GO) به‌عنوان یکی از مهم‌ترین مشتقات گرافن، از اکسایش شیمیایی گرافیت حاصل می‌شود. این ترکیب دوبعدی، دارای گروه‌های عاملی متعدد اکسیژن‌دار نظیر هیدروکسیل، کربوکسیل، اپوکسی و کربونیل روی سطح خود است [۷]. وجود این گروه‌های عاملی، GO را به بستری ایده‌آل برای تثبیت نانوذرات فلزی مبدل ساخته است [۳۰،۷]. با وجود این، کاربرد GO با موانعی همچون تمایل به تجمع نانوصفحه‌ها و دشواری جداسازی از محیط آبی همراه است [۸،۹]. برای غلبه بر این موانع، راهکارهای متعددی از جمله اصلاح شیمیایی GO و ساخت کامپوزیت با پلیمرهای زیست‌تخریب‌پذیر نظیر سلولوز، پیشنهاد شده است [۱۰،۱۱]. سلولوز که فراوان‌ترین پلیمر طبیعی موجود در طبیعت است، به سبب تجدیدپذیری، زیست‌تخریب‌پذیری، سازگاری با محیط زیست و قیمت مناسب، انتخابی ایده‌آل برای ساخت کامپوزیت‌های سبز به‌شمار می‌آید [۱۲]. وجود گروه‌های هیدروکسیل فراوان در زنجیر سلولوز، این پلیمر را به گزینه مناسبی برای اصلاح شیمیایی سطحی و پیوند با ترکیبات دیگر تبدیل کرده است [۱۱،۱۳،۱۴]. از میان منابع طبیعی متعدد برای استخراج سلولوز، گیاه یوکا (Yucca) به دلیل همیشه‌سبز بودن و پایداری زیستی، گزینه مناسبی برای تولید سلولوز با خلوص زیاد به‌شمار می‌رود. همچنین، مطالعات قبلی استحکام مکانیکی مطلوب الیاف سلولوزی این گیاه را تأیید کرده‌اند [۱۵]. مطالعات گذشته حاکی از آن است که کامپوزیت‌های گرافن اکسید-سلولوز، عملکرد زیادی در جذب فلزات سنگین دارند. به‌عنوان نمونه، جذب GO/HPAMAM/DAC (گرافن اکسید اصلاح‌شده با پلی‌آمید-آمین و سلولوز دی‌آلدئید) معرفی‌شده توسط Liu و همکاران، در دمای 298 K ظرفیت جذب $680/3\text{ mg/g}$ برای یون‌های سرب (Pb^{2+}) را نشان داده است [۳۶]. همچنین، کامپوزیت GO-TETA-DAC

که در آن گرافن اکسید از تری‌اتیلن‌تترآمین به سلولوز دی‌آلدئید متصل شده است، در pH برابر ۵ ظرفیت جذبی معادل $80/9\text{ mg/g}$ برای سرب نشان داد [۴۰،۱۶]. همچنین، نانوکامپوزیت مغناطیسی $\text{ZnFe}_2\text{O}_4@\text{rGO}$ که در آن نانوذرات فریت روی بر سطح گرافن اکسید کاهش‌یافته قرار گرفته‌اند، قابلیت جذب $89/8\text{ mg/g}$ سرب را دارد [۱۰]. این مشاهدات حاکی از قابلیت زیاد کامپوزیت‌های گرافن اکسید-سلولوز در تصفیه پساب‌های آلوده به فلزات سنگین بوده و لزوم انجام پژوهش‌های تکمیلی در این حوزه را آشکار می‌سازد. با وجود پژوهش‌های انجام‌شده، تاکنون نانوکامپوزیت سه‌جزئی متشکل از گرافن اکسید آمین‌دار، سلولوز دی‌آلدئید استخراج‌شده از گیاه یوکا و نانوذرات دوفلزی آهن-روی سنتز شده با عصاره چای سبز، گزارش نشده است. بر این اساس، فرضیه پژوهش بر این اصل است که تثبیت کووالانسی سلولوز دی‌آلدئید یوکا روی گرافن اکسید عامل‌دار شده دارای نانوذرات دوفلزی آهن-روی، به سبب خواص هم‌افزایی حاصل از ترکیب این سه جزء، می‌تواند نانوکامپوزیتی با پایداری کلئیدی زیاد، قابلیت جداسازی مغناطیسی و کارایی مطلوب در حذف فلزات سنگین ایجاد کند. نوآوری‌های پژوهش حاضر در سه محور اصلی قابل خلاصه‌سازی است: نخست، بهره‌گیری از گیاه یوکا به‌عنوان منبع بومی و تجدیدپذیر سلولوز که پیش‌تر در ساخت کامپوزیت‌های بر پایه گرافن اکسید برای حذف فلزات سنگین گزارش نشده است. دوم، استفاده از عصاره چای سبز به‌عنوان عامل کاهنده سبز و پایدارکننده در سنتز نانوذرات دوفلزی آهن-روی که به حذف عوامل شیمیایی سمی و کاهش آثار زیست‌محیطی می‌انجامد و سوم، اصلاح شیمیایی گرافن اکسید با اتیلن دی‌آمین به‌منظور ایجاد پیوند کووالانسی با سلولوز دی‌آلدئید که موجب افزایش پایداری ساختاری و بهبود پراکنش نانوذرات می‌شود. در گام پایانی، نانوکامپوزیت سنتز شده با بهره‌گیری از روش‌های گوناگون مشخصه‌یابی شده و به‌عنوان بررسی مقدماتی، قابلیت اولیه آن در حذف یون سرب از محیط آبی در قالب آزمایش جهت‌یاب ارزیابی شده است. این بخش فقط با هدف نشان‌دادن قابلیت کاربرد ماده سنتز شده و جهت‌دهی به مطالعات تکمیلی آینده در زمینه تصفیه پساب‌های دارای فلزات سنگین است.

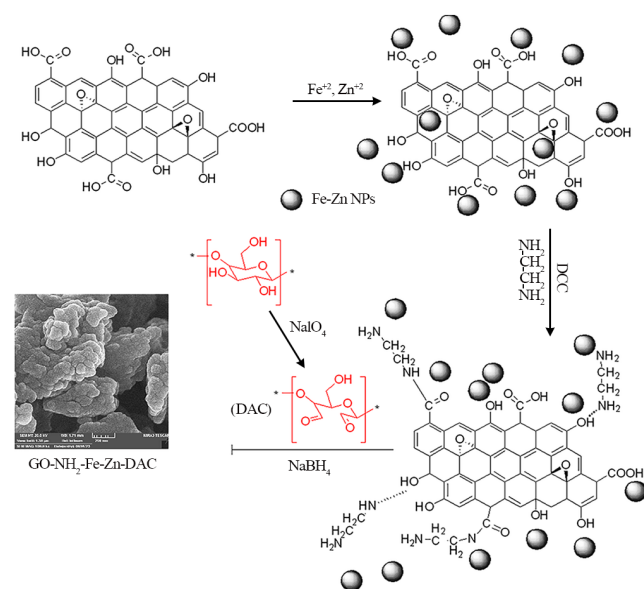
مواد

مواد شیمیایی استفاده‌شده شامل گرافیت، سولفوریک اسید، فسفریک اسید، پتاسیم پرمنگنات، آهن سولفات ($\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$)، روی سولفات ($\text{ZnSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$)، اتیلن دی‌آمین، دی‌سیکلو‌هگزیل کربودی‌ایمید (DCC)،

۸۰ °C صاف شده و با آب مقطر تا رسیدن به pH برابر ۷ شست و شو داده شد [۱۹]. در نهایت، الیاف سلولوز در محلول ۲٪ کلریدریک اسید غوطه‌ور شده و به مدت ۶ h کاملاً هم‌زده، سپس صاف شده و با آب مقطر تا رسیدن به pH برابر ۷ شست و شو و در نهایت در دمای ۵۰ °C خشک شد. برای اکسایش سلولوز از سدیم پریدات مطابق دستورکار زیر استفاده شد [۲۰، ۲۱]. ۱ g سلولوز خشک در ۸۰ °C آب مقطر با دستگاه فراصوت به مدت ۱ h پراکنده شد. ۲ g سدیم پریدات به محلول پراکنده‌شده سلولوز اضافه و در دمای ۸۰ °C و تاریکی به مدت ۳ h هم‌زده شد. مخلوط به دست آمده صاف و چند بار با آب مقطر شسته شده و سپس در خشک‌کن انجمادی قرار گرفت.

سنتز نانوکامپوزیت گرافن اکسید آمین‌دار-سلولوز-آهن-روی (GO-NH₂-Fe-Zn-DAC)

سنتز کامپوزیت GO-NH₂-Fe-Zn-DAC در چند مرحله انجام شده است که به طور خلاصه شامل تهیه گرافن اکسید به روش Hummer، نشان دادن کاتیون‌های روی و آهن روی صفحه‌های گرافن اکسید، کاهش این کاتیون‌ها با عصاره چای سبز و تبدیل آن‌ها به نانوذرات آهن-روی و سپس آمین‌دار کردن صفحه‌های گرافن اکسید به منظور تهیه GO-NH₂-Fe-Zn است. از جانب دیگر، استخراج سلولوز از گیاه یوکا، تهیه سلولوز دی‌آلدهید و در نهایت اتصال آن به GO-NH₂-Fe-Zn، محصول نهایی را حاصل می‌کند (شکل ۱). در این مسیر، نانوذرات



شکل ۱- طرح‌واره سنتز نانوکامپوزیت GO-NH₂-Fe-Zn-DAC.

Fig. 1. Schematic illustration of the synthesis of the GO-NH₂-Fe-Zn-DAC nanocomposite.

سدیم پریدات (NaIO₄) و پتاسیم بورهیدرید (KBH₄)، همگی از شرکت Merck آلمان با درجه خلوص تحلیلی تهیه شده و بدون خلوص سازی دوباره به کار گرفته شدند. گیاه یوکا از گلخانه و چای سبز ایرانی از بازار محلی تهیه شدند. اختصارهای به کاررفته در مقاله شامل گرافن اکسید (GO)، گرافن اکسید دارای نانوذرات آهن-روی (GO-Fe-Zn)، گرافن اکسید آمین‌دار-نانوذرات آهن-روی (GO-NH₂-Fe-Zn)، سلولوز استخراج شده از یوکا (Yucca-Cell)، سلولوز دی‌آلدهید (DAC) و نانوکامپوزیت نهایی (GO-NH₂-Fe-Zn-DAC) است.

دستگاه‌ها

برای ثبت طیف‌های UV-Vis، از طیف‌نورسنج دوپرتوی T8PG ساخت شرکت PG Instruments Ltd (انگلستان) استفاده شد. الگوهای پراش پرتو X (XRD) نمونه‌ها با پراش سنج PW1730 ساخت شرکت Philips (هلند) ثبت شدند. طیف‌های FTIR با طیف‌سنج Tensor 27 ساخت شرکت Bruker (آلمان) تهیه شدند. شکل‌شناسی سطح نمونه‌ها با میکروسکوپ الکترونی پوششی گسیل میدانی (FE-SEM)، مدل MIRA III، ساخت شرکت TESCAN (جمهوری چک) بررسی شد. همچنین، پتانسیل زتا و پایداری کلئیدی نمونه‌ها با دستگاه SZ-100 ساخت شرکت HORIBA (ژاپن) اندازه‌گیری شد.

روش‌ها

سنتز گرافن اکسید (GO)

گرافن اکسید (GO) مطابق با روش Hummer اصلاح شده و براساس دستورکار زیر انجام شد [۱۷، ۱۸]. مخلوط سردشده سولفوریک اسید (۱۸۰ mm) و فسفریک اسید (۲۰ mL) به آرامی روی گرافیت (۱ g) در حال هم‌زدن افزوده شد. سپس پتاسیم پرمنگنات (۶ g) به آرامی به مخلوط واکنش اضافه شد و مخلوط به مدت ۲۴ h در دمای ۴۵-۵۰ °C هم‌زده شد. پس از رسیدن به دمای محیط، تکه‌های یخ (۱۰۰ mL) به مخلوط به دست آمده افزوده شده و سپس هیدروژن پراکسید (۷ mL) به آرامی اضافه شد. محصول نهایی با روش مرکز‌گریزی جداسازی و با آب مقطر تا رسیدن به pH برابر ۷ شست و شو داده شد.

تهیه سلولوز آلدهید از گیاه یوکا (DAC)

برگ‌های یوکا پس از شست و شو و خرد کردن (۲۰ g)، در محلول NaOH (۱ L، ۵٪) به مدت ۳ h در دمای ۸۰ °C هم‌زده شد. ماده به دست آمده صاف و با آب مقطر تا رسیدن به pH ثابت شست و شو شده و سپس به محلولی از ۳۰۰ mL آب مقطر، ۵ mL استیک اسید و ۴۰ mL H₂O₂ (۳۰٪) اضافه شد. مخلوط پس از ۳ h هم‌زدن در دمای

حاصل شود. سپس، ۱۷ mg از کامپوزیت GO-NH₂-Fe-Zn در ۱۵ mL اتانول مطلق به مدت ۳۰ min با فراصوت دهی پراکنده شده و ۱۷ mg از DAC به آن افزوده و ۳۰ min دیگر پراکنده شد. مخلوط به دست آمده به مدت ۴ h در دمای محیط هم زده شده، سپس به دمای ۵۰ °C رسانده شده و ۱۷ mg پتاسیم بورهیدرید به آن اضافه شد. مخلوط به مدت ۴ h در دمای ۵۰ °C هم زده شده، سپس با روش مرکزگریزی، با آب و اتانول شست و شو و در نهایت در دمای ۵۰ °C خشک شد.

نتایج و بحث

بررسی طیف FTIR

طیف های FTIR ابزار کارآمدی برای شناسایی گروه های عاملی و تأیید تشکیل پیوندهای شیمیایی در ترکیبات سنتز شده به شمار می آیند. شکل ۲ طیف های FTIR مربوط به ترکیبات سنتز شده GO-NH₂-Fe-Zn-DAC، GO-Fe-Zn، GO، Yucca-Cell و DAC را نشان می دهد. در طیف FTIR مربوط به GO (شکل ۲ (a))، پیک مشخص شده در عدد موجی ۳۴۲۵ cm⁻¹ به ارتعاش های کششی پیوند O-H مربوط می شود. پیک مشاهده شده در ناحیه ۷۱۵ cm⁻¹ نشان دهنده ارتعاش های کششی پیوند کربونیل C=O موجود در لبه های گرافن اکسید است. همچنین، پیک های ظاهر شده در نواحی ۱۶۷۳، ۱۲۴۷ و ۱۰۵۹ cm⁻¹ به ترتیب به ارتعاش های کششی گروه های C=C اکسید نشده در پیکره گرافیتی، گروه های اپوکسی و گروه های کربوکسیل روی سطح گرافن نسبت داده می شوند [۲۳، ۲۴]. طیف FTIR سلولوز دارای دو پیک شاخص در اعداد موجی ۱۱۰۰ و ۳۵۰۰ cm⁻¹ است که به ترتیب مربوط به ارتعاش های کششی گروه های O-H و C-O هستند [۱۹]. در طیف FTIR مربوط به سلولوز دی آلدید (شکل ۲ (b))، پیک در ۱۷۲۵ cm⁻¹ به ارتعاش های کششی کربونیل (C=O) آلدیدی اختصاص دارد [۲۱]. هرچند پیک مربوط به ارتعاش C-H آلدیدی معمولاً در محدوده ۲۸۵۰-۲۷۰۰ cm⁻¹ ظاهر می شود، اما این پیک غالباً بسیار ضعیف بوده و در طیف های سلولوز اکسید شده به دلیل هم پوشانی با پیک های قوی تر C-H آلکان ها قابل تشخیص نیست [۲۱، ۲۵]. همچنین، بخشی از گروه های آلدیدی ممکن است، به صورت آبپوشی (ژمینال دیول) یا همی استال وجود داشته باشند که پیک آن ها در ناحیه ۳۵۰۰-۳۲۰۰ cm⁻¹ با پیک هیدروکسیل هم پوشانی دارد [۲۵]. با وجود این موارد، وجود پیک قوی کربونیل در ۱۷۲۵ cm⁻¹ و نیز تغییرات در ناحیه ۱۱۰۰-۱۰۰۰ cm⁻¹ مرتبط با ارتعاش های کششی (C-O) به عنوان

آهن-روی ابتدا به کمک برهم کنش های الکتروستاتیکی روی صفحه های گرافن اکسید تثبیت شده و سپس در مجاورت DCC با اتیلن دی آمین پیوند کووالانسی برقرار کرده و آمین دار می شوند. درباره استخراج سلولوز، روش قلیایی به عنوان روشی کارآمد برای جداسازی همی سلولوز از سلولوز شناخته می شود که در آن گروه های هیدروکسیل باعث گسستن پیوندهای هیدروژنی بین سلولوز و همی سلولوز می شوند. استیک اسید به منظور خالص سازی و هیدروژن پراکسید برای رنگ زدایی به کار می روند. سلولوز در مجاورت سدیم پریدات اکسید شده و گروه های هیدروکسیل آن به گروه های آلدیدی تبدیل می شوند. در پایان، سلولوز اکسید و گرافن اکسید آمین دار-نانوذرات آهن-روی در اتانول پراکنده شده و در مجاورت پتاسیم بورهیدرید (به عنوان عامل کاهنده برای تبدیل ایمین به آمین)، محصول نهایی سنتز می شود.

سنتر نانوکامپوزیت گرافن اکسید-آهن-روی (GO-Fe-Zn)

به منظور نشان دادن نانوذرات فلزی روی سطح گرافن اکسید عامل دار، از عصاره چای سبز به عنوان عامل کاهنده استفاده شد [۶، ۲۲]. بدین منظور، ۱۰ g چای سبز در ۱ L آب مقطر درون حمام روغن با دمای ۸۰ °C به مدت ۱ h هم زده شده و سپس صاف شد. مایع صافی در دمای یخچال برای استفاده های بعدی نگهداری شد. برای سنتز نانوکامپوزیت، ۰/۲ g گرافن اکسید در ۵۰ mL آب مقطر به مدت ۱ h به کمک حمام فراصوت پراکنده شده و سپس محلول های FeSO₄ (۵۰ mL، ۱ میلی مولار) و ZnSO₄ (۵۰ mL، ۱ میلی مولار) به مخلوط افزوده و به مدت ۱ h دیگر به کمک فراصوت پراکنده شد. در ادامه، pH مخلوط با استفاده از NaOH روی ۷ تنظیم شده و با گاز نیتروژن گاززدایی شد. سپس، تحت جریان گاز نیتروژن، عصاره چای سبز (۲۰۰ mL) قطره قطره به مخلوط افزوده و به مدت ۶ h در دمای محیط هم زده شد. محصول نهایی (GO-Fe-Zn) با روش مرکزگریزی جداسازی و با آب مقطر شست و شو داده شد.

سنتر نانوکامپوزیت گرافن اکسید آمین دار-سلولوز-آهن-روی (GO-NH₂-Fe-Zn-DAC)

در گام بعدی، ۰/۰۴ g از GO-Fe-Zn در ۲۰ mL DMF به مدت ۲۰ min به کمک فراصوت پراکنده شده، سپس ۰/۰۲ g اتیلن دی آمین و ۰/۰۰۴ g از DCC به آن افزوده و به مدت ۳۰ min دیگر با فراصوت پراکنده شد. مخلوط حاصل به مدت ۴ h در دمای ۶۰ °C هم زده شده و پس از خنک شدن تا دمای محیط، مرکزگریزی و با آب مقطر و اتانول (سه نوبت) شست و شو داده شد تا نانوکامپوزیت GO-NH₂-Fe-Zn

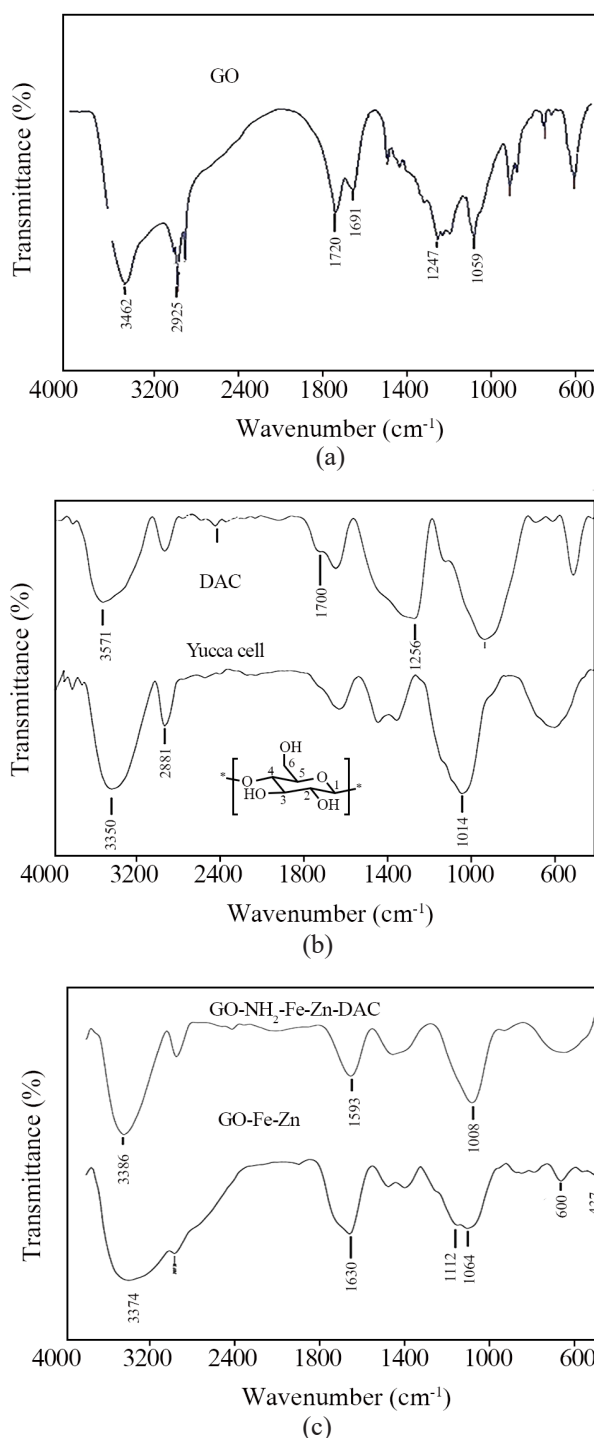
زمینه اکسایش سلولوز با سدیم پریدات همخوانی دارد [۲۱،۲۵]. برای مقایسه طیف FTIR مربوط به Yucca-Cell نیز آورده شده است (شکل ۲ (b)). در طیف FTIR مربوط به GO-Fe-Zn (شکل ۲ (c))، پیک‌های مشاهده شده در 1625 و 3375 cm^{-1} به ترتیب به گروه‌های C=C و O-H موجود روی صفحه‌های گرافن اکسید اختصاص دارند. همچنین، پیک ظاهر شده در محدوده 447 cm^{-1} به ارتعاش‌های کششی پیوند Zn-O نسبت داده می‌شود که با نتایج گزارش شده برای نانوذرات روی مطابقت دارد [۲۶-۲۸]. همچنین پیک در حدود 613 cm^{-1} به ارتعاش‌های پیوند Fe-O نسبت داده می‌شود [۲۹]. در مجموع، وجود نوارهای Zn-O و Fe-O با تشکیل گونه‌های اکسیدی سطحی Fe و Zn سازگار است؛ با وجود این، FT-IR به تنهایی برای اثبات ماهیت فلزی هسته نانوذرات کافی نیست [۲۶-۲۹]. طیف FT-IR نانوکامپوزیت نهایی شباهت زیادی به طیف GO-Fe-Zn دارد (شکل ۲ (c))، اما تغییراتی در ناحیه 900 cm^{-1} مشاهده می‌شود که به وجود گروه‌های عاملی جدید روی سطح GO و همچنین برهم‌کنش‌های ناشی از نانوذرات دو فلزی Fe-Zn مربوط می‌شود.

پتانسیل زتا و پراش پرتو ایکس (XRD)

پتانسیل زتا به عنوان شاخصی از بار سطحی مؤثر ذرات کلئیدی شناخته می‌شود و افزایش قدر مطلق آن معمولاً با افزایش دافعه الکتروستاتیکی و پایداری کلئیدی بیشتر همراه است [۴۱]. اندازه‌گیری‌ها نشان داد، نانوکامپوزیت $\text{GO-NH}_2\text{-Fe-Zn-DAC}$ در آب یون زدوده دارای پتانسیل زتای $-82/1\text{ mV}$ است که در مقایسه با گرافن اکسید خالص (-28 mV) به طور قابل توجهی بیشتر بوده و حاکی از پایداری کلئیدی عالی آن است (شکل ۳ (a)).

بار منفی سطح GO و نانوکامپوزیت نهایی با وجود گروه‌های عاملی اکسیژن دار روی سطوح GO و نانوذرات فلزی همخوانی دارد. همان‌طور که در شکل ۳ (a) مشاهده می‌شود، پایداری کلئیدی زیاد و دافعه الکتروستاتیکی قوی بین صفحه‌های نانوکامپوزیت را می‌توان به وجود اصلاح‌کننده‌های گرافن اکسید، نانوذرات فلزی و لیاف سلولوزی نسبت داد.

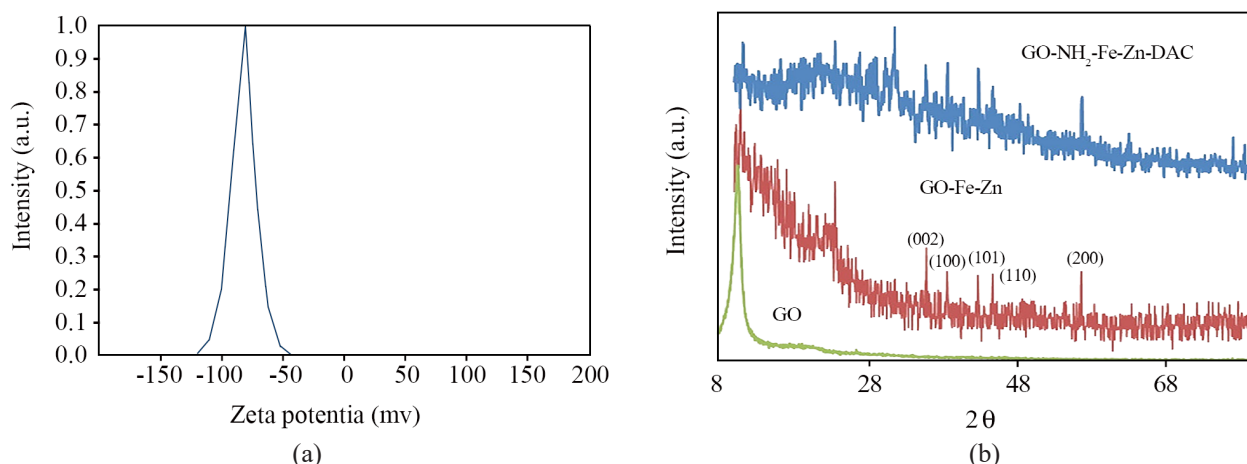
طیف XRD مربوط به GO ، GO-Fe-Zn و $\text{GO-NH}_2\text{-Fe-Zn-DAC}$ در شکل ۳ (b) نشان داده شده است. در طیف GO ، یک پیک شدید در زاویه 2θ برابر $10/8$ مشاهده می‌شود که مربوط به صفحه (001) با فاصله لایه‌ای $0/85\text{ nm}$ محاسبه شده از قانون Bragg است [۱۷،۳۱]. نبود پیک گرافیت در $2\theta=9/26^\circ$ تأییدکننده اکسایش کامل گرافیت و تشکیل GO است. در طیف XRD مربوط به GO-Fe-Zn ، افزون بر پیک با شدت کاهش یافته GO در $2\theta=11/2^\circ$ ، پیک‌های جدیدی ظاهر



شکل ۲- طیف FTIR مربوط به: (a) GO ، (b) DAC ، Yucca-Cell و (c) GO-Fe-Zn NPs و $\text{GO-NH}_2\text{-Fe-Zn-DAC}$.

Fig. 2. FT-IR spectra of (a) GO , (b) DAC , (c) Yucca-Cell , GO-Fe-Zn NPs , and $\text{GO-NH}_2\text{-Fe-Zn-DAC}$.

شواهد اصلی تأییدکننده اکسایش موفق سلولوز و تشکیل گروه‌های آلدهیدی محسوب می‌شوند (۲۵). این نتایج با مطالعات پیشین در



شکل ۳- (a) پتانسیل زتا مربوط به GO-NH₂-Fe-Zn-DAC و (b) طیف XRD مربوط به GO، GO-Fe-Zn و GO-NH₂-Fe-Zn-DAC.
Fig. 3. (a) Zeta potential of GO-NH₂-Fe-Zn-DAC and (b) XRD patterns of GO, GO-Fe-Zn, and GO-NH₂-Fe-Zn-DAC.

DAC در مقیاس‌های مختلف در شکل ۴ نشان داده شده است. با توجه به تصاویر شکل ۴ (a)، ساختار ورقه‌ای گرافن اکسید به وضوح قابل مشاهده است و لایه‌ها در حالت جامد ماکروسکوپی نیز به صورت ورقه‌های نازکی روی هم قرار گرفته‌اند. تصاویر SEM نانوکامپوزیت‌های گرافن اکسید نشان می‌دهند، با اصلاح گرافن اکسید و تشکیل ذرات فلزی روی سطح آن، شکل‌شناسی سطح ورقه‌ها تغییر کرده و نانوذرات تقریباً کروی و درهم‌تنیده‌ای ایجاد شده است. در برخی نقاط، نانوذرات تجمع یافته‌اند که می‌تواند به دلیل ناهمگن بودن نانوذرات فلزی باشد. اندازه نانوذرات کروی در تصاویر SEM مربوط به GO-NH₂-Fe-Zn، ۴ (c) و (f) کوچکتر و منظم‌تر از تصاویر مربوط به GO-Fe-Zn، ۴ (b) است که این می‌تواند به دلیل وجود گروه‌های عاملی آمینی اتیلن دی‌آمین به عنوان اصلاح‌کننده گرافن اکسید باشد. در تصاویر SEM مربوط به GO-NH₂-Fe-Zn-DAC، ۴ (d) و (g) صفحه‌ها در اندازه ماکرو به دلیل وجود الیاف سلولوزی در کنار نانوذرات مشاهده می‌شود. برای تأیید وجود الیاف سلولوزی در نانوکامپوزیت، تصویر SEM مربوط به DAC نیز ارائه شده است که نشان‌دهنده ورقه‌های ماکرو است (شکل ۴ (e)).

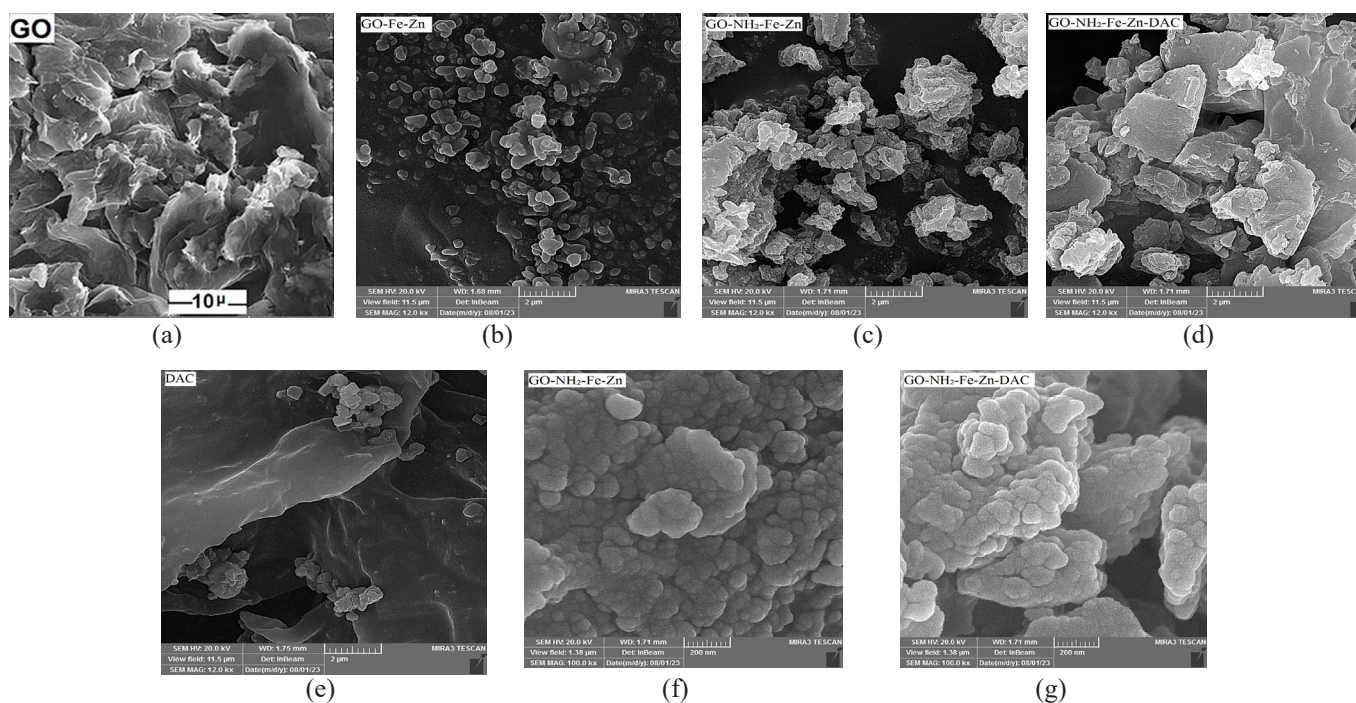
خواص مغناطیسی (VSM) و بررسی قابلیت نانوکامپوزیت در حذف یون سرب (Pb²⁺)

شکل ۵ منحنی‌های VSM مربوط به نانوکامپوزیت‌های GO-Fe-Zn و GO-NH₂-Fe-Zn-DAC را نشان می‌دهد. پارامترهای مغناطیسی به دست آمده از آزمون VSM در جدول ۱ آمده است. با توجه به نتایج، هر دو نانوکامپوزیت GO-Fe-Zn و GO-NH₂-Fe-Zn-DAC رفتار فرومغناطیس نرم نشان می‌دهند. نمونه GO-Fe-Zn دارای

شده‌اند. پیک‌های مشاهده شده در حدود ۴۴/۸ و ۶۴/۴ با بازتاب‌های شاخص α -Fe در حدود ۴۴/۷ و ۶۵° به ترتیب متناظر با صفحه‌های (۱۱۰) و (۲۰۰) ساختار مکعبی مرکزپر، سازگار هستند [۳۲]. با وجود این، پیک ۵۶/۷ با الگوی استاندارد (JCPDS 06-0696) α -Fe تطابق مستقیمی ندارد و در این مطالعه، بدون شناسایی فاز تکمیلی به فاز مشخصی نسبت داده نشد. پیک‌های روی فلزی در زوایای ۳۶/۱، ۳۸/۸ و ۴۲/۹° به ترتیب با صفحه‌های (۰۰۲)، (۱۰۰) و (۱۰۱) روی با ساختار شش‌وجهی و استاندارد JCPDS 04-0831 سازگار هستند [۳۳]. جابه‌جایی جزئی این پیک‌ها نسبت به مقادیر مرجع می‌تواند ناشی از ابعاد نانومتری، کرنش شبکه یا همپوشانی فاز باشد. در مجموع، سازگاری بخشی از پیک‌ها با بازتاب‌های Fe و Zn، همراه با گزارش‌های پیشین در سامانه‌های Fe-Zn/GO، از وجود گونه‌های Fe/Zn روی صفحه‌های GO پشتیبانی می‌کند [۳۳]. در طیف XRD نانوکامپوزیت نهایی GO-NH₂-Fe-Zn-DAC، وجود پیک GO با شدت کمتری نسبت به GO خالص نشان‌دهنده حفظ ساختار GO پس از اصلاحات شیمیایی است. پیک‌های مربوط به نانوذرات دوفلزی Fe-Zn نیز با شدت کمتری نسبت به نمونه GO-Fe-Zn قابل مشاهده هستند. این کاهش شدت می‌تواند ناشی از پوشیده شدن سطح نانوذرات به وسیله زنجیرهای سلولوز و نیز بی‌شکل شدن نسبی ساختار در اثر تثبیت کووالانسی باشد. همچنین پیک پهنی در محدوده ۲۴-۲۲° درجه ظاهر شده است که می‌تواند به برهم‌کنش میان لایه‌های GO و زنجیرهای سلولوزی دی‌آلدئید نسبت داده شود.

شکل‌شناسی (FE-SEM)

تصاویر SEM مربوط به ترکیبات GO-NH₂-Fe-Zn، GO-Fe-Zn و GO

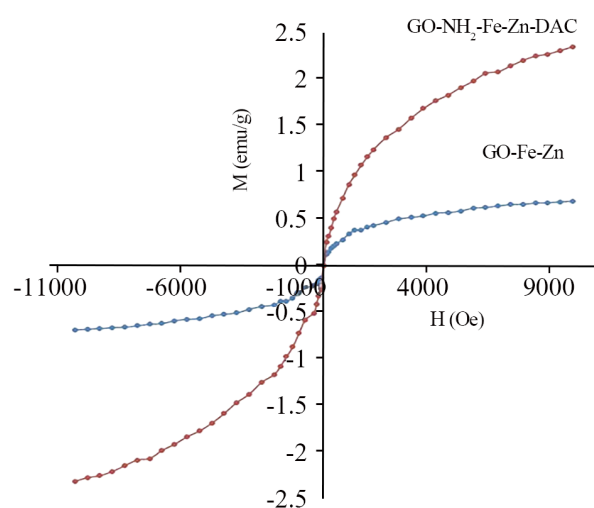


شکل ۴- تصاویر SEM مربوط به (a) GO، (b) GO-Fe-Zn، (c) GO-NH₂-Fe-Zn، (d) GO-NH₂-Fe-Zn-DAC، و (e) DAC. Fig. 4. SEM images of GO (a), GO-Fe-Zn (b), GO-NH₂-Fe-Zn (c, and f), GO-NH₂-Fe-Zn-DAC (d, and g), and DAC (e).

برابر بیشتر)، در حالی که مغناطش پسماند ۱/۰۲ emu/g و میدان وادارندگی ۱۱۲ اورستد به دست آمد. مقادیر کم میدان وادارندگی (کمتر از ۱۲۰ اورستد) و نسبت‌های کوچک (M/M_s کمتر از ۰/۵) ماهیت فرومغناطیس نرم هر دو نمونه را تأیید کرده و آن‌ها را برای کاربردهای جداسازی مغناطیسی مناسب می‌سازد. عدم مشاهده حلقه پسماند پهن، نبود نانوذرات فلزی بزرگ (Zn^0 یا Fe^0) را تأیید می‌کند و با نتایج XRD همخوانی دارد.

به منظور بررسی قابلیت اولیه نانوکامپوزیت سنتز شده در حذف یون‌های فلزات سنگین، آزمایش سنجش مقدماتی برای حذف یون سرب (Pb^{2+}) از محیط آبی انجام شد. آزمایش‌ها در دمای اتاق ($25 \pm 1^\circ C$) و $pH = 7$ انجام شد. مقدار ۱۰ mg از نانوکامپوزیت GO-NH₂-Fe-Zn-DAC به ۵۰ mL محلول سرب با غلظت اولیه ۵۰ mg/L اضافه شد و مخلوط در زمان‌های مشخص (۱۰ و ۶۰ min) مورد نمونه‌برداری قرار گرفت. غلظت سرب باقی‌مانده در محلول‌ها با دو روش ولت‌سنجی چرخه‌ای و جذب اتمی (AAS) اندازه‌گیری شد. اندازه‌گیری‌ها با استفاده از الکتروود اصلاح‌شده با نانوکامپوزیت MGO-PANI-PGE مطابق با مطالعه پیشین [۳۴] انجام شد. در این روش، جریان پیک کاهش سرب پیش و پس از فرایند جذب اندازه‌گیری شد. درصد حذف براساس کاهش ارتفاع جریان پیک مطابق معادله (۱) محاسبه شد:

مغناطش اشباع ۰/۶۹ emu/g، مغناطش پسماند ۰/۲۸ emu/g و میدان وادارندگی ۱۱۸ اورستد بود. پس از عامل‌دار کردن گرافن اکسید و اتصال سلولوز دی‌آلدهید، مغناطش اشباع GO-NH₂-Fe-Zn-DAC به‌طور چشمگیری به ۳۶/۲ emu/g افزایش یافت (حدود ۴/۳



شکل ۵- منحنی‌های VSM نانوکامپوزیت‌های GO-Fe-Zn و GO-NH₂-Fe-Zn-DAC.

Fig. 5. VSM curves of GO-Fe-Zn and GO-NH₂-Fe-Zn-DAC nanocomposites.

جدول ۱- پارامترهای مغناطیسی به دست آمده از آزمون VSM نانوکامپوزیت‌ها.

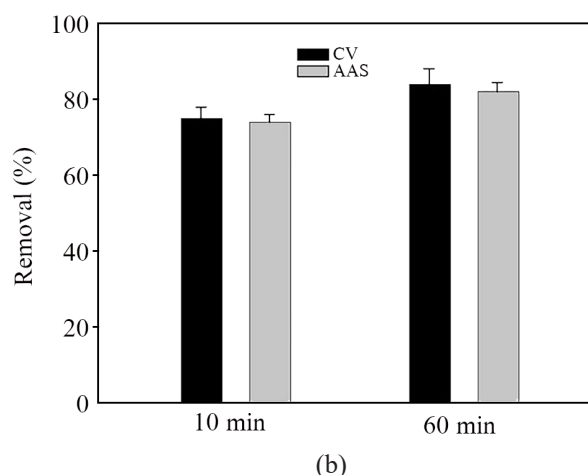
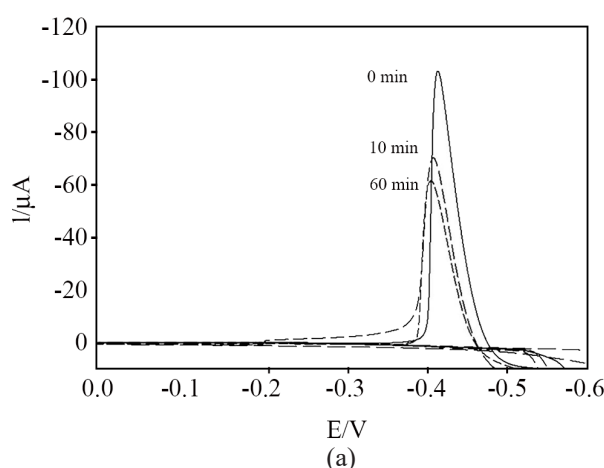
Table 1. Magnetic parameters obtained from VSM analysis of the nanocomposites.

Magnetic Parameter	GO-NH ₂ -Fe-Zn-DAC	GO-Fe-Zn
Saturation magnetization, M _s (emu/g)	2.36	0.69
Remanent magnetization, M _r (emu/g)	1.02	0.28
Coercivity, H _c (Oe)	1.2	118
M _r /M _s	0.43	0.41
Magnetic behavior	Soft ferromagnetic	Soft ferromagnetic

با افزایش زمان تماس تا ۶۰ min، این مقدار به ۸۴٪ رسیده است (غلظت نهایی ۸ mg/L). نتایج جذب اتمی نیز کاهش ۷۴٪ در ۱۰ min و ۸۲٪ در ۶۰ min را نشان داد که همخوانی بسیار خوبی با نتایج ولت‌سنجی دارد. نتایج حاصل از دو روش در شکل ۶ (b) مقایسه شده است. این تطابق زیاد، صحت روش ولت‌سنجی چرخه‌ای را که در مطالعه پیشین [۳۴] استاندارد شده است، تأیید می‌کند. براساس داده‌های حاصل از ولت‌سنجی چرخه‌ای، یک برازش ساده با مدل سینتیکی شبه‌درجه یک انجام شد. ضریب همبستگی (R²) ۰/۹۸ و ثابت سرعت جذب (k₁) ۰/۰۴۵ min⁻¹ محاسبه شد که نشان‌دهنده سرعت زیاد جذب در مرحله اولیه است. ظرفیت جذب

$$(1) \quad I_0 \times 100 \text{ Removal} / (I_0 - I_t)$$

در این معادله، I₀ جریان پیک اولیه (پیش از افزودن جاذب) و I_t جریان پیک پس از زمان t است. برای تأیید صحت نتایج، غلظت سرب در نمونه‌های مشابه با استفاده از دستگاه جذب اتمی نیز اندازه‌گیری شد. این روش به‌عنوان روش استاندارد و مستقل برای سنجش غلظت فلزات سنگین استفاده شد. نتایج حاصل در شکل ۶ نشان داده شده است. همان‌طور که در شکل ۶ (a) مشاهده می‌شود، نتایج ولت‌سنجی چرخه‌ای نشان داد، غلظت سرب در ۱۰ دقیقه اول به‌مقدار ۷۵٪ کاهش یافته است (از ۵۰ mg/L به ۱۲/۵ mg/L) و



شکل ۶- (a) ولتاموگرام‌های چرخه‌ای به دست آمده در سطح الکتروود اصلاح شده با نانوکامپوزیت MGO-PANI-PGE در محلول دارای ۵۰ mg/L Pb(II) پس از مجاورت با نانوکامپوزیت GO-NH₂-Fe-Zn-DAC به مدت ۱۰ و ۶۰ min، (b) مقایسه درصد حذف Pb(II) اندازه‌گیری شده با روش ولت‌سنجی چرخه‌ای (CV) و طیف‌سنجی جذب اتمی (AAS) پس از ۱۰ و ۶۰ min تماس با نانوکامپوزیت GO-NH₂-Fe-Zn-DAC.

Fig. 6. (a) Cyclic voltammograms obtained at the surface of the MGO-PANI-PGE-modified electrode in a solution containing 50 mg/L Pb after exposure to GO-NH₂-Fe-Zn-DAC nanocomposite for 10 and 60 min, (b) Comparison of Pb(II) removal percentages determined by cyclic voltammetry (CV) and atomic absorption spectroscopy (AAS) after 10 and 60 min of contact with the GO-NH₂-Fe-Zn-DAC.

جدول ۲- مقایسه ظرفیت جذب یون سرب به وسیله نانوکامپوزیت GO-NH₂-Fe-Zn-DAC با جاذب‌های مشابه.

Table 2. Comparison of lead ion adsorption capacity by GO-NH₂-Fe-Zn-DAC nanocomposite with similar adsorbents.

Adsorbent	Adsorption capacity (mg/g)	Experimental conditions	Reference
BC/GO (Bacterial Cellulose/Graphene Oxide)	303.0	pH = 6-8; 25 °C	35
GO/HPAMAM/DAC	680.3	25 °C	36
GO-TETA-DAC	80.9	pH = 5; 25 °C	16
GO/cellulose membranes	107.9	25 °C	37
GO/modified cellulose	186.5	25 °C	38
GO-NH ₂ -Fe-Zn-DAC	~210	pH = 7; 25 °C	This work

دهنده‌های الکترون عمل کرده و با تشکیل کمپلکس‌های هم‌آرایی پایدار با یون‌های سرب، به جذب کارآمد فلز کمک می‌کنند [۳۹]. از سوی دیگر، سطح ویژه زیاد گرافن اکسید و ساختار متخلخل حاصل از وجود الیاف سلولوزی، موقعیت‌های فعال فراوانی را برای جذب فیزیکی یون‌های سرب به کمک نیروهای واندروالسی و اثرهای پرشدن حفره‌ها فراهم می‌آورد. در نهایت، وجود نانوذرات آهن-روی می‌تواند با تغییر شیمی سطح و فراهم کردن جایگاه‌های اضافی در برهم‌کنش با گونه‌های جذب‌شونده نقش داشته باشد. با وجود این، سهم اختصاصی این جزء در جذب Pb²⁺ بدون آزمون‌های سطح تکمیلی مانند XPS به‌طور قطعی قابل تفکیک نیست [۳۳]. سرعت زیاد جذب در ۱۰ دقیقه اول (۷۵٪) نشان می‌دهد، جذب سطحی فیزیکی و برهم‌کنش‌های الکتروستاتیکی نقش غالب در مرحله اولیه دارند، در حالی که جذب شیمیایی (تشکیل کمپلکس) در زمان‌های طولانی‌تر رخ می‌دهد.

نتیجه‌گیری

در این پژوهش، نانوکامپوزیت سبز بر پایه تثبیت کووالانسی سلولوز دی‌آلدهید استخراج‌شده از گیاه یوکا روی نانوهیبرید گرافن اکسید عامل‌دارشده با اتیلن دی‌آمین دارای نانوذرات دوفلزی آهن-روی با موفقیت سنتز و مشخصه‌یابی شد. نتایج آزمون FTIR تشکیل پیوند کووالانسی بین گرافن اکسید آمین‌دار و سلولوز دی‌آلدهید را تأیید کرد. تصاویر FE-SEM توزیع نسبتاً یکنواخت نانوذرات کروی با اندازه ۵۰-۳۰ nm را روی صفحه‌های گرافن اکسید نشان داد. پتانسیل زتای mV ۸۲/۱- نانوکامپوزیت، بیانگر پایداری کلئیدی بسیار زیاد نانوکامپوزیت سنتز شده است. آزمون VSM نشان داد، نانوکامپوزیت نهایی با مغناطش اشباع ۳۶/۲ emu/g و میدان وادارندگی ۱۱۲ اورستد، رفتار فرومغناطیس نرم نشان می‌دهد که آن را برای جداسازی

تعادلی (q_e) براساس داده‌های ۶۰ min، حدود ۲۱۰ mg/g برآورد می‌شود که با استفاده از معادله $q_e = (C_0 - C_e) \times V/m$ محاسبه شد که در آن C₀ و C_e به ترتیب غلظت‌های (mg/L) اولیه و تعادلی، V حجم محلول (L) و m مقدار جاذب (g) است.

گفتنی است، عوامل دیگری مانند غلظت اولیه آلاینده، مقدار جاذب و دما نیز می‌توانند بر کارایی جذب اثرگذار باشند که مطالعه نظام‌مند آن‌ها در قالب این پژوهش نمی‌گنجد و برای مطالعات تکمیلی پیشنهاد می‌شود. با توجه به سنتز سبز نانوکامپوزیت با استفاده از عصاره چای سبز و سلولوز طبیعی استخراج‌شده از گیاه یوکا، این ماده زیست‌تخریب‌پذیر بوده و قابلیت امیدوارکننده‌ای برای مطالعات آتی در زمینه تصفیه پساب‌های آلوده به فلزات سنگین دارد.

در جدول ۲، ظرفیت جذب برآوردشده برای نانوکامپوزیت سنتز شده با نتایج گزارش شده برای جاذب‌های مشابه در مراجع معتبر مقایسه شده است [۳۵-۳۸، ۱۶]. همان‌طور که نتایج نشان می‌دهد، نانوکامپوزیت GO-NH₂-Fe-Zn-DAC با ظرفیت جذب حدود ۲۱۰ mg/g عملکرد قابل رقابتی نسبت به بسیاری از جاذب‌های مبتنی بر گرافن اکسید و سلولوز نشان می‌دهد و از برخی از جاذب‌ها نیز بهتر عمل کرده است. هرچند ظرفیت جذب آن از نمونه GO/HPAMAM/DAC کمتر است [۳۶]، اما مزایایی مانند سنتز سبز با استفاده از عصاره چای سبز و سلولوز طبیعی استخراج‌شده از گیاه یوکا و زیست‌تخریب‌پذیری ناشی از سلولوز طبیعی را ارائه می‌دهد که آن را برای کاربردهای دوست‌دار محیط زیست متمایز می‌سازد. با توجه به ساختار نانوکامپوزیت سنتز شده، سازوکار جذب یون‌های سرب را می‌توان به چند عامل هم‌افزای زیر نسبت داد:

وجود گروه‌های عاملی با بار منفی شامل هیدروکسیل، کربوکسیل و آمین روی سطح نانوکامپوزیت، تمایل زیاد نسبت به کاتیون‌های سرب با بار مثبت ایجاد کرده و با برهم‌کنش‌های الکتروستاتیکی باعث جذب مؤثر آن‌ها می‌شود [۳۸]. همچنین، اتم‌های نیتروژن موجود در گروه‌های آمینی که از اصلاح گرافن اکسید با اتیلن دی‌آمین حاصل شده‌اند، به‌عنوان

به عنوان عامل کاهنده سبز، این نانوکامپوزیت زیست تخریب پذیر بوده و روش سنتز ارائه شده دوست دار محیط زیست است. نانوکامپوزیت سنتز شده می تواند به عنوان ماده پایه برای مطالعات تکمیلی کامل تر در زمینه حذف فلزات سنگین از پساب های صنعتی استفاده می شود. انجام مطالعات کامل هم دمای جذب، سینتیک، ترمودینامیک و اثر پارامترهای مختلف (pH، دما، زمان تعادل، غلظت اولیه و مقدار جاذب) به عنوان گام بعدی این پژوهش پیشنهاد می شود. همچنین انجام آزمون های تکمیلی مانند XPS و EDX-MAP برای بررسی دقیق تر توزیع عناصر و حالت شیمیایی سطح نمونه در دستور کار پژوهش های آتی قرار دارد.

مغناطیسی از محیط آبی مناسب می سازد. در بررسی مقدماتی حذف یون سرب، نانوکامپوزیت سنتز شده توانست ۸۴٪ از یون های سرب را در مدت ۶۰ min حذف کند. براساس داده های ولت سنجی چرخه ای، برازش داده ها با مدل سینتیکی شبه درجه یک انجام شد. ضریب همبستگی (R^2) ۰/۹۸ و ثابت سرعت جذب (k_1) 0.45 min^{-1} محاسبه شد که نشان دهنده سرعت زیاد جذب در مرحله اولیه است. ظرفیت جذب تعادلی نانوکامپوزیت حدود 210 mg/g برآورد شد که عملکرد قابل رقابتی با بسیاری از جاذب های مشابه مبتنی بر گرافن اکسید و سلولوز دارد.

با توجه به استفاده از سلولوز طبیعی (گیاه یوکا) و عصاره چای سبز

مراجع

- Li G., Zhang W., Luo N., Xue Z., Hu Q., and Zeng W., Bimetallic Nanocrystals: Structure, Controllable Synthesis and Applications in Catalysis, Energy and Sensing, *Nanomaterials*, **11**, 1926, 2021.
- Mohammed H.M. and Rashid S.N., Synthesis and Characterization of Fe-Zn Bimetallic Nanoparticles via Two-Step Laser Ablation and Their Antibacterial Activity, *Karbala Int. J. Mod. Sci.*, **11**, 2025.
- Sathya K., Saravanathamizhan R., Baskar G., Ultrasonic Assisted Green Synthesis of Fe and Fe/Zn Bimetallic Nanoparticles for In Vitro Cytotoxicity Study Against HeLa Cancer Cell Line, *Mol. Biol. Rep.*, **45**, 1397-1404, 2018.
- Oruç Z., Ergüt M., Uzunoğlu D., Özer A., Green Synthesis of Biomass-Derived Activated Carbon/Fe-Zn Bimetallic Nanoparticles from Lemon (Citrus limon (L.) Burm. f.) Wastes for Heterogeneous Fenton-Like Decolorization of Reactive Red 2, *J. Environ. Chem. Eng.*, **7**, 103231, 2019.
- Ahmed S., Ahmad M., Swami B.L., and Ikram S., A Review on Plants Extract Mediated Synthesis of Silver Nanoparticles for Antimicrobial Applications: A Green Expertise, *J. Adv. Res.*, **7**, 17-28, 2016.
- Lin X., Xu Q., Gan L., Owens G., and Chen Z. Cyclodextrin Modified Green Synthesized Graphene Oxide@Iron Nanoparticle Composites for Enhanced Removal of Oxytetracycline, *J. Colloid Interface Sci.* **608**, 3159-3167, 2022.
- Fathalipour S., Ataei B., and Janati F., Aqueous Suspension of Biocompatible Reduced Graphene Oxide-Au NPs Composite as an Effective Recyclable Catalyst in a Betti Reaction, *Mater. Sci. Eng. C*, **97**, 356-366, 2019.
- Fathalipour S. and Mardi M., Synthesis of Silane Ligand-Modified Graphene Oxide and Antibacterial Activity of Modified Graphene-Silver Nanocomposite, *Mater. Sci. Eng. C*, **79**, 55-65, 2017.
- Dreyer D.R., Park S., Bielawski C.W., and Ruoff R.S., The Chemistry of Graphene Oxide, *Chem. Soc. Rev.* **39**, 228-240, 2010.
- Ahmed M.A., Ahmed M.A., and Mohamed A.A. Facile Adsorptive Removal of Dyes and Heavy Metals from Wastewaters Using Magnetic Nanocomposite of Zinc Ferrite@Reduced Graphene Oxide, *Inorg. Chem. Commun.* **144**, 109912, 2022.
- Massoumi B., Sarvari R., Fakhri E., Emami Rad K., Conductive Nanofibrous Scaffold Based on Polyvinyl Alcohol/Cellulose Nanocrystals/Reduced Graphene Oxide Composite Reinforced with Curcumin for Wound Healing, *J. Ultrafine Grained Nanostruct. Mater.*, **57**, 92-103, 2024.
- Kumar R., Singh R.K., Kumar V., and Moshkalev S.A., Functionalized Nanosize Graphene and Its Derivatives for Removal of Contaminations and Water Treatment. In: *A New Generation Material Graphene: Applications in Water Technology*, Springer, 133-185, 2018.
- D'Amora U., Dacrory S., Hasanin M.S., Longo A., Soriente A., and Kamel S., Advances in the Physico-Chemical, Antimicrobial and Angiogenic Properties of Graphene-Oxide/Cellulose Nanocomposites for Wound Healing. *Pharmaceutics*, **15**, 338, 2023.
- Habibi Y., Key Advances in the Chemical Modification of Nanocelluloses, *Chem. Soc. Rev.*, **43**, 1519-1542, 2014.

15. Azanaw A., Haile A., and Rotich G.K., Extraction and Characterization of Fibers from Yucca Elephantine Plant, *Cellulose*, **26**, 795-804, 2019.
16. Yao M., Wang Z., Liu Y., Yang G., and Chen J., Preparation of Dialdehyde Cellulose Grafted Graphene Oxide Composite and Its Adsorption Behavior for Heavy Metals from Aqueous Solution, *Carbohydr. Polym.*, **212**, 345-351, 2019.
17. Hummers W.S. Jr. and Offeman R.E. Preparation of Graphitic Oxide, *J. Am. Chem. Soc.*, **80**, 1339, 1958.
18. Marcano D.C., Kosynkin D.V., Berlin J.M., Sinitskii A., Sun Z., and Slesarev A. Improved Synthesis of Graphene Oxide, *ACS Nano*, **4**, 4806-4814, 2010
19. Liu Y., Peng Y., Zhang T., Qiu F., and Yuan D., Superhydrophobic, Ultralight and Flexible Biomass Carbon Aerogels Derived from Sisal Fibers for Highly Efficient Oil-Water Separation, *Cellulose*, **25**, 3067-3078, 2018.
20. Sirvio J., Hyvakkio U., Liimatainen H., Niinimäki J., and Hormi O. Periodate Oxidation of Cellulose at Elevated Temperatures Using Metal Salts as Cellulose Activators, *Carbohydr. Polym.*, **83**, 1293-1297, 2011.
21. Madivoli E.S., Kareru P.G., Gachanja A.N., Mugo S.M., Makhanu D.S., Synthesis and Characterization of Dialdehyde Cellulose Nanofibers from O. sativa Husks, *SN Appl. Sci.*, **1**, 723, 2019.
22. Swain M., Mishra D., and Sahoo G., A Review on Green Synthesis of ZnO Nanoparticles, *Discov. Appl. Sci.*, **7**, 997, 2025.
23. Fathalipour S., Pourbeyram S., Sharafian A., Tanomand A., and Azam P., Biomolecule-Assisted Synthesis of Ag/Reduced Graphene Oxide Nanocomposite with Excellent Electrocatalytic and Antibacterial Performance, *Mater. Sci. Eng. C*, **75**, 742-751, 2017.
24. Yu Y., Guo W., Qu J., Wang S., Wang X., and He Y., Preparation and Characterization of Dialdehyde Cellulose Nanocrystals from the Waste Nutshell, *Environ. Dev. Sustain.* **27**, 10789-10805, 2025.
25. Calvini P., Gorassini A., Luciano G., and Franceschi E., FTIR and WAXS Analysis of Periodate Oxycellulose: Evidence for a Cluster Mechanism of Oxidation, *Vib. Spectrosc.*, **40**, 177-183, 2006.
26. Sowri Babu K., Ramachandra Reddy A., Sujatha C., Venugopal Reddy K., and Mallika A. Synthesis and Optical Characterization of Porous ZnO, *J. Adv. Ceram.*, **2**, 260-265, 2013.
27. Babu K.S., Sanguino P., Schwarz R., Santos L., Alves S., Fedorov A., Himamaheswara Rao V., Kiran J.N., and Sujatha C., Orange Photoluminescence from Hydrothermally Grown ZnO Nanorods and Study on Its Defects, *Indian J. Pure Appl. Phys.*, **59**, 462-467, 2021.
28. Hajalilou A., Kamari H.M., and Shameli K., Dielectric and Electrical Characteristics of Mechanically Synthesized Ni-Zn Ferrite Nanoparticles, *J. Alloys Compd.*, **708**, 813-826, 2017.
29. Krajewski M., Liou S.-C., Kubacki J., Investigation of Iron Oxide Shell and Iron Core in Magnetically-Assisted Synthesized Wire-Like Nanochains. *Nanotechnology*, **34**, 325701, 2023.
30. Fathalipour S., Abdi E. Glycine-Assisted Aqueous Suspension of Reduced Graphene Oxide/Ag Nanocomposite via In Situ Reduction at Room Temperature: Synthesis and Electroactivity Behavior, *Synth. Met.*, **221**, 159-168, 2016.
31. Cullity B.D., Stock S.R., *Elements of X-Ray Diffraction*, 3rd ed., Prentice Hall, Upper Saddle River, NJ, 2001.
32. Duan W., Li X., Wang Y., Qiang R., Tian C., Wang N., Han X., and Du Y., Surface Functionalization of Carbonyl Iron with Aluminum Phosphate Coating toward Enhanced Anti-Oxidative Ability and Microwave Absorption Properties, *Appl. Surf. Sci.*, **427**, 594-602, 2018.
33. SefidSiahbandi M., Moradi O., Akbari-Adergani B., Azar P.A., and Tehrani M.S., The Effect of Fe-Zn Mole Ratio (2:1) Bimetallic Nanoparticles Supported by Hydroxyethyl Cellulose/Graphene Oxide for High-Efficiency Removal of Doxycycline, *Environ. Res.* **218**, 114925, 2023.
34. Pourbeyram S., Fathalipour S., Rashidzadeh B., Firuzmand H., and Rahimi B. Simultaneous Determination of Cd and Pb in the Environment Using a Pencil Graphite Electrode Modified with Polyaniline/Graphene Oxide Nanocomposite, *Environ. Sci. Water Res. Technol.*, **9**, 3355-3365, 2023.
35. Mensah A., Lv P., Narh C., Huang J., Wang D., and Wei Q., Sequestration of Pb(II) Ions from Aqueous Systems with Novel Green Bacterial Cellulose Graphene Oxide Composite, *Materials*, **12**, 218, 2019.
36. Liu Z., Wang Q., Huang X., and Qian X. Surface Functionalization of Graphene Oxide with Hyperbranched Polyamide-Amine and Microcrystalline Cellulose for Efficient Adsorption of Heavy Metal Ions, *ACS Omega*, **7**, 10944-10954, 2022.
37. Sitko R., Musielak M., Zawisza B., Talik E., and Gabor A., Graphene Oxide/Cellulose Membranes in Adsorption of Divalent Metal Ions, *RSC Adv.*, **6**, 96595-96605, 2016.
38. Yakout A.A., El-Sokkary R.H., Shreadah M.A., and Abdel Hamid O.G., Cross-Linked Graphene Oxide Sheets via Modified Extracted Cellulose with High Metal Adsorption, *Carbohydr.*

- Polym.*, **172**, 20-27, 2017.
39. Majdoub M., Amedlous A., Anfar Z., Jada A., and El Alem N., Engineering of Amine-Based Binding Chemistry on Functionalized Graphene Oxide/Alginate Hybrids for Simultaneous and Efficient Removal of Trace Heavy Metals: Towards Drinking Water, *J. Colloid Interface Sci.*, **589**, 511-524, 2021.
 40. Wang Z., Yao M., Wang X., Li S., Liu Y., and Yang G., Influence of Reaction Media on Synthesis of Dialdehyde Cellulose/GO Composites and Their Adsorption Performances on Heavy Metals, *Carbohydr. Polym.*, **232**, 115781, 2020.
 41. Bhattacharjee S., DLS and Zeta Potential-What They Are and What They Are Not? *J. Control. Release*, **235**, 337-351, 2016.