



College of Basic Education Research Journal

www.berj.mosuljournals.com


Synthesis, Characterization and Antibacterial activity Evaluation of Some Complexes Derived From 4-(4-(dimethyl amino) benzylidene) hydrazono) methyl)-2-methoxyphenol Ligand

Nuha Amer Mustafa

Sahbaa Ali Ahmed

University of Mosul College of Science Dept. of Chemistry

Article Information

Article history:

Received: May 30.2024

Reviewer: July 1.2024

Accepted: July 8.2024

Key words : Schiff base complexes, hydrazone complexes.

Correspondence:

Abstract

This study involves synthesis of new complexes from metal ions Co (II), Ni (II), Cu (II), and Zn (II) with 4-(4-(dimethyl amino) benzylidene) hydrazono) methyl)-2-methoxyphenol ligand (LN) in a molar ratio [1:2] metal: ligand. The complexes were characterized based on Elemental analysis, IR, UV-Vis, molar conductivity, magnetic susceptibility, XRD, molar conductance, magnetic moment measurement, and powder X-ray diffraction. Infrared data suggest that ligand (LN) behaves as a monodentate ligand and coordinates through (N) as a donor, forming a sequence towards the metal ions. The LN gives an octahedral shape, and ligand was characterized using IR, ^1H , and ^{13}C NMR. Finally, some of these prepared complexes were screened for their antibacterial activities against two classes of pathogenic bacteria: Gram-positive and Gram-negative bacteria. The results show that metal complexes have a greater essential action compared to free ligand.

ISSN: 1992 – 7452

تحضير وتشخيص وتقييم الفعالية المضادة للبكتريا لبعض المعقدات المشتقة من ليكاند ٤- (٤-ثنائي ميثيل امينو) بنزاليدين (هيدرازونو) ميثيل ٢-ميثوكسي

فينول *

نهى عامر مصطفى
صهباى علي احمد
جامعة الموصل /كلية العلوم /قسم الكيمياء

ملخص البحث :

في هذه الدراسة حضرت معقدات جديدة من الايونات الكوبلت (II) ، والنيكل (II)، والنحاس (II)، والخاصين (II)، مع الليكاند ٤- (٤-ثنائي ميثيل امينو) بينزاليدين (هيدرازونو) ميثيل ٢-ميثوكسي فينول، بنسبة مولارية (٢:١) (فلز: ليكاند)، وشخصت المعقدات المحضرة بواسطة تقنيات كيميائية وفيزيائية طيفية مختلفة، منها اطياف الاشعة تحت حمراء FT-IR ، والاطياف الالكترونية ، والعزم المغناطيسي ، والتوصيلية المولارية ، التحليل الدقيق للعناصر ، وحيود الاشعة السينية للمسحوق، اثبتت الدراسات اعلاه ومن ضمنها الدراسة الطيفية (IR)، ان الليكاند سلك سلوك ليكاند احادي السن ، والتناسق مع الايون الفلزي من خلال ذره النتروجين العائدة لمجموعة الازوميثين ، واعطى معقدات ثمانية السطوح ، وشخص الليكاند بواسطة (IR)، و طيف الرنين النووي المغناطيسي للبروتون والكربون ١٣-، واخيرا درست الفعالية البيولوجية ، لليكاند ومعقداته على صنفين من البكتيريا الممرضة الموجبة والسالبة لصبغة كرام ، اذ اظهرت بعض المعقدات فعالية ضد النشاط البكتيري اعلى من الليكاند الحر. الكلمات المفتاحية: معقدات قاعدة شف ، معقدات الهيدرازون.

المقدمة: Introduction

الهيدرازونات المشتقة من الهيدرازين تعتبر من المجاميع الوظيفية التي لها تطبيقات صيدلانية واسعة ، والتي تمتلك الصيغة ($W(R-NH-NC=RR')$ Cao), (اخرون2018)، يتم تحضيرها عن طريق مفاعلة مركبات الكربونيل مع الهيدرازين المائي، الهيدرازونات ذات فعالية بيولوجية بسبب امكانية تكوين معقدات مع الايونات الفلزية عن طريق الارتباطات التناسقية وتم حديثا تطوير مشتقات الهيدرازونات في مجال صناعة ادوية ، مضادات السرطان ، مضادات الفطريات ، مضادات البكتيريا، (Mohamed, (اخرون2013)، ومضادات الفايروسات (Kesel, 2011)، ومضادات اكسدة، (Osman, (اخرون2012)، ومضادات تخثر الدم ، كذلك تم استخدام معقدات النحاس كمضادات لعلاج بعض الامراض السرطانية (Przybylski, (اخرون2009)، وفي دراسة تغلج الحمض النووي (DNA) بتأثير ظروف فيزيائية، إضافة الى مزج بعض ليكاندات الهيدرازونات مع ايونات البلاتين لتحضير ايزومرات سس- بلاتين والتي استخدمت لعلاج بعض الامراض السرطانية ، كذلك حضر معقدات فلزية مع ليكاندات الهيدرازونات استخدمت كمضادات السل، (Katyal and Dutt, (اخرون1975) ، وصناعية بطاريات كهربائية وفي مجالات زراعية في تصنيع مبيدات الحشرات والاعشاب الضارة، (Pawaiya, (اخرون2014)، استخدام الهيدرازين في تحضير قواعد شف حيث تمتلك بذلك مجموعة الازوميثين (التفاعل مع الالديهايد او البنزالديهايد)، وقد تتكون مجموعة ايمين (عند التفاعل مع الكيتونات)، ان وجود مجموعة الازوميثين او الامين في اليكاندات قاعدة شف المحضرة من الهيدرازونات تعطي خصائص مميزة وفريدة في تنوع اشكال التناسق مع الايونات الفلزية وبالتالي يكون هنالك اختلاف في الخصائص البيولوجية ما بين اليكاندات والمعدقات المشتقة منها (Shah, (اخرون2022)، من الخصائص الطبية المهمة لقواعد شف هو تصنيع ادوية ، والزهايمر، والصرع ، والاورام وكذلك اخمد الجذور الحرة ، وذلك لامتلاكها المجموعة الوظيفية ($C=N$)، فهي تمتلك خاصية نقل الاوكسجين باعتبارها مجاميع كليتيه مع العناصر الانتقالية في الخلايا الحية، (Youssef, (اخرون2022) ولمعدقات قواعد شيف تطبيقات واسعة ومنها الصيدلانية.

في هذا البحث تم تحضير ليكاند مشتق من الهيدرازين والبنزالديهايد (هيدرازون) وحضر منه أربع معقدات فلزية مع عدد من العناصر الانتقالية واختبرت المركبات المحضرة مختبرياً ضد صنفين من البكتيريا احدهما سالبة والاخرى موجبة لصبغة كرام.

المواد وطرائق العمل Materials and Methods

١- جميع المواد الكيميائية المستخدمة في الدراسة ذات نقاوة عالية ومجهزه من شركة (BDH, Fluke, and Sigma Aldrich).

٢- الاجهزة والقياسات Instrument & Measurements

قيست درجات الانصهار والتفكك لليكاند والمعقدات المحضرة في قسم الكيمياء /كلية العلوم / جامعة الموصل باستعمال جهاز (Melting point Apparatus) موديل (SMP30)، القياسات المغناطيسية تمت في كلية التربية /قسم الكيمياء /جامعة تكريت باستعمال جهاز (Magnetic Susceptibility, Balance)، اطياف الاشعة تحت حمراء تم قياسها بواسطة جهاز (Bruker FTIR, Alpha- ATR) في المنطقة المحصورة ما بين-4000 (cm^{-1}) 400 تم اجراء القياس في المختبر المركزي لكلية العلوم /جامعة الموصل ، التوصيلية الكهربائية للمعقدات تم قياسها بجهاز من نوع (model 4510 jenway)، باستخدام مذيب DMF وبتركيز (10^{-3}M) عند درجة الحرارة (25°C)، وسجلت اطياف الالكترونية للمعقدات بواسطة الاشعة فوق بنفسجية بجهاز (U.v)، في درجة حرارة الغرفة وباستعمال جهاز من نوع (Shamadzu1800spectro photometer)، باستخدام مذيب DMF، والقياس بخلايا من الكوارتز (1cm) وعند المدى (200 – 1100) nm، تم تحديد كمية العنصر في المعقدات المحضرة بواسطة مطيافية الامتصاص الذري بجهاز من نوع (NovAA anlitjena)، كما تم اجراء التحليل الدقيق للعناصر لكل من الليكاند ومعقداته بواسطة جهاز (Elementar Vario Micro Cube) واجري القياس في جامعة غازي باشا/ تركيا ، كذلك اجري قياس طيف الرنين النووي المغناطيسي للبروتون (^1H -NMR) لليكاند باستخدام جهاز تركي المنشأ من نوع التالي

(Bruker BioSpin GmbH, 400 MHz) وتم القياس في جامعة غازي باشا/ تركيا ، الاشعة السينية قيست بواسطة جهاز (X,pert Phillips Holland- Xrd) موديل (PW1730) مصنع من شركة (Phillips) للدولة المصنعة (Netherlands) في جامعة طهران/ايران ، الفعالية البكتيرية تم اجراءها تعفي مختبر بحوث الاحياء المجهرية في قسم علوم الحياة /كلية العلوم / جامعة الموصل.

طرائق التحضير:

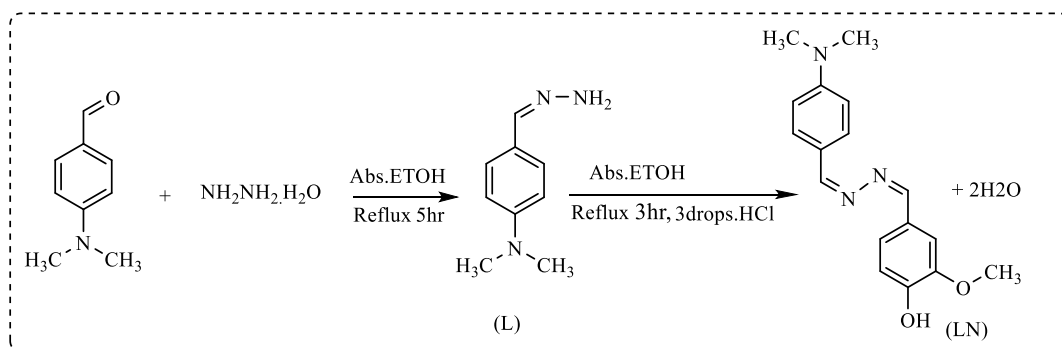
١. تحضير الليكاند (LN)

الخطوة الاولى- تحضير الجزء الاول من الليكاند (L) بتفاعلات قواعد شف:

يضاف في دورق دائري مجهز بمحرك مغناطيسي (0.35g, 0.007mole) من الهيدرازين المائي الى (1g, 0.007 mol) من المركب (N,N-dimethylaminobenzaldehyde) المذاب في (25mL) من الايثانول المطلق، صعد المزيج لمدة (٥) ساعات Wang, واخرون (2006)، ثم ركز المزيج الى نصف الحجم ، ترك الناتج في درجات حرارة المختبر ليبرد ، بعد ذلك تكون راسب ، رشح وغسل بمزيج من الماء والايثانول ثم جفف واعيد بلورته من الايثانول المطلق ، واعطى بلورات برتقالية مصفرة . درجة الانصهار $^{\circ}\text{C} = 240-242$ ، والنسبة المئوية للناتج ٨٥٪، المخطط (١) يوضح تركيب (L).

الخطوة الثانية-تحضير الجزء الثاني من الليكاند (LN) بتفاعلات شف:

يضاف في دورق دائري مجهز بمحرك مغناطيسي (1.63g , 0.01mole) من المركب (L) المحضر في الخطوة الاولى الى (1.52g , 0.01 mol) من البنزالديهايد المعوض (Vanillin) المذاب في (25mL) من الايثانول المطلق، ثم اضافة (3) قطرات من حامض HCl الى مزيج التفاعل، وصعد المزيج لمدة (٣) ساعات، (Wang واخرون 2006)، بخر المذيب بعد ذلك برد الناتج وتكون راسب ، رشح وغسل بمزيج من الماء والايثانول ثم جفف واعيد بلورته من الايثانول المطلق ، واعطى بلورات برتقالية، درجة الانصهار $^{\circ}\text{C} = 258$ - ٢٥٦ ، والنسبة المئوية للناتج ٨٠٪، المخطط (١) يوضح تركيب (LN).



مخطط (١): يبين تحضير الليكاند (LN).

Preparation of complexes

٢. تحضير المعقدات الفلزية

حضرت المعقدات باتباع الطرق, Kriza وآخرون (2009) وبنسبة (١:٢) (ليكاند: فلز):
يضاف في دورق دائري مجهز بمحرك مغناطيسي (0.002mol , 0.5943g) من قاعدة
شف (LN) المذابة في (15mL) من الايثانول، يتبعها اضافة الملح الفلزي (Co (II)
0.2379 g, Ni (II) 0.2444 g, Cu (II) 0.1704g, Zn (II) المذاب في
اقل كمية من الايثانول الى المحلول المذاب فيه الليكاند وبنسبة مولارية (١:٢) ليكاند: فلز،
يصعد المزيج حرارياً (٣) ساعات ، ثم يبرد مزيج التفاعل ويرشح الراسب المتكون ويغسل
بالأثير ويجفف، المخطط (٢) يوضح الشكل الهندسي للمعقدات المقترحة.

٣. النتائج و المناقشة: Result and Discussion

في هذا البحث حضر الليكاند (4-4-ثنائي ميثيل امين (بنزالدين) هيدرازونو (ميثيل) ٢-
ميثوكسي فينول)، وحسب طريقة (Wang وآخرون 2009) بواسطة تكاثف قاعدة شف، في
الوسط الحامض ، وتم تحضير معقدات فلزية جديدة لليكاند مع الاملاح الفلزية لعناصر
الكوبلت (II) ، النيكل (II)، النحاس (II)، الخارصين (II)، وبنسبة مولية (1:2) ليكاند: فلز، ان
المعقدات الناتجة جميعها مواد صلبة واغلبها ملونة ومستقرة في الهواء ولها القابلية على
الذوبان بصورة جيدة في المذيب ثنائي ميثيل فورمامايد (DMF) وثنائي ميثيل
سلفوكسايد (DMSO)، لقد تبين من قياسات التوصيلية المولارية في مذيب (DMF) (1972)
(W.j.Moore)، ان بعض المعقدات تسلك سلوك معقدات متعادلة ، فهي غير الكتروليتية
اي انها ضعيفة التوصيلية في المحلول والقسم الاخر من المعقدات تسلك سلوك معقدات
غير المتعادلة فهي الكتروليتية وبنسبة (1:1) وكما موضح في الجدول (١)، تم قياس العزم
المغناطيسية لمعقدات الكوبلت وكانت قيمة العزم المغناطيسي المحسوبة للكوبلت

(4.62B.M) والنيكل (3.05B.M) والنحاس (1.78B.M)، اما فيما يتعلق بمعقد الخارصين فهو دايا مغناطيسية d^{10} (2020, Al-Shaheen, Al-Bergas).

الجدول (١): بعض الخواص التحليلية والفيزيائية للمعقدات المحضرة.

O.	الصيغة المقترحة للمعقد	درجة الانصهار (°C)	اللون	التوصيلية $\Omega^{-1} \text{ cm}^2 \text{ mol}^{-1}$	التحليل الدقيق للعناصر (CHN) Found (calc)%			
					C	H	N	M
	[Co (LN) ₂ Cl ₂ (H ₂ O) ₂]	210-212	أزرق مخضر	13.8	(53.60) 53.78	(5.57) 5.67	(11.05) 10.90	(7.75) 7.57
	[Ni (LN) ₂ Cl ₂ (H ₂ O) ₂]	216-218	أخضر فاتح	19.2	(53.71) 53.82	(5.57) 5.48	(11.05) 10.98	(7.72) 7.49
	[Cu (LN) ₂ Cl (H ₂ O) ₃] Cl	231-233	أزرق غامق	70.8	(54.14) 54.28	(5.66) 5.79	(10.73) 10.57	(8.11) 7.92
	[Zn (LN) ₂ Cl (H ₂ O) ₃] Cl	202-204	أصفر غامق	74.6	(52.02) 52.23	(5.65) 5.80	(10.71) 10.48	(8.33) 8.10

1.3. قياس الاطياف الالكترونية للمعقدات المحضرة: U.v-Visible

تم قياس الطيف الالكتروني لمعقد الكوبلت (II) المحضر [Co (LN)₂Cl₂(H₂O)₂]، وقد أعطى حزم امتصاص عند، (14790 cm^{-1}) ، (16449 cm^{-1}) تعزى هذه الحزم إلى الانتقالات ${}^4T_{1g}(F) \rightarrow {}^4A_{2g}(F)$ و ${}^4T_{1g}(F) \rightarrow {}^4T_{1g}(P)$ على التوالي، أما (ν_1) لم تظهر مما يدل على اتخاذ هذا المعقد بنية ثماني السطوح عالي البرم (Abd El-Lateef وآخرون 2023) يأخذ الترتيب الالكتروني $(t_2g^5 e_g^2)$ (1997, Verma).

لقد أثبت الطيف الالكتروني لمعقد النيكل (II) المحضر $[\text{Ni}(\text{LN})_2\text{Cl}_2(\text{H}_2\text{O})_2]$ وجود ثلاث حزم عند المواقع $(\text{cm}^{-1}11210)$ ، $(\text{cm}^{-1}13333)$ ، (21276cm^{-1}) والتي تعزى إلى حزم الامتصاص $(\text{g})^3\text{T}_2 \rightarrow (\text{g})^3\text{A}_2$ و $(\text{g})^3\text{T}_1 \rightarrow (\text{g})^3\text{A}_2$ و $(\text{g})^3\text{A}_2 \rightarrow (\text{g})^3\text{A}_2$ على التوالي، وإن مواقع حزم الامتصاص هذه تتفق مع معقدات النيكل (II) ثمانية السطوح (VJayalakshmi وآخرون، 2017، Al-Shaheen، 2020، Bergas).

إن الحزمة العريضة (Broad Band) التي تظهر في معقدات النحاس (II) تمثل الانتقال الالكتروني $(\text{g})^2\text{T}_2 \rightarrow (\text{g})^2\text{Eg}$ وتنقسم هذه الحزمة في المجال ثنائي السطوح إلى ثلاث حزم من جراء التشوه الحاصل لهذه المعقدات بسبب تأثير (جان-تيلر) (Huheey، وآخرون 1993). الطيف الالكتروني لمعقد $[\text{Cu}(\text{LN})_2\text{Cl}(\text{H}_2\text{O})_3]\text{Cl}$ أظهر حزم عند $(\text{cm}^{-1}16666)$ وهذه الامتصاص تتفق مع ما نشر من بحوث تدل على أنه ثنائي السطوح (Kumar وآخرون 2011) (Al-Shaheen، Al-Bergas، 2020).

تم قياس الأطياف الالكترونية لمعقد الخارصين (II) وقد أعطى حزم امتصاص بحدود $(29069, 35471\text{cm}^{-1})$ وهذه الامتصاصات على الأرجح تمثل أطياف نقل الشحنة وفي حالات قليلة تعزى إلى حزم الليكاند، إذ إن هذه الامتصاصات لا تعطي انتقالات (d-d) وذلك لأنها تمتلك (d^{10}) في غلاف تكافؤها الخارجي واتخذت معقدات الخارصين (II) بنية ثنائي السطوح بناءً على القياسات الموصلية وطيف الأشعة تحت حمراء (Raman وآخرون 2013).

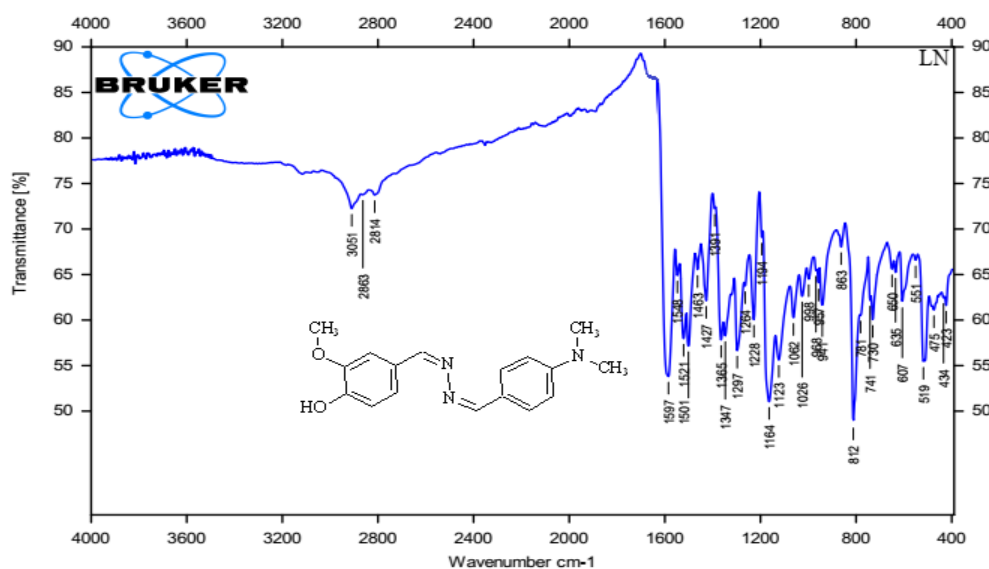
2.3. طيف الأشعة تحت حمراء FT-IR

نظراً لأهمية طيف الأشعة تحت الحمراء في تشخيص ودراسة الليكاندات ومعقداتها ، إذ عند تكوين المعقدات تنشأ أواصر تناسقية جديدة بين الليكاند وذرة الفلز المركزية قد تؤدي إلى تغيير التركيب الالكتروني (Electronic Structure) والمستوى الطاقي (Energy Level) والتماثل (Symmetry) في الليكاندات ، ومن ثم في الأطياف الاهتزازية للمعقدات (Nakamoto، 1963) ، وهناك العديد من العوامل التي تؤثر في الاهتزاز الامتطاقي للمعقد وهي الحالة الفيزيائية للمركب وطبيعة المجاميع سواء كانت على الكربون أو النتروجين أم على كليهما وكذلك الأواصر الهيدروجينية والتركيب والتناظر في

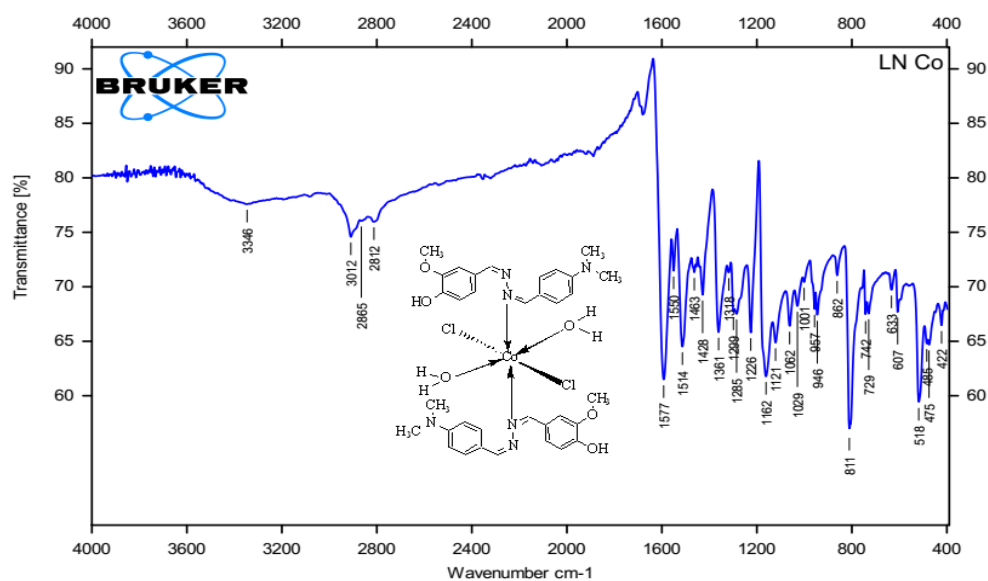
جزيئة المعقد وقوة الاصرة التناسقية فضلاً عن التداخلات مع المحيط الخارجي (مثلاً المذيب والجزئيات خارج الكرة التناسقية) كل تلك العوامل تؤدي إلى التأثير على الطيف الاهتزازي للمعقد (1962 Nakanishi).

ظهر التردد الامتطاوي لمجموعة الآزوميثين الليكاند المحضر عند (1597 cm^{-1}) وعند قياس أطيايف المعقدات ظهرت هذه المجموعة عند ترددات اقل ($1577\text{--}1570\text{ cm}^{-1}$) مما يدل على ارتباط هذه المجموعة مع الفلز عن طريق نتروجين مجموعة الآزوميثين والتي تؤدي إلى إزاحتها نحو تردد أوطأ بسبب الضعف الذي يحدث في خاصية الاصرة المزدوجة ($\text{C}=\text{N}$) وهذا متفق مع ماورد من بحوث منشورة (Tolan وآخرون 2021).

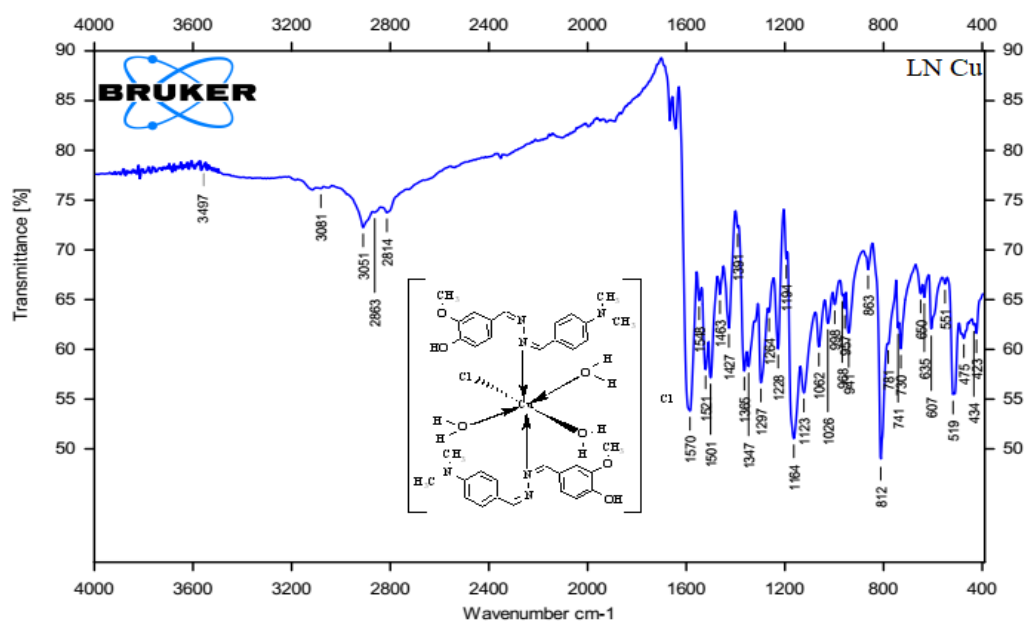
يظهر طيف الأشعة تحت الحمراء للمعقدات المحضرة حزم التآرجح (Rocking) للمعقدات المائية عند ($812\text{--}811\text{ cm}^{-1}$) للأملاح اللاعضوية للماء المتناسق وحدد (Hofmeister وآخرون 1995) المنطقة ($3542\text{--}3200\text{ cm}^{-1}$) للماء المتناسق أظهرت جميع المعقدات المحضرة انها حاوية على الماء وحزم امتصاص عريضة في المدى المذكور أعلاه وكما موضح في الطيف فضلاً عن ظهور حزمة في المنطقة ($519\text{--}518\text{ cm}^{-1}$) عزيت إلى M-O وهي متفقة مع ما نشر من بحوث، فضلاً عن ظهور حزم مط (C-H) الاروماتية عند ($3046\text{--}3081\text{ cm}^{-1}$)، وحزم مط (C-H) الاليفاتية كما موضح في الاشكال (٤-١) (Shahab وآخرون 2019).



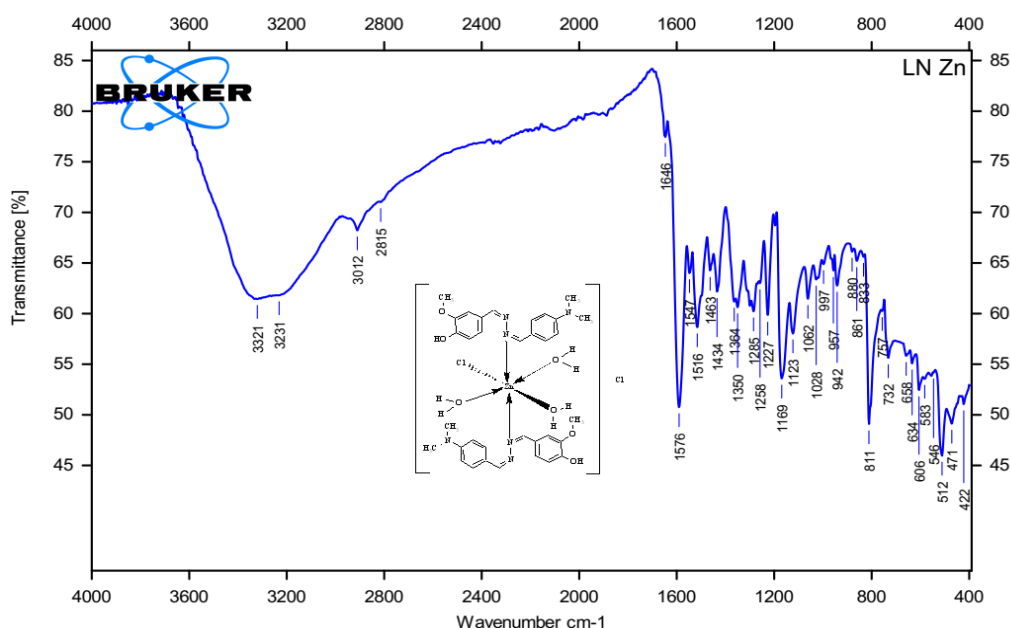
الشكل (١): يظهر طيف الاشعة تحت حمراء لليكاند.



الشكل (٢): يظهر طيف الأشعة تحت حمراء للمعقد رقم (١).



الشكل (٣): يظهر طيف الأشعة تحت حمراء للمعقد رقم (٣).



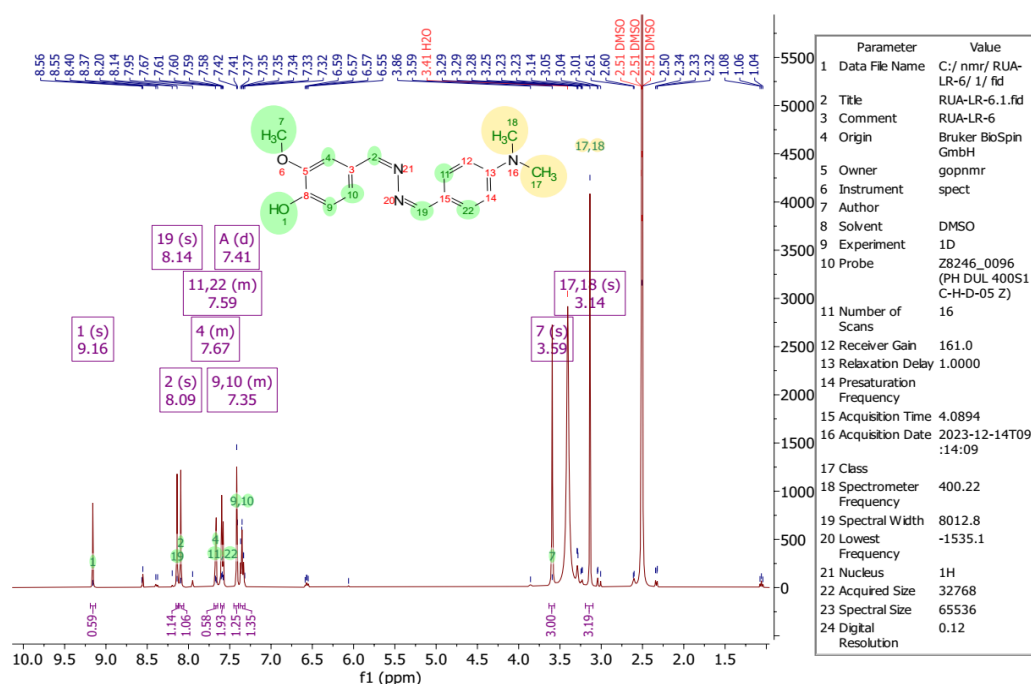
الشكل (٤): يظهر طيف الأشعة تحت حمراء لمعقد رقم (٤).

ظهرت حزمة الامتصاص لمجموعة $\nu(M-N)$ في المعقدات جميعها عند المدى $(423-422\text{cm}^{-1})$ في منطقة التردد الواطي، وهي متفقة مع ما ورد من بحوث مشابهة وهذا يدل على حصول التناسق مع الفلز من خلال ذرة النتروجين لمجموعة الازوميثين (Bennour واخرون 2023).

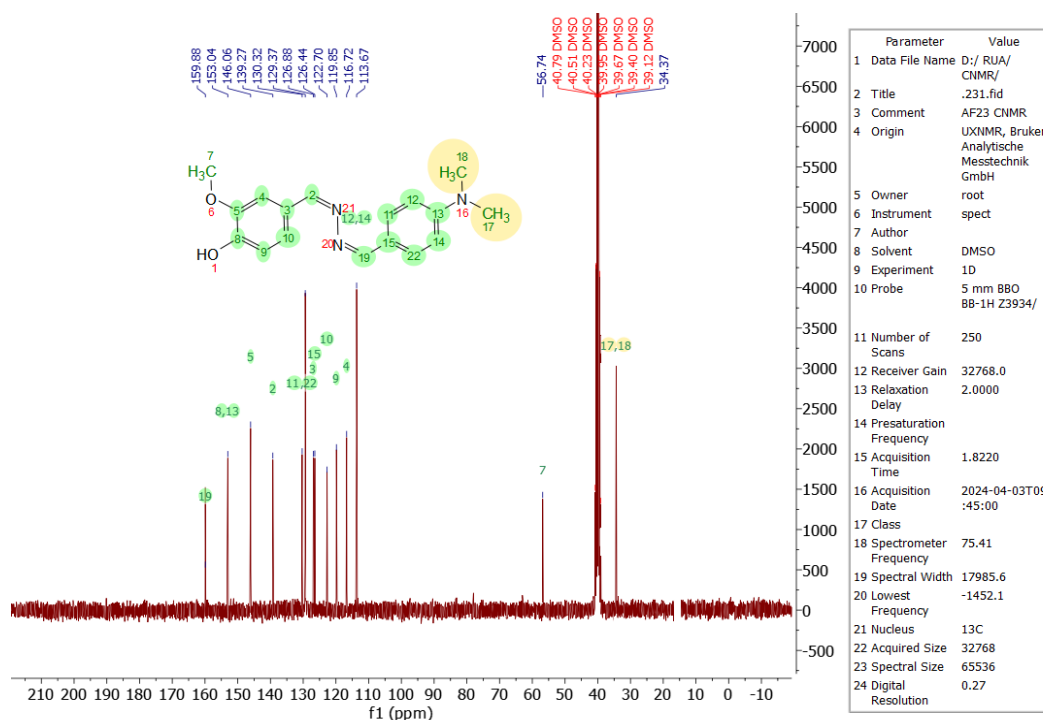
تعد الايونات السالبة للهالوجينات (ايون الكلوريد Cl^-) من الليكاندات اللاعضوية المعروفة في الكيمياء التناسقية إذ بينت الأدبيات أن الترددات الامتطاطية لأصرة $(M-Cl)$ تقع في منطقة طيفية ما بين $(200-350\text{cm}^{-1})$ (Nakanishi 1964). ولما كان الجهاز المستخدم للقياس يعمل عند المدى $(4000-400\text{cm}^{-1})$ لذا لا يمكن ملاحظة الحزم العائدة لأيونات الكلور المرتبطة تساهمياً مع الذرة الفلزية أي الواقعة داخل الكرة التناسقية، إلا انه تم التأكد من وجودها داخل الكرة التناسقية بعد هضم المعقدات وترسيب الكلور فيها باستعمال نترات الفضة الذي ظهر على شكل راسب أبيض نتيجة تكون كلوريد الفضة (Vogel واخرون 1989) وايضا يتم استنتاج البنية الفراغية المتوقعة للمعقدات ومن خلال قياس التوصيلية الكهربائية المولارية، واعتماداً على القياسات المغناطيسية والأطياف الإلكترونية.

3.3. طيف الرنين النووي المغناطيسي لليكاند (LN): ^1H , and ^{13}C -NMR

تم قياس طيف الرنين النووي للبروتون ($^1\text{H-NMR}$) والكربون ^{13}C ، لليكاند المحضر حيث اظهر طيف الرنين للبروتون تطابقاً لعدد بروتونات في الطيف مع عدد البروتونات في الليكاند ، حيث اختفت حزم بروتون الامين عند الازاحة الكيميائية (10-11ppm) وكذلك اختفت حزم بروتون البنزاليهايد عند الازاحة الكيميائية (9.5-9.8ppm) العائدة للمواد الاولية في تحضير الليكاند، وظهرت حزم بروتون العائد لمجموعة الازوميثين عند الازاحة الكيميائية (8.19-8.9ppm) كما موضح في الشكل (٥)، والذي يثبت صحة التركيب ، فيما يخص طيف الكربون- ^{13}C ، اظهر الطيف تطابقاً لعدد ذرات الكربون مع العدد الكلي في تركيب الليكاند حيث ظهرت حزمتين لذرة الكربون العائدة لمجموعة الازوميثين المشتقة من البنزاليهايد N,N-ثنائي امين (Wang وآخرون 2006)، والتي ظهرت عند الازاحة الكيميائية (159.88)، وذرة الكربون لمجموعة الازوميثين الثانية المشتقة من الفانيلة عند الازاحة الكيميائية (130.2) اضافة الى حزم اخرى تأكد الصيغة الكيميائية لليكاند وكما موضح في الشكل (٦).



الشكل (٥): يظهر طيف الرنين النووي المغناطيسي للبروتون ($^1\text{H-NMR}$) لليكاند.

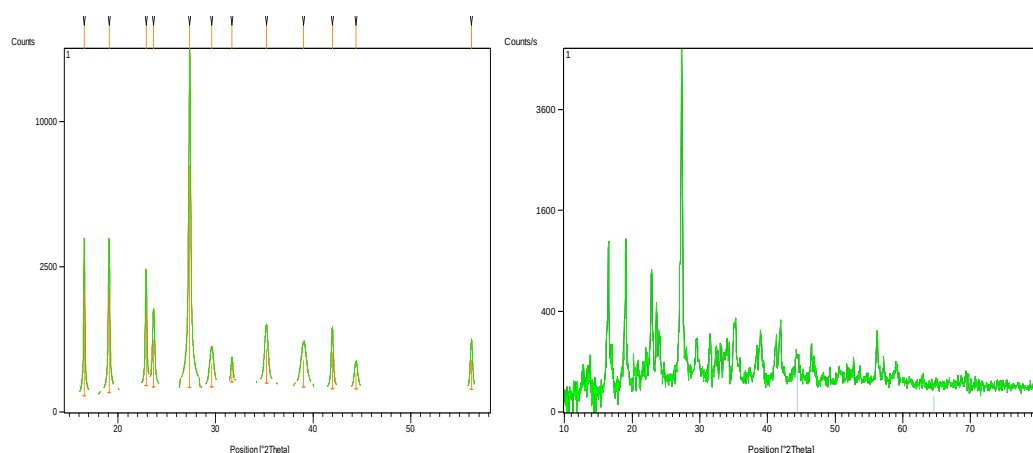


الشكل (٦): يظهر طيف الرنين النووي المغناطيسي للكربون (^{13}C -NMR) لليكاند.

4.3. دراسة حيود الاشعة السينية للمسحوق XRD-study

ان قياس حيود الاشعة السينية لمعقد رقم (٣) للنحاس ، تظهر نتائج البيانات التي تم الحصول عليها من جهاز قياس الحيود والتي تم تحليلها بواسطة برنامج (X,perthigh score software package)، حيث يظهر الطيف في المنطقة ما بين (10-60) قمم (حزم حادة) تشخيصية وتدل هذه القمم على الحالة البلورية (Crystal nature)، لمعقد النحاس والتي تدل على الشكل البلوري الحاوي على مستويات بلورية وتراكيب شبكية، ولتفسير النتائج يتم الاستعانة بقانون براغ (Bragg's law) ، لغرض حساب التباعد بين المستويات البلورية (d-spacing)، (2007 Connolly) والتي تمثل المسافات البلورية والتي يتم حسابها بواسطة معادلة (Scherer) والتي تتضمن تطبيق العلاقة $D = K\lambda/\beta \cos\theta$ ، لحساب الحجم البلوري لمعقد النحاس، والنتائج التالية تم الحصول عليها من تحليل البيانات بواسطة برنامج (X,perthigh score software-package).

الشكل (٧): يظهر حزم حيود الاشعة السينية للمسحوق لمعقد النحاس.



الجدول (٢): يظهر نتائج تحليل حيود الاشعة السينية للمسحوق لمعقد النحاس

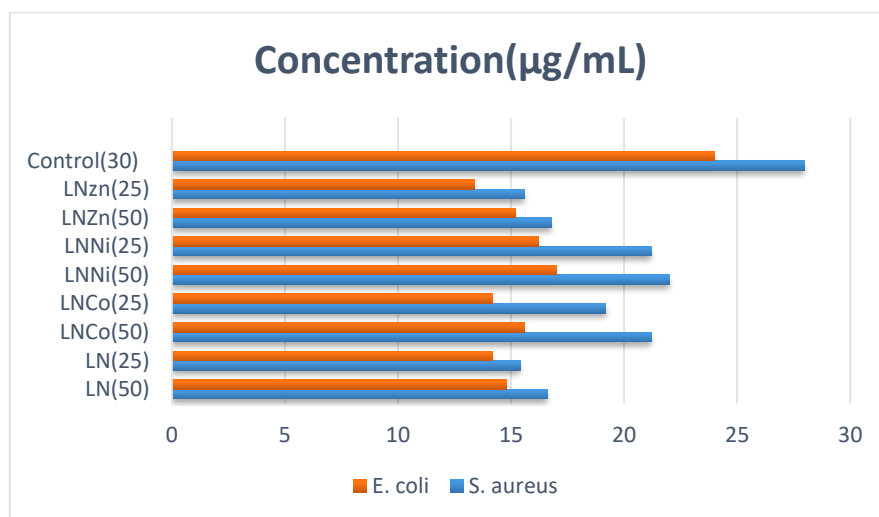
Pos. [°2Th.]	d-spacing	Height [cts]	FWHM [°2Th.]	Rel. Int. [%]
16.5298	5.36306	1626.79	0.1476	22.67
19.0761	4.65253	1627.70	0.1968	22.68
22.8728	3.88813	1065.20	0.1968	14.84
23.6436	3.76309	545.97	0.2952	7.61
27.3469	3.26132	7176.77	0.2460	100.00
29.5977	3.01824	202.18	0.5904	2.82
31.6760	2.82479	112.80	0.2952	1.57
35.2048	2.54931	372.58	0.4920	5.19
39.0444	2.30701	241.00	0.7872	3.36
41.9692	2.15275	365.14	0.2952	5.09
44.4013	2.04032	113.42	0.4920	1.58
56.2371	1.63442	262.01	0.3000	3.65

Antibacterial activity

4.الفعالية المضادة للبكتيرية:

تم إجراء الفعالية البيولوجية للبيكاند ومعقداته الفلزية المحضرة قيد الدراسة، حيث تضمنت هذه الدراسة تطبيق الفعالية البيولوجية على بعض أنواع البكتريا المشخصة مختبريا باستخدام الاختبارات الكيميوحياتية والمجهريّة وتعد هذه البكتريا المعزولة التي تسبب كثير من الأمراض للإنسان، حيث تضمنت الدراسة لصنفين من البكتريا الممرضة للإنسان و منها بكتريا

الموجبة لصبغة كرام، *Staphylococcus.aureus* والسالبة لصبغة كرام *E. coli*، واعتمدت طريقة الدراسة على أحداث ثقب في الوسط الزراعي داخل الطبق بواسطة الثاقب الفليني المعقم بالإيثانول المطلق ثم يتم إجراء المسح للبكتريا بواسطة اللوب الخاص بعملية الزرع البكتيري ومسح الطبق بصورة متجانسة إلى جميع الأجزاء لكي تنتشر البكتريا على الوسط الزراعي (Hinton agar Mueller) بصورة كاملة وبعد ذلك يتم وضع المحاليل المحضرة في دراستنا بتركيزين (25,50µg/1mL)، مذابة في مذيب (DMSO) داخل الحفر وغلق الطبق بشريط خاص ووضع الطبق داخل الحاضنة لمدة 24 ساعة في درجة حرارة 37 مئوية. بعد تم قياس قطر التثبيط بالمسطرة (Adegbehingbe,2019). وأظهرت المركبات المحضرة في دراستنا فعالية جيدة جدا وقسم من المركبات أظهرت فعالية مقارنة للمادة القياسية ((Ciprodar)(Control) الشكل (٨) يظهر نتائج الفعالية البيولوجية للمركبات المحضرة.



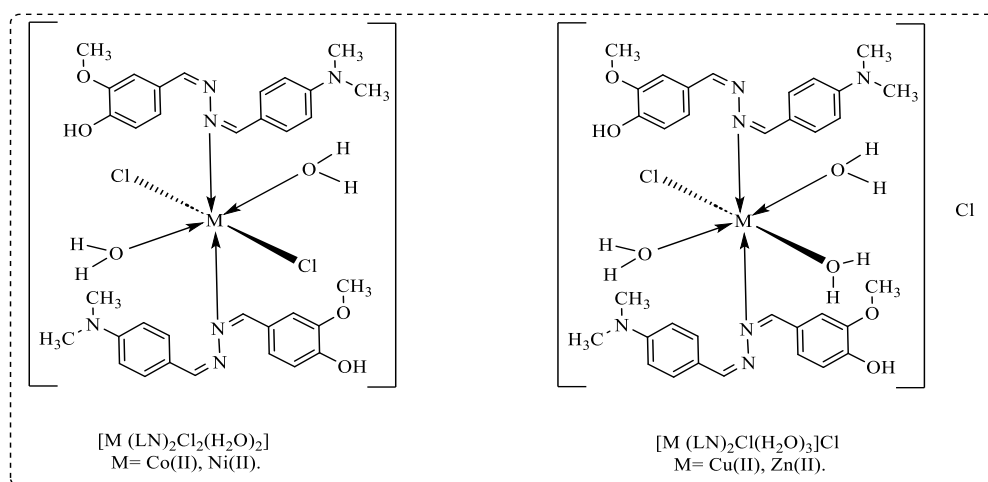
الشكل (٨): يظهر تأثير المركبات المحضرة في تثبيط نمو صنفين من البكتيريا المرضية.

Conclusion

5.الاستنتاجات

أثبتت الدراسات الطيفية (IR)، والاطياف الالكترونية والعزم المغناطيسي و التحليل الدقيق للعناصر لكل من الليكاند والمعدنات المحضرة، صحة التركيب المقترح لجميع المركبات المحضرة، اذا يسلك الليكاند المحضر سلوك احادي السن، يتم التناقص من خلال ذرة (N) لمجموعة الازوميثين مع الايون الفلزي والتي حضرت بنسبه مولية (١:٢) ليكاند: فلز، لتعطي معدنات تمتلك شكل هندسي ثماني السطوح وقسم من هذه المعدنات ذات طبيعة

الكتروليتة واخرى غير الكتروليتية، وقياس حيود الاشعة السينية لمعقد النحاس اثبت الصفة البلورية، واخيراً طبقت الفعالية البكتيرية لهذه المركبات، ضد صنفين من البكتيريا المرضية وبالمقارنة مع المادة القياسية (Corroder).



مخطط (٢): يبين الاشكال الهندسية المقترحة لمعقدات الليكاند (LN).

المصادر References

- Abd El-Lateef, H. M., Khalaf, M. M., Kandeel, M., and Abdou, A. (2023). Synthesis, characterization, DFT, biological and molecular docking of mixed ligand complexes of Ni (II), Co (II), and Cu (II) based on ciprofloxacin and 2-(1H-benzimidazol-2-yl) phenol. *Inorganic Chemistry Communications*, 155, P. 111087.
- Adegbehingbe, K. T., Fakoya, S., Bello, M. O., Osunla, C. A., and Akeredolu, S. O. (2019). Antibacterial Activity of Bacteria Isolated from Fermenting Cocoa Water against Some Pathogenic Bacteria. *Int. J. Curr. Microbiol. App. Sci*, 8(7), P. 401-408.
- Al-Shaheen, A. J., and Al-Bergas, A. F. (2020). Synthesis and identification of some complexes of 4-[N-(2, 4-dihydroxybenzylidene) imino] antipyrinyl with serine (L1) or with theronine (L2) ligands and evaluation of their bacteria activities. *J Sci Educ Technol*, 29(4).

- Bennour, H. A., Elmagbari, F. M., Hammouda, A. N., EL-Ferjani, R. M., Amer, Y. O. B., Soliman, S. M., and Jackson, G. E. (2023). Synthesis, characterisation and density functional theory (DFT) studies of a triazine ring with a mixed ligand Schiff base complexes. *Results in Chemistry*, 5, P. 100775.
- Cao, W.; Liu, Y.; Zhang, T. Jia, J. (2018). Synthesis, characterization, theoretical and antimicrobial studies of tridentate hydrazone metal complexes of Zn (II), Cd (II), Cu (II) and Co (III). *Polyhedron*, 147, P. 62-68.
- Connolly, J. R. (2007). Introduction to X-ray powder diffraction. *European Physical Society of Journal*, 4, P.400.
- Hofmeister, A. M. (1995). " Infrared microspectroscopy. In HJ Humecki, Ed., Practical Guide to Infrared Spectroscopy.
- Huheey, J.E. Keiter, Keiter, A. R. L. (1993). "Inorganic Chemistry: principles of structure and reactivity" 4th ed., Harper-Collins Publishers, P.452.
- Katyal, M., and Dutt, Y. (1975). Analytical applications of hydrazones. *Talanta*, 22(2), P. 151-166.
- Kesel, A. J. (2011). Broad-spectrum antiviral activity including human immunodeficiency and hepatitis C viruses mediated by a novel retinoid thiosemicarbazone derivative. *European journal of medicinal chemistry*, 46(5), P. 1656-1664.
- Kriza, A., Dianu, M. L., Stanica, N., Draghici, C., and Popoiu, M. (2009). Synthesis and characterization of some transition metals complexes with glyoxal bis-isonicotinoyl hydrazone. *Rev Chim*, 60, P.555-60.
- Kumar, L. S., Prasad, K. S., and Revanasiddappa, H. D. (2011). Synthesis, characterization, antioxidant, antimicrobial, DNA binding and cleavage studies of mononuclear Cu (II) and Co (II) complexes of 3-hydroxy-N'-(2-hydroxybenzylidene)-2-naphthohydrazide. *European Journal of Chemistry*, 2(3), P. 394-403.
- Mohamed, M. H. M., Salem, M. A., El-Gaby, M. S. A., and Aljahdali, M. (2013). Synthesis and biological evaluation of some novel thiazole compounds as potential anti-inflammatory agents. *European Journal of Medicinal Chemistry*, 65, P.517-526.
- Nakamoto, N., Fujita, Condrate, J. R. A. and Morimota, Y. (1963). *J.Chem.Phys.*, 39, P.42-49.
- Nakanishi, K. (1964). " Infrared Absorption Spectroscopy-Practical", P.157.
- Nakanishi, K. (1962). "Infrared Absorption Spectroscopy ", 1st ed , Nankodo Jopan , P. 38 , 39 , 52 .
- Osman, H., Arshad, A., Lam, C. K., and Bagley, M. C. (2012). Microwave-assisted synthesis and antioxidant properties of hydrazinyl thiazolyl coumarin derivatives. *Chemistry Central Journal*, 6, P.1-10.

- Pawaiya, A., Agrawal, M. C., and Bhatnagar, R. K. (2014). Synthesis, spectral characterization and antifungal activity of a new Schiff base hydrazone derived from 2, 4-dinitrophenyl hydrazine.
- Przybylski, P., Huczyński, A. W., Pyta, K. K., Brzezinski, B., and Bartl, F. (2009). Biological properties of Schiff bases and azo derivatives of phenols. *Current Organic Chemistry*, 13.
- Raman, N., Sobha, S., . Mitu ,L., (2013). Design, synthesis, DNA binding ability, chemical nuclease activity and antimicrobial evaluation of Cu (II), Co (II), Ni (II) and Zn (II) metal complexes containing tridentate Schiff base. *Journal of Saudi Chemical Society*, 17(2), P. 151-159.
- Shah, M. A., Uddin, A., Shah, M. R., Ali, I., Ullah, R., Hannan, P. A., and Hussain, H. (2022). Synthesis and characterization of novel hydrazone derivatives of isonicotinic hydrazide and their evaluation for antibacterial and cytotoxic potential. *Molecules*, 27(19), P.6770.
- Shahab, S., Sheikhi, M., Filippovich, L., Ihnatovich, Z., Koroleva, E., Drachilovskaya, M., and Pazniak, A. (2019). Spectroscopic (FT-IR, excited states, UV/Vis, polarization) properties, synthesis and quantum chemical studies of new azomethine derivatives. *Dyes and Pigments*, 170, P.107647.
- Suresh, M. S., and Prakash, V., (2010). Preparation and characterization of Cr (III), Mn (II), Co (III), Ni (II), Cu (II), Zn (II) and Cd (II) chelates of Schiff's base derived from vanillin and 4-aminoantipyrine. *Int. Phys. Sci*, 5(14), P. 2203-2211.
- Tolan, D. A., Kashar, T. I., Yoshizawa, K., and El-Nahas, A. M. (2021). Synthesis, spectral characterization, density functional theory studies, and biological screening of some transition metal complexes of a novel hydrazide–hydrazone ligand of isonicotinic acid. *Applied Organometallic Chemistry*, 35(6), P.e6205.
- Verma, R. K, B.K.Mishar, and Satplathy, K.C. (1997). *Asian.J. Chem.*, 2,P.365.
- VJayalakshmi, R., Priya, D. D., Jayakkumar, V., and Rajavel, R. (2017). Synthesis and characterization of 4-aminoantipyrine based Schiff base complexes: antimicrobial, cytotoxicity and DNA cleavage studies. *Int. J. Eng. Res. Technol*, 6(8), P.1-9.
- Vogel's, A.I. (1989). "Textbook of Quantitative analysis", 5thEd, Longman Scientific and Technical, England. 349, P.324-329.
- W.j. Moore, ,(1972). "Physical Chemistry" 5thed. , Longman , London , P. 425.
- Wang, C. X., Li, L., Yu, W. T., Yang, J. X., and Wu, L. Y. (2006).

Youssef, H. M., Abdulhamed, Y. K., El-Reash, G. A., and Yousef, T. A. (2022). Cr (III) and Ni (II) complexes of isatin-hydrazone ligand: Preparation, characterization, DFT studies, biological activity, and ion-flotation separation of Ni (II). *Inorganic Chemistry Communications*, 138, P.109278.