



Preparation and Characterization of azo-Schiff-2-naphthol derivative complexes with metal ions

Research submitted by: **Hatef Rahim Mahdi**,
Specialized Supervisor at the Qadisiyah Education Directorate
hatafrahem@gmail.com

Abstract

The research included the preparation and identification of many of ligand with complexes of positively charged, copper, nickel, cobalt and zinc ions with a homocyclic azo-azomethene ligands 1-((E)-4-1-((Z)-1-((4-hydroxyphenyl)diazanyl)imino)phenyl)diazanyl)naphthalene-2-ol (Z1) and two organic ligands, (Z2= Ortho amino phenol) and (Z3= anthranilic acid). The outcome showed that the ligand and minerals mixture have the ratio (metal: ligand: ligand) (1:1:1). The stereoscopic shapes of the ligand mixture complexes were suggested using the results of ultraviolet-visible spectra, as well as the outcome of the susceptibility of magnetic and electrical conductivity measurements of the prepared chelate complexes. The shapes were tetrahedral of the ligand mixture complexes were proposed for the cobalt (II) and zinc (II) ions, and shapes was planar square for the nickel (II) complexes. Copper (II).

Keywords: Heavy metal ion, ligand, complex, azomethine.

تحضير وتشخيص معقدات مشتقة من أزو-شف-2- نفثول مع ايونات معدنية

الخلاصة

تضمن البحث تحضير وتشخيص عدد من معقدات مزيج الليكاند لأيونات الكوبلت والنيكل والنحاس والخاصين ثنائية الشحنة (4- هيدروكسي (E)-4-1-(Z)-1-((4-هيدروكسي فينيل) ديازانيل) إيمينو) فينيل) ديازانيل) نافتالين-2-ول (Z1) وعضويين هما (Z2 = أورثو أمينو فينول) و (Z3 = حمض الأنثرانيليك) وقد تبين من النتائج ان لمعقدات مزيج الليكاند نسبة مولية (فلز : ليكاند : ليكاند) (1:1:1). تم اقتراح الأشكال الفراغية لمعقدات مزيج الليكاند بالاستعانة بنتائج أطيف الأشعة فوق البنفسجية - المرئية مضافاً إلى نتائج الحساسية المغناطيسية وقياسات التوصيل الكهربائي المولاري لمحاليل المعقدات الكلابية المحضرة وقد اقترحت الأشكال رباعية النحاس (II) وذات أشكال مربعة مستوية لمعقدي والنيكل (II) والخاصين (II) السطوح لمعقدات مزيج الليكاند لأیوني الكوبلت (II). الكلمات المفتاحية: أيون معدن ثقيل، ليكاند، معقد، أزوميثين

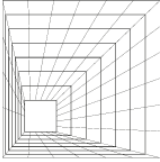
المقدمة

ان لمركبات الأزو- أزوميثين ومعقداتها اهمية إذ جلبت إنتباه الباحثين والعلماء لذلك سجلوا الكثير من الاستعمالات الدوائية بوصفها مضادات للبكتيريا والفطريات⁽¹⁾. ان بعض من هذه المركبات عند مفاعلها مع السليلوز لإنتاج الياف سليولوزية ملونة ذات ثباتية عالية عند تعرضها للضوء والحرارة⁽²⁾. تعزى فعالية هذا النوع من الليكاندات الى ذرة النيتروجين الداخلة في تركيب كلا المجموعتين الفعالتين الأزو والأزوميثين مضافا الى ذلك مجاميع اخرى مثل الهيدروكسيل والكاربوكسيل والامين. تتباين طرائق تناسق هذا النوع من الليكاندات مع الايونات الفلزية تبعاً لطبيعة الليكاند من حيث عدد الذرات المانحة والمؤهلة للدخول في عملية التناسق ومواقعها نسبة الى مجموعتي الأزو والأزوميثين تضمن البحث تحضير وتشخيص ليكاند أزو- أزوميثين وعدد من معقدات مزيج الليكاند مشتقة من هذا الليكاند مع عدد من الايونات ثنائية الشحنة الموجبة^(3,4).

الجزء العملي

المواد والأجهزة

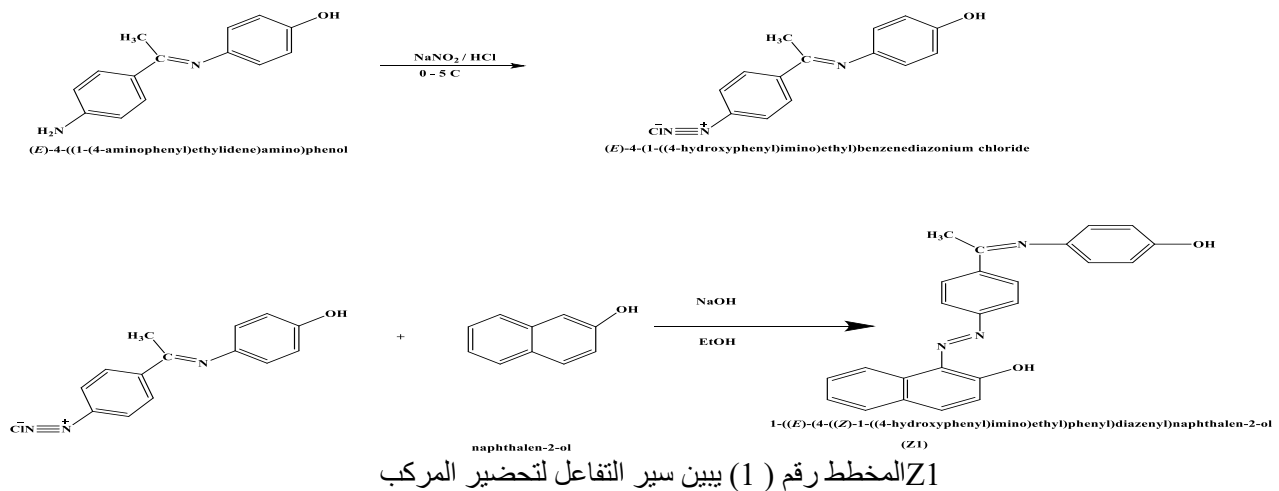
تم قياس درجة الانصهار والتفكك B.D.H , Fluka , GCC لقدر استعملت مواد على درجة عالية من النقاوة مجهزه من شركات كما قيست التوصيلية الكهربائية المولارية Stuart melting points SMP10 للمركبات المحضرة الصلبة باستعمال جهاز عند التركيز (1×10⁻³) مولاري وباستعمال الايثانول كمذيب Digital Conductivity SeriesIno.Lab.720 باستعمال جهاز Balance Magnetic Susceptibility فضلاً عن ذلك قيست الحساسية المغناطيسية للمعقدات المحضرة باستعمال جهاز وبطريقة فردي كما جرى حساب التصحيح الدايمغناطيسي وباستعمال ثوابت باسكال⁽⁴⁾. قيست الاطيف الالكترونية للمعقدات كما Shimadzu UV-1700 spectrophotometer المحضرة وعند درجة حرارة الغرفة في مذيب الايثانول وباستعمال جهاز Shimadzu FTIR 8400S وباستعمال جهاز KBr تم تسجيل اطيف الاشعة تحت الحمراء على شكل اقراص بمادة (بدلالة العدد الموجي . جرى التحليل الدقيق للعناصر لقياس 400-4000 في المنطقة المحصورة بين (spectrophotometer



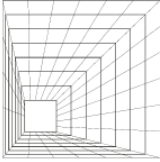
C. H. N. EA-034 نسبة كل من الكربون والهيدروجين والنيتروجين لليكاند المحضر ومعقدات مزيج الليكاند وباستعمال جهاز
تم ادراج بعض الخصائص الفيزيائية لليكاندات ومعقدات مزيج الليكاند المحضرة في الجدول رقم (1).

Z1 تحضير الليكاند

–هيدروكسي (4)-1-((Z)-1-4-1-E)-Z1 حُضِر ليكاند الأزو- آزوميثين متجانس الحلقة (خطوتين تضمنت الخطوة الاولى تفاعل تكثيفي بين المركب بارا أمينو (2-ol فينيل)ديازانيل(إيمينو)فينيل)ديازينيل(نفثالين- المذابة في الايثانول مع (P-Toluidin) من البارا تلويدين (1:1) وما يكافئه موليا (P-Aminoacetophenone) أسيتوفينون (ساعة للحصول على قاعدة شف , اما (6اضافة ثلاث قطرات من حامض الخليك الثلجي أعقبها تصعيد المزيج حراريا لمدة (N-(1-(4-aminophenyl)ethylidene)-4-methylaniline) من 10 مليمول 2.26 غرام (الخطوة الثانية والخاصة بعملية الأزوتة والأزواج فقد تمت بإذابة (في (20 مل) من كحول الايثانول أعقبها إضافة 3مل من 11 عياري (N-(1-(4-aminophenyl)ethylidene)-4-methylaniline) من 10 مليمول 2.26 غرام (الخطوة الثانية والخاصة بعملية الأزوتة والأزواج فقد تمت بإذابة درجة مئوية واضيف له محلول (10 حامض الهيدروكلوريك و20مل من الماء المقطر , برد المزيج الى درجة حرارة صفر-5 مليمول 0.75, غرام) من نترت الصوديوم المذاب في (10مللتر) ماء مقطر قطرة قطرة مع التحريك المستمر وملاحظة عدم ترك المحلول ليستقر لمدة (15) دقيقة لإتمام عملية الأزوتة . (5°C) ارتفاع درجة الحرارة فوق أضيف محلول الديازونيوم هذا قطرة قطرة مع التحريك المستمر الى محلول (10 ملي مول, 1.44, غم) من البيتا نفتول والمذابة في مزيج مكون من (100 مليلتر) من الكحول الأيثيلي و (50 مليلتر) من محلول هيدروكسيد الصوديوم (10%) لوحظ تلون المحلول باللون البرتقالي ترك مزيج التفاعل الى اليوم التالي وجرى تعديل الدالة الحامضية له بإضافة حامض الهيدروكلوريك حتى الوصول الى نقطة التعادل لوحظ نزول راسب برتقالي تُرك ليبرد ثم رُشح وغسل بالماء المقطر للتخلص من ملح كلوريد الصوديوم الناتج من عملية التعادل، وبعد التأكد من خلوه من الملح المذكور جُفف في الهواء، وأعيد بلورته من الايثانول الساخن. (لمدة (24) ساعة. ويوضح المخطط رقم (1) سير التفاعل⁰C جمع الراسب وجفف في الفرن الكهربائي تحت (85



(ومعقداتهما الكلابية المُحضرة (Z3, Z2) و (Z1) جدول 1 : بعض الخصائص الفيزيائية لليكاندات)

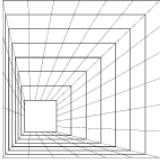


النتائج والمناقشة

(ومعقدات مزيج الليكاند المحضرة . تم تحديد نسبة الفلز Z1 بين الجدول (1) بعض الخصائص الفيزيائية لليكاند)

العدد	الصيغة الكيميائية	الرمز	الكتلة المولية	درجة الانصهار °C	اللون	المنتوج %	نسبة العناصر			
							C	H	N	M
1	(C ₂₄ H ₁₉ N ₃ O ₂)	Z1	381	176-177	برتقالي	78	76.83 79.13	5.42 5.58	10.89 11.0	----- -
2) C ₆ H ₇ NO(Z2	109.13	105.28	بني شاحب	-----	-----	-----	-----	-----
3)C ₇ H ₇ NO ₂ (Z3	137.14	177.95	أبيض	-----	-----	-----	-----	-----
4] Cu (C ₃₁ H ₂₆ N ₄ O ₂) [MX1	549.13	297-299	أسود	76	67.53 67.68	4.61 4.76	9.93 10.1	11.2 5 11.5 5
5] .2H ₂ O Co (C ₃₁ H ₂₆ N ₄ O ₂) [MX2	581.13	>300	أسود	80	63.87 64.03	5.09 5.20	9.41 9.63	9.81 (10.13)
6] .H ₂ O Ni (C ₃₁ H ₂₆ N ₄ O ₂) [MX3	562.72	205-207	بني	82	65.88 66.10	4.89 5.01	9.76 9.95	10.1 5 10.4 2
7] .2H ₂ O Zn (C ₃₁ H ₂₆ N ₄ O ₂) [MX4	587.97	190-191	بني غامق	78	63.11 63.32	5.02 5.14	9.27 9.53	10.9 8 11.1 2
8] .4H ₂ O Cu (C ₃₂ H ₂₆ N ₄ O ₃) [MX5	650.12	198-199	أسود	79	58.91 59.11	5.13 5.27	8.46 8.62	9.58 9.77
9] .2H ₂ O Co (C ₃₂ H ₂₆ N ₄ O ₃) [MX6	609.51	165-166	برتقالي غامق	82	62.87 63.05	4.84 (4.96)	8.82 (9.19)	9.72 (9.67)
10] .H ₂ O Ni (C ₃₂ H ₂₆ N ₄ O ₃) [MX7	591.27	183-185	برتقالي فاتح	78	64.78 65.0	4.65 4.77	9.21 9.48	9.61 9.93
11] .2H ₂ O Zn (C ₃₂ H ₂₆ N ₄ O ₃) [MX8	615.85	170-172	بني فاتح	80	62.17 62.39	4.78 4.91	8.93 9.10	10.3 9 10.6 2

في المعقدات باستعمال تقنية الامتصاص الذري اللهب . ان جميع المعقدات المحضرة لا تذوب في الماء وجيدة الذوبان في الايثانول الساخن وتذوب تماما في ثنائي ميثيل اوكسيد الكبريت . تراوحت قيم التوصيلية الكهربائية المولارية



والتي تشير الى انعدام الصفة الايونية , وان هذه المعقدات ($8.37-14.12 \text{ S.cm}^2.\text{mol}^{-1}$) للمعقدات المحضرة بين غير موصلة⁽⁵⁾.

دراسة طيف الكتلة

(ومعقدات مزيج الليكاند في درجة حرارة الغرفة , ان طيف الكتلة المسجل Z1 تم تسجيل طيف الكتلة لليكاند) والتي تمثل الايون الجزيئي لليكاند المذكور . يمكن ملاحظة قمة الايون الجزيئي لمعقد النحاس m/z عند القمة 379 (Z1 والتي تتوافق حسابيا مع الكتلة الذرية لهذا المعقد , ان طيف الكتلة لليكاند (m/z) عند (MX8 579) (II)) يبينه الشكل رقم (1) و (2) . MX8 ولمعقد النحاس

طيف الاشعة تحت الحمراء

ان مواقع حزم الامتصاص في المنطقة تحت الحمراء للمجاميع الفعالة لليكاندات ولمعقدات مزيج الليكاند تم ادراجها في الجدول (لم نلاحظ اي تغير Z1 (2) . ان ضهور حزمة عند التردد 1676 سم⁻¹ تعود الى التردد الامتطاطي لمجموعة الأروميتين لليكاند) في جميع المعقدات⁽⁶⁾ . كما لوحظ ضهور حزمة عريضة ضمن المدى C=N الذي شان يذكر بخصوص تردد اهتزاز مجموعة (وتشير المصادر⁽⁷⁾ الى ان تداخل حزم الامتصاص (N-H) و (3520-3200O-H) سم⁻¹ ناتجة من التردد الامتطاطي للأصرتين العائدة لهاتين المجموعتين يعطي امتصاصا عريضا عند المدى 3000-3600 سم⁻¹ , وتعود ايضا الى الاهتزاز الامتطاطي لجزيئات (لليكاند المحضر N=N تمثل التردد الامتطاطي للأصرة () (Cm⁻¹1598) الماء الشبكي⁽⁸⁾ . ان ضهور حزمة عريضة في المنطقة مما يشير الى تناسق مجموعة الأزو وارتباطها مع وعند ارتباطها بالفلز تتراح الى ترددات اوطا 1580-1540 سم⁻¹ (فقد لوحظت في جميع المعقدات في المنطقة 487-500 سم⁻¹ اما حزم M-N الايون الفلزي⁽⁹⁾ . اما حزم امتصاص الأصره (فقد ظهرت في المنطقة 480-590 سم⁻¹ مؤكدة ارتباط ايونات الفلزات مع الليكاندات عن طريق ذرة M-O امتصاص الاوكسجين⁽¹⁰⁾ .

القياسات المغناطيسية والاطياف الالكترونية

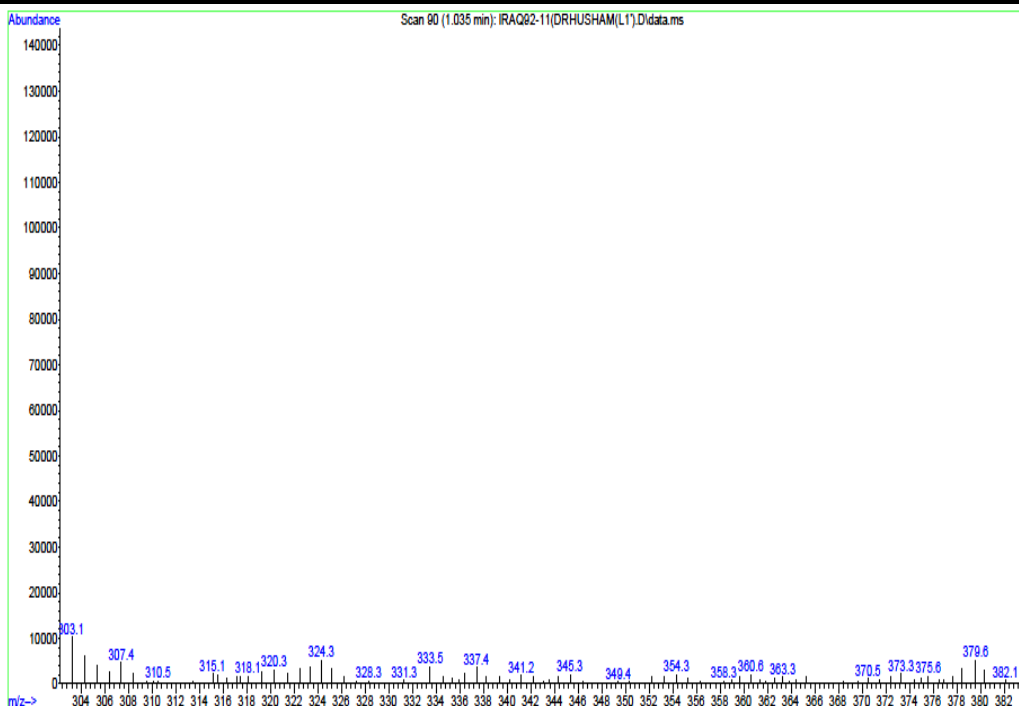
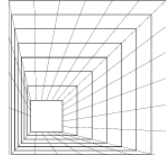
والمذاب في الايثانول المطلق Z1 في دراستنا هذه اظهر طيف الاشعة فوق البنفسجية - المرئية جدول (2) لليكاند المحضر قمم امتصاص في المدى غير المرئي من الطيف وعند الاطوال الموجية (286-227) و(488-317) نانوميتر وقد اعزيت هذه القمم (للأنظمة الاروماتية المقترنة عبر جسر الأزو⁽¹¹⁾ والانتقالات الالكترونية $n \rightarrow \pi^*$ و $\pi \rightarrow \pi^*$ الى الانتقالات الالكترونية للأزواج غير الاصرية لبعض الذرات الحاملة لهذه الأزواج⁽¹²⁾ .

اطياف امتصاص المعقدات

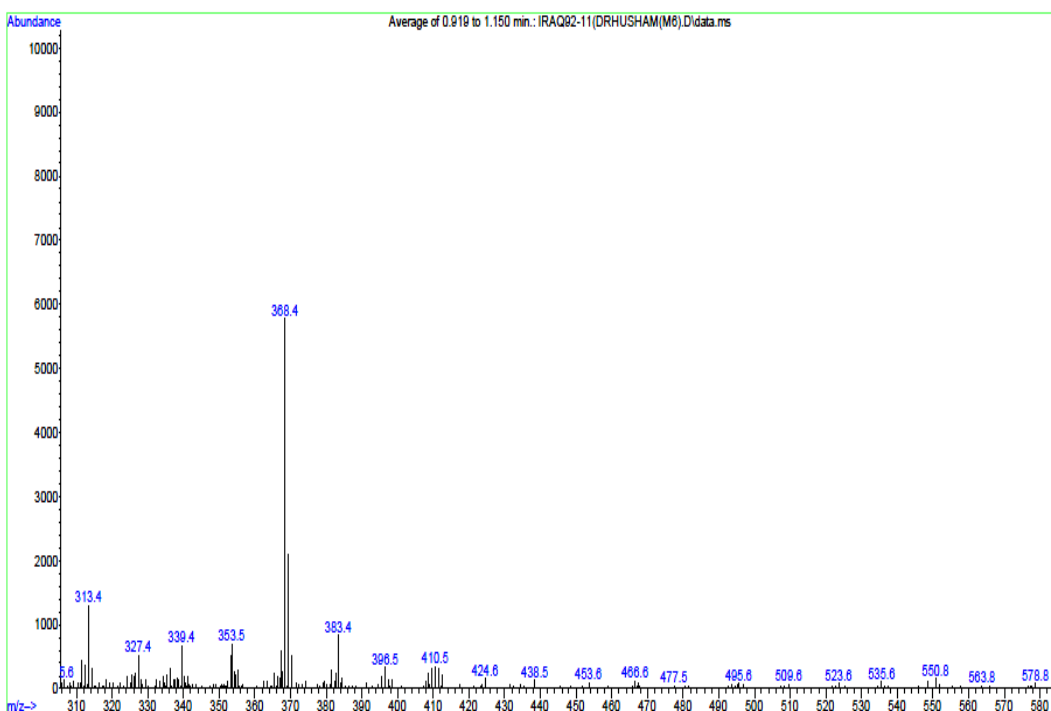
(قمتي امتصاص قويتي الشدة (488-480) نانوميتر في المنطقة المرئية تعزبان الى II أظهرت معقدات الكوبلت) ان تناسق ايون الكوبلت في المعقدات المحضرة يكون بترتيب رباعي السطوح عالي البرم $M \rightarrow L$ انتقال الشحنة ((3.63,4.42) . كما لوحظ (BM وهذا ما يتفق مع الحساسية المغناطيسية والتي تم قياسها لمعقدي الكوبلت وهما في معقدي النيكل ضهور قمة امتصاص في المنطقة المرئية عند الطول الموجي (488) نانوميتر تعود الى الانتقالات . لقد اظهر معقدي النيكل صفات دايامغناطيسية ($^1A_{1g} \rightarrow ^1B_{1g}$) والعائدة الى الانتقال $d-d$ الالكترونية في الفلز نفسة) وهذا يتفق مع ما جاء في الادبيات⁽¹³⁾ بخصوص معقدات النيكل ذات الشكل المربع المستوي . اما معقدي مزيج الليكاند لايون النحاس فقد اظهر قمتي امتصاص عند الطولين الموجيين (490, 508) نانوميتر تعزبان الى انتقال (تؤكد - (BM1,42-1,37) , كما أظهرت معقدات النحاس قيم للعزوم المغناطيسية تراوحت بين C.T الشحنة (الترتيب رباعي التناسق ذات الشكل المربع المستوي⁽¹⁴⁾ . ان ضهور قمة امتصاص عند 488 نانوميتر لمعقدي ذات الصفات الدايامغناطيسية . $M \rightarrow L$ الخارصين تعود الى انتقال الشحنة)

التحلل الحراري

(التحلل الحراري TGA) وبعض من معقدات مزيج الليكاند بواسطة تقنية (Z1) لقد تم دراسة التغيرات الحرارية لليكاند (900-50) C° لم نلاحظ أي تغير يذكر في كتلة الليكاند عند اقل من 280C° الوزني وبمدى من الدرجات الحرارة تراوح بين وهذا مؤشر على الثباتية العالية لهذ الليكاند . لقد ادرجت نتائج التحلل الحراري في الجدول (3) . بينت نتائج التحلل الحراري لمعقد (145-50) وهذا ما جاء مطابقا لما C° (فقدان جزيئات ماء التبلور في مدى من درجات الحرارة تراوح بين MX5 النحاس (280-50)) اما في درجات حرارة C° ورد في الادبيات⁽¹⁵⁾ والتي اشارت الى فقدان ماء التبلور في مدى من درجات الحرارة بين (290 C°) عند درجات حرارة اقل من MX1 فيتم فقدان ماء التناسق . ان الثباتية العالية التي ابداهها معقد النحاس (280 C°) اعلى من دليل على خلو المعقد من أي جزيئات ماء .



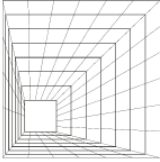
Z1 شكل رقم (1) طيف الكتلة لليكاند)



MX8 شكل رقم (2) طيف الكتلة لمعقد مزيج الليكاند

جدول (2): قيم ترددات أطراف الأشعة تحت الحمراء لليكاندات ومعقداتهما الكلايية

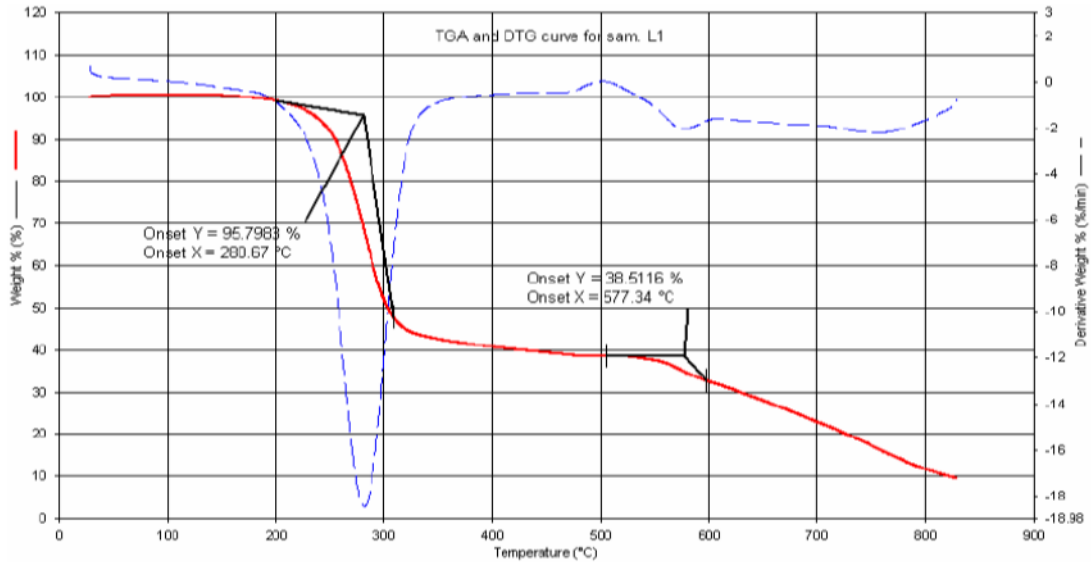
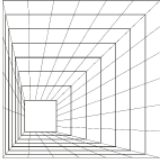
المركبات	$\nu(\text{O-H})$ H_2O hyd-	$\nu(\text{C-H})_{\text{or}}$	$\nu(\text{C-H})_{\text{al.}}$	$\nu(\text{N-H})$	$\nu(\text{C=N})$	$\nu(\text{N=N})$	$\nu(\text{C-O})$	$\nu(\text{M-N})$	$\nu(\text{M-O})$
Z1(L1)	٣٤٤5 w	٣٠٤8 w	2960 w	-----	1672 m	1600 w	1207	---	---



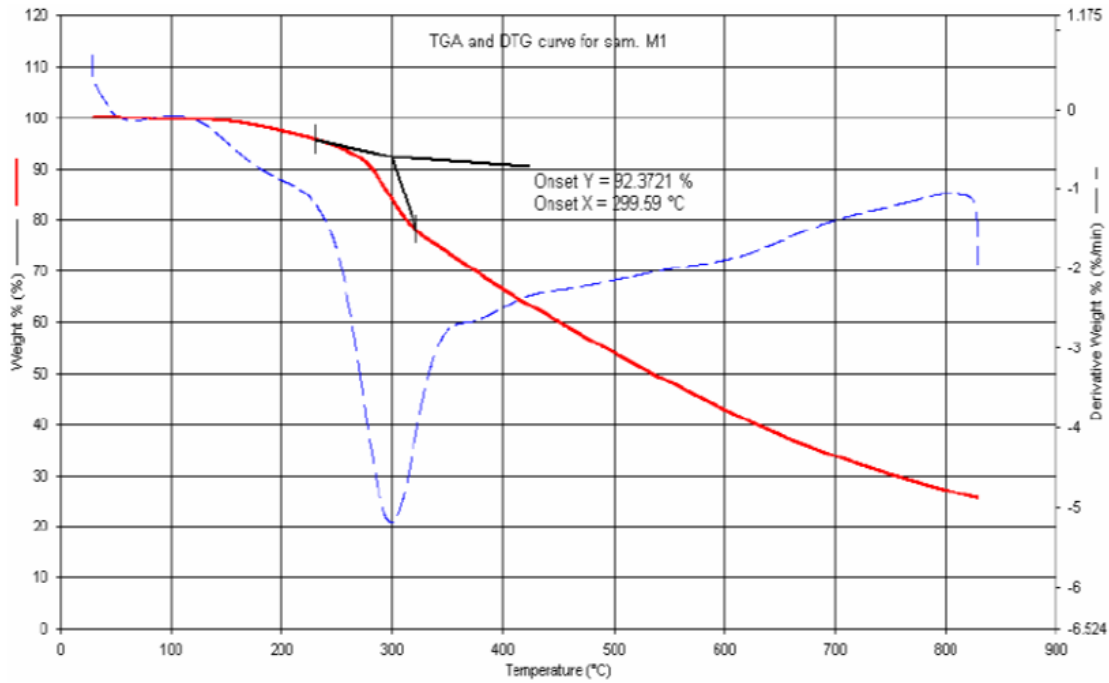
Z2(L2)	٣٣٨٠ w	٣٠٦٠ w	-----	٣٣١٠	-----	-----	1220	-----	-----
Z3(L3)	٣٣٢٧ w	٣٠٥٤ w	-----	٣٢٩٨	-----	-----	١٦٧٠	-----	-----
[CoL ₁ L ₂].2H ₂ O	٣٤١٠ w	٣٠٦٠ w	٢٩٦٤ w	٣١٨٨	١٦٧٢ m	١٥٨٥ w	١٢٠٩	٥٠٠ w	٥٨٤ w
[NiL ₁ L ₂].H ₂ O	٣٣٨٦ w	٣٠٦٤ w	٢٩٥٧ w	٣٣٣٢	١٦٧٨ m	١٥٦٩ w	١٢٠٥	٤٩٥ w	٥٩٤ w
[CuL ₁ L ₂]	-----	٣٠٦٠ w	٢٩٦٥ w	٣٤٢٥	١٦٧٩ m	١٥٨٧ w	١٢٠٥	٤٨٥ w	٥٨٤ w
[ZnL ₁ L ₂].2H ₂ O	٣٥٢٧ w	٣٠٥٨ w	٢٩٢٤ w	٣٣٩٠	١٦٧٥ m	١٥٦٩ w	١٢٠٨	٤٩٠ w	٥٩٣ w
[CoL ₁ L ₃].2H ₂ O	٣٤٨٥ w	٣٠٥٤ w	٣٠١٠ w	٣٤٢٤	١٦٧٧ m	١٥٣٩ w	١٦٠٠	٥٤٩٠ w	٥٨٧ w
[NiL ₁ L ₃].H ₂ O	٣٤٨٥ w	٣٠٦٠ w	٢٨٧٧ w	٣٤١٠	١٦٨٧ m	١٥٤٧ w	١٥٩٥	٥٠٠ w	٥٨٦ w
[CuL ₁ L ₃].4H ₂ O	٣٤٢٥ w	٣٠٥٧ w	٢٩٣٧ w	3179	١٦٨٠ m	١٥٣٢ w	60 ١	٥٠٣ w	٥٨٧ w
[ZnL ₁ L ₃].2H ₂ O	٣٥٢٤ w	٣٠٥٢ w	٢٩٢٣ w	3394	١٦٧٢ m	١٥٦٧ w	١٠٠	w ٤٨٩	w 592

(MX5) و (MX1) ومعقدات مزيج الليكاند (Z1 جدول (3) : نتائج التحلل الحراري الوزني لليكاند)

Compound (M. Wt)	مرحلة التحلل	معدل حرارة التحلل	الحرارة المقابلة للوزن المفقود (السرعة)	المركبات المفقودة
(C ₂₄ H ₁₉ N ₃ O ₂) = Z1 (381)	Stage I Stage II	٥٠ - ٢٨٠ ٢٩٠ - ٥٧٧	(٤.٢٣) ٤.٢١ (٦٢.٢٦) ٦١.٤٨	Loss of (CH ₄) Loss of (C ₁₅ H ₁₄ N ₃)
[Cu(C ₃₁ H ₂₆ N ₄ O ₂)] = MX1 (549)	Stage I	٥٠ - ٢٩٩,٥	(٨.١٧) ٧.٦٣	Loss of (C ₂ H ₇ N)
[Cu(C ₃₁ H ₂₆ N ₄ O ₂)].4H ₂ O = MX5 (650)	Stage I Stage II	٥٠ - ١٤٥ ١٥٥ - ٢٩٩	١٠.٧ (١١.٠٧) ٢٥.٤٨ (٢٦.١)	Loss of (4H ₂ O) Loss of (C ₁₀ H ₆ N ₂ O)



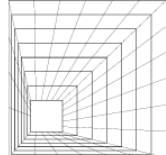
منحنى التحلل الحراري 3 شكل رقم (TGA ل Z1)



TGA ل MX1 شكل رقم (4) منحنى التحلل الحراري

الجدول (4): نتائج قياسات الأشعة فوق البنفسجية- المرئية والحساسية المغناطيسية لمعدّات مزيج الليكاند موضوع الدراسة.

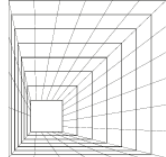
المركبات	مستويات الانتقالات الالكترونية	نطاق الامتصاص (نانومتر)	μ_{eff} (B.M)	التركيب المقترح
Z1(L1)	$n \rightarrow \pi^*$ & $\pi \rightarrow \pi^*$	٣١٧ , ٤٨٨	----	----



		२२७, २८६		
Z2(L2)	n→π* π→π*	३.२ २७६	----	----
Z3(L3)	n→π* π→π*	३३६ २६.	----	----
[Cu (L ₁)(L ₂)]	C. T	492	1.45	Sq.P
[Co(L ₁)(L ₂).2H ₂ O]	C. T.	488	4.42	Td
[Ni(L ₁)(L ₂).H ₂ O]	¹ A _{1g} → ¹ B _{1g}	489	Dia	Sq.P
[Zn(L ₁)(L ₂).2H ₂ O]	C. T	488	Dia	Td
[Cu(L ₁)(L ₃).4H ₂ O]	C. T	508	1.37	Sq .P
[Co(L ₁)(L ₃).2H ₂ O]	C. T	488	3.63	Td
[Ni(L ₁)(L ₃).H ₂ O]	¹ A _{1g} → ¹ B _{1g}	487	Dia	Sq .P
[Zn(L ₁)(L ₃).2H ₂ O]	C. T	489	Dia	Td

References:

1. H. N. Chopde, J. S. Meshram, R. Pagadala, and A. J. Mungole; *Int. J. Chem Tech Res.*, 2 (3), 1823, (2010).
2. Taaima, Ahmed Nasser, et al. "Retraction: Synthesis and study antibacterial activity of the new cadmium complex." *AIP Conference Proceedings*. Vol. 2977. No. 1. AIP Publishing LLC, (2023).
3. M. Amanullah, S.K. Sadozai, W. Rehman, Z. Hassan, A. Rauf and M. Iqbal; *Afr. J. Biotech.*, 10(2),209 . (2011)
4. M. Usharani, E. Akila, and R. Rajavel; *Int. J. Pharm Tech Res.*, 5(2), (2013).
5. S.A. Kettle; "Coordination Compounds" Thomas Nelson and Sons, London, 3, 186, 212(1975).
6. C. Anitha , C.D. Sheela and V.V. Hema; *Hindawi. J. Chem. .* , ID724163 , (2013) .
7. B.A. Mahdy and G.M. Abed ; *J. of Bagh. Sci.* , 9 , (4) , (2013) .
8. A.O. Aliya , H. Adamn and D.b. Maikaje ; *Glo. J. of Sci. Fron. Resea. Chem. .* , 12 , (1) , 1 , (2012) .
9. Anitha , K.R. Reddy and V.Rao ; *J. Chm. Pharm. Res.* , 3 , (3) ,511-519 . (2011) .
10. M. T.uncel and S. Serin ; *Tran. Motal. Chem. .* , 31, 805-812 . (2006) .
11. M. G. Tay, Z. Ngaini, M. A. M. Arif, N. M. Sarih, W. M. Khairul, S. P. Lau, and E. Enggie; *Borneo J. of Resource Science and Technology.*, 3(1), 26, (2013).
12. D. D. Nasrin1, M. A. Alam, M. N. Hossain, and M. Nazimuddin; *Chem. J.*, 3(1), 13, (2013).
13. A.A. Mohammed ; *Tikrit. J. of Pur. Sci.* . , 13 , (1) , (2008) .



-
14. E.Ispir ; **Dyes and Pigments .** , 82 , 13-19 . (2009) .
 15. H. Khanmohammadi and m. Darvishpour ; **J . Inor. Org. Pdy.** . , 21 , 541-546 . (2011) .