Investigation of *MeliaAzedarach* L. Leaves and Fruits Aqueous Extract Chemical Content

Dr. Yasser Mossa[*]
Dr. Emad Hwija[**]
Mais Ismaeel***

(Received 13 / 6 / 2022. Accepted 25 / 7 /2022)

□ ABSTRACT □

Analysis of Fresh fruits sample abstracted using Clevenger apparatus via GC/MS device has showed existence of 17 products as 86,38% as the follows: 31,08% nitrogen-based compounds, 27,82% hydrocarbons, 27,82% oxygen's-based compounds and 3,24%of the residual, furthermore, the leaf sample has showed the presence of 17 compounds represented the 90,12% of the percentage as 26,3% oxygen-based , 18,09% hydrocarbons, 23.36% nitrogen-based and 22,37% of the residual.

Keywords: azedaracht , chemical composition of the exteact , Clevenger,GC/MS

[*] **Professor, Department of Chemistry, Faculty of Science, Tishreen University, Lattakia, Syria. yaser.mossa@hotmail.com**
[**] **Professor, Department of Chemistry, Faculty of Science, Tishreen University, Lattakia, Syria. imad.hwijeh@gmail.com**
[***] **Master Student, Organic Chemistry, Faculty of Science, Tishreen University, Lattakia, Syria. mais.ismaeel@tishreen.edu.sy**

لدراسة المحتوى الكيميائي للمستخلصات المائية لأوراق وثمار نبات الازدرخت *Melia azedarach* L

د. ياسر موسى*

د. عماد حويجة**

ميس اسماعيل***

(تاريخ الإيداع 13 / 6 / 2022. قُبِل للنشر في 25 / 7 /2022)

□ ملخّص □

أظهرت نتائج تحليل عينة الثمار الناضجة على جهازGC-MS المستخلصة بواسطة جهاز كليفنجر وجود 17مركب كيميائي مثلت نسبة 86,38% وكانت على النحو الآتي: مركبات نتروجينية بنسبة31.08%ومركبات هيدروكربونية بنسبة 27,82% و مركبات الاكسجينية بنسبة 24,24% وبلغت نسبة المركبات الأخرى 3,24% كما أظهرت نتيجة تحليل عينة الأوراق على جهازGC-MS المستخلصة بواسطة جهاز كليفنجر وجود17 مركب كيميائي مثلت نسبة 90,12% و كانت على النحو الآتي: مركبات اكسجينية بنسبة% 26,3ونسبة المركبات الهيدروكربونية 18,09% والمركبات النتيروجينية بنسبة 23,36%ونسبة المركبات الأخرى بلغت 22,37%.

الكلمات المفتاحية: نبات الازدرخت ، كليفنجر ، مستخلص نباتي،GC-MS .

*أستاذ – قسم الكيمياء – كلية العلوم – جامعة تشرين– اللاذقية – سورية. yaser.mossa@hotmail.com

**أستاذ – قسم الكيمياء – كلية العلوم – جامعة تشرين– اللاذقية – سورية. imad.hwijeh@gmail.com

*** طالب ماجستير – الكيمياء العضوية – قسم الكيمياء– كلية العلوم– جامعة تشرين– اللاذقية– سورية. mais.ismaeel@tishreen.edu.sy -

مقدمة:

تحتل النباتات الطبية في الوقت الحاضر مكانة كبيرة في الإنتاج الزراعي والصناعي[1] تمت في السنوات الأخيرة دراسة المستخلصات النباتية التي تحتوي على مركبات فعالة بيولوجيآ تستخدم في صناعة المواد الصيدلانية والطبية وكذلك تستخدم كمواد غذائية وفي صناعة مستحضرات التجميل [2] استخدمت هذه المركبات لعلاج الامراض في البلدان غير الصناعية لكونها متوفرة و أرخص ثمنا من الادوية الصناعية[3] تعد النباتات الطبية العمود الفقري للطب التقليدي[4]و الازدرخت أحد النباتات الذي له استخدامات واسعة في الطب الشعبي لأنه يحتوي على العديد من المركبات الفعالة بيولوجيآ[2] تمتلك الازهار فعالية مسكنة لآلام الراس وتمتلك الأوراق فعالية محفزة لنمو الشعر وقاتلة للقمل وتستخدم ثمارها لعلاج البهاق ومسكنات الحمى البلغارية والسعال تعود هذه الفعالية إلى وجود الليمونيدات والتربونيوئيدات الثلاثية ومركبات الفلافانول الغليكوزيدية الموجودة في سويات عالية في أوراق النبات والتي لها تأثيرات علاجية طبية [5]أصبحت النباتات اكثر أهمية مع ازياد الأساليب الجديدة في لاستخلاص مثل النقع واستخدام جهاز سوكسلييه لاستخلاص الجزء الحيوي المطلوب من النبات [6]يحتوي Meliaceae على 45 جنس وأكثر من 750 نوع ومن أحد افراده .MeliaazedarachLالتي تتمتع بعمر قصير ، موطنها جنوب آسيا وأستراليا ويصل ارتفاعها الى 50 قدم ، تم زراعة نبتة الازدرخت في القرن السادس عشر بغرض الزينة بشكل رئيسي،وأصبح متسوطن في معظم البلدان الأستوائية وشبه الاستوائية [7]وتنتمي الى عائلة الماهوجني وتبين انها مضادة للسرطانات ولها خصائص مضادة لفرط سكر الدم [8]يمتلك نبات الازدرخت خصائص مضادة للأكسدة وللملاريا وللفيروسات ولتسمم الكبد ومضاد للطفيليات والقرحة والجراثيم ولعلاج الالتهابات واضطرابات القلب[9] معظم المكونات الفعالة تحتوي مجموعة رباعية الحلقة تسمى الليمونيدات [10]تم عزل الليمونيدات والتربونوئيدات الثلاثية من أجزاء محتلفة من نبات الازدرخت وتم تقييم سمية مستخلص الثمار ضد اربع أنواع خلايا سرطانية بشرية الكبد HepG2 والمعدة SGC7901واللوكيميا K562 و HL60أظهرت المركبات الموجودة في هذا النبات سمية خلوية قوية ضد الخلايا السرطانية HepG2 و SGC7901بقييم6.9IC50 ميكرومتر و 6.9ميكرومتر ، على التوالي[11] يحتوي مستخلص الازدرخت على مكونات نباتية مثل سكوالين وحمض الزيت وحمض دوديكانويك 1,2,3 بروبانيتريل الاستر و تساعد في علاج السمية الخلوية [12]وأظهرت دراسة ان التسمم بالازدرخت نتيجة استهلاك ست ل تسع حبات من الثمار او 30 ل40 بذرة او400 غرام من اللحاء يؤدي لإصابة الجهاز الهضمي وتأثر القلب والاوعية الدموية والجهاز التنفسي والعصبي والموت في الحالات الشديدة [13]على الرغم من سمية الثمار فقد استخدامت في علاج التهاب الجلد والحصبة الألمانية [14]يصنف . Meliaazedarach Lوفقآ لتصنيف 1981 (Croquist) وفق الجدول1

تم تصنيف.L *Meliaazedarach* في الجدول [1]:

الجدول [1]

Mangnoliophyta	شعبة مغلفات البذور
Magnoliopsida	صف ثنائيات الفلقة
Rosida	تحت صف الورديات
Sapindales	رتبة السابيندال (الصابونيات)
Meliaceae	الفصيلة الأزدرختية

الشكل[1] التالي يوضح ثمار نبات الازدرخت الناضجة

أهمية البحث وأهدافه:

يهدف هذا البحث إلى استخلاص الزيت العطري بواسطة جهاز كليفنجر ودراسة التركيب الكيميائي للمستخلص من أزهار وأوراق نبات الأزدرخت وذلك باستخدام تقنية كروماتوغرافياGC/MS .

يهدف هذا البحث الى:

1-استخلاص الزيوت العطرية من أوراق و ثمار نبات الأزدرخت وتحديد النسب المئوية للزيوت المستخلصة.

2-تحليل الزيوت باستخدام تقنية GC-MS وتحديد النسب المئوية للمكونات الكيميائية للزيت العطري المستخلص.

3-مقارنة الزيوت المستخلصة بين الأوارق والثمار.

طرائق البحث ومواده:

1-الأجهزة والأدوات والمواد المستخدمة:

-جهاز كليفنجر.

-مبخر الدوار.

-جهاز **كروماتوغرافيا المرتبط بمطيافية الكتلة GC/MS**

-كلوروفورم.

-كبريتات الصوديوم اللامائية.

–أدوات زجاجية مختلفة (أرلنماير، بيشر، قمع فصل، أسطواناتمدرجة....)

–سخانة

2–جمع العينات النباتية وتحضيرها للاستخلاص:

تم جمع الثمار الناضجة والأوراق من نبات الازدرخت خلال شهر أيلول من العام 2021 وذلك من منطقة ضاحية بسنادا في محافظة اللاذقية وبعد ذلك تم تجفيفها في الظل حوالي أربعين يوم ومن ثم تم طحنها بمطحنة كهربائية وتم تعبئتها في أكياس نايلون محكمة الاغلاق بعيدا عن الضوء في درجة حرارة الغرفة لحين الاستخلاص.

3–استخلاص الزيت العطري:

وزنت كمية 100غرام من ثمار و أوراق الازدرخت وثم استخلاص الزيت باستخدام جهاز كليفنجر واستمرت حوالي 5 ساعات ثم فصل الزيت العطري باستخدام قمع فصل باستخدام 20 ml من الكلوروفوم على دفعتين (استخلاص سائل _سائل) ثم تم استخدام كبريتات الصوديوم اللامائية لتجفيف المستخلص العضوي بعذلك تم تبخير الكلوروفوم ثم حفظ في انبوبة زجاجية في درجة حرارة بين 4–5 درجة مئوية.

4–تحديد المكونات للزيت العطري للأوراق والثمار باستخدام جهاز كروماتوغرافيا المرتبط بمطيافية الكتلة GC/MS:

تم إجراء التحليل الكمي باستخدام جهاز الكروماتوغرافياGC/MS،نوع 6890 وباستخدام عمود شعري HP-5أبعاده: الطول 30 ملم وقطره الداخلي 0,25 ملم وثخانة الفيلم 0,25 ملم.

الغاز الحامل المستخدم: غاز الهليوم بسرعة تدفق ضمن العمود 1,2 ملم في الدقيقة.

حشوة الطور الساكن :Phenyl methyl siloxane 5%.

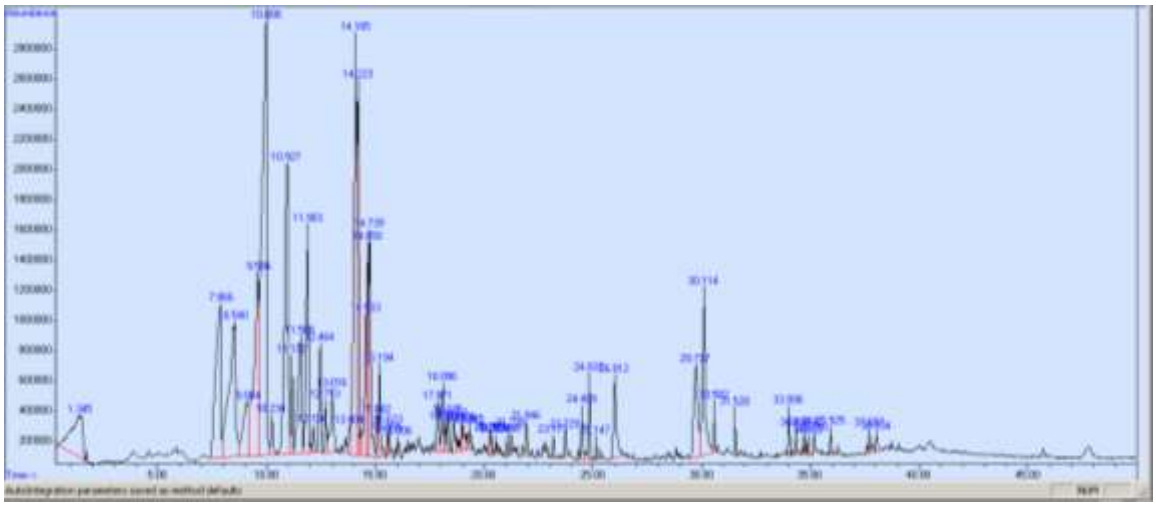
درجة حرارة الحاقن :250 ، ودرجة حرارة منبع التشرد 230 وكمون التشرد 70 الكترون فولط.

يبدأ البرنامج الحراري 70ثم تزداد بمقدار 4 درجة مئوية لكل دقيقة حتى درجة حرارة 280 درجة مئوية.

حجم العينة المحقونة :2 ميكرولتر ونظام الحقن بدون تجزئة.

نتائج تحليل الزيت العطري للثمار الناضجة:

يبين الكروماتوغرام التالي تحليل الزيت العطري لمستخلص الثمار الناضجة باستخدامGC/MS في الشكل[2]



الشكل [2]

مناقشة نتائج تحليل الزيت العطري لعينة الثمار المدروسة

تم التعرف على 17 مركب كيميائي للزيت العطري المستخلص من عينة الثمار نتيجة التحليل على جهاز GC/MSكما هو موضح في الجدول [2].

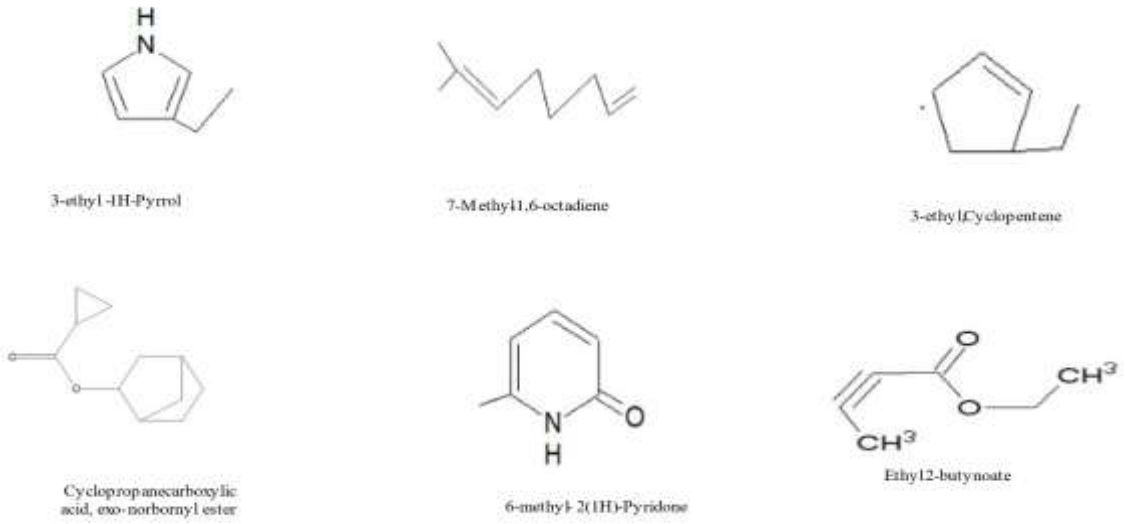
الجدول [2]

رقم التسلسلي	زمن الاحتفاظ	اسم المركب	الصيغة الجزيئية	تركيز المركب%
1	1.345	Cyclopropanecarboxylic acid, exo-norbornyl ester	$C_{11}H_{16}O_2$	3.42
2	7.868	3-ethyl- 1H-Pyrrole	C_6H_9N	26.28
3	8.537	3,5-Diketo-1,6-heptadiene	C7H8O2	6.62
4	9.086	1-Methylpentyl cyclopropane	C9H18	2.16
5	9.596	6-methyl- 2(1H)-Pyridone	C6H7NO	6.18
6	10.929	7-Methyl-1,6-octadiene	C9H11	7.62
7	11.564	2-amino,Cyclopentanemethanamine	C6H14N2	3.11
8	12.462	3,7-dimethyl-, (S)-1,6-Octadiene	C10H18	1.62
9	12.714	3-ethyl-Cyclopentene	C7H12	8.46
10	13.018	Benzofurazan	C6H4N2O	1.39
11	14.225	Ethyl 2-butynoate	C6H8O2	5.02
12	14.551	, N-(1-ethylpentylidene) Methylamine	C8H17N	1.69
13	14.648	3-(2-methylpropyl),Cyclopentene	C9H16	2.14
14	14.740	4-Decyne	C10H18	2.99
15	26.012	2-ethoxy-3,4-dihydro-2H-Pyran	C7H12O2	1.61
16	29.737	1,4-Eicosadiene	C20H38	2.83
17	30.115	Carbon diselenide	CSe2	3.24

3-ethyl -1H-Pyrrol يتضح من الجدول (3) أن المكون الرئيسي في مستخلص الثمار الناضجة هو المركب الذي شكل نسبة 26.28% وبلغت النسبة الاحتمالية للمكونات الرئيسية % 39.48

الجدول [3]

القمة	المركب الرئيسي	تركيز المركب%
2,6	3-ethyl -1H-Pyrrole	26.28
17	3-ethyl,Cyclopentene	8.46
8	7-Methyl-1,6-octadiene	7.62
3	3,5-Diketo-1,6-heptadiene	6.62
5	6-methyl- 2(1H)-Pyridone	6.18
18	Ethyl 2-butynoate	5.02
1	Cyclopropanecarboxylic acid, exo-norbornyl ester	3.42
4	1-Methylpentyl cyclopropane	2.16



بعض الصيغ الكيميائية لأهم المكونات الأساسية الموجودة في مستخلص الثمار

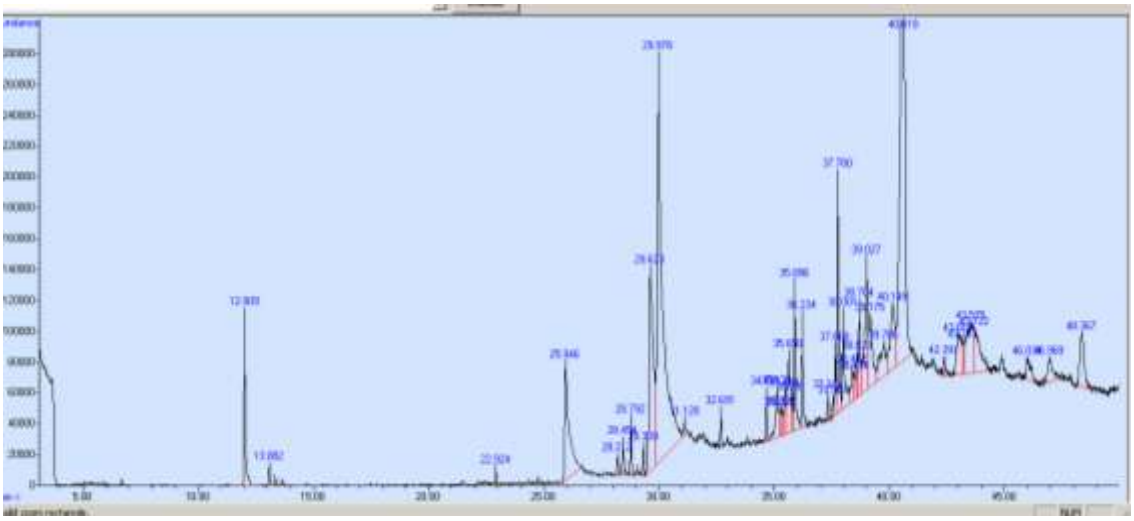
الجدول (4) يبين تصنيف المركبات الموجودة في الزيت العطري للثمار الناضجة.

الجدول [4]

تصنيف المركبات	النسبة المئوية%
المركبات النتروجينية	31,08
المركبات الهيدروكربونية	27,82
المركبات الأكسجينية	24,24
المركبات الأخرى	3,24

نتائج تحليل الزيت العطري للأوراق:

يبين الشكل [3] كروماتوغرام مكونات الزيت العطري لمستخلص الأوراق باستخدام GC/MS.



الشكل[3]

مناقشة نتائج تحليل الزيت العطري لعينة الأوراق المدروسة:

تم تحديد17 مركب كيميائي للزيت العطري المستخلص من الأوراق نتيجة التحليل على جهاز GC/MSكما هو موضح في الجدول[5].

الجدول[5]

رقم التسلسلي	زمن الاحتفاظ	اسم المركب	الصيغة الجزيئية	تركيز المركب%
1	12.008	6-Methoxy-1H-Indole	C9H9NO	1.97
2	29.625	Tetradecyl ,Oxirane	C16H32O	8.03
3	29.980	2-methyl Borazine	CH6B3N3	19.87
4	31.119	4,7-Methano-5H-inden-5-one, 3,3a,4 6,7,7a-hexahydro	C10H12O	4.87
5	35.136	Tricyclo(6.2.1.0(2,7))undec-4-ene	C11H16	9.62
6	35.485	Tricyclo[4.4.0.0(2,8)]decan-5-one	C10H14O	3.32
7	35.651	Tricyclo(6.2.1.0(2,7))undec-4-ene	C11H16	2.29
8	35.897	(p-(cis-Styryl)phenyl)-2-(p-(trans-styryl)phenyl)-trans-ethylene	C30H24	1.97
9	36.234	Tricyclo[4.2.1.1(2,5)]decane	C10H16	1.26
10	37.779	5,7-dimethyl [1,2,4] Triazolo[1,5-a]pyrimidine	C7H8N4	2.80
11	38.002	3-Indoleacetic acid	C10H9NO2	1.81
12	39,175	2,5-Methano-1H-inden-7(4H)-one, hexahydro-	C10H14O	2.53
13	39,788	6-Octadecynoic acid, methyl ester	C19H34O2	1.78
14	40.148	Tetracyclo[6.6.1.0(2,7).0(9,14)] pentadeca-4,11-diene	C15H20	2.95
15	40.617	3-(4-Dimethylaminobenzylideneamino)-7-chloro-10-methyl-phenothiazine	C21H20N3ScL	20.56
16	43.009	Acetic acid, 7-oxo-bicyclo[2.2.1] hept-2-yl ester	C9H12O3	1.99
17	43.724	1-methyl ethyl Disulfide	C5H12S2	2.50

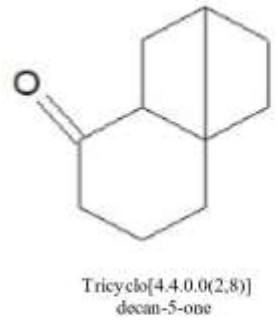
يتضح من الجدول أعلاه أن المكون الرئيسي في مستخلص الأوراق هو المركب:

3-(4-Dimethylaminobenzylideneamino)-7-chloro-10-methyl-phenothiazine

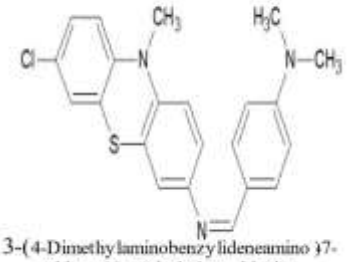
الذي شكل نسبة % 20.56 وبلغت النسبة الاحتمالية للمكونات الرئيسية 37.68% كما موضح في الجدول[6]:

الجدول[6]

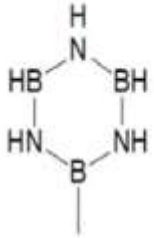
المركب الأساسي	تركيز المركب %
3-(4-Dimethylaminobenzylideneamino)-7-chloro-10-methyl-phenothiazine	20.56
2-methyl Borazine	19.87
Tricyclo(6.2.1.0(2,7))undec-4-ene	9.62
4,7-Methano-, 3,3a,4 6,7,7a-hexahydro 5H-inden-5-one	4.87
Tricyclo[4.4.0.0(2,8)]decan-5-one	3.32



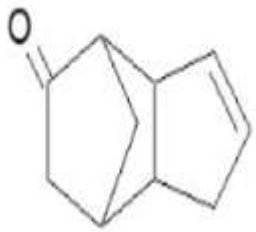
Tricyclo[4.4.0.0(2,8)] decan-5-one



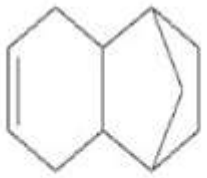
3-(4-Dimethylaminobenzylideneamino)7-chloro-10-methyl-phenothiazine



2-methyl Borazine



4,7-Methano-, 3,3a,4 6,7,7a hexahydro- 5H-inden-5-one



Tricyclo6.2.1.0(2,7))undec-4-ene

بعض الصيغ الكيميائية لأهم المكونات الأساسية الموجودة في مستخلص الأوراق

الجدول[7] تصنيف المركبات الموجودة في عينة الأوراق:

الجدول[7]

تصنيف المركبات	النسبة المئوية %
المركبات الاكسجينية	26,3
المركبات الهيدروكربونية	18,09
المركبات النتروجينية	23,36
المركبات الأخرى	22,37

المركبات المشتركة في الزيوت المستخلصة من الأوراق والثمار:

بعد تحديد المكونات الكيميائية باستخدام تقنية GC-MS تبين لنا وجود المركبات التالية :

Tricyclo[4.4.0.0(2,8)]decan-5-one، Tricyclo[4.4.0.0(2,8)]decan-5-one،

(p-(cis-Styryl)phenyl)-2-(P-trans-styryl)phenyl)- trans-ethylene في كلا المستخلصين.

الاستنتاجات والتوصيات:

1- أظهر تحليل الزيوت العطرية باستخدام GC/MC التنوع الكبير حيث بلغت 17 مركب في مستخلص الزيت العطري وشكلت نسبة% 86,38 من المستخلص الكلي للثمار الناضجة و17 مركب من اجمالي الزيت العطري للأوراق الذي شكل نسبة 90,12% من اجمالي الزيت العطري للأوراق.

2-إن المركب 3-ethyl -1H-Pyrrole المكحون الرئيسي الموجود في الزيت العطري للثمار الناضجة بنسبة 26.28%،والمركب 3-(4-Dimethylaminobenzylideneamino)-7-chloro-10-methyl-phenothiazine المكون الرئيسي الموجود في الزيت العطري للأوراق بنسبة 20.56%.

3- غنى الزيت العطري لمستخلص للثمار الناضجة بالمركبات النتروجينية والهيدروكربونية وغنى الزيت العطري للأوراق بالمركبات الاكسجينية.

References:

[1]Hwije,E.Alboudi,H.Dagher,S.*Chemical composition of the Essential Oil Extracted from aerial parts of PistaciaAtlantica in Safita region-Tartous-Syria*,Tishreen University Journal for Research and Scientific Studies - Basic Sciences Series Vol. (04) No. (1) ,2018.

[2]Jafari,S .and others, *Cytotoxic evaluation of Meliaazedarach in comparison with, Azadirachtaindica and its phytochemical investigation*, DARU Journal of Pharmaceutical Sciences, Tehran University of Medical Sciences, Iran,2013.

[3]Hwijeh,E. Nasser, M.Youssef,A.*Chemical composition of the essential oil extracted from the leaves and fruits of the plant (smilax aspera L) in Qadmus –Tartous- Syria*, Tishreen University Journal for Research and Scientific Studies - Basic Sciences Series Vol. (14) No. (4) , Syria,2019.

[4]Fufa ,M. F. and others,*Isolation and Characterization of Compounds from the Leaves of Meliaazedarach and Stem Bark of Albiziaschimperiana and Evaluation forAntimicrobial Activities*, Med Chem (Los Angeles),Volume 8(6): 154-165 (2018) – 154,Med Chem (Los Angeles), an open access journal, Ethiopia, 2018.

[5]Bitencourta,R. G. and others,*Sequential extraction of bioactive compounds from Meliaazedarach L.in fixed bed extractor using CO2, ethanol and water* , Jof Supercritical Fluids 95 355–363, University of Campinas, Brazil,(2014).

[6]Efe,B .and others, *Assessment of the Cytotoxicity of Meliaazedarach L. Extracts on Human Adipose-derived Mesenchymal Stem Cells*,J. Biol. &Chem, 46 (1), 121–128Turkey,2018.

[7]Hadjiakhoondi,A. and others, *Fatty Acid Composition and Toxicity of MeliaazedarachL.Fruits against Malaria Vector Anopheles stephensi*, Iranian Journal of Pharmaceutical Sciences Spring, 2(2): 97-102, Tehran University of Medical Sciences, Iran,2006.

[8]Meziane, M, Goumri, H,*The antimicroblal efect of extract of Melia azedarach on som pathogenic microorganisms*, International Journal of Applied and Natural Sciences (IJANS)ISSN(P): 2319-4014, Algeria,2014.

[9]Al-Marzoqi,A.H. and ,others,Analysis of bioactive chemical components of two *medicinal plants (Coriandrumsativum and Meliaazedarach) leaves using gas chromatography-mass spectrometry (GC-MS)*, African Journal of Biotechnology,Iraq,2015.

[10]Zhou,H. and others, *New Ring C-secoLimonoids from Brazilian Meliaazedarach and Their Cytotoxic Activity*, Journal of Natural Products, Vol. 67, No. 9 , Brazil,2004.
[11]Zho,F.and others, *Four new tirucallanetriterpenoids from the fruits of Melia azedarach and their cytotoxic activities*,J. Nat. Prod.67, 1544-1547,2004.
[12]V.Srinivasan1,2, R.Panneerselvam2, S. Gunasekaran2, S.Palani3, *Nephro-Protectlve actlvlty of ethanollc extract of Melia azadarachta Against H2o2 lnduced toxiclty lnvero cell line,* International Journal of Applied Biology and Pharmaceutical Technology, Volume-6, Issue-4, Oct-DecIndia,2015
[13]Phua,D.H.and others, *Human Meliaazedarach poisoning*, 1556-3650 (Print) 1556-9519 Journal homepage:Clinical Toxicology vol. 46 no. 10 , China, 2010.
[14]Bachheti, K. R.and others, *Characterlzation of fatty acids in melia azedarachl. seed oil*, International Journal of Current Research and Review, Vol. 04 , India,2012.