CC BY 4

College of Basic Education Research Journal

https://berj.uomosul.edu.iq/

# Synthesis, Characterization and Antibacterial activity Evaluation of Some Complexes Derived From N-[(4-hydroxy-3-methoxyphenyl) methylidene amino]benzamide

**Estabraq Adnan Yousif** **Sahbaa Ali Ahmed**

University of Mosul , College of Science, Department of Chemistry, Mosul, Iraq.

**Article Information**

***Article history:***
Received: April 9,2025
Reviewer: June 21,2025
Accepted: June 30,2025
Available online: September, 2026

**Keywords**:
*Benzoyl ,*
*Hydrozine,*
*Hydrazine Hydrate,*
*Schiff Base,*
*Metal Complexes.*

***Correspondence:***
*Sahbaa Ali Ahmed*
Email: Sahbaa-ali@uomosul.edu.iq

**Abstract**

In this research, a new ligand derived from the reaction of methyl benzoate with aqueous hydrazine was prepared. The hydrazone ligand (N-[(4-hydroxy-3-methoxyphenyl)methylidene)aminobenzamide] was prepared and then reacted with a number of metallic elements Mn (II) , Cu(II), Ni(II), Co (II) and Zn(II). The ligand behaved as a diastereomer, where the coordination between the central ion and the ligand occurred through the nitrogen atom of the azomethine group and the oxygen atom of the (OH) group of the aromatic ring. The proposed structures were deduced, yielding octahedral complexes. The ligand and its complexes were characterized, and several measurements were performed , such as spectroscopy FT-IR , nuclear magnetic resonance spectroscopy proton $^{1}$H-NMR and $^{13}$C-NMR spectroscopy, as well as magnetic measurements. In addition, Computational study of stability. Electronic spectra and Micro elemental analysis, as well as the molecular docking study of the prepared ligand and the molar electrical conductivity. The biological activity of the ligand and its complexes on two types of Gram-negative bacteria *(E.coli)* and Gram-positive bacteria *(S.aureus)* was also studied, as some complexes showed higher antibacterial activity than the free ligand.

**P-ISSN: 1992–7452** **E-ISSN: 2664-2808**

# تحضير وتوصيف وتقييم النشاط المضاد للبكتيريا لبعض المعقدات المشتقة من N-[(4-هيدروكسي-3-ميثوكسي فينيل) ميثيليدين أمينو] بنزاميد

**استبرق عدنان يوسف** **صهباء علي أحمد**

**جامعة الموصل، كلية العلوم، قسم الكيمياء، موصل، العراق.**

## المستخلص

في هذا البحث، تم تحضير ليكاند (مترابطة) جديد مشتق من تفاعل ميثيل بنزوات مع الهيدرازين المائي. تم تحضير ليكاند الهيدرازون **N-[(4-hydroxy-3-methoxyphenyl)methylidene]aminobenzamide**]، ثم تفاعله مع عدد من العناصر الفلزية وهي: المغنيز (II)، النحاس (II)، النيكل (II)، الكوبالت (II)، والزنك (II). تصرف الليكاند كـ "متقابل ضوئي غير مرآتي" (**Diastereomer**)، حيث حدث التناسق بين الأيون المركزي والليكاند عبر ذرة نيتوجين مجموعة الأزوميثين وذرة أكسجين مجموعة الهيدروكسيل (**OH**) على الحلقة الأروماتية. وتم استنتاج الهياكل المقترحة، والتي أسفرت عن معقدات ثمانية السطوح ( **Octahedral complexes**). تم توصيف الليكاند ومعقداته وإجراء العديد من القياسات، مثل مطيافية الأشعة تحت الحمراء بتحويل فورير (**FT-IR**)، مطيافية الرنين المغناطيسي النووي للبروتون (**$^{1}$H-NMR**) والكربون (**$^{13}$C-NMR**)، بالإضافة إلى القياسات المغناطيسية. كما شملت الدراسة الحسابية لاستقرارية المعقدات، الأطياف الإلكترونية، التحليل الدقيق للعناصر، دراسة الالتحام الجزئي (**Molecular Docking**) لليكاند المحضر، وقياس التوصيلية الكهربائية المولارية. كذلك تم تقييم النشاط البيولوجي لليكاند ومعقداته ضد نوعين من البكتيريا: البكتيريا سالبة الجرام (***E. coli***) والبكتيريا موجبة الجرام (***S. aureus***)؛ حيث أظهرت بعض المعقدات نشاطًا مضادًا للبكتيريا أعلى من الليكاند الحر.

**الكلمات المفتاحية:** بنزويل، هيدرازين، هيدرازين هيدرات، قاعدة شيف، معقدات فلزية.

## 1-المقدمة:

تعرف قواعد شيف او الهيدرازونات بأنها مركبات تحتوي على مجموعة الأزوميثين (C=N) وتتكون عادة من تكاثف الهيدرازينات الأسيلية ومشتقاتها مع مجموعة كربونيل نشطة مثل الألدهيدات والكيتونات (Zabicky ،1970), نظرا لوجود عدة مواقع ارتباط وإمكانية حدوث توازن كيتو إينولي، يمكن لهذه المركبات أن تعمل كليكندات مخلبية متعددة السن (Kumar واخرون 2017)، وبسبب نشاطها البيولوجي وقدرتها على تكوين روابط متعددة عند تشكيل معقدات مع المعادن الانتقالية، فقد جذبت كيمياء التناسق الخاصة بالهيدرازونات اهتمام العديد من الباحثين ( Yongxiang and Demirelli ,2006).

في السنوات الأخيرة، تم إيلاء اهتمام كبير لتوليف ووصف الهيدرازونات و مركباتها المعدنية, و تستخدم مركبات الهيدرازيد على نطاق واسع في مجالات مختلفة نظرا لتطبيقاتها المتنوعة، وفقا للأدبيات السابقة، تتمتع معقدات الهيدرازيد بإمكانيات كبيرة كمواد واعدة، حيث يمكنها تكوين روابط مع المعادن الانتقالية من خلال ذرات مانحة مختلفة (Budoor واخرون (2023)، تعمل هذه المركبات كوسيطات وهي مهمة بشكل خاص في الكيمياء اللاعضوية بسبب قدرتها على تكوين معقدات مستقرة مع معظم أيونات المعادن الانتقالية، معظم أيونات المعادن الانتقالية أظهرت الهيدرازيدات الحامضية ($RCONHNH_2$)، وهي فئة فرعية من قواعد شيف، جنبا إلى جنب مع الهيدرازونات المقابلة لها ( RCONHN= C) ، نشاطًا بيولوجيا ملحوظا . بالإضافة إلى ذلك، تمت دراسة سلوكها المخلبي مع أيونات المعادن الانتقالية في الأنظمة البيولوجية على نطاق واسع ( Lamia and Rushdi 2018,),كما تم تحضير ليكاند مشتق من الهيدرازين والبنزالديهايدات (هيدرازون)، ومنه تم تحضير خمسة معقدات فلزية باستخدام عدد من العناصر الانتقالية, كما تم اختبار المركبات المحضرة مختبريًا ضد نوعين من البكتيريا، إحداهما موجبة لصبغة كرام والأخرى سالبة لصبغة كرام، لتقييم نشاطها البيولوجي(Nuha and Sahbaa, 2024), واستخدمت في العديد من البحوث مركب الفانيلين وهو عامل نكهة غير مكلف وصديق للبيئة ومتوفر بسهولة، يستخدم على نطاق واسع في صناعات الأغذية و المشروبات و الأدوية , كما تم استكشافه كمثبط للتأكل , ولهُ القدرة على التفاعل مع الايونات المعدنية (Lamia and Rushdi,2018) وفي بحثنا هذا تم تحضير ليكاند مشتق من تفاعل بنزويل هيدرازين مع الفانيلين وحضر منهُ خمس معقدات فلزية.

## 2- المواد وطرائق العمل Materials and Methods

2.1-جميع المواد الكيميائية المستخدمة في هذه الدراسة ذات نقاوة عالية وتم توفيرها من شركات (Sigma Aldrich و,BDH, Fluke).

### 2.2- الاجهزة والقياسات Instrument & Measurements

تم قياس درجات الانصهار والتفكك لليكاند والمعقدات المحضرة في قسم الكيمياء/ كلية العلوم، جامعة الموصل، باستخدام جهاز Melting Point Apparatus موديل SMP30, أما القياسات المغناطيسية فقد أُجريت في قسم الكيمياء بكلية التربية للعلوم الصرفة / جامعة الموصل، باستخدام جهاز Magnetic Susceptibility Balance.

تم تسجيل أطياف الأشعة تحت الحمراء باستخدام جهاز Bruker FTIR, Alpha-ATR في النطاق ($cm^{-1}$ 4000-400) في المختبر المركزي لكلية العلوم/جامعة الموصل. كما تم قياس التوصيلية الكهربائية للمعقدات باستخدام جهاز model 4510–Jenway، مع مذيب DMF بتركيز ($10^{-3}M$) عند درجة حرارة $25C^{o}$.

بالنسبة للأطياف الإلكترونية للمعقدات، فقد تم تسجيلها بالأشعة فوق البنفسجية باستخدام جهاز Shimadzu 1800 Spectrophotometer عند درجة حرارة الغرفة، باستخدام مذيب DMF، مع خلايا كوارتزية (1cm) في المدى (200-1100nm).

تم تحديد كمية العنصر في المعقدات المحضرة عبر مطيافية الامتصاص الذري باستخدام جهاز NovAA Analytjena، بينما أُجري التحليل الدقيق للعناصر لليكاند ومعقداته باستخدام جهاز Thermo fisher, Eager300, كما تم قياس طيف الرنين النووي المغناطيسي للبروتون ($^{1}H$-NMR) ($^{13}C$-NMR) لليكاند باستخدام جهاز Bruker FTlR,Alpha-ATP, أما الفعالية البكتيرية، فقد تم اختبارها في مختبر بحوث الأحياء المجهرية، قسم علوم الحياة/ كلية العلوم/ جامعة الموصل.

## 3-طرائق التحضير:

### 3.1 تحضير الليكاند

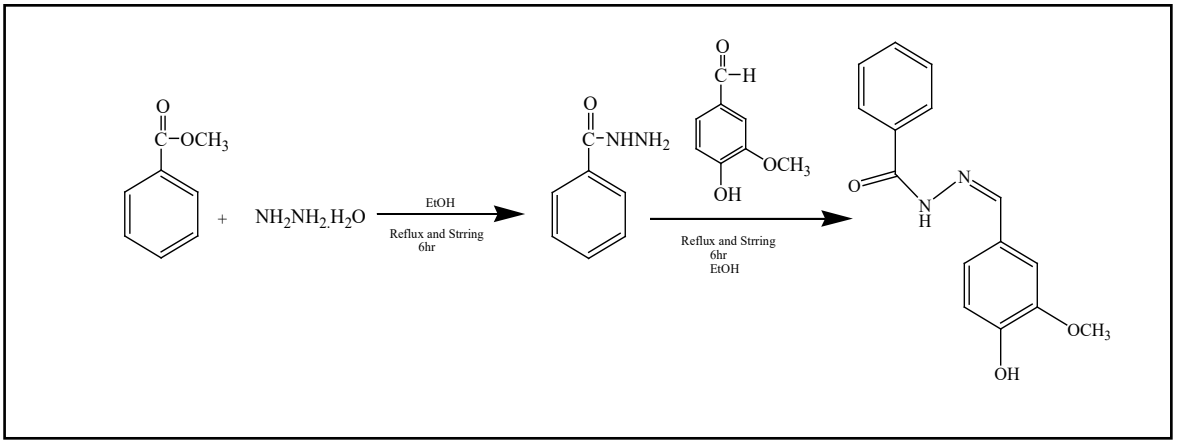
**الخطوة الاولى- تحضير الجزء الاول من الليكاند(B) بتفاعلات قواعد شف:**

في دورق دائري سعته (250ml) مزود بمحرك مغناطيسي، أُضيف(0.10mol, 5.00g) من الهيدرازين المائي(Hydrazine hydrate ) إلى(0.10mol, 13.61g) من بنزوات المثيل (methyl benzoate) المذاب في( 25ml) من الإيثانول المطلق, تم تصعيد المزيج لمدة 6

ساعات وفقًا لـ Wang وآخرين (2006)، تُرك الناتج ليبرد في درجة حرارة المختبر لكي يستقر ، مما أدى إلى تكوُّن راسب، والذي تم ترشيحه وغسله بمزيج من الماء والإيثانول ، ليعطي ناتجاً ذا لون أبيض, درجة الانصهار $109C^o$,النسبة المئوية للناتج 82% .كما موضح في المخطط (1) .

**الخطوة الثانية–تحضير الجزء الثاني من الليكاند (LB) بتفاعلات قواعد شف:**

في دورق دائري مزود بمحرك مغناطيسي، أُضيف ( 0.05mol, 6.80g) من المركب (B) المحضر في الخطوة الأولى إلى (0.05mol , 7.80g) من الفانيلين (Vanillin) المذاب في (30ml) من الإيثانول المطلق، تم تصعيد المزيج لمدة (6 ساعات) وفقاً لـ Wang وآخرين (2006)، ثم تم تبخير المذيب . بعد ذلك، تُرك الناتج في درجة حرارة المختبر ليبرد مما أدى إلى تكوُّن راسب، والذي تم ترشيحه وغسله بمزيج من الماء والإيثانول، ليعطي مركب بيضاء. الانصهار $216C^o$, النسبة المئوية للناتج 90%، كما موضح المخطط (1) تركيب الليكاند (LB).




**مخطط (1): يبين تحضير الليكاند(LB).**

## 3.2 تحضير المعقدات الفلزية Preparation of complexes

تم تحضير المعقدات وفقاً للطريقة التي وصفها Kriza وآخرون (2009)، باستخدام نسبة مولارية (1:2) (ليكاند: فلز) لتحضير المعقد، يُضاف (0.002mol, 0.59g) من قاعدة شف (LB) المذابة في (15ml) من الإيثانول إلى دورق دائري مزود بمحرك مغناطيسي. بعد ذلك، يُضاف الملح الفلزي المذاب في أقل كمية ممكنة من الإيثانول إلى المحلول المحتوي على الليكاند، وفقاً لما يلي:

(Mn(II): 0.161g),( Co(II): 0.2379 g) ,(Ni(II): 0.2377 g), (Cu(II): 0.2444 g ) , (Zn(II): 0.1704 g) و يُسخَّن المزيج حرارياً لمدة 3 ساعات، ثم يُترك في درجة حرارة المختبر

ليبرد، وبعد ذلك يُرشَّح الراسب المتكوّن، ويُغسل بالإيثانول، ثم يُجفَّف , ويوضح المخطط (2) الشكل الهندسي المقترح للمعقدات المحضرة.

## 4-النتائج والمناقشة Results and Discussion

في هذا البحث حضر الليكاند N-[(4-هيدروكسي-3-ميثوكسي. فينيل)ميثيليدين أمينو] بنزاميد، وحسب طريقة (Wangواخرون2009) بواسطة تكاثف قاعدة شف ،في الوسط القاعدي ، وتم تحضير معقدات فلزية جديدة لليكاند مع الاملاح الفلزية لعناصر المنغنيز (II) ،الكوبلت(II) ، النيكل(II)، النحاس(II) و 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(DMF ) (W.j.Moore , 1972)، ان كل المعقدات تسلك سلوك معقدات متعادلة ، فهي غير الكتروليتية اي انها ضعيفة الموصلية في المحلول , وكما موضح في الجدول (1)، تم قياس الحساسية المغناطيسية لمعقد المنغنيز (II), وكانت قيمة العزم المغناطيسي الفعال للمعقد (6.09B.M) يشير الى أن أيون المنغنيز (II)سداسي التناسق ثماني السطوح عالي البرم وذلك لوجود خمس الكترونات منفردة في غلاف 3d, كما أظهر معقد الكوبلت (II) المحضر قيمة العزم المغناطيسي(4.95B.M) وهذا ما يتفق مع قيمة العزم المغناطيسي ثماني السطوح عالي البرم ، وقد أظهر معقد النيكل (II) المحضر قيمة عزم مغناطيسي (3.09B.M) ذات شكل ثماني السطوح عالي البرم ، أما معقد النحاس (II) فقيمة العزم المغناطيسي بحدود (2.08B.M) وهذا يدل على اتخاذ هذا المعقد بنية ثماني السطوح .

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

| NO. | الصيغة المقترحة للمعقد | درجة الانصهار (°C) | اللون | النسبة المئوية % | التوصيلية $\Omega^{-1}cm^2 mol^{-1}$ $\Lambda_{DMF}$ | التحليل الدقيق للعناصر (CHN) Found (calc)% | | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | | | | | | C | H | N |
| 1 | $[Mn(LB)_2Cl_2]$ | 256-258 | اصفر فاتح | 79 | 15.2 | (54.05) 54.24 | (4.20) 4.53 | (8.40) 8.62 |
| 2 | $[Co(LB)_2Cl_2]$ | 230-232 | اصفر مخضر | 71 | 12.0 | (53.73) 53.92 | (4.17) 4.32 | (8.35) 8.67 |
| 3 | $[Ni(LB)_2Cl_2]$ | 281-283 | اصفر فاتح | 83 | 25.0 | (53.73) 52.92 | (4.17) 4.38 | (8.35) 8.12 |
| 4 | $[Cu(LB)_2Cl_2]$ | 250-252 | اخضر غامق | 92 | 4.1 | (53.33) 50.16 | (4.14) 4.36 | (8.29) 7.54 |
| 5 | $[Zn(LB)_2Cl_2]$ | 215-227 | ابيض مصفر | 84 | 3.7 | (53.25) 53.54 | (4.14) 4.23 | (8.28) 8.28 |

**4.1 قياس الاطياف الالكترونية للمعقدات المحضرة: U.v-Visible**

تم قياس الطيف الالكتروني لمعقد المنغنيز (II) المحضر $[Mn(LB)_2Cl_2]$ , وقد أعطى حزمة أمتصاص ضمن المدى ($29953cm^{-1}$ ) مما يدل على اتخاذ هذا المعقد بنية ثماني السطوح عالي البرم، كما أظهر معقد الكوبلت (II) المحضر $[Co(LB)_2Cl_2]$ حزم امتصاص عند ($13828cm^{-1}$)، ($18654cm^{-1}$) تعزى هذه الحزم الى الانتقالات ( $\upsilon_2$ $^4A_2g$ (F)) $\longrightarrow$ $^4T_1g$ (F)) , ($^4T_1g$ (F) $^4T_1g$ (P)) $\upsilon_3\longrightarrow$ أما ($\upsilon_1$) لم تظهر مما يدل على اتخاذ هذا المعقد بنية ثماني السطوح عالي البرم, (Abd El-Lateef واخرون 2023 ).

كما أعطى الطيف الالكتروني لمعقد النيكل ( II) المحضر $[Ni(LB)_2 Cl_2]$ثلاث حزم عند الموقع ($11586cm^{-1}$), ($13337cm^{-1}$), ($24416cm^{-1}$) و التى تعزى الى ( ($^3A_2g \longrightarrow {}^3T_2g$ ($\upsilon_1$) و ($^3A_2g \longrightarrow {}^3T_1g(\upsilon_2$ )) و ($^3A_2g$ $^3T_1g$ (P) $\longrightarrow$ ($\upsilon_3$)) على التوالي, وهذا مما يتفق مع معقدات النيكل (II) ثمانية السطوح (VJayalakshmiواخرون ,2017) Bergas, Al-Shaheen 2020,Al-) .

واظهر معقد النحاس (II) المحضر حزمة عريضة تمثل الانتقال الالكتروني $[^2Eg\longrightarrow {}^2T_2g]$ وتنفصم هذه الحزمة في ثماني السطوح الى ثلاث حزم من جراء التشوه وتأثير (جان – تيلر) وظهرت الحزمة عند ($16764cm^{-1}$) مما يدل على انهُ المعقد ثماني السطوح (Huheey ,واخرون1993). وقد أعطى معقد الخارصين (II) المحضر حزم امتصاص بحدود ($31600cm^{-1}$) تمثل اطياف نقل الشحنة لانها تمتلك ($d^{10}$) وأتخد المعقد بنية ثماني السطوح (Raman واخرون ,2013).

**4.2.طيف الاشعة تحت حمراء FT-IR**

نظرًا لأهمية طيف الأشعة تحت الحمراء في دراسة وتشخيص الليكاندات ومعقداتها، فإن تكوين المعقدات يؤدي إلى نشوء أواصر تناسقية جديدة بين الليكاند وذرة الفلز المركزية، مما قد يؤثر على التركيب الإلكتروني (Electronic Structure)، والمستوى الطاقي (Energy Level)، والتماثل (Symmetry) لليكاندات، وبالتالي ينعكس ذلك على الأطياف الاهتزازية للمعقدات ( Nakamoto, 1963)، و هناك العديد من العوامل التي تؤثر على الاهتزاز الامتطاطي للمعقد، مثل الحالة الفيزيائية للمركب، وطبيعة المجاميع الوظيفية المرتبطة بالكاربون أو النيتروجين أو كليهما، بالإضافة إلى تأثير الأواصر الهيدروجينية، والتركيب البنيوي، والتماثل الجزيئي للمعقد, كما تساهم قوة الاصرة التناسقية والتداخلات البيئية، مثل تأثير المذيب والجزيئات خارج الكرة التناسقية، في التأثير على الطيف الاهتزازي للمعقد (Nakanishi, 1962).

ظهر التردد الامتطاطي لمجموعة الآزوميثين في الليكاند المحضّر عند ($1596cm^{-1}$)، وعند قياس أطياف المعقدات، لوحظ انخفاض هذا التردد إلى مدى ($1543-1581cm^{-1}$)، مما يشير إلى ارتباط المجموعة مع الفلز عبر ذرة النيتروجين في مجموعة الآزوميثين. يؤدي هذا الارتباط إلى إزاحة التردد نحو القيم الأقل نتيجة لضعف خاصية الرابطة المزدوجة (C=N)، وهو ما يتوافق مع ما ورد في الأبحاث المنشورة (Tolan وآخرون،2021).

بالإضافة إلى ذلك، لوحظت حزمة امتصاص ضمن النطاق ($540-566cm^{-1}$)، والتي نُسبت إلى الاهتزاز الامتطاطي للرابطة $\boldsymbol{\nu}$(M−O), وهو ما يتفق مع الدراسات المنشورة. كما تم تسجيل حزم مط $\boldsymbol{\nu}$ (C-H) الاروماتية عند ($3060-3068cm^{-1}$)، وحزم مط $\boldsymbol{\nu}$ (C-H) الأليفاتية عند (2934-2976$cm^{-1}$) ، كما هو موضح في الأشكال (3-1) (Shahab وآخرون،2019).

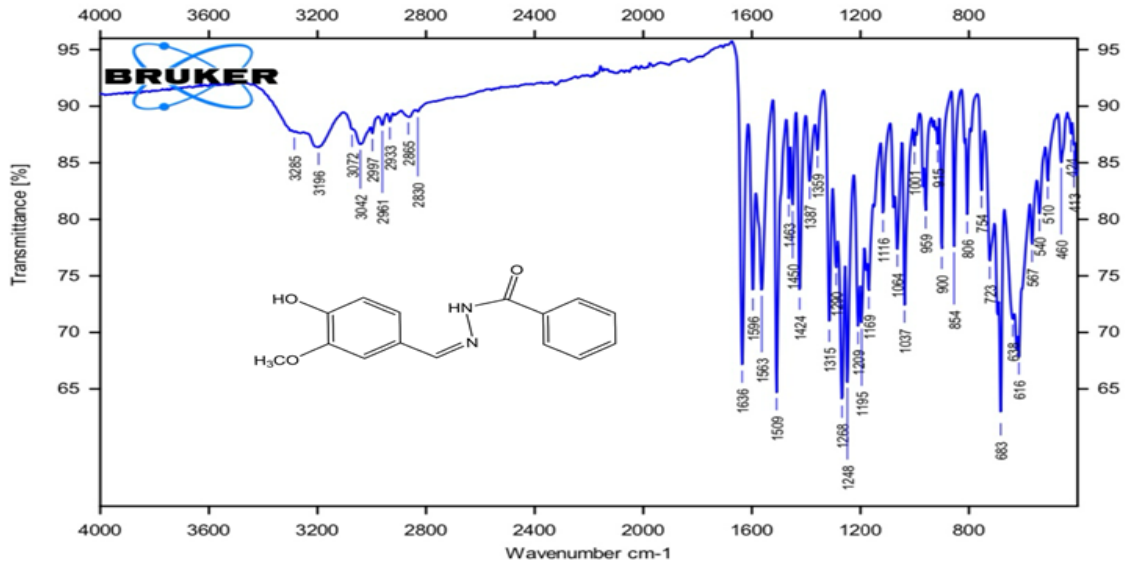
ظهرت حزمة الامتصاص الخاصة بمجموعة $\boldsymbol{\nu}$(M−N) في جميع المعقدات ضمن المدى (440-460$cm^{-1}$) في منطقة الترددات المنخفضة، وهو ما يتوافق مع الدراسات السابقة. يشير ذلك إلى حدوث التناسق بين الفلز وذرة النيتروجين في مجموعة الآزوميثين، مما يؤكد طبيعة الارتباط بينها (Bennour وآخرون،2023).

نظراً لأن الجهاز المستخدم للقياس يعمل ضمن المدى ($400-4000cm^{-1}$)، فإن الحزم الامتصاصية الخاصة بأيونات الكلوريد المرتبطة تساهمياً بالذرة الفلزية، أي الواقعة داخل الكرة التناسقية، لا يمكن ملاحظتها مباشرة. ومع ذلك، تم التأكد من وجود أيونات الكلوريد داخل الكرة التناسقية من خلال هضم المعقدات وترسيب الكلوريد باستخدام نترات الفضة، حيث ظهر الراسب الأبيض المميز لكلوريد الفضة (Vogel وآخرون،1989).

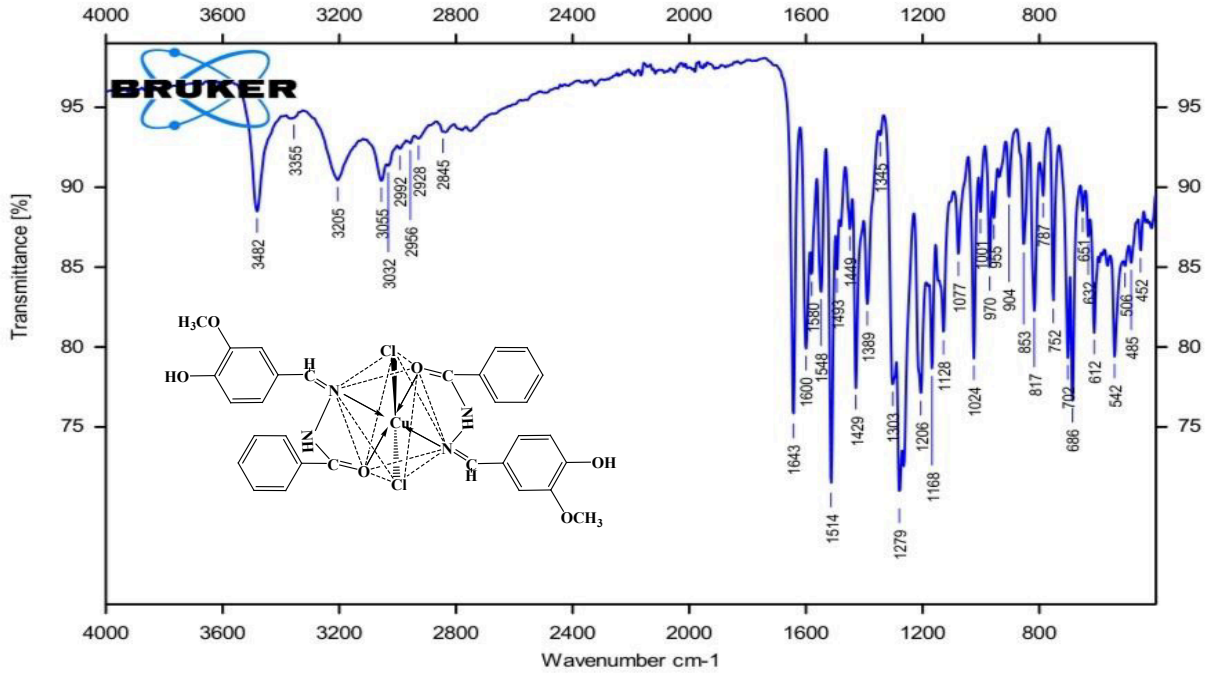
بالإضافة إلى ذلك، تم استنتاج البنية الفراغية المتوقعة للمعقدات اعتماداً على قياسات التوصيلية الكهربائية المولارية، إلى جانب القياسات المغناطيسية والأطياف الإلكترونية.

**الجدوال (2) يبين قيم الترددات المهمة في طيف الأشعة تحت الحمراء لليكند LB الحر ومعقداته $cm^{-1}$**

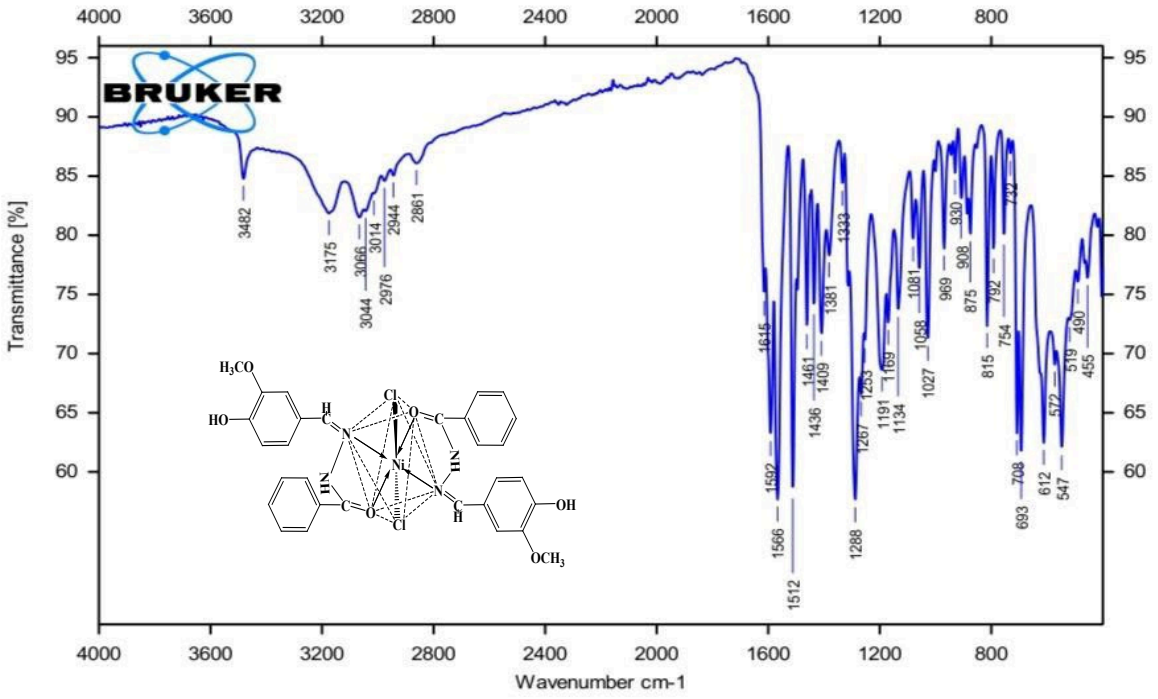
| Group | Ligand | Mn(II) | Co(II) | Ni(II) | Cu(II) | Zn(II) |
|---|---|---|---|---|---|---|
| ν(C=N) | 1596 | 1565 | 1581 | 1566 | 1543 | 1563 |
| ν(N-N) | 1037 | 1033 | 1025 | 1027 | 1024 | 1036 |
| ν(C=O) | 1636 | 1596 | 1601 | 1615 | 1600 | 1635 |
| ν(C-O) | 1209 | 1158 | 1195 | 1191 | 1168 | 1168 |
| ν (N-H)amide | 3285 | 3282 | 3184 | 3275 | 3255 | 3278 |
| ν(OH)phenol | 3499 | 3495 | 3490 | 3492 | 3492 | 3491 |
| δ(OH)phenol | 1290 | 1288 | 1285 | 1288 | 1289 | 1289 |
| ν(C-H)aliphatic | 2961 | 2964 | 2934 | 2976 | 2956 | 2961 |
| ν(C-H)aromatic | 3065 | 3068 | 3068 | 3066 | 3066 | 3060 |
| ν ( M-O) | ---- | 540 | 537 | 547 | 542 | 566 |
| ν(M-N) | ---- | 450 | 440 | 455 | 452 | 460 |




**الشكل (1): يظهر طيف الاشعة تحت حمراء لليكاند(LB)**




**الشكل (2): يظهر طيف الاشعة تحت حمراء للمعقد رقم $[Cu(LB)_2Cl_2]$.**




**الشكل (3): يظهر طيف الاشعة تحت حمراء للمعقد رقم[$Ni(LB)_2Cl_2$].**

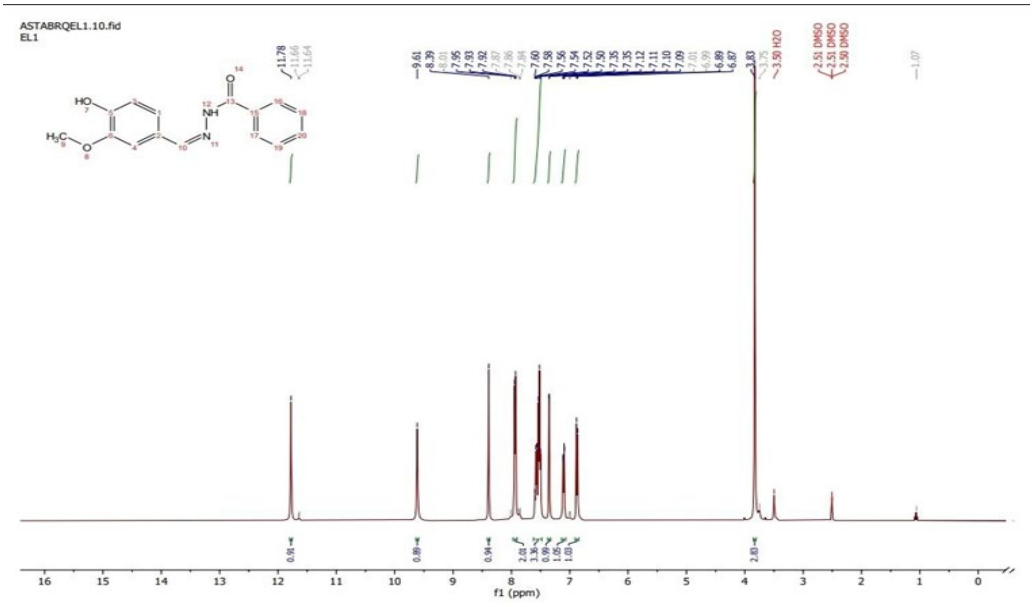
### 4.3 طيف الرنين النووي المغناطيسي لليكاند (LB): $^1$H-NMR, and $^{13}$C-NMR

تم قياس طيف الرنين النووي للبروتون $^1$H–NMR و $^{13}$C–NMR، لليكاند المحضر حيث اظهر طيف الرنين للبروتون ($^1$H–NMR) تطابقاً لعدد بروتونات في الطيف مع عدد البروتونات في الليكاند, حيث ظهرت طيف البروتون اشارة احادية لثلاثة بروتونات عند (3.83ppm) وتعود الي بروتونات (OCH3) واشارة ثنائية عند الموقع لبروتون واحد عند الموقع (d,J=8.1HZ)(6.88ppm) تعود الى بروتون رقم (3) في الحلقة (OH)الفينول، وايضا ظهرت اشارة ثنائية ثنائية عند الموقع (dd.J=8.1.1.9 HZ)(7.10ppm) تعود لبروتون واحد في حلقة (OH) الفينول (الموقع1) ,وحيث ظهرت اشارة ثنائية عند الموقع (J=1.9HZ )(7.35 ppm) تعود لبرتون (4) تعود لبرتون واحد في حلقة (OH) الفينول, وظهرت اشارة ثلاثية عند الموقع ( 7.52ppm) تعود لبروتونين في حلقة البنزين (19,18) ,وحيث ظهرت اشارة ثلاثية عند الموقع (J=7.3HZ )(7.58ppm) تعود الي بروتون واحد في الحلقة البنزين (20), واشارة متعددة عند (7.96–7.91ppm) تعود لبروتينين (17,16) في حلقة البنزين, وظهرت اشارة احادية عند (الموقع 8.39ppm) وتعود الي بروتون مجموعة (10) ( HC=N) وابضا ظهرت اشارة احادية عند (الموقع

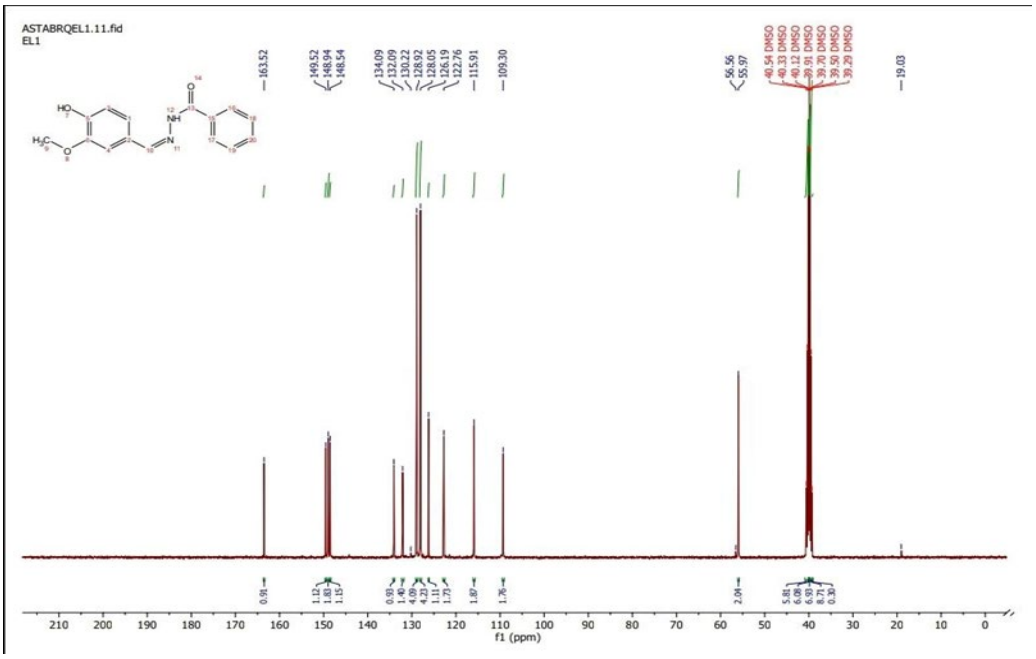
9.61ppm) تعود لبروتون مجموعة (OH) الفينولية , واخيراً ظهرت اشارة عند الموقع (11.78ppm) تعود الي بروتون مجموعة (NH), حسب(Sami and Shaalan,2024) .

بينما الطيف الرنين ($^{13}$C-NMR) اظهرت الحزم او الاشارات عند المواقع التالية:-

56.56($C_5$) ,109.30($C_{16}$), 115.91($C_{15}$) ,122.76($C_{19}$) , 163.52($C_7$) , 149.52($C_{20}$) , 148.94($C_{18}$) , 148.54($C_6$), 134.09($C_{14}$) , 128.05($C_{12}$) , 128.05($C_8$) ,126.19($C_{17}$) (Wang , 128.92($C_{10}$) , 132.09($C_9$) , 128.92($C_{11}$) , واخرون 2006) كما موضح في الشكلين (5,4).




**الشكل(4): يظهر طيف الرنين النووي المغناطيسي للبروتون($^{1}$H-NMR) لليكاند**




**الشكل (5): يظهر طيف الرنين النووي المغناطيسي للكاربون($^{13}$C-NMR) لليكاند.**

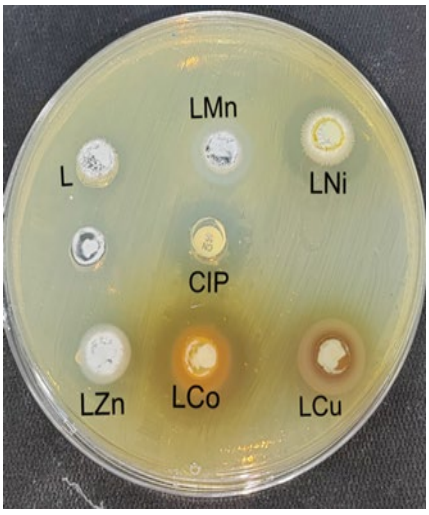
### 4.4.الفعالية المضادة للبكتيريا Antibacterialactivity

تم تقييم الفعالية البيولوجية لليكاند ومعقداته الفلزية المحضرة ضمن هذه الدراسة، والتي شملت اختبار تأثيرها على بعض أنواع البكتيريا المشخصة مختبريًا باستخدام الفحوصات الكيموحياتية والمجهرية. تُعد هذه السلالات البكتيرية المعزولة مسؤولة عن العديد من الأمراض التي تصيب الإنسان ومعروفة بمقاومتها للمضادات الحيوية ركزت الدراسة على نوعين من البكتيريا الممرضة للإنسان، أحدهما موجب لصبغة كرام*(Staphylogoccus)* والآخر سالب لصبغة كرام *(E.coli)*, تم تنفيذ الاختبار من خلال إنشاء ثقوب في الوسط Nutrient agar باستخدام ثاقب فليني معقم بالإيثانول المطلق، ثم تم نشر البكتيريا على سطح الاكار ناشر الزجاجي بواسطة اللوب الخاص بعملية الزرع البكتيري، مع ضمان التوزيع المتجانس لها على الوسط الزرعي.

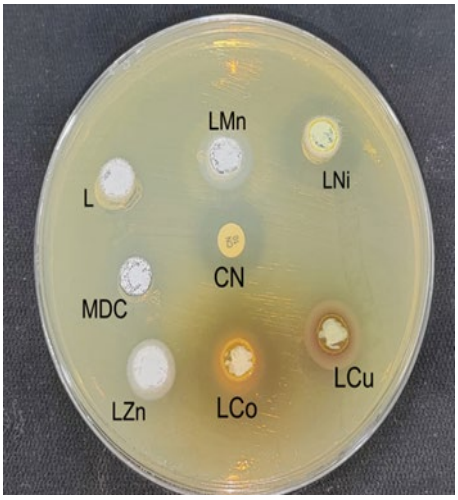
بعد ذلك، تم وضع المحاليل المحضرة [Zn ,Cu ,Ni, Cu, Mn] في دراستنا بكمية 3 ملغم /حفرة ،مذابة في المذيب (DMF) داخل الثقوب، كما اضيف DMF في حفرة مستقلة وذلك كعينة سيطرة ثم أُغلقت الأطباق ووضعت في الحاضنة لمدة 24 ساعة عند درجة حرارة 37 مئوية. بعد انتهاء الفترة المحددة، تم قياس قطر منطقة التثبيطية باستخدام المسطرة (Adegbehingbe, 2019).

أظهرت المركبات المحضرة في هذه الدراسة فعالية جيدة جدًا، حيث أظهرت بعض المركبات تأثيرًا مقاربًا للمادة القياسية (Ciprofloxacin - Control).

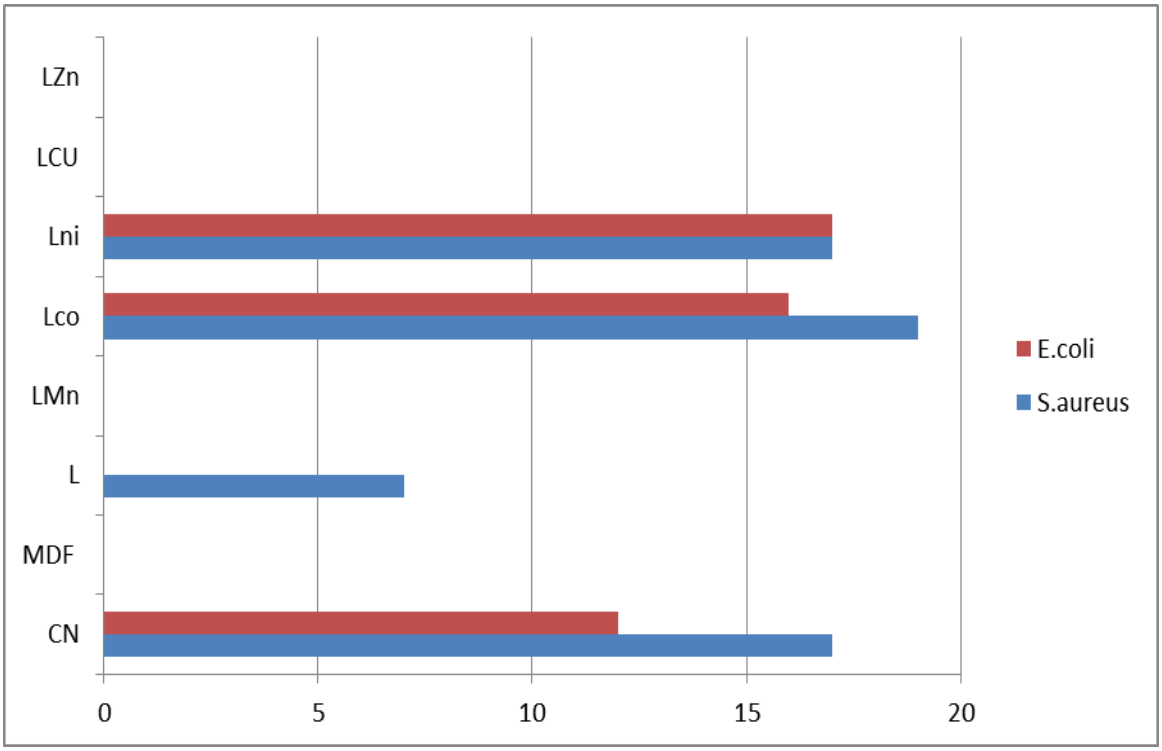
الشكل (6) يظهر تأثير كل من الليكاند ومعقداتها الفلزية المحضرة على نوعين من البكتريا.




*Staph.aureus*




*E-coli*



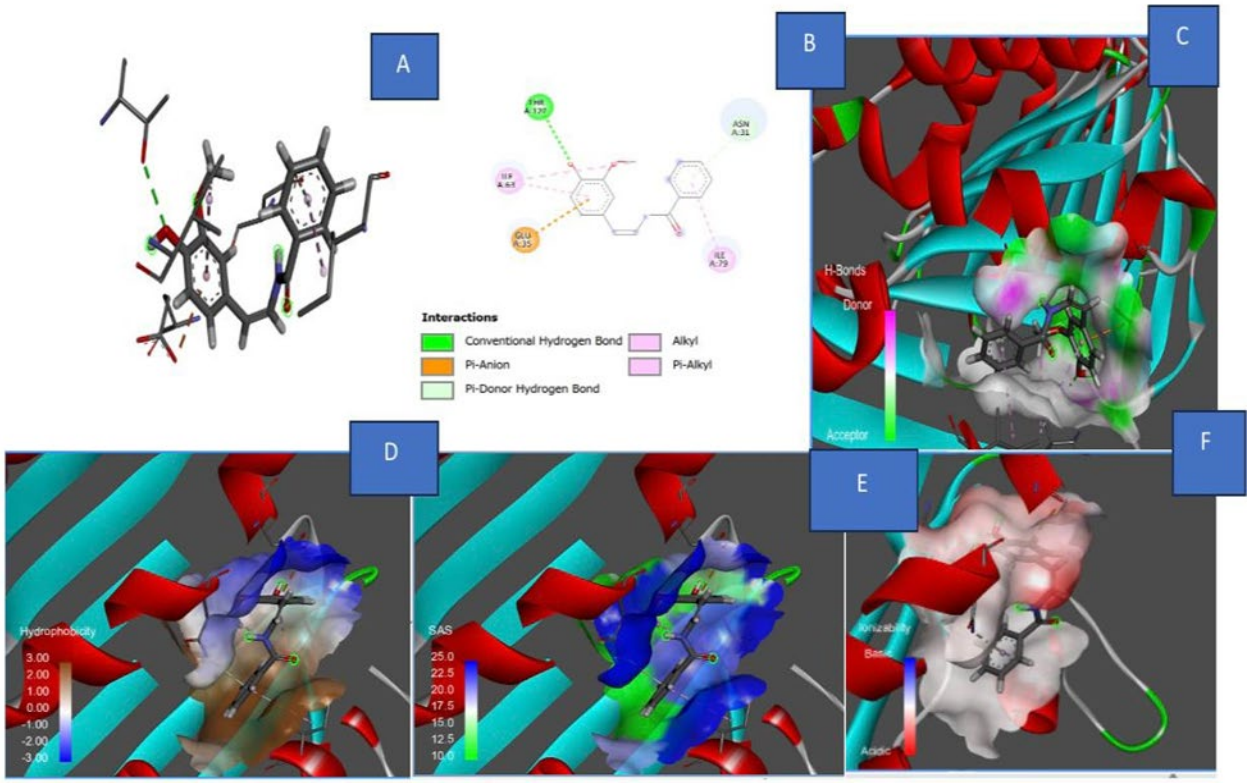

المخطط (3): يظهر نتائج الفعالية البيولوجية للمركبات المحضرة

| ت | Comp/Ligande | *S.aureus* | *E.coli* |
|---|---|---|---|
| 1 | CN | 17 | **12** |
| 2 | MDF | ----- | ----- |
| 3 | L | 7 | ----- |
| 4 | LMn | ----- | ------ |
| 5 | LCo | 19 | **16** |
| 6 | LNi | 17 | **17** |
| 7 | LCu | ----- | --- |
| 8 | LZn | ----- | ---- |

الجدول (3) يبين الفعالية (مساحة التثبيط البكتريا بالمليمتر) لليكند وبعض معقداتها المحضرة

### 4.5 دراسة الارتباط الجزيئي Molecular Docking Study

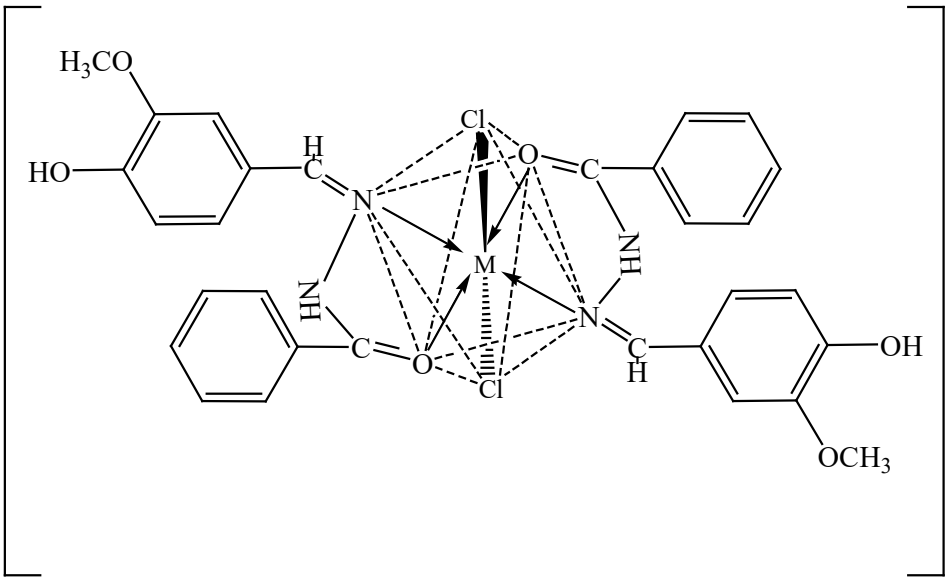
الالتحام الجزيئي هو طريقة لتحديد هيكل المركبات الناتجة عن جزيئين أو أكثر بشكل حسابي. يعد الالتحام الجزيئي تقنية منخفضة التكلفة وآمنة وسهلة الاستخدام تساعد في التحقيق وتفسير وتوضيح واكتشاف الخصائص الجزيئية من خلال استخدام هياكل ثلاثية الأبعاد (Raval واخرون2022). وبالإضافة الى ذلك له دور حاسم في جعل اكتشاف الأدوية ذات فعالية عالية وتكون أسرع وأقل تكلفة. ومن المتوقع ان تستمر خوارزميات الالتحام بالتطور والتقدم والتكامل مع طرق حسابية أخرى وتقديم منهجيات جديدة ستسهل اكتشاف الادوية (Muhammed واخرون 2024). ونظراً للأهمية البيولوجية والصيدلانية لدراسة الالتحام، فقد بُذلت جهود كبيرة لتحسين الخوارزميات للتنبؤ بالالتحام. والالتحام الجزيئي هو طريقة حيوية في تصميم هياكل الأدوية، حيث يوفر رؤى قيمة حول تفاعلات الليكاندات والمستقبلات لتعزيز عملية اكتشاف الأدوية و يتنبأ بمدى بدقة الارتباط والتشكيلات لمجموعة متنوعة من الأنواع مع البروتينات المستهدفة (Abd El-Lateef و اخرون2023)، وركزت هذه الدراسة على تفاعل الليكاند مع الموقع النشط لمستقبل مما يبرز امكانيته في تطوير مضادات حيوية جديدة ، وقيم الطاقة للارتباط الليكاند مع البروتين حددت فعالية الالتحام حيث تشير القيم الأكثر سلبية الى تفاعلات اقوى كما أنه يجعل من الممكن ارتباط جزيء صغير من اللجند بمواقع ارتباط بروتينات مستهدفة معينة مثل (A:Glu 3 , A:Arg 6 , A :Lys 7) لمستقبلات( ID:3G75) مع طاقات ربط تبلغ (-4.5kcal/mol and -3.5 kcal/mol)، على التوالي و الشكل (6) تعرض البيانات التي تم جمعها من دراسة الالتحام الجزيئي ، تم التحقيق في عملية الربط باستخدام تطبيق Auto Dock Vina1.1.2، تم إنشاء الهيكل ثلاثي الأبعاد لليكاند وتشكيله باستخدام أداة ChemAxon Marvin Sketch 5.3.735 ، وتم حفظه لاحقًا بتنسيق 2mol، تمت رؤية نتائج التثبيت الجزيئي في (BIOVIA, Discovery Studio, v4.0.100.13345.).




الشكل (7): يوضح نتائج الالتحام الجزيئي بين الليكاند و الانزيم (A):(3G75)يوضح تركيب بهيئة 3D لسلسة الاحماض الامينية مع المجاميع الوظيفية في الليكاند مع مستقبلات الأنزيم، (B): يوضح الهيئة ثنائية الابعاد(2D) لليكاند مع الانزيم (C): يوضح القابلية المحبة الامينية للأنزيم (3G75) لبكتريا Staph حول الليكاند (D): يوضح قابلية التأين للأحماض الامينية للأنزيم (3g75)حول الليكاند,(E): مناطق الحساسية للأنزيم (3G75)حول اليكاند, الليكاند (F): قابلية التأين للأحماض الامينية للأنزيم3G75 حول الليكاند.

## 5.الاستنتاجات Conclusion

أظهرت الدراسات الطيفية (IR)، الطيف الإلكتروني، العزم المغناطيسي، والتحليل الدقيق للعناصر لليكاند والمعقدات المحضرة صحة التركيب المقترح لجميع المركبات المُحضرة. حيث يتصرف الليكاند المحضر كسلوك ثنائي السن، ويتكون التناسق من خلال ذرة (N) في مجموعة الأزوميثين التي تتفاعل مع الأيون الفلزي وذرة الأوكسجين الكاربونيلية، وتم تحضيرها بنسبة مولية (1:2) ليكاند: فلز. هذا يؤدي إلى تكوين معقدات تمتاز بالشكل الهندسي ذي الثمانية أوجه، حيث تتميز بعض هذه المعقدات بخصائص غير إلكتروليتية، تم تقييم الفعالية البكتيرية لهذه المركبات ضد نوعين من البكتيريا الممرضة، وتم مقارنتها مع المادة القياسية (Ciprofloxacin).




M= Mn(II), Co(II), Ni(II), Cu(II), Zn(II).

**مخطط (2): يبين الاشكال الهندسية المقترحة لمعقدات الليكاند (LB).**

## 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. *Inorg. Chem. Commun.,* 155,P. 111087.

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).Al Zoubi, W., Vian, Y. J., Veyan, T.S., Al-Hamdani, A.A.S., Suzan, D.A., Yang, Gon Kim et al.(2019) .Synthesis and bioactivity studies of novel Schiff bases and their complexes. *Journal of physical organic chemistry* 24004, 1-7.

Alyaa S.M.O. , Ahmed S. F. , Muhammad A. , Reza B. A., Riyadh H. A. Muhammad N. T. , Mohammad R. H. , Ahmed S. A. ,(2024), Bis(diphenyl)phosphinomethane Platinum(II) complex of 1-(benzo[d] thiazol-2-yl)-3-phenylthiourea: Crystal structure and DFT study*, J. Mol. Struct*. 1304 ( 137624 .(

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 Chem.,* 5,P.

100775.

Fatma S., Ali, T. , Magdy S. , H.S. Seleem, F.I. Hanfy,(2022), Structure versatility of cobalt complexes of 2-[a (acetyloxime)ethylidenehydrazino]-4,6-dimethylquinoline; Synthesis, spectral, magnetic and theoretical studies*, Egyptian J. of Chemistry*, Vol. 65, No. 11 pp. 803-816 .

Huheey.J,E. Keiter, Keiter,A. R. L. (1993). Inorganic Chemistry:priciples of structure and reactivity 4th ed. *Harper-Collins Publishers*, P.452.

Ibtehaj F. A., Alyaa S.M.O. ,Nazk M. A. , Thaaer K. , Ahmed S. F.", Subhi A. A. and Ahmed S. A.,(2024), Pd(II), Pt(II), Zn(II), Cd(II) and Hg(II) complexes of the newly prepared 1,2-benzoisothiazol-3(2h)-dithiocarbamate (bit-dtc) ligand*, Chem. Soc. Ethiop.,* 38(3), ,p.889-899 .

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.

Lamia M. and Rushdi M.,(2018), Synthesis and Structural Studies of O-vanillin Indomethacin Hydrazone and P-vanillin Indomethacin Hydrazone, Chem. Mater. Res. Vol.10 No.4. Farah T. S., Zeena U. J. (2024). Synthesis and Characterization of new Mn(II), Co(II), Ni(II), Cu(II), Zn(II) and Cd(II) complexes with [(z)-3((6-aminopyridine-2-yl)imino)indolin-2-one] ligand.*Chemical Problems*. 22(1), 103-114.

Moore, W.J. Physical Chemistry, 5th ed., Prentice-Hall: Essex, England; 1972; p 425.

Nakamoto.N., Fujita , Condrate,J. R.A. and Morimota ,Y. (1963). J.Chem.Phys., 39, P.42-49.

Nakanishi. K. (1962)."Infrared Absorption Spectroscopy ", 1st ed , Nankodo Jopan , P. 38 , 39 , 52 .

Nuha A. M. and Sahbaa A. A.,2024, Design, Synthesis, Characterization, DFT, Molecular Docking, and in Vitro Screening of Metal Chelates Incorporating Schiff Base, *Chem. Soc. Ethiop.,* 38(6), 1625-1638 .

Sabita S.,(2017), Synthesis and Characterization of Cobalt (III) Complex of Salicylaldehyde benzoylhydrazone, *J. Inst. Sci. Technol*. 22 (1): 132-136 .

Saeed ,E. S., Budoor A. A., Ahmed N. A, Marwa .A.A., Jawza, S.A., Hussein H. E. and wael A.E. (2023). Pyrmidine hydrazide ligand and its metal complexes: synthesis, characterization, and antimicrobial activities*, Egypt. J. Chem. Vol*. 66, No. 5 pp. 315 – 329

Saleem H. S. and Khudheyer J. K.,(2021), The Synthesis of Some New Heterocyclic compounds from Vanillin Derivatives*, Int. J. Drug Deliv. Technol.*11(2):376-378.

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.

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. Appl. *Organomet. Chem.,* 35(6), P.e6205.

Vogel, A.I. (1989)."Textbook,,of,,Quantitative,,analysis 5thEd.*Longman Scientific and Technical,England*. 349,P.324-329.

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). *Inorg.Chem. Commun.,* 138, P.109278