

UOT 547.538.141:547.539

G.V.Babayeva
Bakı Dövlət Universiteti
Azərbaycan Dövlət Pedaqoji Universiteti
babayevagulya63@gmail.com

DİHALOGENDİAZADİENLƏRİN SİNTEZ VƏ DİZAYNINDA QEYRİ-KOVALENT ƏLAQƏLƏRİN ROLU

Açar sözlər: dihalogendiazadienlər, qeyri-kovalent əlaqələr, farmazan törəməsi

Katalitik olefinləşmə reaksiyası şəraitində N-əvəzolunmuş hidrazonlardan dihalogendiazadienlərin sintez zamanı hidrazonun aldehid və hidrzin fragmentindəki funksional qrupların bəzi hallarda reaksiya istiqamətinə və kristal dizayna əsaslı surətdə təsir etdiyi molekulda xili və molekullararası qeyri-kovalent əlaqələrin mövcudluğu ilə müəyyən edilmişdir. Sintez edilən birləşmələrdə qeyri-kovalent əlaqələrin (koordinasion, halogen, hidrogen, azot- halogen, halogen-xalkogen, halogen-halogen, Cl…Cl, Cl…O, pnikogen N…Cl əlaqələri və s.) mövcudluğu RQA tədqiqatları əsasında müəyyən edilmişdir.

Г.В.Бабаева

РОЛЬ НЕКОВАЛЕНТНЫХ ВЗАИМОДЕЙСТВИЙ В СИНТЕЗЕ И ДИЗАЙНЕ ДИХАЛОГЕНДИАЗАДИЕНОВ

Ключевые слова: дигалогендиазадиены, нековалентные связи, фармацевтические производные

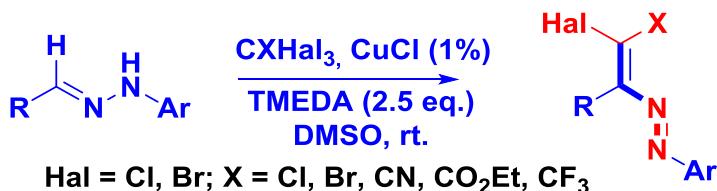
При катализитическом олефинировании дигалогендиазадиены синтезируют из N-замещенных гидразонов. Установленное наличие внутримолекулярных и межмолекулярных нековалентных взаимодействий свидетельствует о том, что функциональные группы гидразона в альдегидном и гидризиновом фрагменте иногда существенно влияют на направление реакции и форму кристалла. Наличие нековалентных взаимодействий (координационные, галоген, водород, азот-галоген, галоген-халькоген, галоген-галоген, Cl…Cl, Cl…O, пникоген N…Cl взаимодействия и др.) в синтезированные соединения определяют на основе рентгеноструктурного метода.

THE ROLE OF NON-COVALENT INTERACTIONS IN THE SYNTHESIS AND DESIGN OF DICHALOGENDIAZADIENES

Keywords: *dihalogendiazadienes, non-covalent bonds, pharmaceutical derivatives*

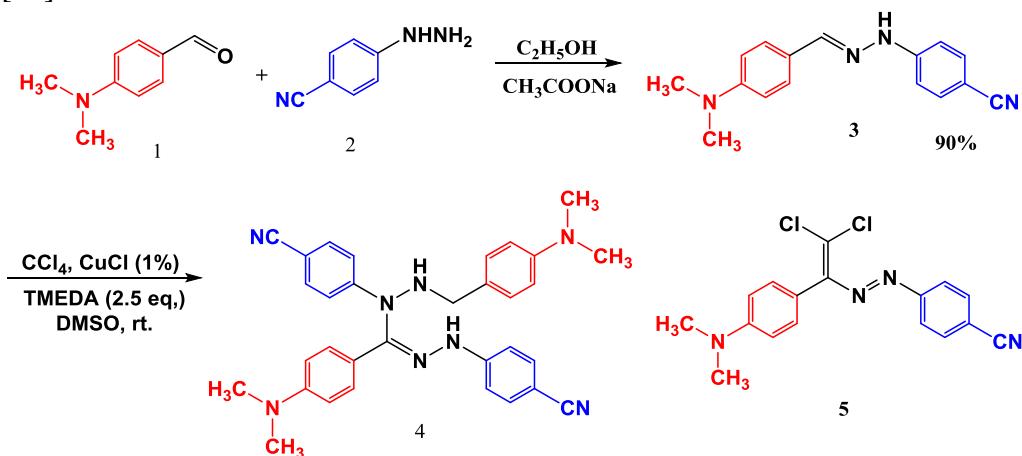
On the catalytic olefination, dihalogendiazadienes synthesised from N-substituted hydrazones. The determined presence of intramolecular and intermolecular non-covalent interactions provides evidence that the functional groups of hydrazone in the aldehyde and hydrazine fragment sometimes substantially affect the reaction direction and crystal design. Presence of non-covalent interactions (coordination, halogen, hydrogen, nitrogen-halogen, halogen-chalcogen, halogen-halogen, Cl...Cl, Cl...O, pnicogen N...Cl interactions, etc.) in the synthesized compounds determined on the basis of X-ray method.

Son dövrlərdə üzvi-sintezdə, katalizdə, kristal mühəndisliyində və digər sahələrdə qeyri-kovalent əlaqələrin rolundan bəhs edilən elmi tədqiqat işlərinin sayı artmaqdadır [1-29]. Bu isə Rentgen quruluş analizi (RQA) tədqiqatları əsasında qeyri-kovalent əlaqələrin (koordinasion, halogen, hidrogen, azot-halogen, halogen-xalkogen, halogen-halogen, Cl...Cl, Cl...O, pnikogen N...Cl əlaqələri və s.) yeni birləşmələrin sintezində, katalizdə [30-34], kristal mühəndisliyində [35-39] mühüm rola malik olduğunun müəyyən edilməsi ilə əlaqədardır. Tərəfimizdən sintez edilən dihalogendiazadienlərdə heminal dihalogen atomlarının, azo qrupun, qoşulmuş heterodien sisteminin və benzol halqalarında müxtəlif əvəzedicilərin olması reaksiyanın istiqamətinə və kristal dizaynın əhəmiyyətli dərəcədə təsir etdiyi RQA tədqiqatları əsasında müəyyən edilmişdir [40-46]. Yuxarda deyilən misal olaraq dihalogendiazadienlərin sintez və dizaynında qeyri-kovalent əlaqələrin rolundan bəhs edən elmi-tədqiqat işlərini göstərmək olar (Sxem 1) [47-49].



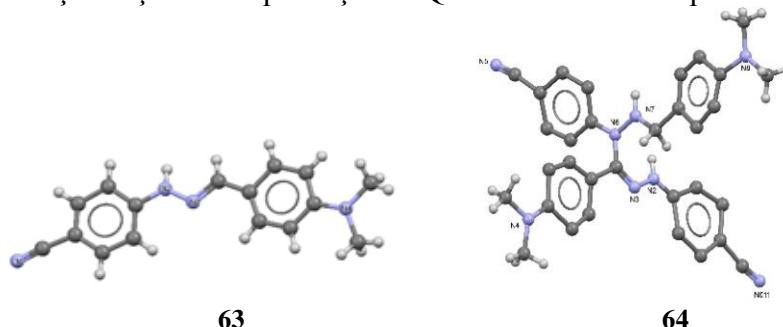
Sxem 1. Dihalogendiazadienlərin sintezi

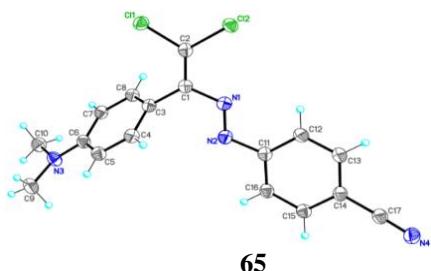
Bir çox hallarda qeyri-kovalent əlaqələrin reaksiyaların istiqamətinə əsaslı surətdə təsir etdiyini xüsusi ilə qeyd etmək olar [50-58]. Belə ki, N.Q.Şıxaliyev və əməkdaşları tərəfindən aparılmış elmi tədqiqat işlərində göstərilmişdir ki, funksional qrupların yaratmış olduğu qeyri-kovalent əlaqələr (tetral, pnikogen, xalkogen, halogen və s.) məlum reaksiyaların müxtəlif istiqamətlərdə getməsinə şərait yaratmışdır. Misal olaraq, 4-(dimetilamin)benzaldehid və 4-hidrazinilbenzonitrilin reaksiyasından alınmış fenilhidazonun ((E)-4-(4-(dimetilamin)benziliden)hidrazinil)benzonitril katalitik olefinləşmə reaksiyası şəraitində (Sxem 1 üzrə) CCl_4 -lə reaksiyasından əsas reaksiya məhsulu olaraq dixlordiazadien deyil 70% çıxımla farmazan törəməsi olan (Z)-N,N"-bis(4-sianofenil)-4-(dimetilamin)-N'-(4-(dimetilamin)benzil)benzhidazonohidrazid birləşməsi alınmışdır (sxem 2) [50].



Sxem 2. 3-5 Birləşmələrinin alınmasının ümumi sxemi

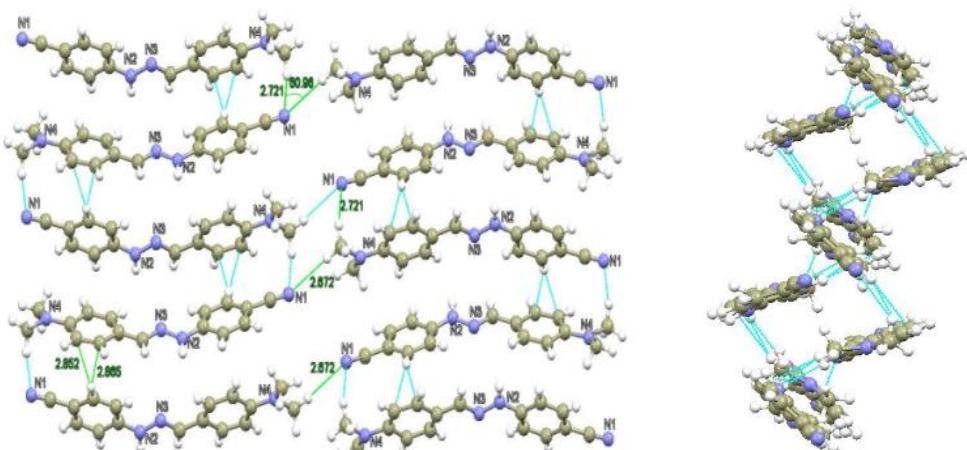
Sintez edilmiş birləşmələrin quruluşları RQA vasitəsi ilə təsdiq edilmişdir.





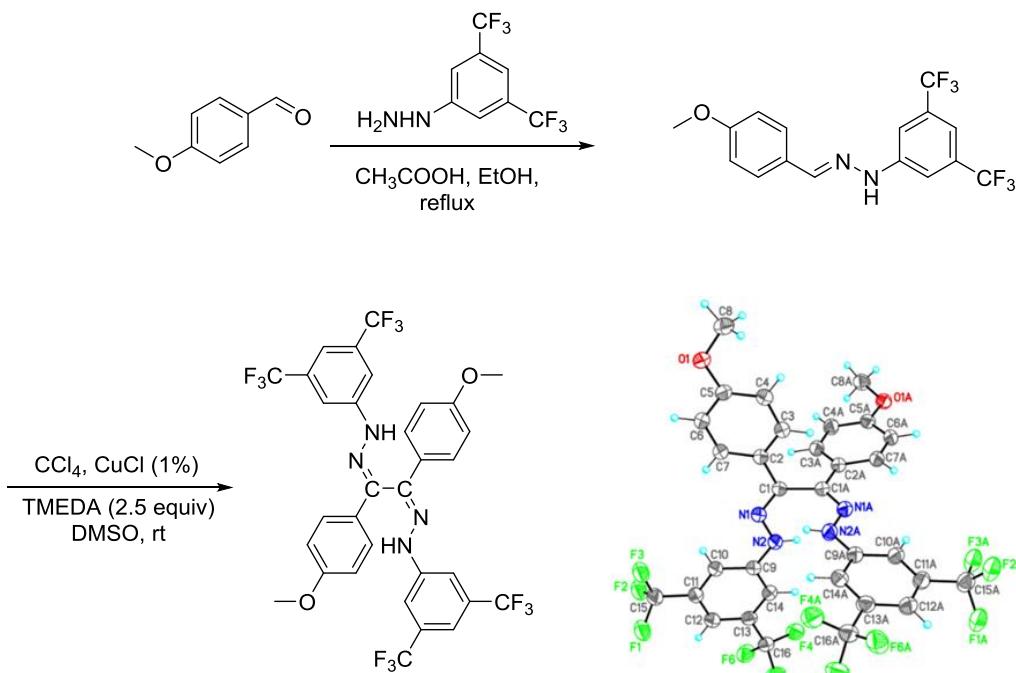
Şəkil 1. Alınmış birləşmələrin molekulyar quruluşları

Reaksiyanın bu istiqamətdə getməsini müəlliflər benzol halqalarının elektron sıxlığının müxtəlifliyi ilə əlaqələndirmişlər. Hidrazonun quruluşu RQA metodu ilə təsdiqləndiyindən belə bir ehtimal etmək olar ki, reaksiya zamanı məhlulda benzol nüvələri arasında π - π qeyri-kovalent qarşılıqlı təsirlərin yaranması nəticəsində molekullararası məsafə kiçilmiş, bu da hidrazon molekullarının tikilməsi ilə nəticələnmişdir (Şəkil 2).

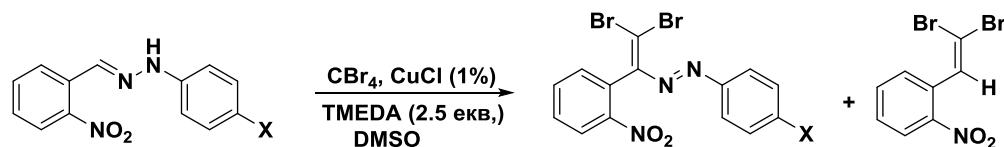


Şəkil 2. Molekulunda π - π qarşılıqlı təsirlər və hidrogen rabitələri qırıq-qırıq xətlərlə göstərilmişdir

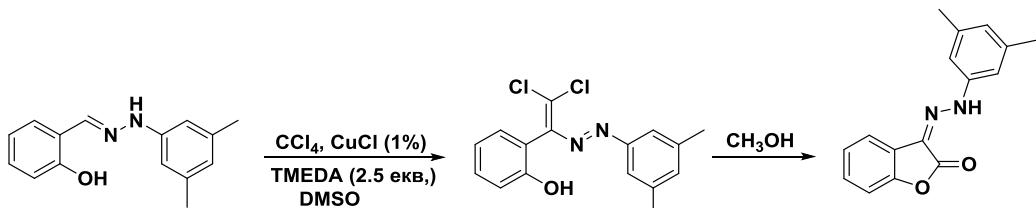
Hidrazonların dimerləşmə reaksiyasına misal olaraq 3,5-bistrifluorometilfenilhidrazinin əsasında aparılan reaksiyanı da göstərmək olar [51]. Sxem 3 üzrə aparılan reaksiya zamanı dimerləşməsinə gətirib çıxarmışdır (sxem 3). Dimerləşmə məhsulu olan (1Z,2Z)-1,2-Bis{2-[3,5-bis(trifluormetil)fenil]hidraziniliden}-1,2-bis(4-metoksifenil)etanın alınması RQA metodu vasitəsilə müəyyən edilmişdir. Hidrazin fragmentində güclü elektroakseptor trifluorometil (-CF₃) qruplarının olması reaksiyanın bu istiqamətdə getməsinə səbəb olmuşdur [51-52].



Daha bir nümunə kimi dibromdiazbütadienlərin alınmasını göstərmək olar (Sxem 4). Reaksiya zamanı polihalogenalkanlardan CBr_4 istifadə etdiyimiz zaman əsas məhsul ilə yanaşı əlavə məhsul olan 1-(2,2-dibromovinyl)-2-nitrobenzene alınması müşahidə edilmişdir ki, bu da Br atomlarının reaksiyanın istiqamətinə əsaslı təsiri ilə əlaqədardır. Çünkü CCl_4 -lə aparılan reaksiyalarda bu halların müşahidə edilməsi müəlliflər tərəfindən qeyd edilməmişdi [53].



Salisil aldehydi əsasında aparılan reaksiyalar zamanı əmələ gələn müvafiq dixlordiazadienin solvoliz reaksiyası zamanı 3-[2-(3,5-dimetilfenil)hidraziniliden]benzofuran-2(3H)-on alınması funksional qrupların reaksiya istiqamətinə əsaslı surətdə təsir etdiyi bir daha ozündə eks etdirmişdir. (Sxem 5) [54-55].

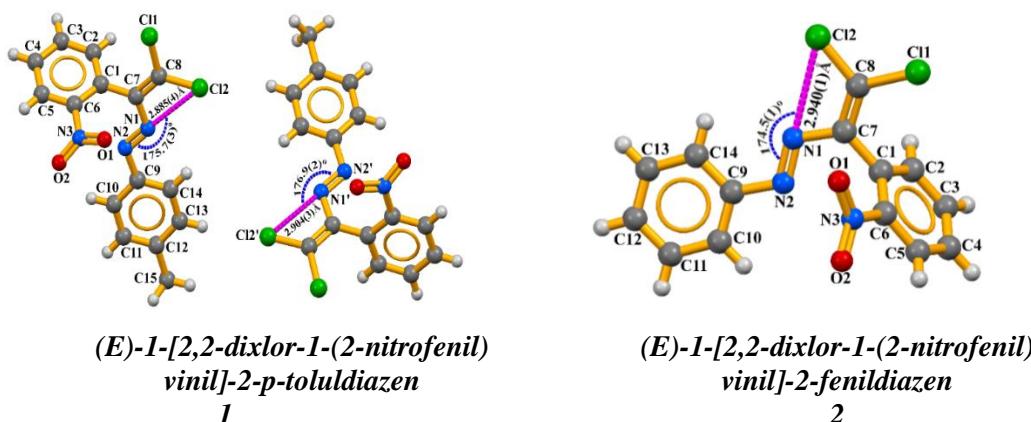


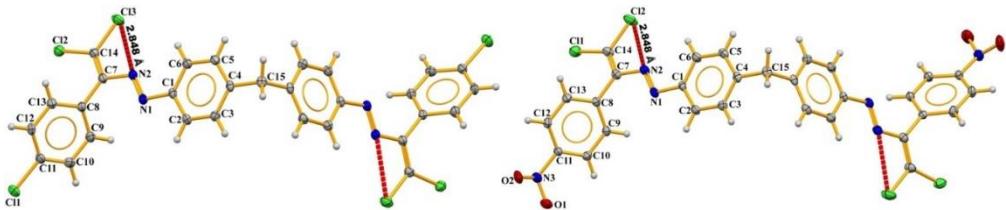
Sxem 5. Dibromdiazabutadienlərin yenidənqruplaşma reaksiyası. 3-[2-(3,5-dimetilfenil)hidraziniliden]benzofuran-2(3H)-on sintezi.

Benzofuranonun əmələ gəlməsi Nüvə maqnit rezonansı (NMR) ilə yanaşı, Rentgen quruluş analizi (RQA) ilə də təsdiq edilmişdir.

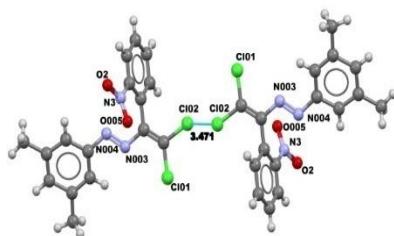
Beləliklə, tərəfimizdən aparılan katalitik olefinləşmə reaksiyası zamanı funksional qrupların reaksiya istiqamətinə və kristal dizayna əsaslı surətdə təsir etdiyi əsasən qeyri-kovalent əlaqələrin mövcudluğu ilə müəyyən edilmişdir.

Qeyd edək ki, qeyri-kovalent əlaqələr reaksiyaların istiqamətinə təsir etməsi ilə yanaşı onların kristal dizaynına da əsaslı surətdə təsir edir. Misal olaraq (E)-1-[2,2-dixlor-1-(2-nitrofenil)vinil]-2-p-toluldiazen (1) və (E)-1-[2,2-dixlor-1-(2-nitrofenil)vinil]-2-fenildiazen (2) birləşmələrində **pnikogen** [56], bis{4-[{(E)-(2,2-dixloro-1-(4-əvəzlifenil)vinil)diazənil]fenil}metan (3) birləşməsində **tetral** [42], (E)-1-[2,2-dixlor-1-(2-nitrofenil)vinil]-2-(3,5-dimetilfenil)diazən (4) birləşməsində **halogen-halogen** [40], (E)-1-[2,2-dixlor-1-(4-nitrofenil)vinil]-2-(p-toluol)diazən (5) birləşməsində **hidrogen** [57], (E)-1-[2,2-dixlor-1-(2-nitrofenil)vinil]-2-p-toluldiazen (6) birləşməsində **π···π** [56], qeyri-kovalent qarşılıqlı əlaqələrin kristalın formallaşmasında mühüm rola malik olduğunu görmək olar (Şəkil 2).

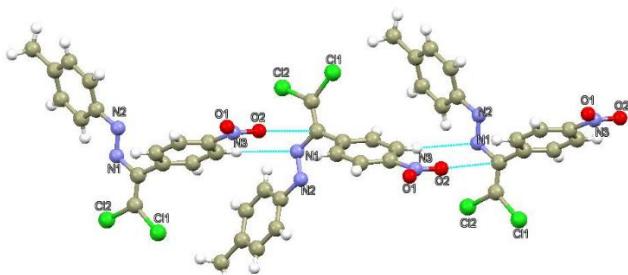




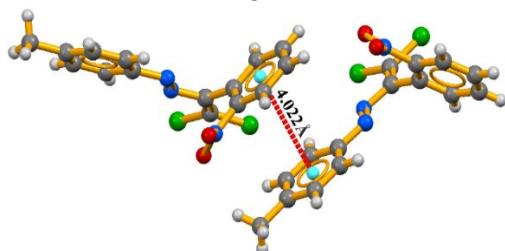
Bis{4-[{(E)-2,2-dichloro-1-(4-vinylphenyl)vinyl]diazenyl}phenyl]methane
3



(E)-1-[2,2-dichloro-1-(2-nitrophenyl)vinyl]-2-(3,5-dimethylphenyl)diazene
4



(E)-1-[2,2-dichloro-1-(4-nitrophenyl)vinyl]-2-(p-tolyl)diazene
5



(E)-1-[2,2-dichloro-1-(2-nitrophenyl)vinyl]-2-p-toluidiazene
6

Beləliklə, tərəfimizdən sxem 1 üzrə sintez edilən birləşmələrdə qeyri-kovalent əlaqələrin reaksiyaalın gedişinə və kristal dizayna təsiri RQA tədqiqatları əsasında müəyyən edilmişdir. Cədvəldən göründüyü kimi qeyri-kovalent əlaqələr bu birləşmələrinin kristallarının formallaşmasında mühüm rola malikdirlər.

ƏDƏBİYYAT

1. Kong, S.; Borissova, A.O.; Lesnichin, S.B.; Hartl, M.; Daemen, L.L.; Eckert, J.; Yu Antipin, M.; Shenderovich, I.G. Geometry and Spectral Properties of the Protonated Homodimer of Pyridine in the Liquid and Solid States. A Combined NMR, X-ray Diffraction and Inelastic Neutron Scattering Study. *J. Phys. Chem. A* 2011, 115, 8041–8048
2. Lesnichin, S.B.; Tolstoy, P.M.; Limbach, H.-H.; Shenderovich, I.G. Counteranion-Dependent Mechanisms of Intramolecular Proton Transfer in Aprotic Solution. *Phys. Chem. Chem. Phys.* 2010, 12, 10373–10379.
3. Zimmermann, C.; Fischer, T.L.; Suhm, M.A. Pinacolone-Alcohol Gas-Phase Solvation Balances as Experimental Dispersion Benchmarks. *Molecules* 2020, 25, 5095.
4. Wieczorkiewicz, P.A.; Szatylowicz, H.; Krygowski, T.M. Mutual Relations between Substituent Effect, Hydrogen Bonding, and Aromaticity in Adenine-Uracil and Adenine-Adenine Base Pairs. *Molecules* 2020, 25, 3688.
5. Jóźwiak, K.; Jezierska, A.; Panek, J.J.; Goremychkin, E.A.; Tolstoy, P.M.; Shenderovich, I.G.; Filarowski, A. Inter-vs. Intramolecular Hydrogen Bond Patterns and Proton Dynamics in Nitrophthalic Acid Associates. *Molecules* 2020, 25, 4720.
6. Ostras', A.S.; Ivanov, D.M.; Novikov, A.S.; Tolstoy, P.M. Phosphine Oxides as Spectroscopic Halogen Bond Descriptors: IR and NMR Correlations with Interatomic Distances and Complexation Energy. *Molecules* 2020, 25, 1406.
7. Voronin, A.P.; Surov, A.O.; Churakov, A.V.; Parashchuk, O.D.; Rykounov, A.A.; Vener, M.V. Combined X-ray Crystallographic, IR/Raman Spectroscopic, and Periodic DFT Investigations of New Multicomponent Crystalline Forms of Anthelmintic Drugs: A Case Study of Carbendazim Maleate. *Molecules* 2020, 25, 2386.
8. Nenajdenko, V.G.; Shikhaliyev, N.G.; Maharramov, A.M.; Bagirova, K.N.; Suleymanova, G.T.; Novikov, A.S.; Khrustalev, V.N.; Tskhovrebov, A.G. Halogenated Diazabutadiene Dyes: Synthesis, Structures, Supramolecular Features, and Theoretical Studies. *Molecules* 2020, 25, 5013.
9. Grabowski, S.J. Hydrogen Bond and Other Lewis Acid–Lewis Base Interactions as Preliminary Stages of Chemical Reactions. *Molecules* 2020, 25, 4668.

10. *Ke, C.; Lin, Z.* Catalytic Effect of Hydrogen Bond on Oxhydryl Dehydrogenation in Methanol Steam Reforming on Ni(111). *Molecules* 2020, 25, 1531.
11. *Hok, L.; Mavri, J.; Vianello, R.* The Effect of Deuteration on the H₂ Receptor Histamine Binding Profile: A Computational Insight into Modified Hydrogen Bonding Interactions. *Molecules* 2020, 25, 6017.
12. *Shenderovich, I.G.; Denisov, G.S.* Adduct under Field—A Qualitative Approach to Account for Solvent Effect on Hydrogen Bonding. *Molecules* 2020, 25, 436.
13. *Bunkowsky, G.; Vogel, M.* Small Molecules, Non-Covalent Interactions, and Confinement. *Molecules* 2020, 25, 3311.
14. *Altnoder, J.; Bouchet, A.; Lee, J.J.; Otto, K.E.; Suhm, M.A.; Zehnacker-Rentien, A.* Chirality-dependent balance between hydrogen bonding and London dispersion in isolated (+/-)-1-indanol clusters. *Phys. Chem. Chem. Phys.* 2013, 15, 10167–10180.
15. *Jezuita, A.; Ejsmont, K.; Szatłowicz, H.* Substituent effects of nitro group in cyclic compounds. *Struct. Chem.* 2020.
16. *Bordallo, H.N.; Boldyreva, E.V.; Buchsteiner, A.; Koza, M.M.; Landsgesell, S.* Structure-property relationships in the crystals of the smallest amino acid: An incoherent inelastic neutron scattering study of the glycine polymorphs. *J. Phys. Chem. B* 2008, 112, 8748–8759.
17. *Piękoś, P.; Jezierska, A.; Panek, J.J.; Goremychkin, E.A.; Pozharskii, A.F.; Antonov, A.S.; Tolstoy, P.M.; Filarowski, A.* Symmetry/Asymmetry of the NHN Hydrogen Bond in Protonated 1,8-Bis(dimethylamino)naphthalene. *Symmetry* 2020, 12, 1924.
18. *Yu Tupikina, E.; Bodensteiner, M.; Tolstoy, P.M.; Denisov, G.S.; Shenderovich, I.G.* P = O Moiety as an Ambidextrous Hydrogen Bond Acceptor. *J. Phys. Chem. C* 2018, 122, 1711–1720.
19. *Melikova, S.M.; Voronin, A.P.; Panek, J.; Frolov, N.E.; Shishkina, A.V.; Rykounov, A.A.; Tretyakov, P.Y.; Vener, M.V.* Interplay of pi-stacking and inter-stacking interactions in two-component crystals of neutral closed-shell aromatic compounds: Periodic DFT study. *RSC Adv.* 2020, 10, 27899–27910.
20. *Tskhovrebov, A.G.; Novikov, A.S.; Kritchakov, A.S.; Khrustalev, V.N.; Haukka, M.* Attractive halogen•••halogen interactions in crystal structure of trans-dibromogold(III) complex. *Z. Kristallogr. Cryst. Mater.* 2020, 235, 477–480.
21. *Grabowski, S.J.; Ruiperez, F.* Dihydrogen bond interactions as a result of H₂ cleavage at Cu, Ag and Au centres. *Phys. Chem. Chem. Phys.* 2016, 18, 12810–12818
22. *Gurinov, A.A.; Rozhkova, Y.A.; Zukal, A.; Čejka, J.; Shenderovich, I.G.* Mutable Lewis and Brønsted Acidity of Aluminated SBA-15 as Revealed by NMR of Adsorbed Pyridine-15N. *Langmuir* 2011, 27, 12115–12123.
23. *Ke, C.; Lin, Z.* Elementary reaction pathway study and a deduced macrokinetic model for the unified understanding of Ni-catalyzed steam methane reforming. *React. Chem. Eng.* 2020, 5, 873–885.

24. Mavri, J.; Matute, R.A.; Chu, Z.T.; Vianello, R. Path Integral Simulation of the H/D Kinetic Isotope Effect in Monoamine Oxidase B Catalyzed Decomposition of Dopamine. *J. Phys. Chem. B* 2016, 120, 3488–3492.
25. Golubev, N.S.; Melikova, S.M.; Shchepkin, D.N.; Shenderovich, I.G.; Tolstoy, P.M.; Denisov, G.S. Interpretation of H/D Isotope Effects on NMR Chemical Shifts of [FHF]- Ion Based on Calculations of Nuclear Magnetic Shielding Tensor Surface. *Z. Phys. Chem.* 2003, 217, 1549–1563.
26. Shenderovich, I.G.; Denisov, G.S. Solvent effects on acid-base complexes. What is more important: A macroscopic reaction field or solute-solvent interactions? *J. Chem. Phys.* 2019, 150, 204505.
27. Shenderovich, I.G. Electric field effect on ^{31}P NMR magnetic shielding. *J. Chem. Phys.* 2020, 153, 184501.
28. Weigler, M.; Winter, E.; Kresse, B.; Brodrecht, M.; Buntkowsky, G.; Vogel, M. Static field gradient NMR studies of water diffusion in mesoporous silica. *Phys. Chem. Chem. Phys.* 2020, 22, 13989–13998.
29. Gedat, E.; Schreiber, A.; Findenegg, G.H.; Shenderovich, I.; Limbach, H.-H.; Buntkowsky, G. Stray Field Gradient NMR Reveals Effects of Hydrogen Bonding on Diffusion Coefficients of Pyridine in Mesoporous Silica. *Magn. Reson. Chem.* 2001, 39, S149–S157.
30. Taylor MS. Anion recognition based on halogen, chalcogen, pnictogen and tetrel bonding. *Coordination Chemistry Reviews.* 2020 Jun 15;413:213270.
31. Furukawa N, Kobayashi K, Sato S. Transannular and intermolecular interactions between chalcogen atoms: syntheses and properties of dichalcogenadication and trichalcogenahypervalentdication. *Journal of Organometallic Chemistry.* 2000 Oct 6;611(1-2):116-26..
32. Sanz P, Yáñez M, Mó O. Resonance-Assisted Intramolecular Chalcogen-Chalcogen Interactions? *Chemistry—A European Journal.* 2003 Sep 22; 9(18):4548-55.
33. Sanz P, Mó O, Yáñez M. Characterization of intramolecular hydrogen bonds and competitive chalcogen–chalcogen interactions on the basis of the topology of the charge density. *Physical Chemistry Chemical Physics.* 2003; 5(14):2942-7.
34. Iwaoka M, Komatsu H, Katsuda T, Tomoda S. Nature of nonbonded $\text{Se}\odot\odot\odot\text{O}$ interactions characterized by ^{17}O NMR spectroscopy and NBO and AIM analyses. *Journal of the American Chemical Society.* 2004 Apr 28; 126(16):5309-17.
35. Minyaev RM, Minkin VI. Theoretical study of O-> X (S, Se, Te) coordination in organic compounds. *Canadian journal of chemistry.* 1998 Jun 1;76(6):776-88.
36. Werz DB, Gleiter R, Rominger F. Nanotube formation favored by chalcogen–chalcogen interactions. *Journal of the American Chemical Society.* 2002 Sep 11;124(36):10638-9. [11] R. Gleiter, D.B. Werz and B.J. Rausch, *Chem. Eur. J.* 9, 2676 (2003).
37. Bleiholder C, Werz DB, Köppel H, Gleiter R. Theoretical investigations on chalcogen– chalcogen interactions: what makes these nonbonded interactions

- bonding? *Journal of the American Chemical Society.* 2006 Mar 1;128(8):2666-74.
38. Bleiholder C, Gleiter R, Werz DB, Köppel H. Theoretical Investigations on HeteronuclearChalcogen–Chalcogen Interactions: On the Nature of Weak Bonds between Chalcogen Centers. *Inorganic chemistry.* 2007 Mar 19; 46(6):2249-60.
39. Mó, O. and Yáñez, M.. 2018. Publications of Manuel Yáñez and OtiliaMó. *TheJournalofPhysicalChemistry A*, 122(26), pp.5681-5697.
40. Məhərrəmov AM, Süleymanova GT, Babayeva GV, İbrahimova ŞA, Niyazova AA, Şıxaliyev NQ, Musayev FN, Nenaydenko VG. Synthesis of compounds of dichlorodiazabutadiene structure from benzoic aldehyde and some of its derivatives based on the catalytic olefination reaction. *KimyaProblemleri.* 2018; 16(2):230-8.
41. Maharramov AM, Suleymanova GT, Babayeva GV, Niyazova AA, Mamedov IG, Hasanova UA, Shikhaliev NG, Nenajdenko VG. SYNTHESIS AND X-RAY INVESTIGATION OF NITRO, DICHLORINE DERIVATIVES OF 1-(2, 2-DICHLORO-1-PHENYLVINYL)-2-PHENYLDIAZENE BY CATALYTIC OLEFINATION REACTION. *DIMENSIONAL SYSTEMS.* 2018; 2:37.
42. Shikhaliev NQ, Kuznetsov ML, Maharramov AM, Gurbanov AV, Ahmadova NE, Nenajdenko VG, Mahmudov KT, Pombeiro AJ. Noncovalent interactions in the design of bis-azo dyes. *CrystEngComm.* 2019; 21(34):5032-8.
43. Maharramov AM, Shikhaliev NQ, Suleymanova GT, Gurbanov AV, Babayeva GV, Mammadova GZ, Zubkov FI, Nenajdenko VG, Mahmudov KT, Pombeiro AJ. Pnicogen, halogen and hydrogen bonds in (E)-1-(2, 2-dichloro-1-(2-nitrophenyl) vinyl)-2-(para-substituted phenyl)-diazenes. *DyesandPigments.* 2018 Dec 1; 159:135-41..
44. Atioğlu Z, Akkurt M, Shikhaliev NQ, Suleymanova GT, Bagirova KN, Toze FA. Crystal structure and Hirshfeld surface analysis of (E)-1-[2, 2-dichloro-1-(4-nitrophenyl) ethenyl]-2-(4-fluorophenyl) diazene. *Acta Crystallographica Section E: Crystallographic Communications.* 2019 Feb 1;75(2):237-41.
45. Akkurt M, Shikhaliev NQ, Suleymanova GT, Babayeva GV, Mammadova GZ, Niyazova AA, Shikhalieva IM, Toze FA. Crystal structures and Hirshfeld surface analyses of the two isotopic compounds (E)-1-(4-bromophenyl)-2-[2, 2-dichloro-1-(4-nitrophenyl) ethenyl] diazene and (E)-1-(4-chlorophenyl)-2-[2, 2-dichloro-1-(4-nitrophenyl) ethenyl] diazene. *ActaCrystallographica Section E: Crystallographic Communications.* 2019 Aug 1;75(8):1199-204.
46. Shikhaliev NG, Suleymanova GT, İsrayılova AA, Ganbarov KG, Babayeva GV, Garazadeh KA, Mammadova GZ, Nenajdenko VG. Synthesis, characterization and antibacterial studies of dichlorodiazadienes. *Organic Chemistry.* 2019(part vi):0-0
47. Şıxaliyev, N.Q. Katalitik olefinləşmə reaksiyası əsasında üzvi sintez və koordinasion kimyada yeni yanaşmalar: / kimya üzrə elmlər doktoru dissertasiyası / – Bakı, 2015. – 304 s.

48. Əhmədova N.E. N-əvəzolunmuş hidrazonların polihalogenmetanlarla reaksiyası əsasında dixlordiazabutadien törəmələrinin sintezi və rentgen quruluş tədqiqatları: / kimya üzrə fəlsəfə doktoru dissertasiyası / -Bakı, 2021.- 187 s.
49. Süleymanova G.T. 1,1-dixlordiazadienlərin sintez və dizaynında qeyri-kovalent əlaqələrin rolü : / kimya üzrə fəlsəfə doktoru dissertasiyası / -Bakı, 2021.-193 s
50. Shikhaliev NG, Suleymanova GT, Bagirova KN, Asgerova UF, Garazadeh KA, Babayeva GV, Ahmedova NE, Nenajdenko VG. Synthesis of dihalogendiazadiene and farmazan derivatives in the catalytic olefinization reaction. DIMENSIONAL SYSTEMS. 2018;2:24..
51. Shikhaliev NG, Askerova UF, Mukhtarova SH, Niyazova AA, Dorovatovskii PV, Khrustalev VN, Nenajdenko VG. Synthesis and Structural Study of Dichlorodiazadienes Derived from 4-Methoxybenzaldehyde. Russian Journal of Organic Chemistry. 2020 Feb;56(2):185-92.
52. Atioğlu Z, Akkurt M, Shikhaliev NQ, Askerova UF, Niyazova AA, Mlowe S. Crystal structure and Hirshfeld surface analysis of (2Z)-N, N-dimethyl-2-(pentafluorophenyl)-2-(2-phenylhydrazin-1-ylidene) acetamide. Acta Crystallographica Section E: Crystallographic Communications. 2021 Aug 1;77(8):829-33.
53. Memmedova, N.Ə. 1-(2, 2-dibromovinyl)-3-nitrobenzenin kristal quruluşu və hirşfeld səthi analizi. Journal of Baku Engineering University, p.37.
54. Atioğlu Z, Akkurt M, Askerova UF, Mukhtarova SH, Askerov RK, Mlowe S. Crystal structure and Hirshfeld surface analysis of (3Z)-7-methoxy-3-(2-phenylhydrazinylidene)-1-benzofuran-2 (3H)-one. Acta Crystallographica Section E: Crystallographic Communications. 2021 Sep 1;77(9).
55. Atioğlu Z, Akkurt M, Shikhaliev NQ, Askerova UF, Mukhtarova SH, Askerov RK, Bhattacharai A. Crystal structure and Hirshfeld surface analysis of 3-[2-(3, 5-dimethylphenyl) hydrazinylidene] benzofuran-2 (3H)-one. Acta Crystallographica Section E: Crystallographic Communications. 2021 Dec 1; 77(12).
56. Maharramov AM, Shikhaliev NQ, Suleymanova GT, Gurbanov AV, Babayeva GV, Mammadova GZ, Zubkov FI, Nenajdenko VG, Mahmudov KT, Pomeireo AJ. Pnicogen, halogen and hydrogen bonds in (E)-1-(2, 2-dichloro-1-(2-nitrophenyl) vinyl)-2-(para-substituted phenyl)-diazenes. Dyes and Pigments. 2018 Dec 1;159:135-41.
57. Nenajdenko VG, Maharramov AM, Shikhaliev NG, Suleymanova GT, Gurbanov AV, Babayeva GV, Garazadeh KA, Ahmedova NE. Synthesis and structural study of dichlorodiazadienes derived from para-nitro benzaldehyde. New Materials, Compounds and Applications. 2019; 3(3):135-41.