



University of Hormozgan



## Green synthesis of graphene using leaf extract of the Mangrove (*Avicennia marina*)

Arya Saadatfard<sup>1</sup>, Fatemeh Sedaghat<sup>2</sup>, Maarooof Zarei<sup>3</sup>, and Morteza yousefzadi<sup>4✉</sup>

1. Department of Marine Biology, Faculty of Marine Science and Technology, University of Hormozgan, Bandar Abbas, Iran.
2. Agricultural Research, Education and Extension Organization, Fars Agricultural and Natural Resources Research and Education Center, Shiraz, Iran.
3. Department of Chemistry, Faculty of Sciences, University of Hormozgan, Bandar Abbas, Iran.
4. Department of Biology, Faculty of Science, University of Qom, Qom, Iran.

### Article Info

#### Article type:

Research Article

#### Article history:

Received: 26 August 2020

Accepted: 13 November 2020

Published: 15 February 2026

#### ✉Corresponding Author:

[morteza110110@gmail.com](mailto:morteza110110@gmail.com)

#### Keywords:

Graphene oxide,

Allotropy,

Mangrove,

Macran.

### ABSTRACT

Graphene, a single-layer allotrope of carbon, has attracted considerable attention in modern materials research owing to its exceptional electrical, thermal, optical, and mechanical properties. Among the various production routes, chemical reduction of graphene oxide (GO) is widely used; however, this method often involves hazardous reagents and raises environmental concerns. Although green synthesis approaches employing terrestrial plant extracts have been extensively reported, the potential of marine resources for graphene production remains largely unexplored. In this context, mangrove plants have recently gained interest as sustainable bio-resources due to their adaptation to extreme environments and their rich content of bioactive secondary metabolites. The present study aimed to develop an eco-friendly route for graphene synthesis by reducing graphene oxide using an aqueous leaf extract of the mangrove *Avicennia marina*. Graphene oxide was first synthesized from flake graphite using a modified Hummers' method. The reduction process was then carried out using the *A. marina* leaf extract as a natural reducing and stabilizing agent. The resulting graphene was characterized using Raman spectroscopy, scanning electron microscopy (SEM), and Fourier transform infrared (FTIR) spectroscopy. The results confirmed that *A. marina* leaf extract effectively reduced graphene oxide to graphene, likely due to the presence of polyphenols and other bioactive compounds. The spectroscopic and microscopic characteristics of the synthesized graphene were consistent with those reported in comparable studies, supporting the reliability of the proposed method. Overall, the findings demonstrate that mangrove leaf extract represents an effective, low-cost, and environmentally benign alternative to conventional chemical reductants for graphene production. This green synthesis approach offers a promising pathway for sustainable nanomaterial fabrication and highlights the underexplored potential of marine ecosystems, particularly mangroves, in advanced nanotechnology applications.



Publisher: University of Hormozgan

## EXTENDED ABSTRACT

### Introduction

Graphene, recognized as one of the thinnest and strongest two-dimensional materials, has attracted considerable attention across scientific and technological fields due to its exceptional electrical, thermal, and mechanical properties. However, conventional graphene production methods often involve hazardous chemicals and high energy consumption, raising serious environmental and sustainability concerns. In response, green synthesis approaches that employ natural reducing agents have emerged as promising, eco-friendly alternatives. This study aims to develop a green synthesis route for graphene through the reduction of graphene oxide using leaf extract from *Avicennia marina* as a natural reducing agent. To the best of our knowledge, this work represents the first investigation into the use of *A. marina*, a native mangrove species, for sustainable graphene synthesis.

### Materials and Methods

Graphene oxide was synthesized from flake graphite using a modified Hummers' method. Leaves of *A. marina* were collected from coastal areas of Chabahar, and an aqueous extract was prepared by boiling the leaves in deionized water. For green graphene synthesis, graphene oxide was treated with the aqueous mangrove leaf extract and incubated at 90 °C for 24 h. The resulting product was washed, dried, and prepared for characterization. Structural and morphological properties of the synthesized graphene were analyzed using Fourier Transform Infrared (FT-IR) spectroscopy, Raman spectroscopy, and Field Emission Scanning Electron Microscopy (FE-SEM).

### Results

The results clearly demonstrate that *A. marina* leaf extract acts as an effective reducing and stabilizing agent for the green synthesis of graphene. The reduction process is attributed to the presence of bioactive compounds in the extract, particularly polyphenols and flavonoids, which facilitate electron donation and the removal of oxygen-containing functional groups from graphene oxide sheets. The spectroscopic and microscopic characteristics of the synthesized graphene are consistent with those reported in related studies employing terrestrial plant extracts, confirming the reliability and effectiveness of the proposed method.

### Conclusion

As an extremophilic mangrove species, *A. marina* produces distinctive secondary metabolites in response to environmental stress, making it a valuable resource for sustainable nanomaterial synthesis. This green synthesis approach eliminates the need for hazardous chemical reductants and is fully aligned with the principles of green chemistry and sustainable development. The graphene produced via this method shows strong potential for application in advanced fields such as flexible electronics, energy storage systems, drug delivery, and water purification technologies. Moreover, this study highlights the underexplored potential of marine ecosystems, particularly mangroves, as innovative and sustainable sources for nanotechnology applications.

## سنتر سبز گرافن با استفاده از عصاره‌ی برگ مانگرو (*Avicennia marina*)

آریا سعادت‌فرد<sup>۱</sup>، فاطمه صداقت<sup>۲</sup>، معروف زارعی<sup>۳</sup>، مرتضی یوسفزادی<sup>۴</sup> ✉

۱. گروه زیست‌شناسی دریا، دانشکده‌ی علوم و فنون دریایی، دانشگاه هرمزگان، بندرعباس، ایران.

۲. سازمان تحقیقات، آموزش و ترویج کشاورزی، مرکز تحقیقات و آموزش کشاورزی و منابع طبیعی فارس، شیراز، ایران.

۳. گروه شیمی، دانشکده‌ی علوم پایه، دانشگاه هرمزگان، بندرعباس، ایران.

۴. گروه زیست‌شناسی، دانشکده‌ی علوم پایه، دانشگاه قم، قم، ایران.

### چکیده

### اطلاعات مقاله

نوع مقاله:

مقاله پژوهشی

تاریخ دریافت: ۱۳۹۹/۰۶/۰۵

تاریخ پذیرش: ۱۳۹۹/۰۸/۲۳

تاریخ انتشار: ۱۴۰۴/۱۱/۲۶

✉ نویسنده مسئول:

[morteza110110@gmail.com](mailto:morteza110110@gmail.com)

کلیدواژه‌ها:

گرافن اکسید،

آلوترپ،

مانگرو،

مکران.

گرافن، یک لایه‌ی منفرد از گرافیت و یکی از آلوتروپ‌های کربن، به دلیل خواص الکتریکی، حرارتی، نوری، و مکانیکی منحصربه‌فرد به موضوعی بسیار جذاب در تحقیقات مدرن تبدیل شده است. یکی از متداول‌ترین روش‌های تولید گرافن، احیای شیمیایی گرافن اکسید است. اگرچه این روش مؤثر است، اما اغلب با معایب متعددی از جمله استفاده از مواد شیمیایی خطرناک و پیامدهای نامطلوب زیست‌محیطی همراه است. سنتر سبز گرافن با استفاده از عصاره‌ی گیاهان خشکی پیشینه‌ی قابل توجهی دارد، اما پتانسیل منابع دریایی برای این هدف تا حد زیادی ناشناخته باقی‌مانده است. در این راستا، گیاهان مانگرو به دلیل سازگاری منحصربه‌فرد با محیط‌های سخت و تولید متابولیت‌های ثانویه‌ی فعال، اخیراً مورد توجه ویژه‌ای برای توسعه‌ی روش‌های سازگار با محیط زیست قرار گرفته‌اند. این پژوهش با هدف سنتر سبز گرافن از طریق احیای گرافن اکسید با استفاده از عصاره‌ی برگ گیاه حرا (*Avicennia marina*) انجام شد. در گام اول، گرافن اکسید به روش هارمز اصلاح‌شده از گرافیت ورقه‌ای سنتر شد. سپس، فرآیند احیای گرافن اکسید با به‌کارگیری عصاره‌ی آبی برگ *A. marina*، به‌عنوان یک عامل کاهنده‌ی طبیعی، انجام گرفت. در نهایت، محصول به‌دست‌آمده با استفاده از تکنیک‌های طیف‌سنجی رامان (Raman)، میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) و طیف‌سنجی مادون قرمز (FTIR) مورد شناسایی و تأیید قرار گرفت. نتایج نشان داد که عصاره‌ی برگ حرا به دلیل وجود ترکیباتی چون پلی‌فنول‌ها، عاملی مؤثر و سبز برای کاهش گرافن اکسید به گرافن است. هم‌خوانی نتایج طیف‌سنجی و میکروسکوپی این پژوهش با مطالعات مشابه، صحت و قابلیت اطمینان روش به‌کاررفته را تأیید می‌کند. براساس نتایج به‌دست‌آمده، می‌توان اظهار داشت که عصاره‌ی برگ گیاه حرا یک عامل کاهنده و تثبیت‌کننده‌ی مؤثر، مقرون‌به‌صرفه و سازگار با محیط زیست برای تولید گرافن در فرآیند سنتر سبز است. این روش، جایگزین امیدوارکننده‌ای برای روش‌های شیمیایی متداول ارائه می‌دهد و پتانسیل بالایی برای توسعه‌ی فناوری‌های سبز در سنتر نانومواد دارد. همچنین، این پژوهش گامی مهم در راستای بهره‌برداری از پتانسیل‌های کمتر شناخته‌شده‌ی اکوسیستم‌های دریایی مانند مانگروها برای اهداف پیشرفته‌ی نانو تکنولوژی محسوب می‌شود.

## مقدمه

گرافن، به‌عنوان یکی از آلوتروپ‌های دوبعدی کربن، به ضخامت یک اتم و با شبکه‌ی بلوری فشرده، نازک‌ترین، سبک‌ترین و قوی‌ترین ماده‌ی شناخته‌شده در زمین است. این ماده، همچنین بهترین رسانای گرما و الکتریسیته می‌باشد (Ramakrishnan *et al.*, 2012; Torrisi *et al.*, 2013; Mao *et al.*, 2014; *al.*). گرافن، نخستین بار، توسط Geim و Novoselov، فیزیکدانان دانشگاه منچستر، با لایه‌برداری مکانیکی گرافیت پیرولیتی شناسایی و تجزیه و تحلیل شد، که این امر منجر به کسب جایزه‌ی نوبل فیزیک در سال ۲۰۱۰ توسط این دو دانشمند گردید (Zainuddin *et al.*, 2018; Chufa *et al.*, 2021). اتم‌های کربن در گرافن به‌صورت یک شبکه‌ی لانه زنبوری شش ضلعی به هم متصل شده‌اند و به‌دلیل جذب حدود ۲/۳ درصد از نور، با چشم غیرمسلح قابل رؤیت هستند (Perreault *et al.*, 2015). ویژگی‌هایی چون زیست‌سازگاری، هدایت الکتریکی و گرمایی بالا، سطح ویژه، سمیت سلولی پایین و آب‌گریزی، گرافن را به‌عنوان ماده‌ای ایده‌آل برای طیف گسترده‌ای از کاربردها مانند فیزیک کوآنتوم، نانوالکترونیک، انرژی، نانوکامپوزیت‌ها، زیست‌پزشکی و پاکسازی محیط زیست مطرح می‌سازد (Azizi and Kalantar., 2020). با اینحال، روش‌های سنتی سنتز گرافن اغلب شامل مواد شیمیایی مضر، مصرف انرژی بالا و تولید محصولات جانبی سمی هستند که نگرانی‌های زیست‌محیطی و بهداشتی قابل توجهی را ایجاد می‌کنند (Upadhyay *et al.*, 2015). از این‌رو، در دهه‌های اخیر تقاضای فزاینده‌ای برای روش‌های سنتز پایدار و سازگار با محیط زیست برای تولید گرافن وجود دارد که منجر به توسعه‌ی روش‌های سنتز سبز شده است.

سنتز سبز، جایگزین بالقوه‌ای برای روش‌های سنتی است. در این روش، از عوامل کاهنده و حلال‌های سازگار با محیط زیست برای به حداقل رساندن اثرات زیست‌محیطی استفاده می‌شود. عصاره‌های گیاهی، که از قسمت‌های مختلف گیاهان مانند برگ‌ها، میوه‌ها و ریشه‌ها استخراج می‌شوند، و همچنین میکروارگانیسیم‌ها (قارچ‌ها، باکتری‌ها و جلبک‌ها) به‌عنوان عوامل کاهنده و پوشاننده‌ی امیدبخش در سنتز سبز عمل می‌کنند (Shaheen *et al.*, 2023; Kataria *et al.*, 2025).

عصاره‌های گیاهی حاوی ترکیبات زیست‌فعال متنوعی از جمله پلی‌فنول‌ها، ترپنوئیدها و فلاونوئیدها هستند که می‌توانند به‌طور مؤثری گرافن اکسید را به گرافن احیا کنند (Bao *et al.*, 2022). گرافن اکسید، پیش‌ساز گرافن، معمولاً با اکسیداسیون گرافیت توسط عوامل اکساینده‌ی قوی سنتز می‌شود. با این‌حال، احیای گرافن اکسید با استفاده از عصاره‌های گیاهی می‌تواند در شرایط واکنش ملایم انجام شود و نیاز به مواد شیمیایی خطرناک را از بین ببرد (Akhil *et al.*, 2021). به‌عنوان مثال، Chufa و همکاران (۲۰۲۱) موفق به سنتز سبز گرافن اکسید احیاشده با عصاره‌ی متانولی برگ گیاه *Vernonia amygdalina* شدند. آن‌ها دریافتند که ترپنوئیدها و پلی‌فنول‌های موجود در عصاره به‌عنوان هر دو عامل کاهنده و پوشاننده عمل می‌کنند و فرآیند احیای گرافن اکسید به گرافن را در شرایط هیدروترمال تسهیل می‌کنند. تکنیک‌های مشخصه‌یابی، احیای موفقیت‌آمیز و تشکیل گرافن چند لایه را تأیید کردند (Chufa *et al.*, 2021). به‌طور مشابه، Akhil و همکاران (۲۰۲۱) سنتز سبز و اقتصادی گرافن با استفاده از عصاره‌ی برگ *Moringa oleifera* را گزارش کردند. ماده‌ی حاصل راندمان بالایی در حذف رنگ نشان داد (Akhil *et al.*, 2021). Shaheen و همکاران (۲۰۲۳) همچنین به استفاده از عصاره‌ی *Aloe vera* در ساخت کامپوزیت‌های پایه گرافن اشاره کردند که تنوع‌پذیری عصاره‌های گیاهی در سنتز سبز گرافن را بیش‌تر نشان می‌دهد (Shaheen *et al.*, 2022).

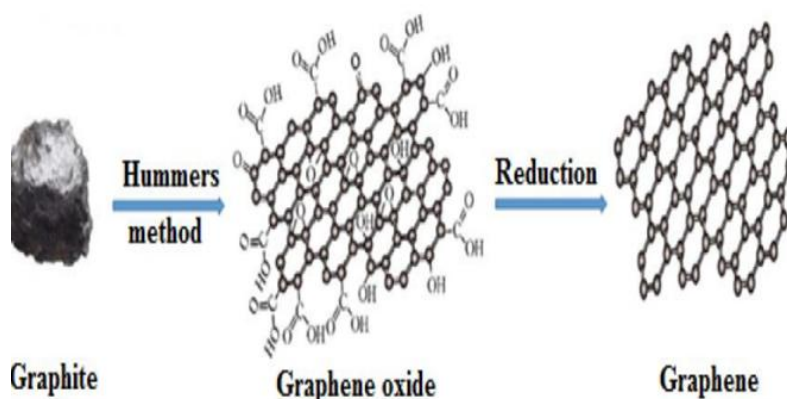
مانگروها گروهی از گیاهان هالوفیت هستند که عمدتاً در مناطق گرمسیری و نیمه گرمسیری جهان قرار دارند. در ایران، جنگل‌های مانگرو در سواحل و جزایر خلیج فارس و دریای عمان واقع شده‌اند که از خلیج گواتر در شرق دریای عمان شروع و تا خلیج نایند در غرب خلیج فارس گسترده‌اند. توانایی آن‌ها برای زنده ماندن تحت شرایط بسیار استرس‌زا باعث شده است تا آن‌ها به مورفولوژی منحصر به فرد و سازگاری‌های فیزیکی غیرمعمول دست پیدا کنند (Bakshi *et al.*, 2015; Safiari, 2018). مانگروها در ایران از دو گونه‌ی انحصاری حرا (*Avicenia marina*) و چنل (*Rhizophora mucronate*) تشکیل شده‌اند. *A. marina* گونه‌ی غالب است و در تمام مناطق استقرار جنگل‌ها دیده می‌شود (Safiari, 2018). این گونه دارای یک سیستم ریشه‌ی پیچیده است، که عمدتاً در ۲۰ سانتیمتر بالای ریزوسفر قرار دارد (Chaudhuri *et al.*, 2014).

مطالعه‌ی حاضر به توصیف سنتز سبز گرافن با استفاده از عصاره‌ی آبی برگ *A. marina*، به‌عنوان عامل کاهنده‌ی طبیعی، می‌پردازد. این پژوهش درصدد است تا با معرفی روشی سازگار با محیط‌زیست، گامی در جهت تولید پایدار نانومواد گرافنی بردارد.

### مواد و روش‌ها

به‌منظور سنتز سبز گرافن، برگ‌های گونه‌ی حرا در اردیبهشت سال ۱۳۹۶ از سواحل جزر ومدی چابهار جمع‌آوری شدند. برگ‌ها ابتدا با آب دریا، سپس با آب معمولی و آب مقطر شسته شدند و به منظور خشک‌شدن به‌مدت دوهفته در دمای اتاق قرار گرفتند. پس از آسیاب‌شدن، مقدار ۱۰g از نمونه به ۱۰۰ml آب دیونیزه اضافه شد و به مدت ۵ تا ۱۰ دقیقه در دمای جوش روی هیتر قرار گرفت. سپس، محلول از کاغذ صافی واتمن عبور داده شد و عصاره‌ی آبی حاصل (شکل ۲(a)) برای آزمایشات بعدی در دمای ۴°C در یخچال نگهداری شد (Gnanadesigan et al., 2012).

جهت سنتز گرافن اکسید، از روش هامرز اصلاح‌شده استفاده شد (شکل ۱). بدین‌منظور، ۲۷ ml اسیدسولفوریک ( $H_2SO_4$ ) و ۳ml اسیدفسفریک ( $H_3PO_4$ ) با نسبت حجمی ۱:۹ مخلوط و همزده شد. سپس، ۰/۲۲۵g پودر گرافیت تحت شرایط همزدن به محلول حاصل اضافه شد. در ادامه، ۱/۳۲g پرمنگنات پتاسیم ( $KMnO_4$ ) به‌تدریج به مخلوط اضافه و به‌مدت ۶ ساعت همزده شد (تا رسیدن به رنگ سبز تیره). برای حذف پرمنگنات اضافی، ۰/۶۷۵ml پراکسید هیدروژن ( $H_2O_2$ ) اضافه و به مدت ۱۰ دقیقه تحت همزن مغناطیسی قرار گرفت. پس از سردشدن، محصول با ۱۰ ml اسید هیدروکلریک ( $HCl$ ) و ۳۰ml آب دیونیزه شست‌وشو داده و در ۵۰۰۰rpm به مدت ۷ دقیقه سانتریفیوژ شد. فرآیند شست‌وشو و سانتریفیوژ سه‌بار تکرار شد. سپس، بخش رویی دور ریخته شد و باقی‌مانده سه بار دیگر با  $HCl$  و آب دیونیزه شست‌وشو داده شد. در نهایت، محصول در دمای ۹۰°C به مدت ۲۴ ساعت خشک شد تا پودر گرافن اکسید حاصل شود (Zaaba et al., 2017).

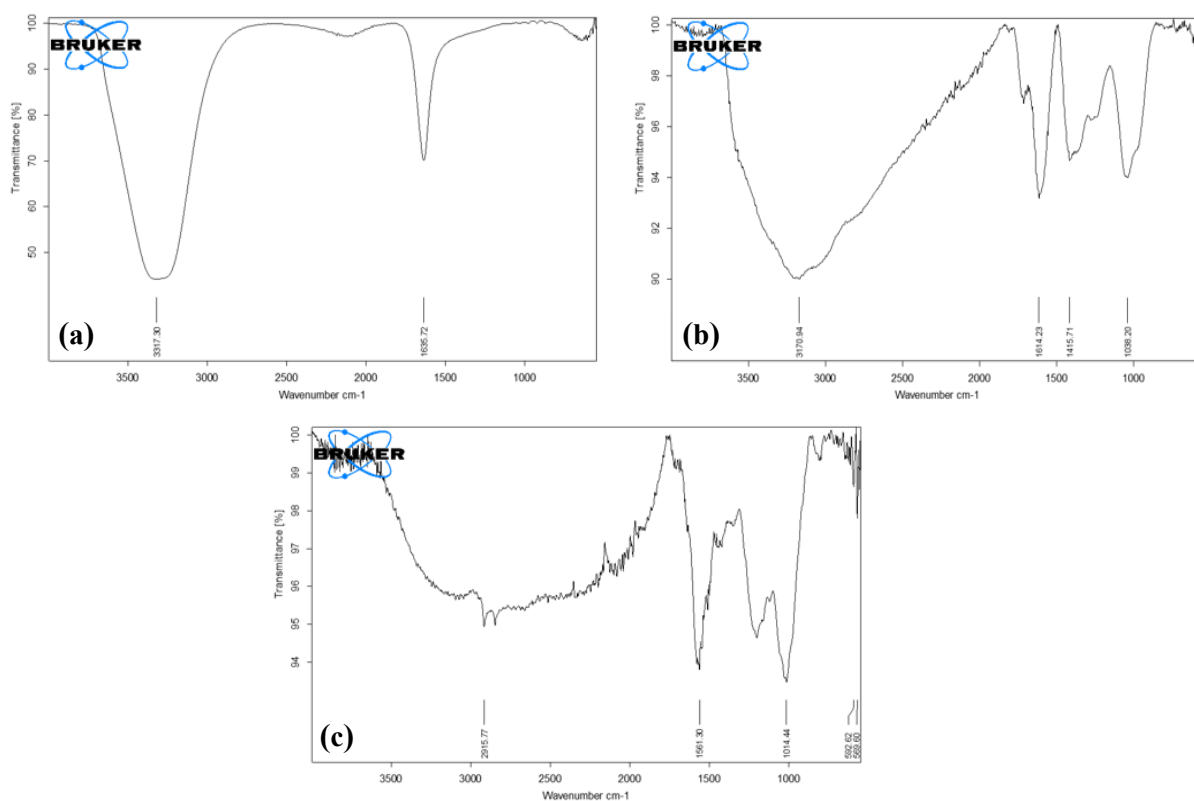


شکل ۱- فرآیند سنتز گرافن به روش اصلاح‌شده‌ی هامرز

به‌منظور احیای سبز گرافن اکسید، ۰/۰۳g گرافن اکسید در ۸۰ml آب دیونیزه حل شد و به مدت ۹۰ دقیقه در دستگاه سونیکاتور قرار گرفت. سپس ۸۰ml عصاره‌ی آبی برگ حرا به‌عنوان عامل کاهنده به سیستم اضافه و به مدت ۳۰ دقیقه‌ی دیگر فراصوت‌دهی ادامه یافت. در ادامه، مخلوط حاصل به مدت ۲۴ ساعت در دمای ۹۰°C انکوبه شد. تغییر رنگ ترکیب به سیاه نشان‌دهنده‌ی تکمیل فرآیند احیا بود. پس از رسیدن به دمای محیط، نمونه در ۱۶۹۸۰×g به مدت ۱۰ دقیقه سانتریفیوژ شد. در نهایت، محصول حاصل چندین بار با آب دیونیزه و اتانول شست‌وشو و در دمای ۵۰°C خشک گردید (Mhamane et al., 2011).

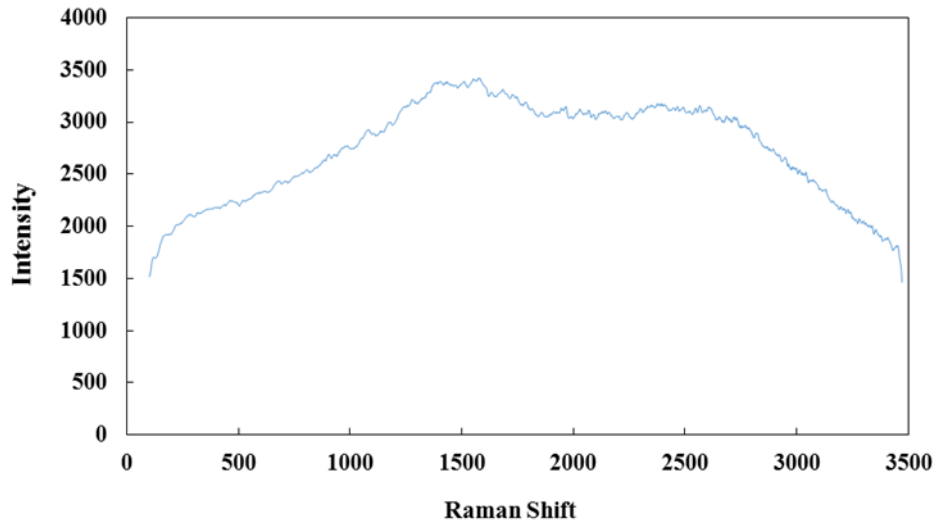
## نتایج

برای شناسایی گروه‌های عاملی موجود در عصاره‌ی آبی برگ حرا، گرافن اکسید و گرافن اکسید احیاء شده از دستگاه طیف‌سنج تبدیل فوریه مادون قرمز (FT-IR) با دامنه‌ی فرکانس  $4000-500\text{ cm}^{-1}$  استفاده شد. نتایج، در شکل ۲ نشان داده شده است. به‌طور کلی، عصاره‌ی آبی برگ حرا پیک‌های شاخصی در  $1635\text{ cm}^{-1}$  (مربوط به حلقه‌ی آروماتیک C=C) و  $3317\text{ cm}^{-1}$  (مربوط به گروه OH الکل) نشان داد. در مورد گرافن اکسید پیک‌های شاخص در  $1033\text{ cm}^{-1}$  (پیوند C-O الکل و فنول)،  $1415\text{ cm}^{-1}$  (پیوند C-C آلکان‌ها)،  $1614\text{ cm}^{-1}$  (پیوند C=C حلقه‌های آروماتیک)، و  $3170\text{ cm}^{-1}$  (گروه OH کربوکسیلیک اسیدها و الکل‌ها) مشاهده شد. گرافن اکسید احیاء شده نیز پیک‌هایی در محدوده‌ی  $569\text{ cm}^{-1}$  (فرکانس جذب آلکیل‌هالیدها (آلکیل برمید - C-Br))،  $1661\text{ cm}^{-1}$  (پیوند C=C حلقه‌های آروماتیک)،  $592\text{ cm}^{-1}$  (فرکانس جذب آلکیل‌هالیدها (آلکیل کلرید - C-Cl))، و  $2915\text{ cm}^{-1}$  (گروه C-H مربوط به آلکان‌ها) نشان داد.

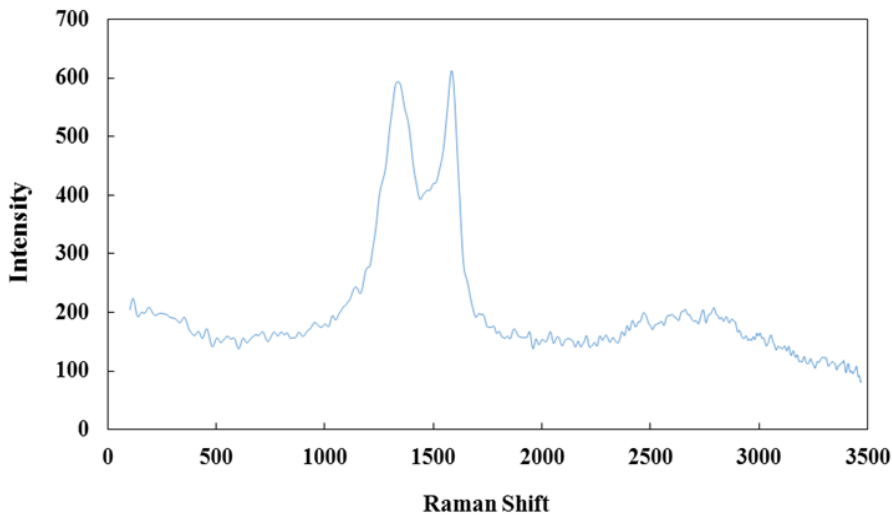


شکل ۲- طیف FT-IR عصاره‌ی آبی برگ حرا (a)، گرافن اکسید (b) و گرافن اکسید احیاء شده با حرا (c)

طیف رامان گرافن اکسید احیاشده و گرافن اکسید به ترتیب در شکل ۳ و ۴ نشان داده شده است. گرافن اکسید احیاشده دارای دو پیک شاخص در محدوده‌ی  $1500\text{ cm}^{-1}$  و  $2500\text{ cm}^{-1}$  است، که این پیک‌ها به ترتیب مربوط به نوارهای D (حالت متقارن  $A_{1g}$ ) و نوار G (حالت  $E_{2g}$  اتم‌های کربن) می‌باشند. همان‌طور که مشاهده می‌شود، شدت پیک D بیش‌تر از پیک G می‌باشد (شکل ۳). برای گرافن اکسید پیک شاخص در محدوده‌ی  $1300\text{ cm}^{-1}$  و  $1600\text{ cm}^{-1}$  مشاهده می‌شود که به ترتیب مربوط به نوارهای D (حالت متقارن  $A_{1g}$ ) و نوار G (حالت  $E_{2g}$  اتم‌های کربن  $Sp^2$ ) می‌باشند (شکل ۴).



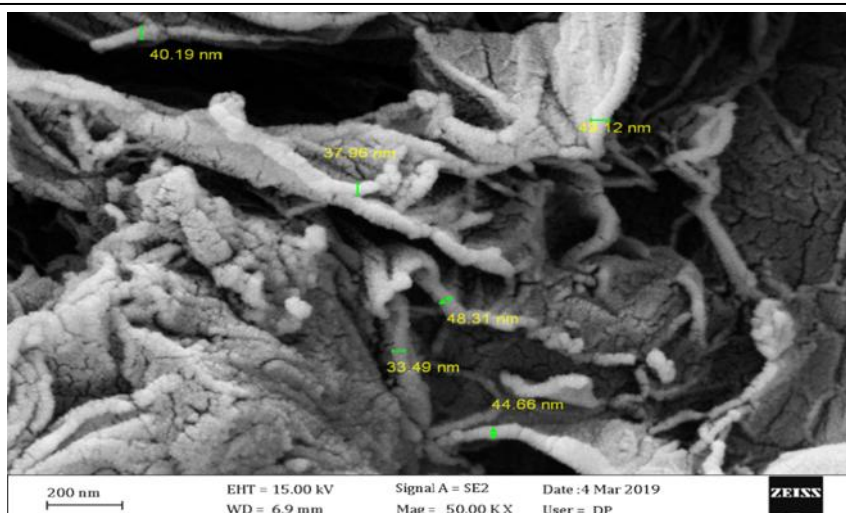
شکل ۳- طیف‌سنجی رامان گرافن اکسید احیاشده با چرا



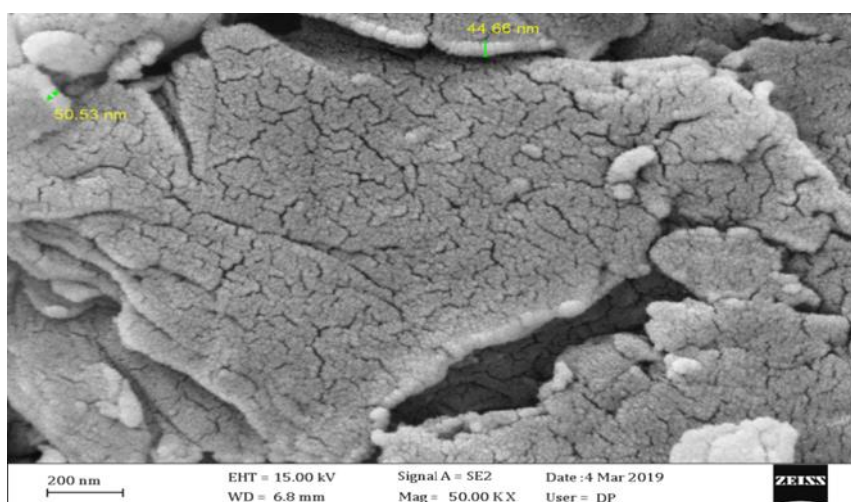
شکل ۴- طیف‌سنجی رامان گرافن اکسید

نتایج حاصل از بررسی تصویر FE-SEM گرافن اکسید و گرافن اکسید احیاشده (با بزرگنمایی  $200\text{ nm}$ ) به ترتیب در شکل‌های ۵ و ۶ نشان داده شده است. اندازه‌ی ذرات گرافن اکسید احیاشده در محدوده‌ی  $44\text{--}50\text{ nm}$  و گرافن اکسید در محدوده‌ی  $33\text{--}33\text{ nm}$  متغیر بود.

۴۹ متغیر بود.



شکل ۵- تصویر FE-SEM گرافن اکسید



شکل ۶- تصویر FE-SEM گرافن اکسید احیاشده با حرا

## بحث

کاربرد گسترده‌ی گرافن همواره با نگرانی‌های زیست‌محیطی و ایمنی مرتبط با روش‌های سنتز متعارف آن، که اغلب از عوامل کاهنده‌ی خطرناکی مانند هیدرازین استفاده می‌کنند، محدود شده است. در این زمینه، شیمی سبز به‌عنوان یک جایگزین پایدار ظهور کرده است. در دهه‌های اخیر، استفاده از عصاره‌های گیاهی به‌دلیل رویکرد پایدار و سازگار با محیط زیست به‌منظور سنتز گرافن و مشتقات آن بسیار مورد توجه قرار گرفته است (Perumal *et al.*, 2022). Gkika و همکاران (۲۰۲۵) مسیره‌های مختلف احیای گرافن اکسید را مقایسه کردند و تاکید کردند که فرآیندهای ساده‌شده با به حداقل رساندن مواد شیمیایی و انرژی، هزینه‌ها را به‌طور قابل‌توجهی کاهش می‌دهند و بنابراین، سنتز سبز را از نظر اقتصادی مقرون‌به‌صرفه می‌کنند (Gkika *et al.*, 2025). مطالعات متعددی پتانسیل عصاره‌های گیاهی مختلف را به‌عنوان عوامل احیاکننده‌ی طبیعی برای تبدیل گرافن اکسید به گرافن اکسید احیاشده نشان داده‌اند. به‌عنوان مثال، Perumal و همکاران (۲۰۲۲) مروری جامع بر کاربرد عصاره‌های بخش‌های مختلف گیاهان در احیای گرافن اکسید ارائه کردند و بر اهمیت کشف احیاکننده‌های جدید برای تسهیل سنتز پایدار گرافن اکسید احیاشده تاکید کردند (Perumal *et al.*, 2022).

تنوع منابع گیاهی مورد استفاده در سنتز سبز قابل توجه است. این مطالعه برای اولین بار، استفاده از عصاره‌ی آبی برگ گیاه حرا به‌عنوان یک عامل زیستی احیاکننده و تثبیت‌کننده‌ی قوی برای سنتز سازگار با محیط زیست گرافن اکسید احیاشده را نشان می‌دهد.

مکانیسم محوری در فرآیند کاهش سبز را می‌توان به مجموعه‌ی غنی از فیتوکمیکال‌های موجود در عصاره‌ی برگ حرا نسبت داد. مشخص شده است که این عصاره سرشار از ترکیبات پلی‌فنولی، فلاونوئیدها و قندهای کاهنده‌ی دیگر است (Ibrahim *et al.*, 2023; Mitra *et al.*, 2022). این مولکول‌های زیستی به‌عنوان دهنده‌ی الکترون عمل کرده و باعث اکسیژن‌زدایی (deoxygenation) از گرافن‌اکسید می‌شوند. به‌طور خاص، گروه‌های هیدروکسیل ( $-OH$ ) پلی‌فنول‌ها به گروه‌های کربونیل ( $C=O$ ) اکسید می‌شوند و هم‌زمان الکترون‌هایی را اهدا می‌کنند که گروه‌های عاملی حاوی اکسیژن (مانند اپوکسی، کربونیل و هیدروکسیل) را روی صفحات پایه و لبه‌های گرافن‌اکسید کاهش می‌دهند (Goyat *et al.*, 2022; Mahmoud, 2020). این واکنش برای بازیابی شبکه‌ی مزدوج کربن  $sp^2$ ، که برای رسانایی الکتریکی بالای گرافن‌اکسید احیاء شده‌ی حاصل ضروری است، بسیار مهم می‌باشد (Thakur and Karak, 2015).

در رویکردی مشابه، Nawaz و همکاران (۲۰۲۳) روشی کم‌هزینه با استفاده از عصاره‌ی ترکیبی اکالیپتوس، عصاره‌ی لیمو، نشاسته و تیواوره، به‌عنوان عوامل کاهنده، معرفی کردند، که در این روش فلاونوئیدهای موجود در اکالیپتوس به‌عنوان آنتی‌اکسیدان برای تسهیل کاهش عمل می‌کنند (Nawaz *et al.*, 2023). George و همکاران (۲۰۲۲) از عصاره‌ی *Cashew apple* به‌عنوان یک عامل کاهنده‌ی طبیعی استفاده کردند و مسیری ساده و سازگار با محیط زیست برای احیای گرافن‌اکسید با کاربردهای بالقوه در زمینه‌های مختلف نشان دادند (George *et al.*, 2022).

احیای موفقیت‌آمیز گرافن‌اکسید توسط مجموعه‌ای از تکنیک‌های مشخصه‌یابی تایید شد. از FTIR با دامنه‌ی فرکانس  $cm^{-1}$  ۴۰۰۰-۵۰۰ و طیف‌سنجی رامان برای این منظور استفاده شد. طیف‌سنجی رامان، به‌عنوان ابزاری قدرتمند برای تمایز گرافن‌اکسید و گرافن‌اکسید احیاء شده در نظر گرفته می‌شود، زیرا می‌تواند به‌راحتی تعداد لایه‌ها، نقص‌ها و ساختار الکترونیکی را مورد بررسی قرار دهد (Kudin *et al.*, 2008). پراکندگی رامان همچنین به ساختار الکترونیکی وابسته است و از این‌رو می‌تواند برای توصیف مواد گرافیتی و گرافنی ابزار مفیدی باشد (Fan *et al.*, 2011). در پژوهش حاضر، نتایج بدست‌آمده از طیف‌سنجی رامان و FTIR مؤید احیای گرافن‌اکسید با عصاره‌ی برگ حرا می‌باشد و با پژوهش‌های دیگر همخوانی دارد (Ansari *et al.*, 2018; Hou *et al.*, 2017; Singh *et al.*, 2016).

در مطالعه‌ی Ansari و همکاران در سال ۲۰۱۸ با هدف سنتز گرافن با استفاده از عصاره‌ی *Zante currants*، طیف رامان گرافن‌اکسید دو پیک شاخص در  $cm^{-1}$  ۱۶۰۵ و  $cm^{-1}$  ۱۳۵۳ نشان داد، که به‌ترتیب مربوط به نوار G (حالت  $E_{2g}$  اتم‌های کربن  $Sp_2$ ) و نوار D (حالت متقارن  $A_{1g}$ ) می‌باشند. این نتایج با نتایج بدست‌آمده در مطالعه‌ی حاضر همخوانی دارد (Ansari *et al.*, 2018).

در مطالعه‌ی دیگری که توسط Singh و همکاران (۲۰۱۶) انجام شد، گرافن پیک‌های شاخصی در  $cm^{-1}$  ۱۵۸۰ (مربوط به نوار G) و  $cm^{-1}$  ۱۳۵۰ (مربوط به نوار D) نشان داد، که مشابه با پیک‌های بدست‌آمده برای گرافن در مطالعه‌ی حاضر می‌باشد (Singh *et al.*, 2016).

آنالیز مورفولوژی توسط FE-SEM ماهیت ورقه‌ای و حالت کروی گرافن احیاء شده را نشان داد. اندازه‌ی ذرات گرافن در محدوده‌ی ۴۴-۵۰ nm و گرافن‌اکسید در محدوده‌ی ۳۳-۴۹ nm متغیر بود. در مطالعه‌ی Hou و همکاران (۲۰۱۷) که با هدف کاهش سبز گرافن‌اکسید با عصاره‌ی *Lycium barbarum* انجام گرفت، در تصاویر بدست‌آمده با SEM از گرافن احیاء شده، ساختار ورقه‌ای و کروی مشاهده شد که با نتایج پژوهش حاضر همخوانی دارد (Hou *et al.*, 2017).

در مطالعه‌ی Jahangirzadeh (۲۰۱۶) اندازه‌ی ذرات گرافن‌اکسید احیاء شده در محدوده‌ی ۳۰nm تا ۷۰nm بدست آمد که مشابه با نتایج بدست‌آمده در پژوهش حاضر می‌باشد. این مطالعه همچنین تاکید کرد که عصاره‌ی گیاهان علاوه‌براینکه به‌عنوان عاملی احیاءکننده عمل می‌کنند، می‌توانند بر اندازه‌ی نانوذرات نیز اثر بگذارند (Jahangirzadeh, 2016).

عصاره‌ی حرا در مقایسه با سایر عصاره‌های گیاهی مورد استفاده در احیای گرافن‌اکسید، مزایای متمایزی ارائه می‌دهد. گیاهان مانگرو اکسترموفیل (Extremophiles) هستند که در محیط‌های با شوری بالا و اکسیژن کم رشد می‌کنند و این امر باعث تولید متابولیت‌های ثانویه‌ی منحصر به فرد و قوی با قدرت کاهندگی بالا در آن‌ها می‌شود (Zaghloul *et al.*, 2025). این توان زیستی

ذاتی به یک فرآیند کاهش کارآمد منجر می‌شود که اغلب در دماهای متوسط (مثلاً ۸۰-۹۰ درجه‌ی سانتی‌گراد) قابل دستیابی است و این امر روش ما را نه تنها سبزتر، بلکه به‌طور بالقوه پرنانرژی‌تر از بسیاری از جایگزین‌های گزارش‌شده می‌سازد.

### نتیجه‌گیری

این مطالعه پتانسیل عصاره‌ی برگ گیاه حرا را به‌عنوان یک جایگزین سبز و کارآمد برای سنتز گرافن تأیید می‌کند. این رویکرد نوآورانه، با بهره‌گیری از ترکیبات طبیعی به‌عنوان عوامل کاهنده، وابستگی به مواد شیمیایی خطرناک متعارف را از بین می‌برد و کاملاً با اصول پایدار نانو تکنولوژی سبز همسو است. محصول نهایی سنتز شده با این روش، به‌دلیل منشأ زیستی و سمیت پایین، پتانسیل فوق‌العاده‌ای برای کاربرد در حوزه‌های پیشرفته و حساس از جمله توسعه‌ی نسل جدیدی از ابزارهای الکترونیکی انعطاف‌پذیر، سیستم‌های رهایش هوشمند دارو و فناوری‌های پاک تصفیه‌ی آب نشان می‌دهد.

### سپاسگزاری

این نوشتار برگرفته از بخشی از پایان‌نامه‌ی کارشناسی ارشد است که در دانشگاه هرمزگان به ثبت رسیده است. از معاونت محترم پژوهشی دانشگاه هرمزگان و گروه زیست‌شناسی دریا بابت حمایت‌های معنوی و همکاری در اجرای پژوهش سپاس‌گزاری می‌شود.

### References

- Akhil, S., Saeed, A.M.M.J., Majety, S.S., Mullamuri, B., Majji, G., Bharatiya, D., Mosali, V.S.S., Bollikolla, H.B. and Chandu, B., 2021. Cost effective biosynthetic approach for graphene exhibiting superior sonochemical dye removal capacity. *Carbon Letters*, 31(6), pp.1215-1225. <https://doi.org/10.1007/s42823-021-00245-2>.
- Ansari, M. Z., Lone, M. N., Sajid, S. and Siddiqui, W. A., 2018. Novel green synthesis of graphene layers using zante currants and graphene oxide. *Oriental Journal of Chemistry*, 34 (6), 2832-2837. <https://doi.org/10.13005/ojc/340621>.
- Azizi, M. and Kalantar, M., 2020. Evaluation of microstructural and antibacterial properties of graphene oxide synthesized by green method. *Journal of Advanced Materials and Technologies (JAMT)*, 9 (3), pp. 51-61. <https://doi.org/10.30501/jamt.2020.221997.1075>. (In Persian).
- Bakshi, M., Ghosh, S. and Chaudhuri, P., 2015. Green synthesis, characterization and antimicrobial potential of silver nanoparticles using three mangrove plants from Indian Sundarban. *BioNanoScience*, 5 (3), pp.162-170. <https://doi.org/10.1007/s12668-015-0175-8>.
- Bao, Y., Tian, C., Yu, H., He, J., Song, K., Guo, J., Zhou, X., Zhuo, O. and Liu, S., 2022. In situ green synthesis of graphene oxide-silver nanoparticles composite with using gallic acid. *Frontiers in Chemistry*, 10, p.905781. <https://doi.org/10.3389/fchem.2022.905781>.
- Chaudhuri, P., Nath, B. and Birch, G., 2014. Accumulation of trace metals in grey mangrove *Avicennia marina* fine nutritive roots: the role of rhizosphere processes. *Marine pollution bulletin*, 79 (1-2), pp. 284-292. <https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2013.11.024>.
- Fan, Z. J., Kai, W., Yan, J., Wei, T., Zhi, L. J., Feng, J., Ren, Y.M., Song, L.P. and Wei, F., 2011. Facile synthesis of graphene nanosheets via Fe reduction of exfoliated graphite oxide. *ACS nano*, 5 (1), 191-198. <https://doi.org/10.1021/nn102339t>.
- George, J.S., Paduvilan, J.K., Velayudhan, P., Kalarikkal, N., Hameed, N. and Thomas, S., 2022. Cashew apple extract: A novel, potential green reducing agent for the synthesis of reduced graphene oxide. *Journal of Nano Research*, 71, pp.57-70. <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/JNanoR.71.57>.
- Gkika, D.A., Maroulas, K.N. and Kyzas, G.Z., 2025. Various reduced graphene oxide green synthetic routes: comparing the cost procedures. *ACS omega*, 10 (32), pp.36221-36237. <https://doi.org/10.1021/acsomega.5c04090>.
- Gnanadesigan, M., Anand, M., Ravikumar, S., Maruthupandy, M., Ali, M.S., Vijayakumar, V. and Kumaraguru, A.K., 2012. Antibacterial potential of biosynthesised silver nanoparticles using

- Avicennia marina* mangrove plant. *Applied Nanoscience*, 2 (2), pp.143-147. <https://doi.org/10.1007/s13204-011-0048-6>.
- Goyat, R., Saharan, Y., Singh, J., Umar, A. and Akbar, S., 2022. Synthesis of graphene-based nanocomposites for environmental remediation applications: a review. *Molecules*, 27 (19), p. 6433. <https://doi.org/10.3390/molecules27196433>.
- Hou, D., Liu, Q., Cheng, H., Zhang, H. and Wang, S., 2017. Green reduction of graphene oxide via *Lycium barbarum* extract. *Journal of Solid-State Chemistry*, 246, 351-356. <https://doi.org/10.1016/j.jssc.2016.12.008>.
- Ibrahim, H.A., Abdel-Latif, H.H. and Zaghoul, E.H., 2022. Phytochemical composition of *Avicennia marina* leaf extract, its antioxidant, antimicrobial potentials and inhibitory properties on *Pseudomonas fluorescens* biofilm. *Egyptian Journal of Aquatic Research*, 48 (1), pp. 29-35. <https://doi.org/10.1016/j.ejar.2021.10.007>.
- Jahangirzadeh, F., 2016. Biosynthesis of graphene nanosheets using *Rosa cannina* plant, investigation of its properties and application in modern drug delivery systems - University of Tabriz. (In Persian).
- Kataria, S.K., Kadyan, P., Saini, J., Saharan, M. and Arasu, P.T., 2025. Green synthesis of red fluorescent graphene quantum dots using *Withania somnifera* leaves: exploring antidiabetic and antioxidant potential. *International Journal of Biomaterials*, 2025 (1), p.5841012. <https://doi.org/10.1155/ijbm/5841012>.
- Kudin, K. N., Ozbas, B., Schniepp, H. C., Prud'Homme, R. K., Aksay, I. A. and Car, R., 2008. Raman spectra of graphite oxide and functionalized graphene sheets. *Nano letters*, 8 (1), 36-41. <https://doi.org/10.1021/nl071822y>.
- Mahmoud, A.E.D., 2020. Eco-friendly reduction of graphene oxide via agricultural byproducts or aquatic macrophytes. *Materials Chemistry and Physics*, 253, p.123336. <https://doi.org/10.1016/j.matchemphys.2020.123336>.
- Mao, H.Y., Lu, Y.H., Lin, J.D., Zhong, S., Wee, A.T.S. and Chen, W., 2013. Manipulating the electronic and chemical properties of graphene via molecular functionalization. *Progress in Surface Science*, 88 (2), pp.132-159. <https://doi.org/10.1016/j.progsurf.2013.02.001>.
- Meka Chufa, B., Abdisa Gonfa, B., Yohannes Anshebo, T. and Adam Workneh, G., 2021. A novel and simplest green synthesis method of reduced graphene oxide using methanol extracted *Vernonia amygdalina*: large-scale production. *Advances in Condensed Matter Physics*, 2021(1), p.6681710. <https://doi.org/10.1155/2021/6681710>.
- Mhamane, D., Ramadan, W., Fawzy, M., Rana, A., Dubey, M., Rode, C., Lefez, B., Hannover, B. and Ogale, S., 2011. From graphite oxide to highly water dispersible functionalized graphene by single step plant extract-induced deoxygenation. *Green Chemistry*, 13 (8), pp.1990-1996. <https://doi.org/10.1039/C1GC15393E>.
- Mitra, S., Naskar, N., Lahiri, S. and Chaudhuri, P., 2023. A study on phytochemical profiling of *Avicennia marina* mangrove leaves collected from Indian Sundarbans. *Sustainable Chemistry for the Environment*, 4, p.100041. <https://doi.org/10.1016/j.scenv.2023.100041>.
- Nawaz, M.H., Iqbal, N., Rehman, R. and Shahid, M.K., 2023. Green synthesis and characterization of reduced graphene oxide. *Issues of Chemistry and Chemical Technology/Voprosy Khimii & Khimicheskoi Tekhnologii*, 4, p. 69-76. <https://doi.org/10.32434/0321-4095-2023-149-4-69-76>.
- Perreault, F., De Faria, A.F. and Elimelech, M., 2015. Environmental applications of graphene-based nanomaterials. *Chemical Society Reviews*, 44 (16), pp.5861-5896. <https://doi.org/10.1039/C5CS00021A>.
- Perumal, D., Albert, E.L. and Abdullah, C.A.C., 2022. Green reduction of graphene oxide involving extracts of plants from different taxonomy groups. *Journal of Composites Science*, 6 (2), p.58. <https://doi.org/10.3390/jcs6020058>.
- Ramakrishnan, S., Dhakshnamoorthy, M., Jelmy, E.J., Vasanthakumari, R. and Kothurkar, N.K., 2014. Synthesis and characterization of graphene oxide-polyimide nanofiber composites. *RSC Advances*, 4 (19), pp. 9743-9749. <https://doi.org/10.1039/C3RA46004E>.

- Safiari, S., 2018. Mangrove forests in Iran. *Irannature*, 2 (2), pp. 49-57. <https://doi.org/10.22092/IRAN.2017.111425>. (In Persian).
- Shaheen, S., Saeed, Z., Ahmad, A., Pervaiz, M., Younas, U., Khan, R.R.M., Luque, R. and Rajendran, S., 2023. Green synthesis of graphene-based metal nanocomposite for electro and photocatalytic activity; recent advancement and future prospective. *Chemosphere*, 311, p.136982. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2022.136982>.
- Singh, C., Ali, M. A. and Sumana, G., 2016. Green synthesis of graphene-based biomaterial using fenugreek seeds for lipid detection. *ACS Sustainable Chemistry and Engineering*, 4 (3), 871-880. <https://doi.org/10.1021/acssuschemeng.5b00923>.
- Thakur, S. and Karak, N., 2015. Alternative methods and nature-based reagents for the reduction of graphene oxide: A review. *Carbon*, 94, 224-242. <https://doi.org/10.1016/j.carbon.2015.06.030>.
- Torrisi, F., Hasan, T., Wu, W., Sun, Z., Lombardo, A., Kulmala, T.S., Hsieh, G.W., Jung, S., Bonaccorso, F., Paul, P.J. and Chu, D., 2012. Inkjet-printed graphene electronics. *ACS nano*, 6 (4), pp. 2992-3006. <https://doi.org/10.1021/mn2044609>.
- Upadhyay, R.K., Soin, N., Bhattacharya, G., Saha, S., Barman, A. and Roy, S.S., 2015. Grape extract assisted green synthesis of reduced graphene oxide for water treatment application. *Materials Letters*, 160, pp.355-358. <https://doi.org/10.1016/j.matlet.2015.07.144>.
- Zaaba, N.I., Foo, K.L., Hashim, U., Tan, S.J., Liu, W.W. and Voon, C.H., 2017. Synthesis of graphene oxide using modified hummers method: solvent influence. *Procedia engineering*, 184, pp.469-477. <https://doi.org/10.1016/j.proeng.2017.04.118>.
- Zaghloul, E.H. and El Halfawy, N.M., 2025. Bioactive compounds and biological activities of *Avicennia marina* (Forssk.) Vierh. In *Bioactive Compounds in Mangroves and their Associates*, Cham: Springer Nature Switzerland, pp. 1-12. [https://doi.org/10.1007/978-3-031-63920-3\\_6-1](https://doi.org/10.1007/978-3-031-63920-3_6-1).
- Zainuddin, M.F., Nik Raikhan, N.H., Othman, N.H. and Abdullah, W.F.H., 2018, May. Synthesis of reduced Graphene Oxide (rGO) using different treatments of Graphene Oxide (GO). In *IOP conference series: materials science and engineering*, 358 (1), p. 012046. <https://doi.org/10.1088/1757-899X/358/1/012046>.