CC BY

College of Basic Education Research Journal

www.berj.mosuljournals.com

Synthesis, Characterization and Antibacterial activity Evaluation of Some

Complexes Derived From4-(4-(dimethyl amino) benzylidene) hydrazono) methyl)-2-methoxyphenol Ligand.

Nuha Amer Mustafa[1]
University of Mosul
College of Science
Dept. of Chemistry

Sahbaa Ali Ahmed[2]
University of Mosul
College of Science
Dept. of Chemistry

Article Information
Article history:
Received:
Reviewer:
Accepted:

Key words :

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, ^{1}H, and $^{13}CNMR$. 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.

Key word**: Schiff base complexes, hydrazone complexes.**

ISSN: 1992 – 7452

تحضير وتشخيص وتقييم الفعالية المضادة للبكتريا لبعض المعقدات المشتقة من ليكاند 4-(4-ثنائي ميثيل امينو(بنزاليدين)هيدرازونو) مثيل)2-ميثوكسي فينول*

نهى عامر مصطفى جامعة الموصل /كلية العلوم /قسم الكيمياء

صهباء علي احمد جامعة الموصل /كلية العلوم /قسم الكيمياء

قدم للنشر 30 /5 / 2024 قبل للنشر في 8/7/ 2024

ملخص البحث :Abstract

في هذه الدراسة حضرت معقدات جديدة من الايونات الكوبلت (II) ، والنيكل(II)، والنحاس (II)، والخارصين(II)، مع الليكاند 4-(4-ثنائي ميثيل امينو(بينزاليدين)هيدرازونو)مثيل)2-ميثوكسي فينول، بنسبة مولارية (2:1) (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 والكاربون -13، واخيرا درست الفعالية البيولوجية ، لليكاند ومعقداته على صنفين من البكتيريا الممرضة الموجبة والسالبة لصبغة كرام ، اذ اظهرت بعض المعقدات فعالية ضد النشاط البكتيرياعلى 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, واخرون2018)، يتم تحضيرها عن طريق مفاعلة مركبات الكاربونيل 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 واخرون2013)، ومضادات الفايروسات ,(2011Kesel)، ومضادات اكسدة,(Osmanواخرون2012)، ومضادات تخثر الدم ، كذلك تم استخدام معقدات النحاس كمضادات لعلاج بعض الامراض السرطانية ,(Przybylskiواخرون2009)، وفي دراسة تفلج الحمض النووي(DNA)بتأثير ظروف فيزيائية، أضافة الى مزج بعض ليكاندات الهيدرازونات مع ايونات البلاتين لتحضير ايزومرات سس- بلاتين والتي استخدمت لعلاج بعض الامراض السرطانية ،كذلك حضر معقدات فلزية مع ليكاندات الهيدرازوناتو استخدمت كمضادات السل,(Katyal and Duttواخرون1975) ، وصناعية بطاريات كهربائية وفي مجالات زراعية في تصنيع مبيدات الحشرات والاعشاب الضارة,(Pawaiya واخرون2014)،استخدام الهيدارزين 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 الامينفي اليكاندات قاعدة شف المحضرة من الهيدرازوناتتعطي خصائص مميزه وفريدة في تنوع اشكال التناسق مع الايونات الفلزية وبالتالي يكون هنالك اختلاف في الخصائص البيولوجية ما بين الليكاندات والمعقدات المشتقة منها ,(Shah واخرون2022)،من الخصائص الطبية المهمة لقواعد شف هو تصنيع ادوية ، والزهايمر، والصرع ، والاورام وكذلك اخماد الجذور الحرة ، وذلك لامتلاكها المجموعة الوظيفية (C=N)، فهي تمتلك خاصية نقل الاوكسجين باعتبارها مجاميع كليتيه مع العناصر الانتقالية في الخلايا الحية,(Youssef واخرون2022) ولمعقدات قواعد شيف تطبيقات واسعة ومنها الصيدلانية.

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

المواد وطرائق العملMaterials and Methods

1- جميع المواد الكيمياوية المستخدمة في الدراسة ذات نقاوة عالية ومجهزه من شركةBDH, Fluke, and Sigma Aldrich)).

2- **الاجهزة والقياساتInstrument & 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) 400 (cm^{-1}) تم اجراء القياس في المختبر المركزي لكلية العلوم /جامعة الموصل ، التوصيلية الكهربائية للمعقدات تم قياسها بجهاز من نوع (–model 4510 jenway)،باستخدام مذيبDMFوبتركيز($10^{-3}M$)عند درجة الحرارة ($25C^0$)، وسجلت اطياف الالكترونية للمعقدات بواسطة الاشعة الفوق بنفسجية بجهاز (U.v)،في درجة حرارة الغرفة وباستعمال جهاز من نوع (Shamadzu1800spectro photometer)، باستخدام مذيبDMF، والقياس بخلايا من الكوارتز (1cm) وعند المدى nm (200 – 1100)،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:

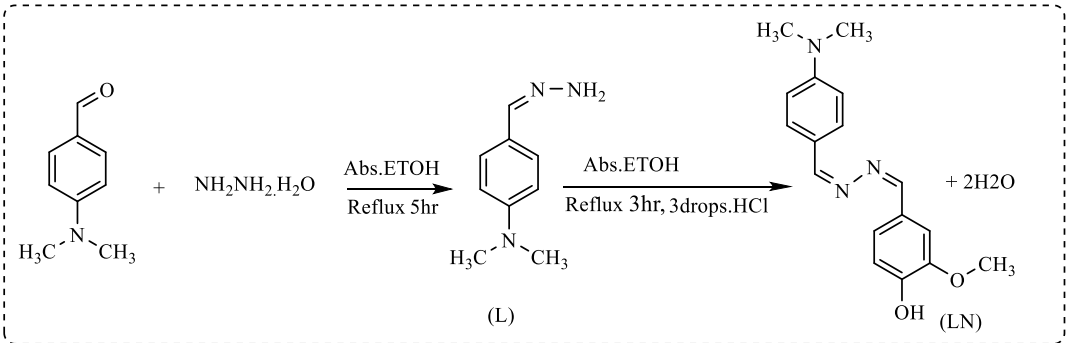
1. تحضير الليكاند(LN)

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

يضاف في دورق دائري مجهز بمحرك مغناطيسي(0.007mole, 0.35g) من الهيدرازين المائي الى (1g, 0.007 mol) من المركب (N,N-dimethylaminobenzdehyde) المذاب في (25mL) من الايثانول المطلق، صعد المزيج لمدة (5) ساعات Wang, واخرون(2006)،ثم ركز المزيج الى نصف الحجم ، ترك الناتج في درجات حرارة المختبرليبرد ،بعد ذلك تكون راسب ،رشح وغسل بمزيج من الماء والايثانول ثم جفف واعيد بلورته من الايثانول المطلق ، واعطى بلورات برتقالية مصفرة . درجة الانصهار = $^{\circ}C$ 240-242، والنسبة المئوية للناتج 85%، المخطط (1) يوضح تركيب (L).

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

يضاف في دورق دائري مجهز بمحرك مغناطيسي(0.01mole, 1.63g)من المركب(L)المحضر في الخطوة الاولى الى (0.01 mol , 1.52g)من البنزالديهايدالمعوض (Vanillin) المذاب في (25mL) من الايثانول المطلق، ثم اضافة (3)قطرات من حامضHClالى مزيج التفاعل، وصعد المزيج لمدة(3)ساعات,(Wang واخرون2006)، 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}C$258- 256، والنسبة المئوية للناتج 80%، المخطط (1) يوضح تركيب (LN).



مخطط (1): يبين تحضير الليكاند(LN).

2. تحضير المعقدات الفلزية Preparation of complexes

حضرت المعقدات بأتباع الطرق ,Krizaواخرون (2009) وبنسبة (1:2) (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) 0.2377 g، 0.2444 Cu (II) 0.1704g، Zn (II)المذاب في اقل كمية من الايثانول الى المحلول المذاب فيه الليكاند وبنسبة مولارية (1:2)ليكاند: فلز، يصعد المزيج حرارياً (3) ساعات ، ثم يبرد مزيج التفاعل ويرشح الراسب المتكون ويغسل بالأيثر ويجفف، المخطط (2) يوضح الشكل الهندسي للمعقدات المقترحة.

3.النتائج و المناقشة:Result and Discussion

في هذا البحث حضر الليكاند(4-(4-ثنائي ميثيل امين (بنزالدين(هيدرازونو (ميثيل(2-ميثوكسي فينول)،وحسب طريقة,(Wang واخرون2009) 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 مثيل فورمامايد(DMF) وثنائي مثيل سلفوكسايد(DMSO)، لقد تبين من قياسات التوصيلية المولارية في مذيب 1972)(DMF) ,(W.j.Moore، ان بعض المعقدات تسلك سلوك معقدات متعادلة ، فهي غير الكتروليتية اي انها ضعيفة الموصلية في المحلول والقسم الاخر من المعقدات تسلك سلوك معقدات غير المتعادلة فهي الكتروليتية وبنسبة (1:1) وكما موضح في الجدول (1)، تم قياس العزوم 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 (2020, Al-Shaheen, Al-Bergas)d^{10}.

الجدول (1): بعض الخواص التحليلية والفيزيائية للمعقدات المحضرة.

O.	الصيغة المقترحة للمعقد	درجة الانصهار (° C)	اللون	التوصيلية Ω^{-1} cm^2 mol^{-1}	التحليل الدقيق للعناصر (CHN) Found (calc)%			
					C	H	N	M
	$[Co(LN)_2Cl_2(H_2O)_2]$	210-212	ازرق مخضر	13.8	(53.60) 53.78	(5.57) 5.67	(11.05) 10.90	(7.75) 7.57
	$[Ni(LN)_2Cl_2(H_2O)_2]$	216-218	اخضر فاتح	19.2	(53.71) 53.82	5 (.57) 5.48	(11.05) 10.98	(7.72) 7.49
	$[Cu(LN)_2Cl(H_2O)_3]Cl$	231-233	بني غامق	70.8	(54.14) 54.28	(5.66) 5.79	(10.73) 10.57	(8.11) 7.92
	$[Zn(LN)_2Cl(H_2O)_3]Cl$	202-204	اصفر 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 $[Co(LN)_2Cl_2(H_2O)_2]$، وقد أعطى حزم امتصاص عند، ($14790\ cm^{-1}$)، ($16449cm^{-1}$) تعزى هذه الحزم إلى الانتقالات $^4A_2g\ (F) \rightarrow \upsilon_2$ $^4T_1g\ (F)$)، و$^4T_1g\ (P) \rightarrow \upsilon_3$ $^4T_1g\ (F)$) على التوالي، أما (υ_1)لم تظهر مما يدل على اتخاذ هذا المعقد بنية ثماني السطوح عالي البرم(Abd El-Lateef واخرون2023) يأخذ الترتيب الالكتروني $(t_2g^5eg^2)$(1997,Verma).

لقد أثبت الطيف الالكتروني لمعقد النيكل (II) المحضر [Ni $(LN)_2Cl_2(H_2O)_2$] وجود ثلاث حزم عند المواقع (cm^{-1}11210)، (cm^{-1}13333)، ($21276cm^{-1}$) والتي تعزى إلى حزم الامتصاص (υ_1) $^3T_2g \rightarrow {}^3A_2g$ و(υ_2) $^3T_1g \rightarrow {}^3A_2g$ (υ_3) $^3A_2g \rightarrow {}^3T_1g(P)$ على التوالي، وإن مواقع حزم الامتصاص هذه تتفق مع معقدات النيكل (II) ثمانية السطوح(VJayalakshmi واخرون ,2017)-Al-Shaheen, Al) (2020, Bergas).

إن الحزمة العريضة (Broad Band) التي تظهر في معقدات النحاس(II)تمثل الانتقال الالكتروني ($^2Eg \rightarrow {}^2T_2g$) وتنفصم هذه الحزمة في المجال ثماني السطوح إلى ثلاث حزم من جراء التشوه الحاصل لهذه المعقدات بسبب تأثير (جان–تيلر)(Huheey, واخرون1993).الطيف الالكتروني لمعقد [Cu $(LN)_2Cl$ $(H_2O)_3$]Cl أظهر حزم عند(cm^{-1}16666) وهذه الامتصاص تتفق مع ما نشر من بحوث تدل على أنه ثماني السطوح (Kumar واخرون 2011)(2020, Al-Shaheen, Al-Bergas) .

تم قياس الأطياف الالكترونية لمعقد الخارصين (II) وقد أعطى حزم امتصاص بحدود($29069,35471cm^{-1}$) 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 لانها تمتلك (d^{10})في غلاف تكافؤها الخارجي واتخذت معقدات الخارصين (II) بنية ثماني السطوح بناءً على القياسات الموصلية وطيف الاشعة تحت حمراء(Raman واخرون 2013).

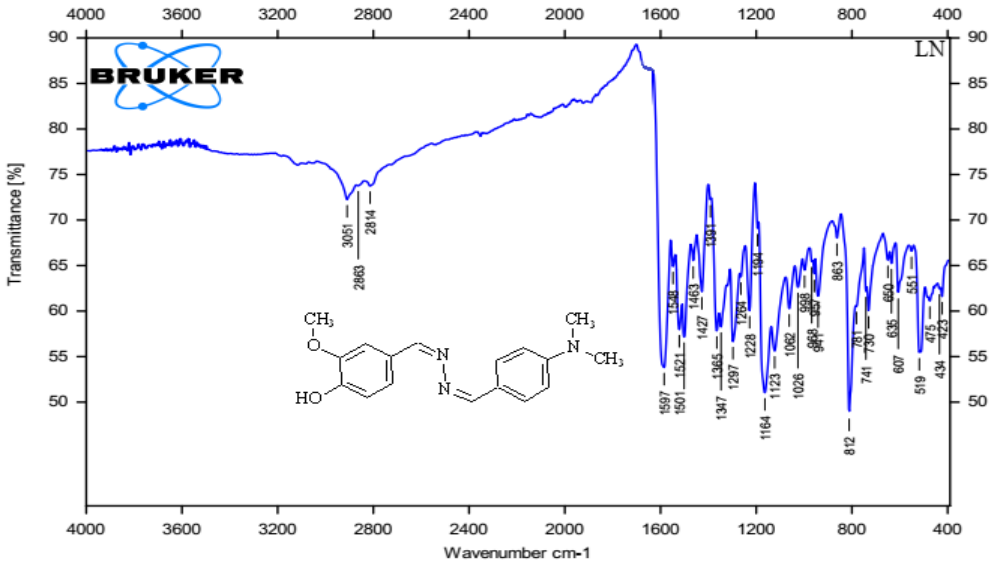
2.3.طيف الاشعة تحت حمراء FT-IR

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 للمعقداتNakamoto ((1963 , وهناك العديد من العوامل التي تؤثر في الاهتزاز الامتطاطي للمعقد وهي الحالة الفيزيائية للمركب وطبيعة المجاميع سواء كانت على الكاربون أو النتروجين أم على كليهما وكذلك الأواصر الهيدروجينية والتركيب والتناظر في

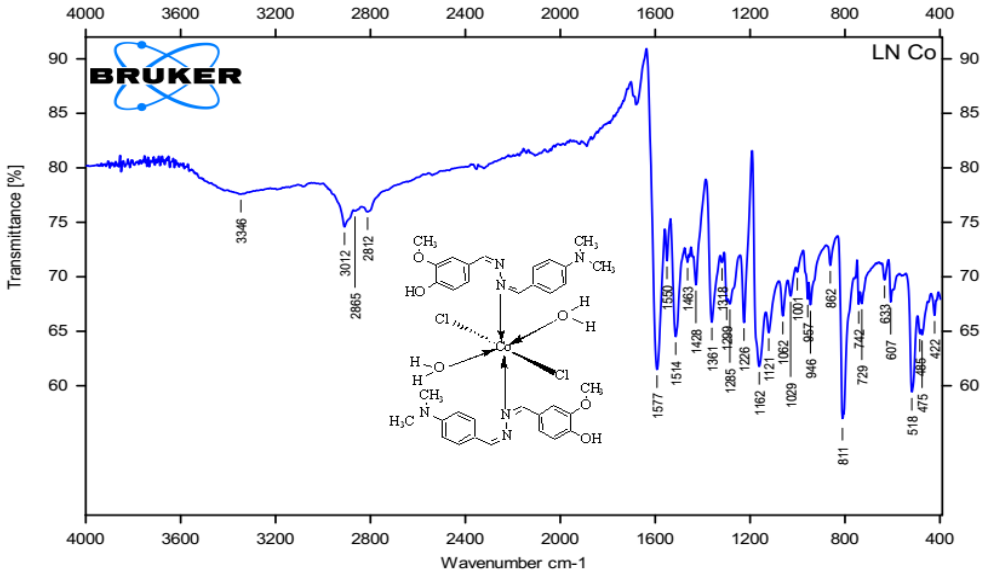
جزيئة المعقد وقوة الاصرة التناسقية فضلاً عن التداخلات مع المحيط الخارجي (مثلاً المذيب والجزئيات خارج الكرة التناسقية) كل تلك العوامل تؤدي إلى التأثير على الطيف الاهتزازي للمعقد(Nakanishi 1962).

ظهر التردد الامتطاطي لمجموعة الآزوميثين الليكاند المحضرعند($1597\ cm^{-1}$)وعند قياس أطياف المعقدات ظهرت هذه المجموعة عند ترددات اقل($1577\text{-}1570cm^{-1}$) 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 (C=N) وهذا متفق مع ماورد من بحوث منشورة (Tolan واخرون2021).

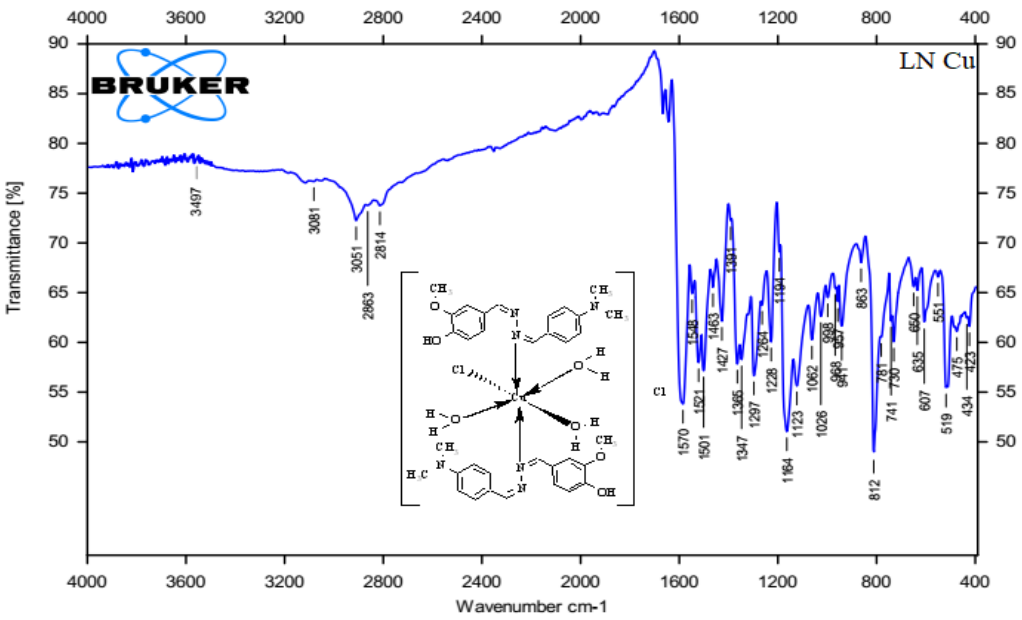
يظهر طيف الأشعة تحت الحمراء للمعقدات المحضرة حزم التأرجح (Rocking) للمعقدات المائية عند($812\text{-}811cm^{-1}$)للأملاح اللاعضوية للماء المتناسق وحدد (Hofmeisterآخرون1995) المنطقة ($3542\text{-}3200cm^{-1}$)للماء المتناسق أظهرت جميع المعقدات المحضرة انها حاوية على الماء وحزم امتصاص عريضة في المدى المذكورأعلاه وكما موضح في الطيف فضلا عن ظهور حزمة في المنطقة ($519\text{-}518cm^{-1}$)عزيت إلى M-O وهي متفقة مع ما نشر من بحوث، فضلاً عن ظهور حزم مط (C-H)الاروماتيةعند ($3046\text{-}3081cm^{-1}$)، وحزم مط (C-H) الاليفاتية كما موضح في الاشكال (4-1)(Shahab واخرون2019).



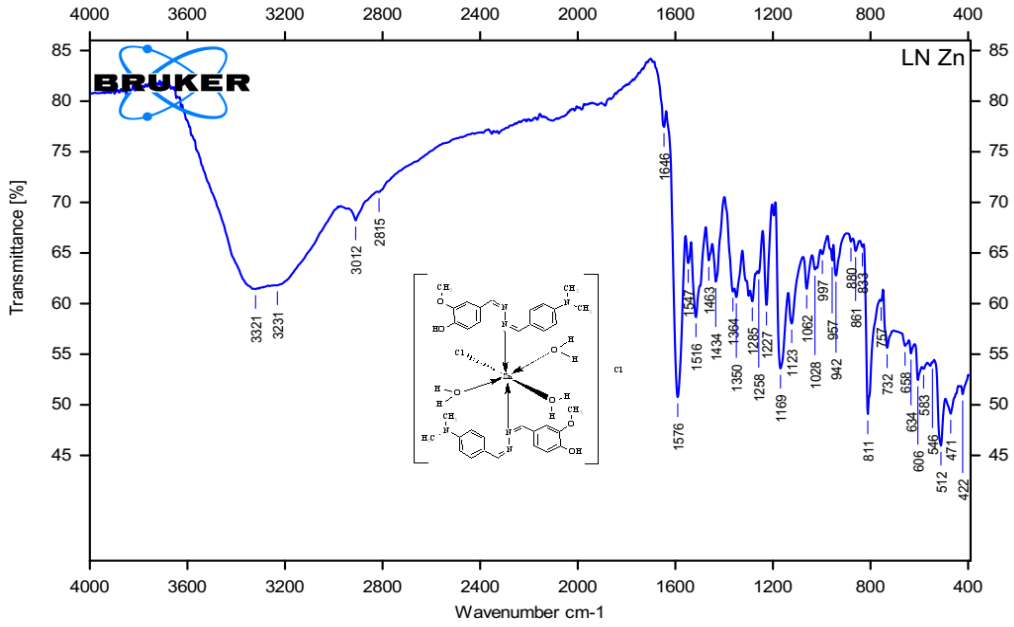
الشكل (1): يظهر طيف الاشعة تحت حمراء لليكاند.



الشكل (2): يظهر طيف الاشعة تحت حمراء للمعقد رقم (1).



الشكل (3): يظهر طيف الاشعة تحت حمراء للمعقد رقم (3).



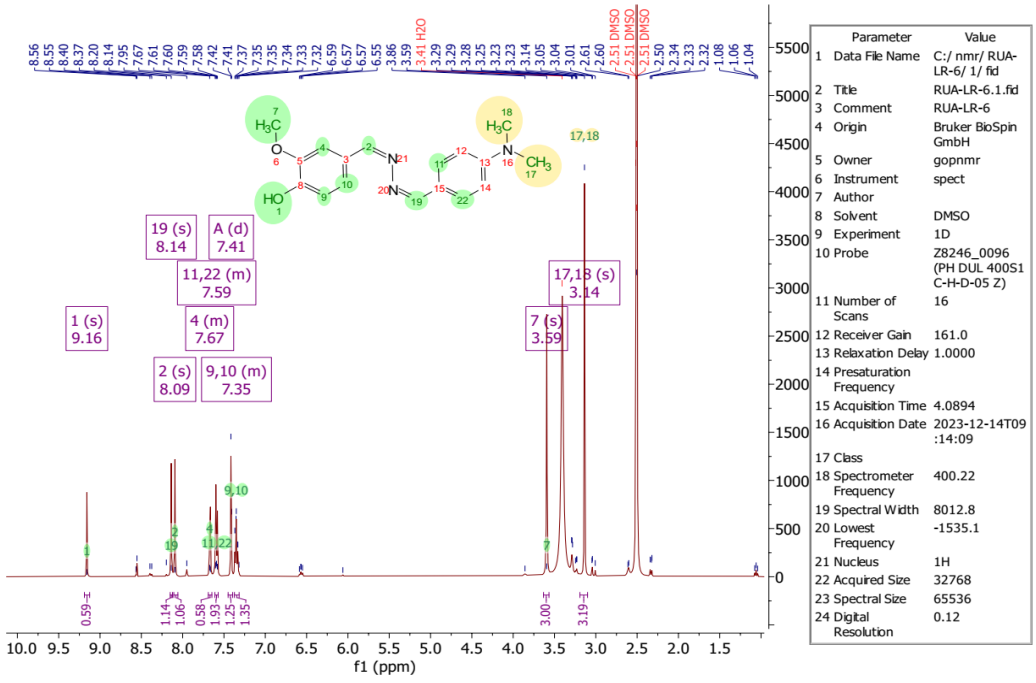
الشكل (4): يظهر طيف الاشعة تحت حمراء لمعقد رقم (4).

ظهرت حزمة الامتصاص لمجموعة(M–N)$\boldsymbol{\nu}$في المعقدات جميعها عند المدى($423cm^{-1}$-422) في منطقة التردد الواطئ، وهي متفقة مع ما ورد من بحوث مشابهة وهذا يدل على حصول التناسق مع الفلز من خلال ذرة النتروجين لمجموعة الازوميثين (Bennour واخرون2023).

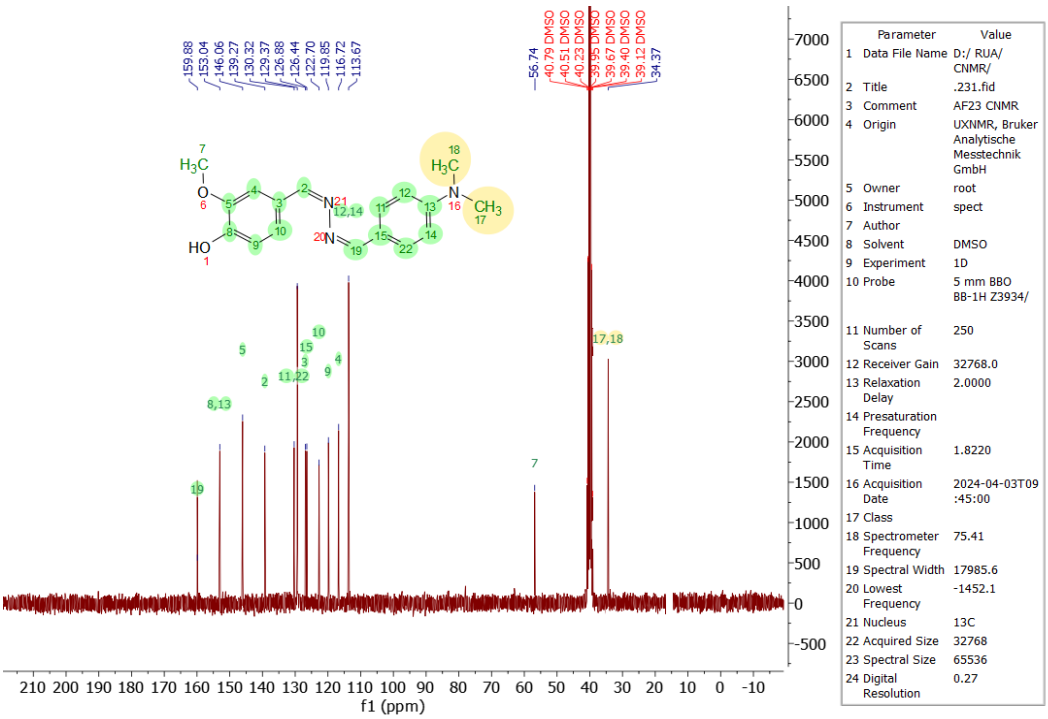
تعد الايونات السالبة للهالوجينات (ايون الكلوريد Cl^-) من الليكاندات اللاعضوية المعروفة في الكيمياء التناسقية إذ بينت الأدبيات أن الترددات الامتطاطية لآصرة(M-Cl) تقع في منطقة طيفية ما بين($200\text{-}350cm^{-1}$)(1964Nakanishi). ولما كان الجهاز المستخدم للقياس يعمل عند المدى ($4000\text{-}cm^{-1}400$) 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,(Vogelواخرون 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):^{1}H, and ^{13}C-NMR

تم قياس طيف الرنين النووي للبروتون (^{1}H-NMR) والكاربون -13، لليكاند المحضر حيث اظهر طيف الرنين للبروتون تطابقاً لعدد بروتونات في الطيف مع عدد البروتونات في الليكاند ، حيث اختفت حزم بروتون الامين عند الازاحة الكيمياوية(10-11)ppmوكذلك اختفت حزم بروتون البنزالديهايد عند الازاحة الكيمياوية (9.8-9.5ppm)العائدة للمواد الاولية في تحضير الليكاند، وظهرت حزم بروتون العائد لمجموعة الازوميثين عند الازاحة الكيمياوية (8.9-8.19ppm) كما موضح في الشكل(5)، والذي يثبت صحة التركيب ، فيما يخص طيف الكاربون-13، اظهر الطيف تطابقاً لعدد ذرات الكاربون مع العدد الكلي في تركيب الليكاند حيث ظهرت حزمتين لذرة الكاربون العائدة لمجموعة الازوميثين المشتقة من البنزالديهايد N,N-ثنائي امين (Wang واخرون2006)، والتي ظهرت عند الازاحة الكيمياوية(159.88)، وذرة الكاربون لمجموعة الازوميثين الثانية المشتقة من الفانيلة عند الازاحة الكيمياوية (130.2)اضافة الى حزم اخرى تأكد الصيغة الكيميائية لليكاند وكما موضح في الشكل (6).



الشكل(5): يظهر طيف الرنين النووي المغناطيسي للبروتون(^{1}HNMR) لليكاند.

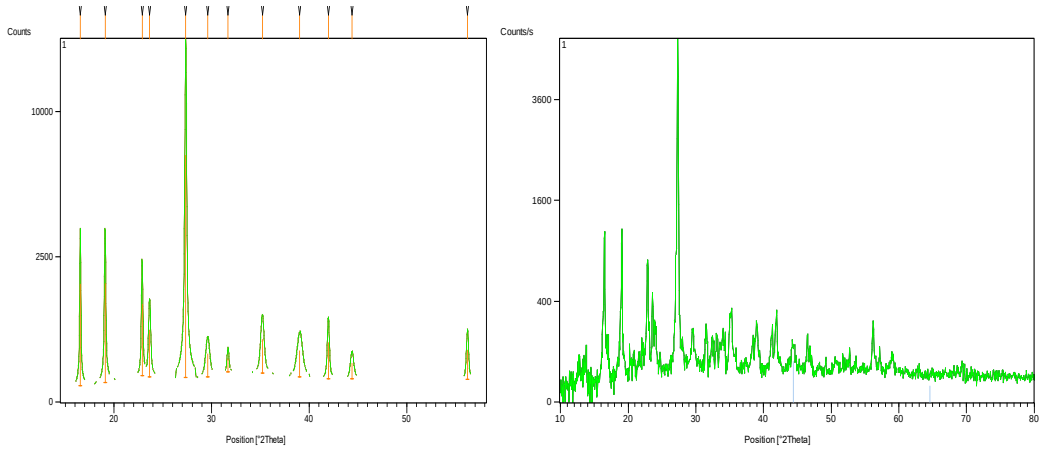


الشكل (6): يظهر طيف الرنين النووي المغناطيسي للكاربون(^{13}C-NMR) لليكاند.

4.3.دراسة حيود الاشعة السينية للمسحوقXRD-study

ان قياس حيود الاشعة السينية لمعقد رقم (3)للنحاس ، تظهر نتائج البيانات التي تم الحصول عليها من جهاز قياس الحيود والتي تم تحليلا 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 (7): يظهر حزم حيود الاشعة السينية للمسحوق لمعقد النحاس.



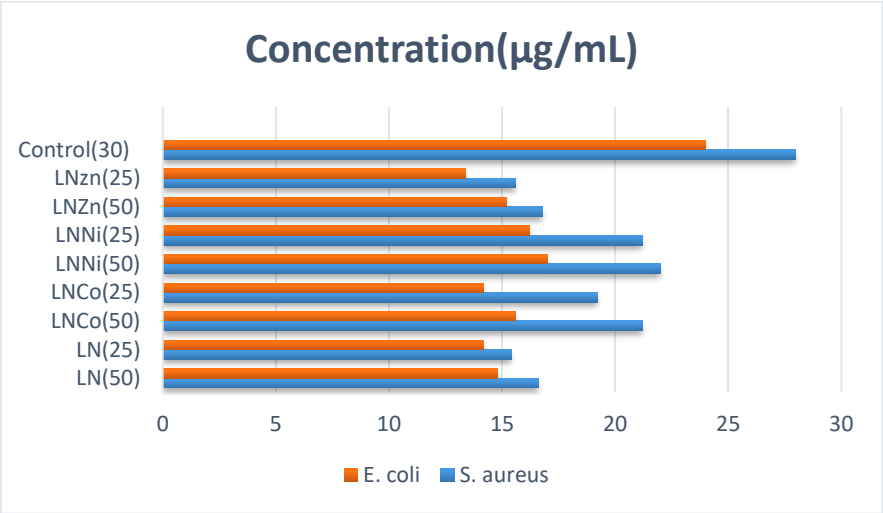
الجدول (2): يظهر نتائج تحليل حيود الاشعة السينية للمسحوق لمعقد النحاس

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

4.الفعالية المضادة للبكتيرية: Antibacterial activity

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

الموجبة لصبغة كرام، *Staphylococcus.aurous* والسالبة لصبغة كرام *E. coli*, واعتمدت طريقة الدراسة على أحداث ثقوب 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 agerMueller) 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 مقاربة للمادة القياسية ((Ciprodar)(Control)الشكل(8)يظهر نتائج الفعالية البيولوجية للمركبات المحضرة.

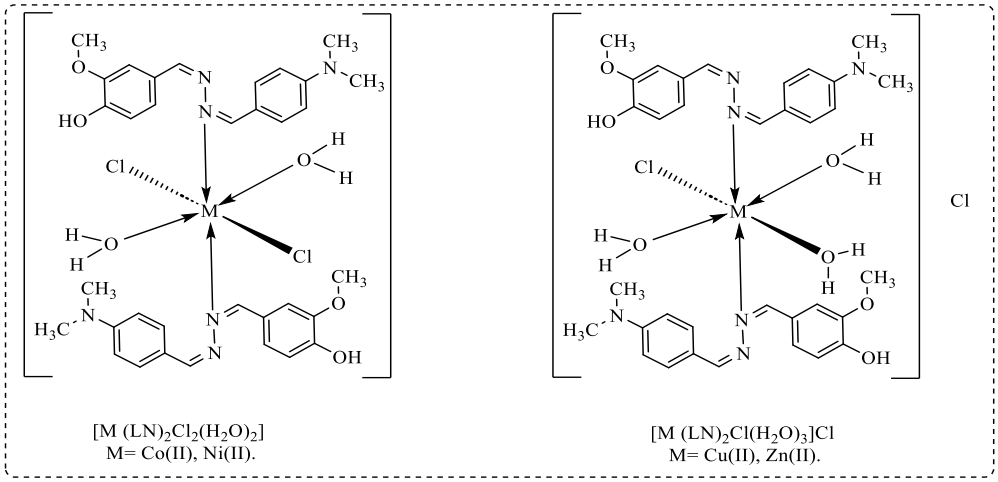


الشكل (8): يظهر تأثير المركبات المحضرة في تثبيط نمو صنفين من البكتيريا المرضية.

5.الاستنتاجات Conclusion

أثبتت الدراسات الطيفية (IR)، والاطياف الالكترونية والعزم المغناطيسي و التحليل الدقيق للعناصر لكل من الليكاند والمعقدات المحضرة ،صحة التركيب المقترح لجميع المركبات المحضرة ، اذا يسلك الليكاند المحضر سلوك احادي السن ، يتم التناسق من خلال ذرة (N)لمجموعة الازوميثين مع الايون الفلزي والتي حضرت بنسبه مولية (1:2) ليكاند : فلز ، لتعطي معقدات تمتلك شكل هندسي ثماني السطوح وقسم من هذه المعقدات 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 (2):يبين الاشكال الهندسية المقترحةلمعقدات الليكاند(LN).

References المصادر

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:priciples 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 tranzition 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.