



فصلنامه علوم محیطی، دوره هجدهم، شماره ۳، پاییز ۱۳۹۹

۷۴-۸۴

سنتز سبز ذرات اکسید مغناطیسی آهن - نیکل با استفاده از عصاره هلیله سیاه

حدیثه اسدیان^۱، فریبا تدین^۱ و ساناز رئیس فرشید^{۲*}

^۱ گروه شیمی، دانشکده شیمی، واحد تهران شمال، دانشگاه آزاد اسلامی، تهران، ایران

^۲ گروه شیمی، دانشکده علوم، واحد لاهیجان، دانشگاه آزاد اسلامی، لاهیجان، ایران

تاریخ دریافت: ۱۳۹۸/۰۷/۰۳ تاریخ پذیرش: ۱۳۹۸/۱۱/۰۲

اسدیان، ح.، ف. تدین و س. رئیس فرشید. ۱۳۹۹. سنتز سبز ذرات اکسید مغناطیسی آهن - نیکل با استفاده از عصاره هلیله سیاه.

فصلنامه علوم محیطی. ۱۸(۳): ۷۴-۸۴

سابقه و هدف: امروزه استفاده از روش‌های سنتز سبز بدون استفاده از مواد شیمیایی، جهت تولید نانو ذرات زیست سازگار، با ویژگی‌های معین مورد توجه قرار گرفته است. یکی از مهمترین روش‌های سنتز سبز، تولید نانو ذرات فلزی با استفاده از ارگانوسیم‌ها است. بهره‌برداری از مواد مختلف گیاهی برای سنتز نانو ذرات یک فناوری سبز محسوب می‌شود، زیرا هیچ ماده شیمیایی مضر را درگیر نمی‌کند. یکی از تکنیک‌های روش سنتز سبز استفاده از عصاره گیاهان است که با استفاده از ترکیب‌های احیا کننده موجود در خود، سبب احیای نمک‌های فلزی به یون‌های فلزی می‌شوند. در سال‌های اخیر نانو ذرات مغناطیسی پوشش دار شده با توجه به ویژگی‌های منحصر به فرد خود کاربردهای جدید و گسترده‌ای در صنعت و پزشکی پیدا کرده‌اند. اصلاح سطح این نانو ذرات توسط عصاره گیاه سبب افزایش کارایی و راندمان آن‌ها در زمینه جذب رنگ‌های خطرناک و آلاینده‌های معدنی می‌شود. همچنین به دلیل فعالیت‌های خوب ضد باکتریایی و ضد التهابی از آن‌ها در زمینه بیولوژیکی نیز می‌توان استفاده نمود.

مواد و روش‌ها: جهت سنتز نانو ذرات مغناطیسی نمک‌های کلرید آهن و نیترات نیکل با عصاره هلیله سیاه مخلوط و تحت همزن شدید قرار گرفتند. تغییر فوری رنگ در این مرحله از قهوه‌ای به سیاه نشان دهنده احیای یون‌های فلزی به نمک‌های فلزی بود. سپس نمونه خشک و به کمک هاون پودر شد. ساختار و ریخت شناسی^۱ نانو ذرات سنتز شده با استفاده از تکنیک‌های طیف سنجی تبدیل فوریه مادون قرمز (FTIR)^۲، پراش اشعه ایکس (XRD)^۳ و میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM)^۴ مورد بررسی قرار گرفت.

نتایج و بحث: هدف از این پژوهش سنتز و توسعه یک روش جدید برای تهیه نانو ذرات با ویژگی سوپر مغناطیسی با استفاده از روش‌های محیط زیستی و شیمی سبز است. بدین منظور از هلیله سیاه به عنوان یک گیاه دارویی برای اولین بار در تهیه نانو ذرات مغناطیسی اکسید آهن - نیکل استفاده شد. طیف سنجی تبدیل فوریه مادون قرمز، اصلاح سطح نانو ذرات مغناطیسی با استفاده از عصاره هلیله سیاه را تأیید

* Corresponding Author: Email Address. RaeisFarshid@liau.ac.ir
<http://doi.org.10.29252/envs.18.3.74>

کرد و میکروسکوپ الکترونی روبشی ریخت شناسی و اندازه حدودی نانو ذرات مغناطیسی بدون پوشش و زیست عملگرا شده با این عصاره را معین نمود. همچنین این نتایج نشان داد که نانو ذرات از نظر ساختار کمابیش کروی و قطر متوسط ذرات آن‌ها ۲۶/۶۷ نانومتر بوده است. الگوی پراش اشعه ایکس طبیعت کریستالی، خلوص بالا و ساختار مکعب محور نانو ذرات مغناطیسی بدون پوشش و زیست عملگرا شده را به خوبی نشان داد.

نتیجه‌گیری: رویکرد ما استفاده از عصاره آبی استخراج شده از هلیله سیاه به عنوان عامل کاهش دهنده، تثبیت کننده و پوششی در سنتز نانو ذرات مغناطیسی آهن و نیکل است. روش پیشنهادی در این پژوهش سنتز سبز نانو ذرات مغناطیسی دو جزئی با استفاده از عصاره گیاه هلیله سیاه را امکان پذیر می‌سازد. استفاده نکردن از روش‌های هیدروترمال و هم رسوبی در ساخت نانو ذره و همچنین تهیه عصاره گیاه محیط آبی و کاربرد آن از مزایای مهم این تحقیق می‌باشد. بنابر این روش ترکیب‌های آنتی اکسیدانی پلی فنولی موجود در عصاره گیاه هم‌زمان موجب کاهش یون‌های فلزی و عامل کمپلکس کننده عمل کرده و سبب سنتز نانو ذرات فلزی می‌گردد که دارای ویژگی‌های آنتی باکتریال نیز است.

واژه‌های کلیدی: شیمی سبز، بیوسنتز، ترکیب‌های آنتی اکسیدان، عصاره هلیله سیاه، نانو ذرات سوپر مغناطیس.

مقدمه

بسیار ساده‌تر و ایمن‌تر است. در واقع روش سنتز سبز بهره گرفتن از اصول و قواعدی است که بتواند تولید ترکیب‌های مخاطره آمیز را در ساخت مصنوعات و محصولات شیمیایی کاهش داده و یا حذف کند (Din et al., 2018; Taib et al., 2018).

سه مرحله اصلی در تهیه نانو ذرات که باید از دید شیمی سبز مورد ارزیابی قرار گیرد، انتخاب حلال مورد استفاده برای سنتز، انتخاب ماده کاهش دهنده بی‌خطر و انتخاب ماده غیر سمی برای تثبیت نانو ذرات می‌باشد. در حال حاضر انواع مختلفی از نانو ذرات فلزی از حلال‌های مختلف ساخته شده که برای استخراج ترکیبات فعال استفاده می‌شود. گزارش شده که اختلاف قطبیت حلال، عصاره‌هایی با ترکیب شیمیایی مختلف به دست می‌آورد. بیشتر روش‌های سنتز سبز که تا به امروز گزارش شده‌اند بر پایه حلال‌های آلی گزارش شده‌اند که این امر به‌طور عمده به دلیل آبگریز بودن مواد نگهدارنده مورد استفاده است. البته روش‌های گزارش شده برای سنتز نانو ذرات فلزی محلول در آب نیز وجود دارد. با این حال، تا به امروز یک رویکرد شیمی سبز

در سال‌های اخیر، گسترش روش‌های شیمیایی سبز کارآمد برای سنتز نانو ذرات فلزی به کانون اصلی مطالعه محققان تبدیل شده است. تلاش‌های زیادی نیز برای ترویج استفاده از روش‌های شیمی سبز و مواد سازگار با محیط زیست در تهیه نانو مواد انجام شد. استفاده از آرگان‌سیسم‌های بیولوژیکی مانند میکروارگانسیسم‌ها، عصاره‌های گیاهی یا زیست توده گیاهی می‌تواند جایگزین روش‌های شیمیایی و فیزیکی برای تولید نانو ذرات به شیوه‌ای سازگار با محیط زیست باشد (Das et al., 2011; Irvani, 2011). در میان روش‌های رایج، استفاده از عصاره گیاهان مختلف نتایج مثبتی در شکل‌گیری نانو ذرات نشان داد. به‌طور کلی عصاره گیاهان که به عنوان پایدارکننده و عامل‌های پوشاننده جهت کنترل رشد بلورها می‌باشد، از متابولیت‌های مختلفی مانند ترپنوئیدها، فنل‌ها، پروتئین‌ها یا کربو هیدرات‌ها تشکیل شده‌اند، که این ترکیب‌ها مسئول مستقیم توانایی عصاره برای انجام واکنش‌های اکسایش - کاهش نانو ذرات هستند. برخلاف روش‌های شیمیایی و فیزیکی وقت‌گیر که پیچیدگی‌های مربوط به خود را دارند، استفاده از روش سبز

استفاده شده است. این گیاه با دارا بودن خصوصیات ویژه دارویی خود ضمن کاهش دادن فلزهای آهن و نیکل به نانو ذرات تهیه شده به آن‌ها خاصیت آنتی باکتریال، می‌بخشد. روش پیشنهادی در این پژوهش منجر به عدم استفاده از مواد و حلال‌های شیمیایی برای سنتز نانو ذرات مغناطیسی آهن و نیکل می‌گردد.

مواد و روش‌ها

مواد

نمک کلرید آهن ۶ آبه ($\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$) و نمک نیترات نیکل ۶ آبه ($\text{NiNO}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$) از شرکت مرک خریداری شد و مورد استفاده قرار گرفت. گاز ازت با درصد خلوص ۹۹/۹ درصد از شرکت دولاب ایران تهیه شد. دانه هلیله سیاه خشک شده از عطاری خریداری و سپس آسیاب گردید.

وسایل و دستگاه‌ها

محلول‌های آبی با استفاده از آب دیونیزه تهیه شدند. همچنین وسایل مورد استفاده در مرحله‌های مختلف، ابتدا با آب دیونیزه به خوبی شستشو و سپس توسط دستگاه آون مدل WTB Binder ساخت کشور آلمان در دمای ۷۰ درجه سانتی گراد خشک گردیدند. دستگاه طیف سنج تبدیل فوریه مادون قرمز مدل Nicolet Magna 550 series FTIR II ساخت کشور آمریکا، دستگاه میکروسکوپ الکترونی روبشی مدل (KYKY-EM3200, Madell Technology, 15 kv) ساخت کشور آمریکا، دستگاه پراش اشعه ایکس مدل X Pert Pro MPD, PANalytical, 2009، ترازوی آنالیت مدل Mettler-AJ100 با دقت ۰/۰۰۰۱، کوره الکتریکی مدل BATE PC 21 ساخت ایران و سانتریفیوژ M-1087 kok usan ساخت کشور ژاپن مورد استفاده قرار گرفتند.

بخش تجربی

عصاره‌گیری هلیله سیاه

برای تهیه عصاره از پودر آسیاب شده هلیله سیاه استفاده شد. ۵ گرم از پودر آسیاب شده هلیله سیاه با ۵۰ میلی لیتر

واحد برای تولید نانو ذرات گزارش نشده است (Ibrahim, 2014; Laskshmanan, 2018).

در سال‌های اخیر ساخت نانو ذرات با ویژگی‌های مغناطیسی مورد توجه قرار گرفته است. نانو ذرات اکسید فلزی به دلیل خواص ویژه خود در کاربردهای نوری و الکتریکی مختلف مورد توجه می‌باشند. تغییر در اندازه نیمه رساناها و فلزها سبب تغییرهای زیادی در ویژگی‌های نوری آن‌ها مانند رنگ و شکاف انرژی می‌شود. نانو ذرات آهن که انتظار می‌رود برای انسان غیر سمی باشد، به دلیل ویژگی‌های منحصر به فرد فوق مغناطیسی، زیست سازگار و زیست تخریب پذیر بودن آن و نانو ذرات نیکل نیز به دلیل کاربردهای خود به عنوان مواد کاتالیزوری، مغناطیسی و کاربردهای پزشکی مورد توجه زیادی قرار گرفته‌اند. در ضمن اندازه ذرات، شکل و مسیر سنتز نانو ذرات نیکل پارامترهای کلیدی برای تعیین رفتار کاتالیزوری آن می‌باشند. به این دلیل در این مطالعه نانو ذرات مغناطیسی متشکل از آهن و نیکل به طور هم‌زمان مورد بررسی قرار گرفتند (Taghavi-Fardood *et al.*, 2017; Escobar *et al.*, 2018).

گیاه هلیله سیاه که با نام *Terminalia chebula* نیز شناخته می‌شود، گیاهی است که در سیستم‌های بومی پزشکی به عنوان درمانی برای تب، سرفه، اسهال، گاستروانتریت، بیماری‌های پوستی، کاندیدیازیس، عفونت ادراری و عفونت زخم مورد استفاده قرار می‌گیرد. این گیاه دارای فعالیت آنتی اکسیدانی، آنتی بیوتیکی، ضد سرطانی، ضد عفونی‌کنندگی، ضد ویروسی، ضد باکتریایی می‌باشد (Mohanpuria *et al.* (2008). سنتز نانو ذرات نقره و طلا با واسطه گیاهی را بررسی کرده بودند. Jebakumar *et al.* (2012) نانو ذرات تک جزیی نقره را با استفاده از عصاره دانه هلیله سنتز کردند و فعالیت کاتالیزوری آن را در کاهش رنگ آبی متیلن ارزیابی کردند.

در این تحقیق، برای اولین بار از عصاره آبی گیاه دارویی هلیله سیاه جهت تهیه نانو ذرات با ویژگی سوپر مغناطیسی

عامل، چگالی الکترونی بر نمک‌های مزدوج فلزی افزایش می‌یابد. بنابراین فلزها به شکل یونی به‌راحتی می‌توانند از قسمت آنیونی خود جدا شده و با استفاده از عصاره گیاهی به فرم پایدار کاهش پیدا کنند. متابولیت‌های ثانویه گیاه شامل آلکالوئیدها، فلاونوئیدها، پلی فنول‌ها و ترپنوئیدها به‌عنوان کمپلکس دهنده یون‌های فلزی عمل می‌کنند و آن‌ها را به حالت‌های با ظرفیت صفر کاهش می‌دهند. به‌طور عمده گروه هیدروکسیل در پلی فنول‌ها و فلاونوئیدها با یون‌های فلزی کئوردینه می‌شوند. مکانیسم سنتز واسطه گیاهی از نانو ذرات اکسید فلزی و فلزی با در نظر گرفتن سه مرحله زیر توصیف می‌شود:

(۱) مرحله فعال‌سازی شامل احیای یون‌های فلزی و کاهش اتم‌های فلزی تحت فرآیند هسته‌زایی، (۲) مرحله رشد شامل انعقاد خودبخودی نانو ذرات مجاور کوچک به نانو ذرات با اندازه بزرگتر است، فرآیندی که در آن نانو ذرات به‌طور مستقیم از طریق هسته‌زایی ناهمگن و رشد و کاهش بیشتر یون فلزی تشکیل می‌شوند. این فرآیند پایداری ترمودینامیکی نانو ذرات را افزایش می‌دهد، (۳) مرحله خاتمه شکل نهایی نانو ذرات را تعیین می‌کند. در مورد نانو ذرات اکسید فلزی، محصول نهایی در هوا خشک یا کلسینه می‌شود تا نانو ذرات اکسید فلز نهایی را به‌دست آورند (Din and Rani, 2016).

نتایج طیف سنجی تبدیل فوریه مادون قرمز

به‌منظور شناسایی گروه‌های عاملی موجود در عصاره دانه هلپله سیاه، محلول رویی واکنش پس از صاف کردن و نانو ذرات سنتز شده، مورد آنالیز قرار گرفتند. گروه‌های عاملی موجود در عصاره هلپله سیاه که به‌عنوان عامل‌های کاهش دهنده یا تثبیت کننده در حین سنتز نانو ذرات عمل می‌کنند و گروه‌های تازه ظاهر شده در نانو ذرات سنتز شده (به‌عنوان نشانه سنتز آن‌ها) با استفاده از مطالعات FTIR مورد بررسی قرار گرفت.

شکل‌های ۱ و ۲ طیف‌های FTIR عصاره هلپله سیاه و نانو ذرات سنتز شده را در ناحیه $4000 - 400 \text{ cm}^{-1}$ نشان

آب دیونیزه مخلوط شد و پس از انتقال به بالن ته گرد ۲۵۰ میلی لیتری به‌مدت ۲ ساعت تحت رفلکس قرار گرفت. کمی بعد از خنک شدن، به‌مدت یک ساعت تحت سانتریفیوژ با سرعت ۳۰۰۰ دور در دقیقه قرار گرفت. عصاره به‌دست آمده می‌تواند در دمای ۴ درجه سانتی‌گراد به‌مدت ۶ ماه داخل یخچال نگهداری شود (Kumar *et al.*, 2013; Ahmad *et al.*, 2016).

سنتر نانو ذرات

جهت سنتز نانو، ذرات نمک‌های کلرید آهن و نیترات نیکل به نسبت وزنی ۱:۲، در بالن ۱۰۰ میلی لیتری با آب دیونیزه به حجم رسانده شد. پس از آن محلول‌ها و عصاره هلپله سیاه به نسبت حجمی ۵:۱ به بالن ته گرد دو دهانه ۲۵۰ میلی لیتری ریخته شد و به‌مدت ۱ ساعت در حضور گاز نیتروژن تحت همزن مغناطیسی با سرعت ۱۵۰۰ دور در دقیقه و دمای ۱۲۰ درجه سانتی‌گراد قرار گرفت. سپس به‌مدت ۱ ساعت دیگر تحت همان شرایط ولی بدون حضور گاز نیتروژن همزده شد. ترکیب‌های آنتی اکسیدانی پلی فنولی موجود در عصاره هلپله سیاه می‌تواند یون‌های فلزی را کاهش دهد. تغییر رنگ از قهوه‌ای به سیاه نشان دهنده تشکیل نانو ذرات فلزی است. در مرحله آخر به‌مدت ۱۲ ساعت در داخل کوره با دمای ۱۸۰ درجه سانتی‌گراد قرار داده شد. بعد از آن نمونه مورد نظر، ۶ الی ۷ ساعت داخل آون در دمای ۵۰ درجه سانتی‌گراد خشک و سپس به کمک هاون پودر شد (Kumar *et al.*, 2013; Ahmad *et al.*, 2016).

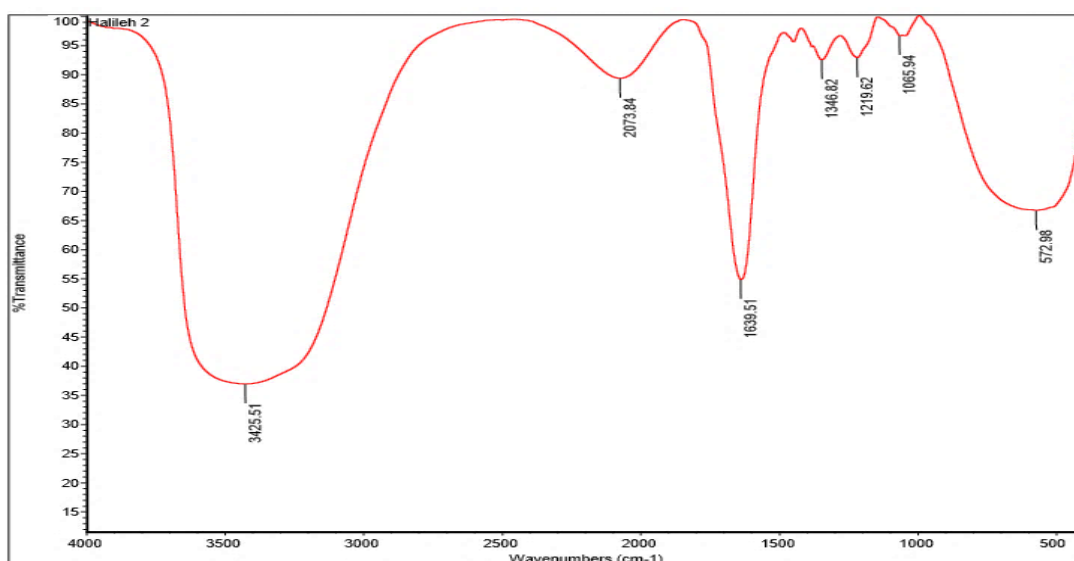
نتایج و بحث

مکانیسم بیوسنتز نانو ذرات فلزی و اکسید فلزی

متابولیت‌های ثانویه گیاهان، عامل کاهش یون‌های فلزی به اتم‌های فلزی هستند. نمک‌های فلزی مانند نیترات‌ها، کلریدها، اکسیدها و سولفات‌ها به‌دلیل اتصال فلز به بخش کلرید، اکسید و سولفید و تمایل آن‌ها برای اهدای الکترون-ها، دارای پتانسیل کاهش بالایی هستند. در نتیجه هر دو

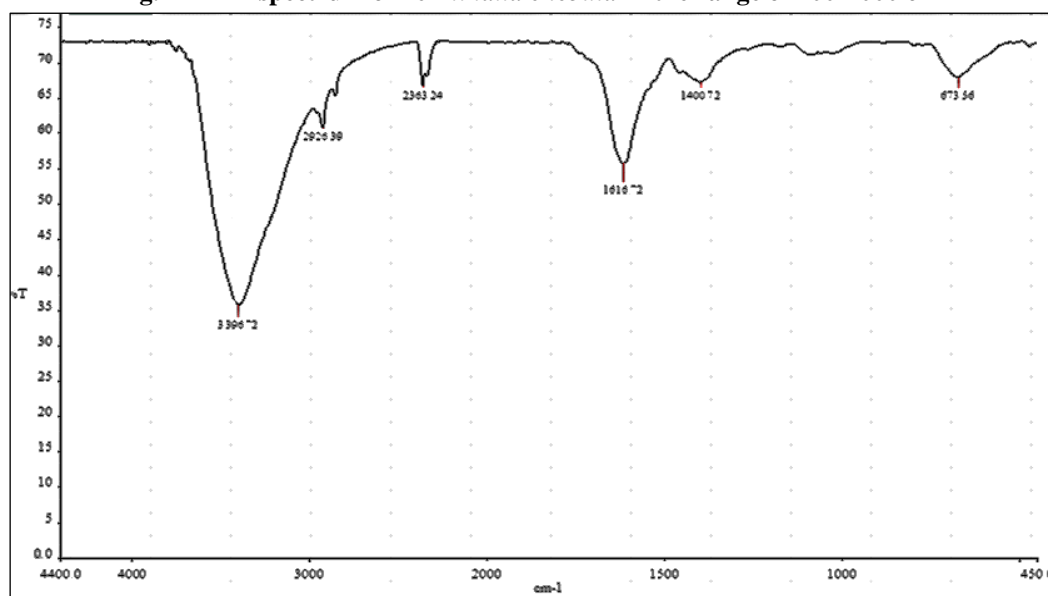
گروه OH- می‌باشند که اثبات سنتز موفقیت آمیز نانو ذرات مغناطیسی توسط هلیله سیاه می‌باشد. پیک‌های مشاهده شده در ناحیه $2926/39\text{ cm}^{-1}$ و $3396/72\text{ cm}^{-1}$ مربوط به ارتعاشات کششی گروه‌های OH- جذب شده است. پیک-های مشاهده شده در ناحیه زیر 1000 cm^{-1} مربوط به پیوندهای فلزی با اکسیژن می‌باشد (Mahdavi *et al.*, 2013; Karpagavinayagam and Vedhi, 2018).

می‌دهد. در شکل ۱، باند جذبی وسیع در ناحیه cm^{-1} $3425/1$ مربوط به ارتعاش کششی گروه OH است. پیک $1639/51\text{ cm}^{-1}$ مربوط به ارتعاش کششی گروه C=C و پیک $1219/62\text{ cm}^{-1}$ مربوط به گروه C-O می‌باشد. در شکل ۲، پیک موجود در ناحیه $673/56\text{ cm}^{-1}$ مربوط به ارتعاشات کششی Fe-O می‌باشد. پیک مشاهده شده در ناحیه cm^{-1} $1400/72$ تا $2363/24\text{ cm}^{-1}$ مربوط به اتصال هلیله سیاه با



شکل ۱- طیف FTIR هلیله سیاه در محدوده $4000 - 400\text{ cm}^{-1}$

Fig.1- FTIR spectrum of *Terminalia chebula* in the range of $400-4000\text{ cm}^{-1}$



شکل ۲- طیف FTIR نانو ذرات مغناطیسی سنتز شده در محدوده $4000 - 400\text{ cm}^{-1}$

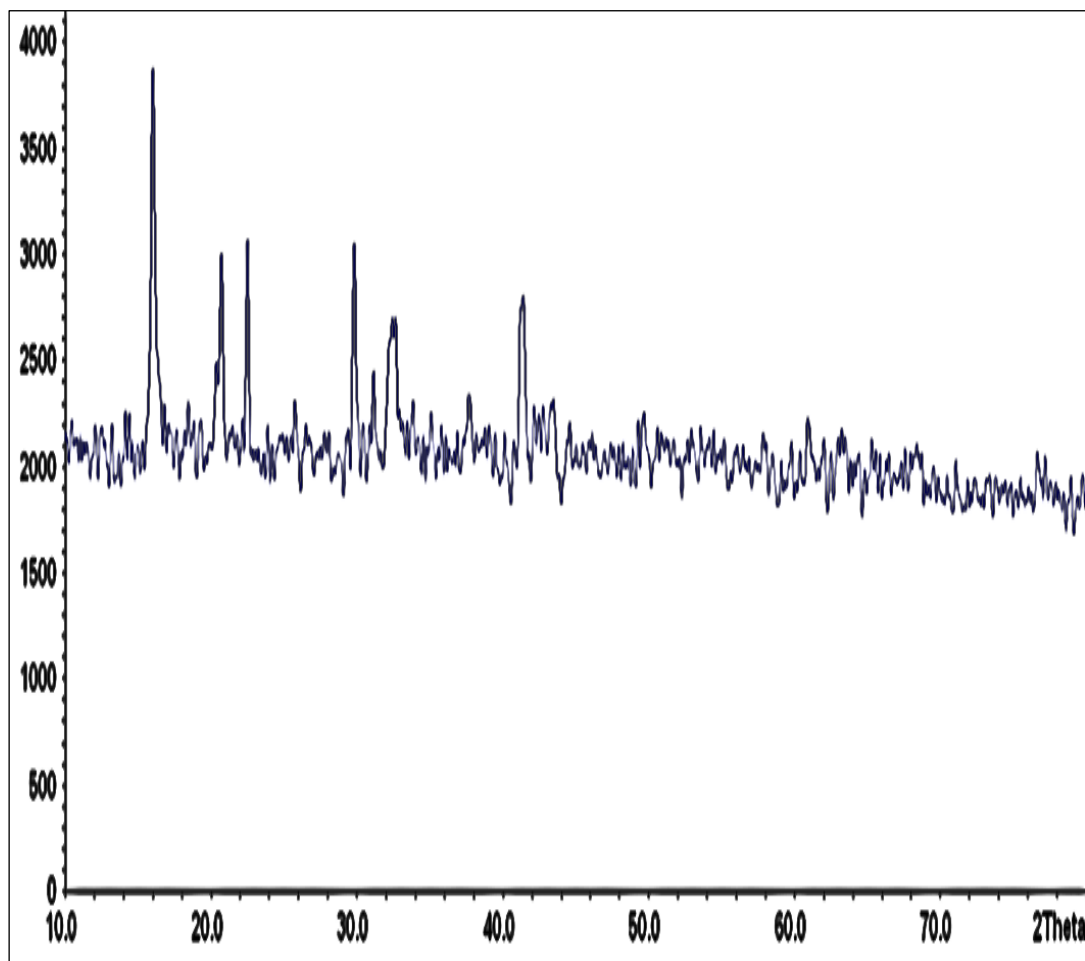
Fig. 2- FTIR spectrum of synthesized magnetic nanoparticles in the range of $400-4000\text{ cm}^{-1}$

نتایج پراش اشعه ایکس (XRD)

روش پراش اشعه ایکس یک تکنیک غیرمخرب برای تعیین فازهای کریستالی موجود در مواد جامد و آنالیز خواص ساختاری است. الگوی XRD نانو ذرات مغناطیسی سنتز شده در شکل ۳ نشان داده شد. الگوی پراش اشعه ایکس مربوط به نانو ذره مغناطیسی با عصاره هلیله سیاه دارای یک پیک مشخصه در ناحیه $2\theta = 16^\circ$ است. پیک‌های نشان داده شده در $2\theta = 43/2^\circ$ و $62/8^\circ$ مربوط به نانو ذرات اکسید نیکل و پیک‌های نشان داده شده در $2\theta = 63^\circ$ و $2\theta = 30^\circ$ مربوط به نانو ذرات اکسید آهن می‌باشد. الگوی پراش اشعه ایکس ساختار نانو ذرات سنتز و زیست عملگرا شده را به خوبی نشان داد (Nasrollahzadeh *et al.*, 2014; Ibrahim *et al.*, 2018).

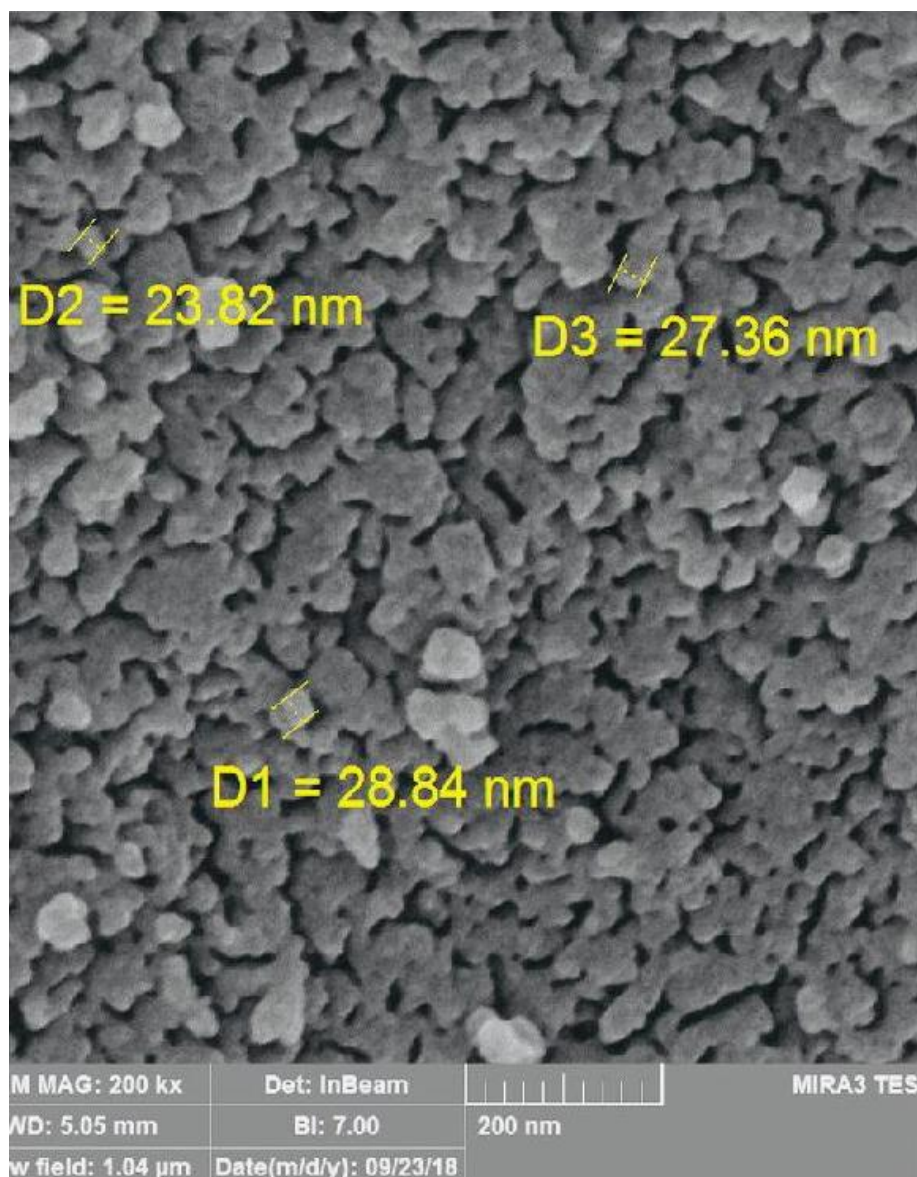
نتایج میکروسکوپ الکترونی روبشی SEM

ریخت شناسی نانو ذرات سنتز شده توسط میکروسکوپ الکترونی روبشی بررسی شد. تصویر SEM این نانو ذرات در شکل ۴ مشاهده می‌شود. هر چقدر ذرات دارای ابعاد کوچکتری باشند، سطح تماس افزایش یافته و حذف بهتر صورت می‌گیرد. همان طور که مشاهده می‌شود اندازه نانوذرات سنتز شده کمتر از ۳۰ nm و به شکل کروی می‌باشد. نانو ذرات مغناطیسی سنتز شده با عصاره هلیله سیاه به دلیل قرار گرفتن عصاره در بین حفرات، شکل کروی خود را حفظ کرده و سبب افزایش میزان کارایی آن می‌شود (Mustafa and Al Din, 2017; Ibrahim *et al.*, 2018).



شکل ۳- طیف پراش اشعه ایکس نانو ذرات مغناطیسی سنتز شده

Fig. 3- X-ray diffraction spectrum of synthesized magnetic nanoparticles



شکل ۴- تصویر میکروسکوپ الکترونی روبشی نانو ذرات مغناطیسی سنتز شده

Fig. 4- Scanning electron microscope image of synthesized magnetic nanoparticles

اکسیدانی پلی فنولی موجود در عصاره گیاه بیان شده می‌تواند یون‌های آهن و نیکل را کاهش داده و نانو ذرات آهن و نیکل صفر را تولید کند. نتایج به‌دست آمده از این پژوهش گویای آن است که عصاره گیاهی هلیله به‌عنوان ماده بیولوژیکی، برای سنتز نانو ذرات مغناطیسی مناسب است. نانو ذرات مغناطیسی سنتز شده با هلیله شکل کروی خود را حفظ کرده که نشان دهنده این است که عصاره بین حفره‌ها قرار گرفته است.

نتیجه‌گیری

سنتز سبز نانو ذرات دارای مزیت‌هایی از جمله زیست سازگاری، هزینه تولید پایین، استفاده نکردن از حلال‌های سمی، سهولت تولید و کاربرد است و نیز از دید شیمی سبز دارای اهمیت می‌باشد. نانو ذراتی که به این شیوه تولید می‌شوند از لحاظ توزیع اندازه ذرات و پایداری، نسبت به دیگر روش‌ها یکنواخت‌تر می‌باشند. سنتز نانو ذرات آهن و نیکل صفر ظرفیتی با استفاده از عصاره گیاه هلیله سیاه انجام پذیر است. ترکیب‌های آنتی

پی‌نوشت‌ها

¹ Morphology² Fourier-transform infrared spectroscopy³ X-ray diffraction⁴ Scanning Electron Microscope

منابع

- Ahmad, T., Irfan, M., Bustam, M.A. and Bhattacharjee, S., 2016. Effect of reaction time on green synthesis of gold nanoparticles by using aqueous extract of *Elaise Guineensis* (Oil palm leaves). *Procedia Engineering*. 148, 467–472.
- Das, R.K., Gogoi, N. and Bora, U., 2011. Green synthesis of gold nanoparticle using *Nyctanthes arbor-tristis* flower extract. *Bioprocess and Biosystems Engineering*. 34(5), 615–619.
- Din, M.I. and Rani, A., 2016. Recent Advances in the synthesis and stabilization of nickel and nickel oxide nanoparticles: a green adeptness. *International Journal of Analytical Chemistry*. 3512145e. DOI: <http://dx.doi.org/10.1155/2016/3512145>.
- Din, M.I., Nabi, A.G., Rani, A., Aihetasham, A. and Mukhtar, M., 2018. Single step green synthesis of stable nickel and nickel oxide nanoparticles from *Calotropis gigantea*: catalytic and antimicrobial potentials. *Environmental Nanotechnology, Monitoring & Management*. 9, 29–36.
- Escobar, B., Lucio-García, M.A., Barbosa, R. and Morales-Acosta, D., 2018. Synthesis and characterization of NiO nanoparticles using *Manihot esculenta* aqueous extracts. *Preprints*. 2018110242e. DOI: <http://dx.doi.org/10.20944/preprints201811.0242.v1>.
- Ibrahim, F., Aziz, M.H., Fatima, M., Shaheen, F., Ali, S.M. and Huang, Q., 2018. In vitro cytotoxicity, MMP and ROS activity of green synthesized nickel oxide nanoparticles using extract of *Terminalia Chebula* against MCF-7 Cells. *Materials Letters*. 234, 129–133.
- Ibrahim, H.M.M., 2014. Green synthesis and characterization of silver nanoparticles using banana peel extract and their antimicrobial activity against representative microorganisms. *Journal of Radiation Research and Applied science*. 8(3), 265–275.
- Iravani, S., 2011. Green synthesis of metal nanoparticles using plants. *Green Chemistry*. 13, 2638.
- Jebakumar, T. and Sethuraman, M.G., 2012. Instant green synthesis of silver nanoparticles using *Terminalia chebula* fruit extract and evaluation of their catalytic activity on reduction of methylene blue. *Process Biochemistry*. 47, 1351–1357.
- Karpagavinayagam, P. and Vedhi C., 2018. Green synthesis of novel nickel oxide nanoparticles using mangroves and its electrochemical characterization. *International Journal of Science, Engineering and Management*. 3(4), 699–702.
- Kumar, K.M., Mandal, B.K., Kumar, K.S., Reddy, P.S. and Sreedhar, B., 2013. Biobased green method to synthesis palladium and iron nanoparticles using *Terminalia chebula* aqueous extract. *Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy*. 102, 128–133.
- Lakshmanan, G., Sathiyaseelan, A., Kalaichelvan, P.T. and Murugesan, K., 2018. Plant-mediated synthesis of silver nanoparticles using fruit extract of *Cleome viscosa* L.: assessment of their antibacterial and anticancer activity. *Karbala International Journal of Modern Science*. 4(1), 61–68.
- Mahdavi, M., Namvar, F., Ahmad, M.B. and Mohamad, R., 2013. Green biosynthesis and characterization of magnetic iron oxide (Fe₃O₄) nanoparticles using seaweed (*Sargassum muticum*) aqueous extract. *Molecules*. 18(5), 5954–64.
- Mohanpuria, P., Rana, N.K. and Yadav, S.K., 2008. Biosynthesis of nanoparticles: technological concepts and future applications. *Journal of Nanoparticle Research*. 10, 507–17.

Moustafa, M.H. and Al Din, R.S., 2017. Green synthesis and characterization of iron-oxide nanoparticles by guava aqueous leaves extract for doxorubicin drug loading. *Journal of Bioscience and Applied Research*. 3(1), 177-180.

Nasrollahzadeh, M., Sajadi, S.M., Rostami-Vartooni, A. and Khalaj, M., 2014. Green synthesis of Pd/Fe₃O₄ nanoparticles using *Euphorbia condylocarpa M. bieb* root extract and their catalytic applications as magnetically recoverable and stable recyclable catalysts for the phosphine-free Sonogashira and Suzuki coupling reactions. *Journal of Molecular Catalysis A: Chemical*. 396, 31–39.

Taghavi-Fardood, S., Ramazani, A. and Moradi, S., 2017. A novel green synthesis of nickel oxide nanoparticles using Arabic gum. *Chemistry Journal of Moldova. General, Industrial and Ecological Chemistry*. 12(1), 115–118.

Taib, N.I., Latif, F.A., Mohamed, Z. and Zambri, N.D.S., 2018. Green synthesis of iron oxide nanoparticles (Fe₃O₄-NPs) using *Azadirachta Indica* Aqueous Leaf Extract. *International Journal of Engineering and Technology*. 7, 9–13.





Environmental Sciences Vol.18/No.3/Autumn 2020

74-84

Green synthesis of magnetic iron-nickel oxide nanoparticles using *Terminalia chebula* extract

Hadise Asadian,¹ Fariba Tadayon¹ and Sanaz RaeisFarshid^{2†}

¹Department of Chemistry, North Tehran Branch, Islamic Azad University, Tehran, Iran

²Department of Chemistry, Lahijan Branch, Islamic Azad University, Lahijan, Iran

Received: 2019.09.25 Accepted: 2020.01.22

Asadian, H., Tadayon, F. and Raeis Farshid, S., 2020. Green synthesis of magnetic iron-nickel oxide nanoparticles using *Terminalia chebula* extract. *Environmental Sciences*. 18(3): 74-84

Introduction: Nowadays, the use of green synthesis methods without the use of chemicals to produce biocompatible nanoparticles with specific properties has been widely considered. One of the most important methods of green synthesis is the production of metallic nanoparticles using organisms. Exploiting various plant materials for green synthesis of nanoparticles is a green technology because it does not involve any harmful chemicals. One of the techniques of the green synthesis method is the use of plant extracts, which reduces metal salts to metal ions by using reductive compounds in them. In recent years, coated magnetic nanoparticles have found new and widespread applications in industry and medicine due to their unique properties. Modifying the surface of these nanoparticles by plant extract enhances their efficiency in absorbing hazardous dyes and mineral pollutants. They also have antibacterial and anti-inflammatory activities.

Material and methods: In order to synthesize the nanoparticles, iron chloride and nickel nitrate salts were mixed with the extract of *Terminalia chebula* and subjected to severe stirring. The immediate change of color from brown to black at this stage indicated the revival of metal ions to metal salts. The sample was then dried and powdered with mortar. Structure and morphology of synthesized nanoparticles were investigated by Fourier Transform Infrared Spectroscopy (FTIR), X-ray Diffraction (XRD), and Scanning Electron Microscope (SEM).

Results and discussion: The purpose of this research was to synthesize and develop a novel method for the preparation of super-magnetic nanoparticles using environmental and green chemistry methods. For this purpose, *T. chebula* was used as a medicinal plant in the preparation of iron-nickel magnetic nanoparticles for the first time. The FTIR method confirmed the surface modification of magnetic nanoparticles using *T. chebula* extract and SEM determined the morphology and approximate size of uncoated and bio operative magnetic nanoparticles. The results also showed that the nanoparticles were nearly spherical with approximately 26.67 nm average diameter. The X-ray diffraction pattern showed the crystalline nature, high purity, and cube-centered structure of the uncoated and bioactive magnetic nanoparticles.

[†]Corresponding Author: *Email Address*. RaeisFarshid@liau.ac.ir
<http://doi.org.10.29252/envs.18.3.74>

Conclusion: The proposed method in this study makes it possible to synthesize green binary magnetic nanoparticles using the extract of *T. chebula*. Not using hydrothermal and sedimentary methods in nanoparticle fabrication as well as preparation of a plant extract in the aquatic environment were important advantages of this study. According to this method, phenolic antioxidant compounds in the plant extract simultaneously reduced metal ions and chelating agents and also the synthesis of metal nanoparticles, which also have antibacterial properties.

Keywords: Green chemistry, Biosynthesis, Antioxidant compounds, *Terminalia chebula* extract, Super magnetic nanoparticles.