

UOT 547.538.141:547.539

*Ə.Ə.Babazadə¹, G.T.Süleymanova¹, N.E.Əhmədova¹, G.V.Babayeva^{1,2},
X.A.Qarazadə¹, M.S.Abdulov¹, N.Q.Şıxaliev¹, A.M.Məhərrəmov¹
Bakı Dövlət Universiteti¹
Azərbaycan Dövlət Pedaqoji Universiteti²
gumusqiz91.sg@gmail.com*

DİXLORDİAZADİENLƏR ƏSASINDA α -KETO TURŞUSUNUN ETİL EFİRLƏRİNİN E\Z İZOMERLƏRİNİN HİDROZO TÖRƏMƏLƏRİNİN SİNTEZİ

Açar sözlər: Dıxlordiazadien, α -keto turşular, solvoliz

Dıxlordiazadienlərin etil spirtində solvolizindən α -keto turşusunun hidrozo törəmələrinin E\Z izomerlər qarışığının sadə yolla sintezi həyata keçirilmişdir. Bu tip birləşmələrin özəl xüsusiyyətlərindən biri E/Z izomerlərinin qarşılıqlı çevrilmə reksiyalarıdır ki, bu da onlara fotoxromik xüsusiyyətlər verir. Fotoxromik birləşmələr isə öz növbəsində molekulyar proseslərə nəzarət etməyə imkan verdikləri üçün müxtəlif elm və texnologiya sahələrində əsas rol oynayırlar. α -Keto turşu efirlərinin hidrozo törəmələrinin E/Z izomerlərinin eyni rekasiya zamanı sintez edilməsi üzvi sintez baxımından olduqca önəmli reaksiya hesab olunur.

*A.A.Бабазаде, Г.Т.Сулейманова, Н.Э.Ахмедова, Г.В.Бабаева, Х.А.Гаразаде,
М.С.Абдулов, Н.Г.Шихалиев, А.М.Магеррамов*

СИНТЕЗ ГИДРОЗО ПРОИЗВОДНЫХ E/Z ИЗОМЕРОВ ЭТИЛОВЫХ ЭФИРОВ α -КЕТО КИСЛОТЫ НА ОСНОВЕ ДИХЛОРДИАЗАДИЕНОВ

Ключевые слова: дихлордиазадиен, α -кетокислоты, сольволиз

Проведен простой синтез смеси E \ Z-изомеров гидрозопроизводных α -кетокислоты путем сольволиза дихлордиазадиена в этиловом спирте. Одной из особенностей этого типа соединений является реакция взаимодействия E / Z-изомеров, которая придает им фотохромные свойства. Фотохромные соединения, в свою очередь, играют ключевую роль в различных областях науки и техники, поскольку они позволяют контролировать молекулярные процессы. Синтез E/Z-изомеров гидрозойных производных сложных эфиров α -кетокислоты во время одной и той же реакции является очень важной реакцией с точки зрения органического синтеза.

A.A.Babazade, G.T.Suleymanova, N.E.Ahmedova, G.V.Babaeva, Kh.A.Garazade, M.S.Abulov, N.G.Shikhaliev, A.M.Maharramov

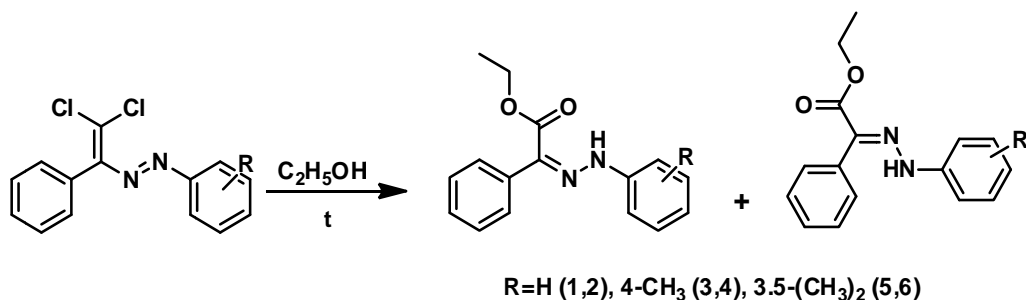
SYNTHESIS OF HYDROZO DERIVATIVES OF E/Z ISOMERS OF ETHYL ESTERS OF α -KETO ACID BASED ON DICHLORODIAZADIENES

Keywords: *Dichlordiazadiene, α -keto acids, solvolysis*

A simple synthesis of a mixture of E \ Z-isomers of hydroxy derivatives of α -keto acid was carried out by solvolysis of dichlorodiazadiene in ethyl alcohol. One of the features of this type of compounds is the reaction of the interaction of E / Z-isomers, which gives them photochromic properties. Photochromic compounds, in turn, play a key role in various fields of science and technology, since they allow you to control molecular processes. The synthesis of the E / Z isomers of hydrozoic derivatives of α -keto acid esters during the same reaction is a very important reaction from the point of view of organic synthesis.

α -Keto turşular amin turşularının, karbohidratların, nuklein turşularının biosintezində aralıq məhsullar hesab edilməsi ilə yanaşı, həm də bioloji aktivlikləri baxımından olduqca mühim birləşmələr hesab edilir [1-5]. Bu birləşmələrin sintez və çevrilmələri əsasında aparılan elmi tədqiqat işlərinə ədəbiyyatda son dövrlərdə tez-tez rast gəlinir [6-11]. Misal üçün ədəbiyyatda hipervalentli yod üzvi reagentlər əsasında fenil hidrozonların oksidləşməsindən α -keto efirlərin alındığına aid məlumatı göstərmək olar [12-16]. Məhz bu baxımdan tərəfimizdən dixlordiazadienlər əsasında α -keto turşu efirlərinin hidrozo törəmələrinin sintez edilməsi üzvi sintez baxımından olduqca önəmli reaksiya hesab olunurlar. Ümumiyyətlə tərəfimizdən sintez edilmiş dixlordiazadienlər öz quruluş xüsusiyyətlərinə görə üzvi sintezdə bir çox mühüm birləşmələrin (azido 2H-1,2,3-triazolların, azotlu heterotsiklik birləşmələrin və s.) sintezində substrat olaraq tətbiq edilmişdir (sxem) [17-33].

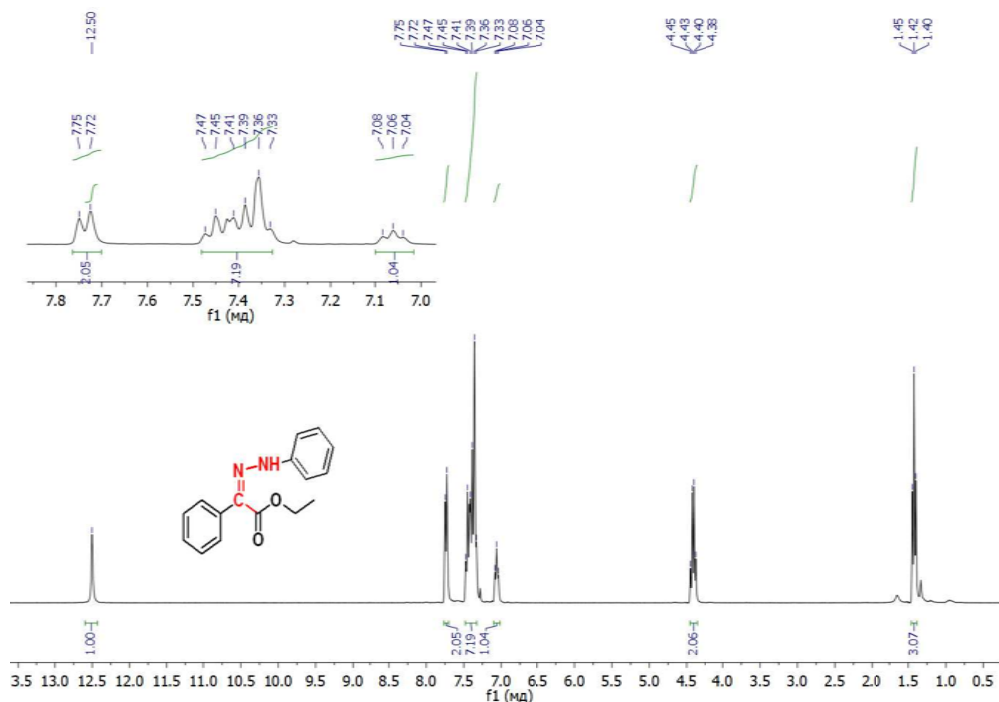
Əvvəki tədqiqatlarda dixlordiazadien törəmələrinin metil spirtində solvoliz reaksiyasından müvafiq α -keto turşu efirlərinin aril hidrozo törəmələri sintez edilmişdir [34]. Bu istiqamətdə tədqiqatları davam etdirərək etil spirti iştirakında müvafiq solvoliz reaksiyaları aparılmışdır.



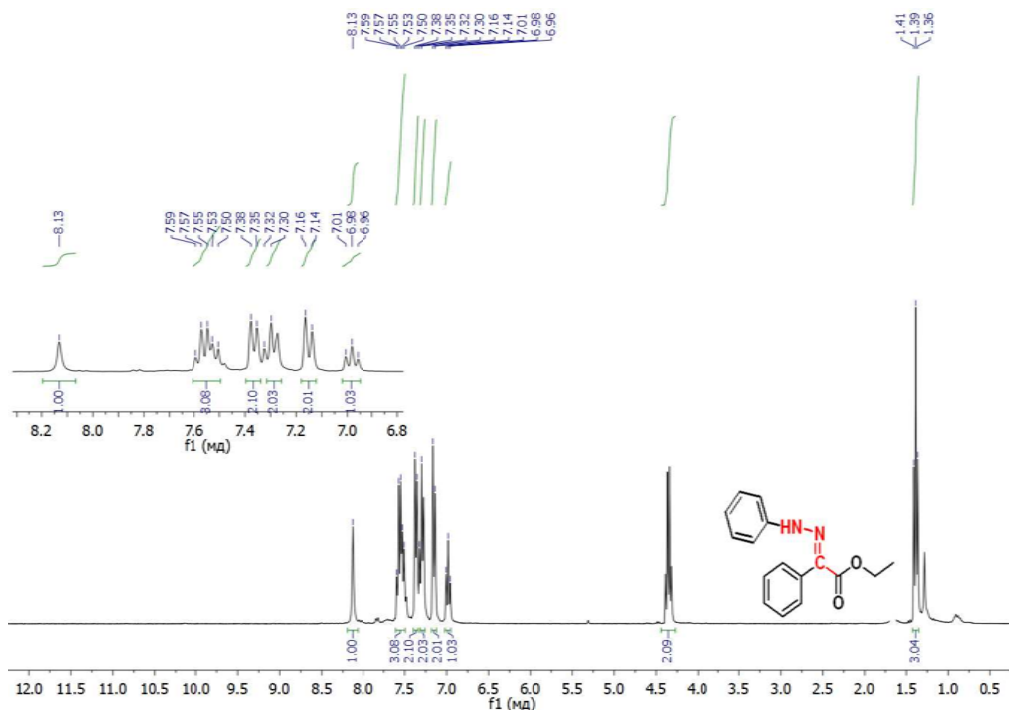
Sxem. Diclordiazadienlərin solvoliz reaksiyasının ümumi sxemi.

Qeyd edək ki, bu reaksiyalar zamanı da reaksiya məhsullarının analizi zamanı müvafiq efirlərin EVZ izomerlər qarışığının alındığı müasir fiziki tədqiqat metodları ilə (NMR, RQA) bir daha təsdiq olunmuşdur.

NMR spektrlərindən görüldüyü kimi (Şəkil 1 və 2), E və Z izomerlərin NH qrupunun H atomlarının siqnailləri bir-birindən əsaslı surətdə fərqlənirlər. E izomerdə 8.13 m.h., Z izomerində isə 12.50 m.h. müşahidə edilmişdir. Bu isə Z izomerinin NH qrupunun hidrogen atomunun mürəkkəb efirin karbonil qrupu ilə yaratmış olduğu H rabitəsi hesabına proton siqnaillərinin daha zəif sahəyə sürüşməsi ilə əlaqədar olmuşdur

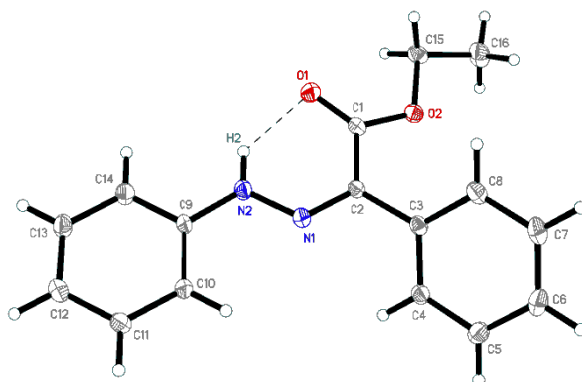


Şəkil 1. 1 Maddəsinin 1H NMR spektri



Şəkil 2. 2 Maddəsinin ^1H NMR spektri

Z izomerdə hidrogen əlaqəsinin mövcudluğu RQA metodu ilə də bir daha müəyyən edilmişdir (Şəkil 3).

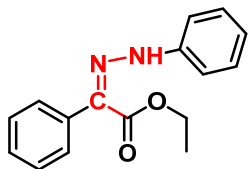


Şəkil 3. Etil(Z)-2-fenil-2-(2-fenil-hidrazono)asetatın molekulyar quruluşunda hidrogen rabitəsi qırıq-qırıq xəttlərlə göstərilmişdir.

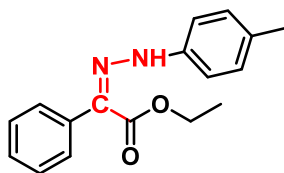
Qeyd edək ki, bu tip birləşmələrin özəl xüsusiyyətlərindən biri E/Z izomerlərinin qarşılıqlı çevrilmə reksiyalarıdır ki, bu da onlara fotoxromik xüsusiyyətlər verir. Fotoxromik birləşmələr isə öz növbəsində molekulyar proseslərə nəzarət etməyə imkan verdikləri üçün müxtəlif elm və texnologiya sahələrində əsas rol oynayırlar. Beləliklə, dixlordiazadienlərin etil spirtində solvolizindən fenilsirkə turşusunun hidrozo törəmələrinin E\Z izomerlər qarışığının sadə yolla sintezi həyata keçirilmişdir ki, bunlar da fotoxromik birləşmələr kimi tətbiq oluna bilərlər.

(Z)/(E)-etil 2-fenil-2-(2-fenilhidrazon) asetatların sintezinin ümumi metodikası

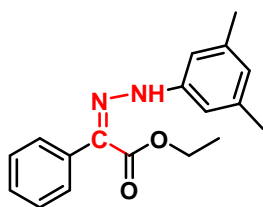
10 mg 1.1-dixlordiazadien götürülür və 30 ml etanol məhlulunda 2 saat müddətində maqnit qarışdırıcı vasitəsi ilə temperaturda qarışdırılır. Təyin olunmuş müddət bittikdən sonra məhlul rotorla qovulur. Kalonka xromotoqrafiyası vasitəsi ilə reaksiya məhsulları ayrı ayrılıqda seçilir. Bunun üçün istifadə edilmiş elüentlər dimetilxlorid və N-Heksan (1:1), dimetilxlorid və etanoldur. Nazik təbəqəli xromotoqrafiya ilə ayırd edilən əsas reaksiya məhsulu olan fraksiyalar toplanaraq yenidən rotorda buxarlandırılır və çıxım hesablanır.



Maddə 1. (Z)-etil 2-fenil-2-(2-fenilhidrazon) asetat. (E)-1-(2,2-dixlor-1-fenilvinil)-2-fenildiazenin C_2H_5OH ilə reaksiyasından alınmışdır. Sarı rəngli bərk maddədir, Çıxım 24%, $T_{gr}=90^{\circ}C$. Analitik hesablanmış $C_{16}H_{16}N_2O_2$ ($M=268.12$), 1H NMR (300 MHz, $CDCl_3$, δ , m.h.) 12.50 (s, 1H, NH), 7.74 (d, $J=7.2$ Hz, 2H, arom), 7.49-7.32 (m, 8H, arom), 7.06 (s, 1H, arom), 4.41 (q, $J=7.1$ Hz, 2H, CH_2), 1.46-1.38 (m, 3H, CH_3). ^{13}C NMR (75 MHz, $CDCl_3$, δ , m.h.) 159.19, 138.68, 132.00, 124.80, 124.10, 123.32, 123.00, 117.93, 109.70, 56.51, 9.66.

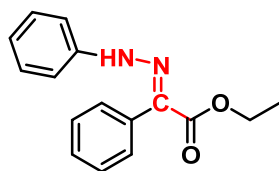


Maddə 2. (Z)-etil 2-fenil-2-(2-(p-toluol) hidrazon) asetat. (E)-1-(2,2-dixloro-1-fenilvinil)-2-(p-toluol) diazenin C_2H_5OH ilə reaksiyasından alınmışdır. Sarı rəngli bərk maddədir, Çıxım 26%, $T_{gr}=105^{\circ}C$. Analitik hesablanmış $C_{17}H_{18}N_2O_2$ ($M=282.34$). 1H NMR (300 MHz, $CDCl_3$, δ , m.h.) 12.45 (s, 1H, NH), 7.51 – 7.45 (m, 4H, arom), 7.02 (s, 4H, arom), 6.67 (s, 1H, arom), 4.14 (d, $J=8.2$ Hz, 2H, CH_2), 2.33 (s, 3H, CH_3), 1.51 (t, $J=8.0$ Hz, 3H, CH_3). ^{13}C NMR (75 MHz, $CDCl_3$, δ , m.h.) 166.08, 139.90, 139.58, 134.30, 131.89, 129.98, 129.50, 128.90, 128.75, 115.40, 61.33, 21.08, 14.21.



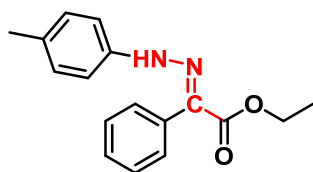
Maddə 3. (Z)-etil 2-(2-(3, 5-dimetilfenil) hidrazon)-2-fenilasetat.

(E)-1-(2,2-dixloro-1-fenilvinil)-2-(3,5-dimetilfenil) diazenin C_2H_5OH ilə reaksiyasından alınmışdır. Sarı rəngli bərk maddədir, Çıxım 28%, $T_{ar}=92^{\circ}C$. Analitik hesablanmış, $C_{18}H_{20}N_2O_2$ ($M=296.37$). 1H NMR (300 MHz, $CDCl_3$, δ , m.h.) 1H NMR (500 MHz, Chloroform-*d*) δ 12.35 (s, 1H, NH), 7.47 – 7.38 (m, 4H, arom), 6.87 (d, $J=1.9$ Hz, 2H, arom), 6.75 (s, 1H, arom), 6.69 (dt, $J=3.1, 1.3$ Hz, 1H, arom), 4.23 (s, 2H, CH_2), 2.29 (s, 6H, CH_3), 1.45 (s, 3H, CH_3). 166.08, 142.37, 139.61, 137.09, 134.30, 129.52, 128.86, 128.73, 126.60, 119.25, 61.62, 22.45, 14.13.



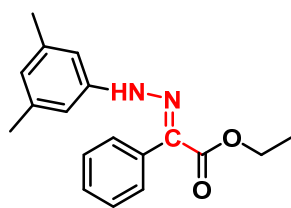
Maddə 4. (E)-etil 2-fenil-2-(2-fenilhidrazon) asetat.

(E)-1-(2, 2-dixloro-1-fenilvinil)-2-fenildiazenin C_2H_5OH ilə reaksiyasından alınmışdır. Sarı rəngli bərk maddədir, Çıxım 32%, $T_{ar}=98^{\circ}C$. Analitik hesablanmış $C_{16}H_{16}N_2O_2$ ($M=268.12$), 1H NMR (300 MHz, $CDCl_3$, δ , m.h.) 8.13 (s, 1H, NH), 7.55 (dt, $J=12.7, 7.0$ Hz, 3H, arom), 7.37 (d, $J=6.8$ Hz, 2H, arom), 7.29 (d, $J=7.4$ Hz, 2H, arom), 7.15 (d, $J=7.8$ Hz, 2H, arom), 6.98 (t, $J=7.3$ Hz, 1H, arom), 4.35 (q, $J=7.1$ Hz, 2H, CH_2), 1.39 (t, $J=7.1$ Hz, 3H, CH_3). ^{13}C NMR (75 MHz, $CDCl_3$, δ , m.h.) 159.95, 157.74, 138.06, 129.86, 125.29, 125.02, 124.90, 124.72, 124.47, 117.65, 109.46, 56.74, 9.79.



Maddə 5. (E)-1-(2,2-dixloro-1-fenilvinil)-2-(p-toluol)

diazenin C_2H_5OH ilə reaksiyasından alınmışdır. Sarı rəngli bərk maddədir, Çıxım 31%, $T_{ar}=121^{\circ}C$. Analitik hesablanmış $C_{17}H_{18}N_2O_2$ ($M=282.34$). 1H NMR (300 MHz, $CDCl_3$, δ , m.h.) 8.17 (s, 1H, NH), 7.65 – 7.58 (m, 1H, arom), 7.54 (ddt, $J=9.5, 7.2, 2.0$ Hz, 1H, arom), 7.48 – 7.40 (m, 3H, arom), 7.03 – 6.94 (m, 4H, arom), 4.34 (q, $J=8.0$ Hz, 2H, CH_2), 2.35 – 2.31 (m, 3H, CH_3), 1.31 (t, $J=8.0$ Hz, 3H, CH_3). ^{13}C NMR (75 MHz, $CDCl_3$, δ , m.h.) 166.44, 139.97, 139.61, 135.46, 131.92, 130.03, 129.52, 128.86, 128.73, 115.38, 61.62, 20.82, 14.13.



Maddə 6. (E)-metil-2-(2-(3,5-dimetilfenil) hidrazon)-2-fenilasetat.

(E)-1-(2,2-dixloro-1-fenilvinil)-2-(3,5-dimetilfenil) diazenin C_2H_5OH ilə reaksiyasından alınmışdır. Sarı rəngli bərk maddədir, Çıxım 31%, $T_{ar}=128^{\circ}C$. Analitik hesablanmış, $C_{18}H_{20}N_2O_2$ ($M=296.37$). Analitik hesablanmış: $C_{17}H_{18}N_2O_2$ ($M=282.14$), 1H NMR (300 MHz, $CDCl_3$, δ , m.h.) 8.24 (s, 1H, NH), 7.75– 7.70

(m, 1H, arom), 7.61 (d, $J = 9.5$ Hz, 1H, arom), 7.54 – 7.50 (m, 2H, arom), 6.82 (d, $J = 1.9$ Hz, 2H, arom), 6.68 (q, $J = 1.8$ Hz, 2H, arom), 4.34 (d, $J = 8.2$ Hz, 2H, CH₂), 2.28 (s, 6H, CH₃), 1.31 (t, $J = 8.0$ Hz, 3H, CH₃). ¹³C NMR (75 MHz, CDCl₃, δ, m.h.) 168.36, 142.35, 139.65, 137.15, 135.40, 129.14, 128.98, 128.69, 126.65, 119.29, 58.36, 22.47, 16.05.

Bu iş Azərbaycan Respublikası Prezidenti yanında Elmin inkişafı fondunun EIF-BGM-4-RFTF-1/2017-21/13/4) dəstəyi əsasında yerinə yetirilmişdir.

ƏDƏBİYYAT

1. *Barton, D. H.* Oxidation of phenylhydrazones of α -keto esters with hypervalent organoiodine reagents/ J. C.Jaszberenyi, and T. Shinada// Tetrahedron letters, -1993, -34(45), -p.7191-7194.
2. *Qian, H.* An emissive and pH switchable hydrazone-based hydrogel/ İ.Aprahamian, //Chemical Communications,-2015, -51(56),-p.11158-11161.
3. *Qian, H.* Photochromic hydrazone switches with extremely long thermal half-lives/S.Pramanik and I.Aprahamian //Journal of the American Chemical Society,-2017,-139(27),-p.9140-9143.
4. *Yu, J.* An efficient transition-metal-free synthesis of 1H-indazoles from arylhydrazones with montmorillonite K-10 under O₂ atmosphere/ Lim, J. W., Kim, S. Y., Kim, J., [and others]// Tetrahedron Letters,-2015,-56(11),-p.1432-1436.
5. *Benincori, T.* Rearrangements of aromatic carbonyl arylhydrazones of benzene, naphthalene, and azulene/ S. B.,Pagani, R.Fusco,[and others]//Journal of the Chemical Society, Perkin Transactions-1988,-1, (10),-p. 2721-2728.
6. *Schantl, J. G.* Oxidation and Rearrangement of 5-Substituted 5-Ethoxycarbonyl [1, 2, 4] triazolidine-3-thiones/ S.Lang and K.Wurst ChemInform,-1999,-30(23), no-no.
7. *Zheng, L. Q.* Solution phase and surface photoisomerization of a hydrazone switch with a long thermal half-life/ Yang, S., Lan, J., [and others]// Journal of the American Chemical Society,-2019,-141(44),-p.17637-17645.
8. *Shao, B.* Solution and solid-state emission toggling of a photochromic hydrazone./ M., Baroncini, H.,Qian,[and others]// Journal of the American Chemical Society,-2018,- 140(39), -p.12323-12327.
9. *Mělnický, R.* The Preparation of Various New Heterocyclic Compounds via Cyclization of Substituted Derivatives of Phenacyl Esters of Hydrazonoacetic Acid / M., Grepl, A., Lyčka, [and others]// Synthesis,-2013,- 45(17), -p.2447-2457.
10. *Li, Q.* Building strain with large macrocycles and using it to tune the thermal half-lives of hydrazone photochromes/ H., Qian,B.,Shao [and others]//Journal of the American Chemical Society,-2018,-140(37),-p.11829-11835.
11. *Mizota, I.* Synthesis of Tetramic Acid Derivatives via a Tandem Umpolung Alkylation/Reduction/Cyclization Reaction of γ -Hydrazono β -Ketoester./ M., Maeda, K., Imoto, [and others]// Organic letters,-2020,-22(8),-p.3079-3083.

12. *Fusco, R.* Rearrangement of arylhydrazones of aromatic and arylaliphatic carbonyl compounds to biphenyl derivatives/ , F. Sannicolo. The Journal of Organic Chemistry, -1981, -46(1), -p.83-89.
13. *Creary, X.* Captodative rate enhancements in the methylenecyclopropane rearrangement/ M. E. Mehrsheikh-Mohammadi, The Journal of Organic Chemistry, -1986, -51(14), -p.2664-2668.
14. *Guo, X.* Visualizing intracellular particles and precise control of drug release using an emissive hydrazone photochrome /Shao, B., Zhou, S[and others]// Chemical science, -2020, -11(11), -p.3016-3021.
15. *Bianchi, L.* α-Oxohydrazones as imine component in the synthesis of 4-functionalized azetidiones by the Staudinger reaction. Dell'Erba, C., Maccagno, M., , [and others]// Tetrahedron, -2003, -59(51), -p.10195-10201.
16. *Narayan, R.* Conditions by an Aza□Nazarov Reaction Cascade with Indole as Neutral Leaving Group: Experiment and Theory. Preparation of NH□Pyrroles under Superelectrophilic. / C. G., Daniliuc, , E. U. Würthwein // European Journal of Organic Chemistry, -2012, -30, -p.6021-6032.
17. *Maharramov A.M.* Halogen bonding in the synthesis and design of coordination and organometallic compounds/ N.Q.Shixaliyev, A.V.Gurbanov, K.T. Mahmudov [and others]// Non- covalent interactions in the synthesis and design of new compounds, -2016, -Chapter 8, -s.145-162.
18. *Maharramov A.M.* Synthesis of compounds of dichlorodiazabutadiene structure from benzoic aldehyde and some of its derivatives based on the catalytic olefination reaction/ G.T.Suleymanova, G.V.Babayeva, Sh.A. Ibragimova [and others]// Chemical Problems, -2018, -2, -p.230-238.
19. *Maharramov, A.M.* Pnictogen, halogen and hydrogen bonds in(E)-1-(2,2-dichloro-1-(4-substitutedphenyl)vinyl)-2-(2-nitrophenyl)diazenes / N.Q. Shixaliyev, G.T. Suleymanova, A.V. Gurbanov [and others] // Dyes and Pigments, -2018, -v.159, -p.135-141
20. *Shikhaliyev, N.G.* Synthesis, characterization and antibacterial studies of dichlorodiazadienes derivatives/ G.T. Suleymanova, A.A. İsrayılova, Kh.G. Ganbarov, [and others]. Arkivoc, -2019, -v.vi. -p.64-75
21. *Nenajdenko V.G.* Synthesis and structural study of dichlorodiazadienes derived from para-nitro benzaldehyde/ A.M.Maharramov, N.G.Shikhaliyev, G.T.Suleymanova, [and others] // New Materials, Compounds and Applications, -2019, -3, -p.135-141.
22. *Shikhaliyev N.G.* Halogen bonding in (E)-1-(2,2-dichloro-1-(3-nitrophenyl)vinyl)-2-(para-substituted phenyl)diazene dyes. A.M.Maharramov, G.T.Suleymanova, G.V. Babayeva [and others] //Arkivoc, -iii, -p.67-75.
23. *Shikhaliyev, N.Q.* Noncovalent interactions in the design of bis-azo dyes/ M.L.Kuznetsov, A.M.Maharramov, A.V.Gurbanov [and others] // CrystEngComm, -2019, -v.21, -i.34, -p.5032-5038
24. *Shikhaliyev, N.Q.* Tetrel, halogen and hydrogen bonds in bis (4-((E)-(2, 2-dichloro-1-(4-substitutedphenyl) vinyl) diazenyl) phenyl) methane dye/ N.E.Ahmadova, A.V.Gurbanov, A.M.Maharramov [and others]// Dyes and

- Pigments, -2018, -v.150, -p.377-381
25. *Atioğlu Z.* (E)-1-(2,6-Dichlorophenyl)-2-(3-nitrobenzylidene)hydrazine: crystal structure and Hirshfeld surface analysis/ M.Akkurt , N.Q.Shikhaliyev, G.T.Suleymanova [and others]// Acta Crystallographic Communications E, -2020, -E76, -p.1291-1295
 26. *Çelikesir S.T.* Crystal structure and Hirshfeld surface analysis of (E)-1-(2,6-dichlorophenyl)-2-(2nitrobenzylidene)hydrazine/ M.Akkurt, N.Q.Shikhaliyev, G.T.Suleymanova [and others]// Acta Crystallographic Communications E, -2020, -E76, -p.1173-1178.
 27. *Atioğlu Z.* Crystal structure and Hirshfeld surface analysis of (E)-1-(2,2-dichloro-1-(4-nitrophenyl)vinyl)-2-(4-fluorophenyl)diazene/ M.Akkurt, N.Q.Shikhaliyev, G.T. Suleymanova [and others]//Acta Crystallographic Communications E, -2019, -E75, -p.237-241.
 28. *Akkurt M.* Crystal structures and Hirshfeld surface analyses of the two isotopic compounds (E)-1-(4-bromo phenyl)-2-[2,2-dichloro-1-(4-nitrophenyl)ethenyl] diazene and (E)-1-(4-chloro phenyl)-2-[2,2dichloro-1-(4-nitrophen-yl)ethenyl] diazene C₁₄H₈BrCl₂N₃O₂ and C₁₄H₈Cl₃N₃O₂ / N.Q.Shikhaliyev, G.T.Suleymanova, G.V. Babayeva [and others]//Acta Crystallographic Communications E, -2019, - E75, -p.1199-1204.
 29. *Özkaraca K.* Crystal structure and Hirshfeld surface analysis of (E)-4-{2,2-dichloro-1-[(3,5dimethylphenyl)diazenyl]ethenyl}- N , N –dimethylaniline/ M.Akkurt, N.Q.Shikhaliyev, U.F.Askerova [and others] // Acta Crystallographic Communications E, -2020, -76 (8), -p.1251-1254.
 30. *Özkaraca K.* Crystal structure and Hirshfeld surface analysis of 4-{2,2-dichloro-1-[(E)-2-(4methylphenyl)diazen-1-yl]ethenyl}- N , N – dimethylaniline/ Akkurt M., Shikhaliyev N.Q., Askerova U. [and others] //Acta Crystallographic Communications E, -2020, -76(7), -p.1122-1125.
 31. *Atioğlu Z.* Crystal structure and Hirshfeld surface analysis of 4-{2,2-dichloro-1-[(E)-(4chlorophenyl)diazenyl]ethenyl}- N , N –dimethylaniline. M.Akkurt, N.Q.Shikhaliyev, S.H.Mukhtarova [and others] // Acta Crystallographic Communications E, -2020, -76 (7), -p.1033-1037.
 32. *Özkaraca K.* Crystal structure and Hirshfeld surface analysis of 4-{2,2-dichloro-1-[(E)-(4fluorophenyl)diazenyl]ethenyl}- N , N –dimethylaniline/ M.Akkurt, N.Q.Shikhaliyev, U.F.Askerova [and others]// Acta Crystallographic Communications E, -2020, -76 (7), -p.811-815.
 33. *Nenajdenko V.G.* Halogenated Diazabutadiene Dyes: Synthesis, Structures, Supramolecular Features, and Theoretical Studies. N.G.Shikhaliyev, A.M.Maharramov, Kh.N.Bagirova [and others] // Molecules, -2020, -25(21), -p.5013.
 34. *Shikhaliyev N.G.* Aryl hydrazones of α -ketoesters via methanolysis of dichlorodiazadienes. Synthesis and structural study/ A.M. Maharramov, G.T. Suleymanova, A.A. Babazade //Mendeleev Communication, -2021.

Redaksiyaya daxil olub 29.09.2021