



سنتز، شناسایی و ساختار بلوری ترکیب انتقال پروتون بیس (۲-آمینو-۴-متیل پیریدینیوم) ۵،۲-دی کربوکسی بنزن -۴،۱- دی کربوکسیلات

محبوبه السادات شریف*، غلامرضا نجفی

گروه شیمی، دانشگاه آزاد اسلامی، واحد قم

(دریافت مقاله: ۹۴/۲/۱۸، نسخه نهایی: ۹۴/۴/۲۰)

چکیده: ترکیب انتقال پروتون $(2a4mpH)_2(btcH_2)$ از واکنش ۲-آمینو-۴-متیل پیریدین $(2a4mp)$ و بنزن-۵،۴،۲،۱-تتراکربوکسیلیک اسید $(btcH_4)$ با نسبت مولی ۱:۱ به دست آمده است. شناسایی ترکیب انتقال پروتون با استفاده از روش‌های طیف سنجی IR و پراش پرتو X تک بلور انجام شد. این ترکیب در سیستم بلوری مونو کلینیک و گروه فضایی $P2_1/c$ با دو مولکول در سلول واحد تبلور یافته و پارامترهای سلول واحد آن عبارت اند از: $a = 11.321(2) \text{ \AA}$ ، $b = 13.553(2) \text{ \AA}$ ، $c = 7.026(1) \text{ \AA}$ و $\beta = 102.473(4)^\circ$. مقدار R نهایی برای ترکیب برابر 0.0357 به ازای 9407 بازتاب است. در این ترکیب وجود پیوندهای هیدروژنی قوی و ضعیف از نوع $O-H\cdots O$ ، $N-H\cdots O$ و $C-H\cdots \pi$ ، برهم کنشهای $C-H\cdots \pi$ و یونی موجب ایجاد یک سیستم آبر مولکولی خودمجموعه ساز شده است.

واژه‌های کلیدی: انتقال پروتون؛ بنزن-۵،۴،۲،۱-تتراکربوکسیلیک اسید؛ ۲-آمینو-۴-متیل پیریدین؛ ۲-آمینو-۴-پیکولین؛ پیوند هیدروژنی.

مقدمه

در سال‌های اخیر نقش برهم کنش‌های متفاوت غیر کووالانسی در شکل‌گیری و بسط شبکه‌های سه‌بعدی در سیستم‌های بلوری مورد توجه قرار گرفته است. برهم کنش‌های بین مولکولی همانند پیوندهای هیدروژنی، انباشتگی $\pi-\pi$ ، برهم کنش‌های هیدروفوب و نیز برهم کنش‌های دهنده-پذیرنده نقش بسیار مهمی در تشکیل اجتماعات مولکولی دارند [۱]. وجود هر یک از این نیروهای بین مولکولی به تنهایی و یا ترکیب این نیروها می‌تواند به تشکیل اجتماعات مولکولی منسجم یا سیستم‌های خود مجموعه ساز منجر شود. همچنین پژوهش‌ها نشان می‌دهد که از میان برهم کنش‌های بین مولکولی، پیوندهای هیدروژنی نقش کلیدی را در به وجود آمدن چنین سیستم‌هایی که همگی زیرمجموعه‌ای از سیستم‌های آبرمولکولی به شمار می‌آیند ایفا می‌کنند [۱۲-۱۷]. در

همین راستا، تلاش‌های گسترده‌ای در جهت سنتز و شناسایی لیگاندهای انتقال پروتون و درک ماهیت بهتر نیروهای بین مولکولی موثر در تشکیل و پایداری این سیستم‌ها به عمل آمده است. از میان این ترکیب‌های انتقال پروتون می‌توان به سیستم $(pydaH_2)(pydc)$ که در آن $pydcH_2$ پیریدین-۶،۲-دی کربوکسیلیک اسید و $pyda$ پیریدین-۶،۲-دی آمین است [۱۸]، سیستم $(pydaH_2)(phendc)$ که در آن $phendcH_2$ [۱۹]، ۱۰،۱-فنانترویلین-۹،۲-دی کربوکسیلیک اسید است [۱۹]، سیستم $(2a4mpH)(pydcH)$ که در آن $2a4mp$ نشانه ۲-آمینو-۴-متیل پیریدین (۲-آمینو-۴-پیکولین) است [۵]، سیستم $(creatH)(phendcH)$ که creat کریتین است [۲] و سیستم‌های $(tataH_2)(pydc)$ و $(tataH_2)(pydc)$ که tata ترکیب ۶،۴،۲-تری آمینو-۵،۳،۱-تری آزین (ملامین) است [۴] اشاره نمود.

*نویسنده مسئول، تلفن: ۰۲۵۳۷۷۸۰۰۴۵، نمابر ۰۰۰۰۰۰۰۰۰۰۰۰، پست الکترونیکی: m_sharif@qom-iau.ac.ir

حاصل به مدت ۲ ساعت در دمای $50-55^{\circ}\text{C}$ بهم خورد تا محلول شفاف ایجاد شود. محلول پس از کمی تغلیظ، در دمای اتاق قرار داده شد تا به آرامی قسمتی از حلال خود را از دست بدهد. پس از یک هفته بلورهای بی‌رنگی از این ترکیب انتقال پروتون مناسب برای پرتو ایکس بدست آمد.

IR (KBr) (ν , cm^{-1}): ۳۴۰۴ (s), ۳۳۰۲ (s), ۳۰۹۹ (s), ۳۰۷۰ (s), ۲۹۶۲ (w), ۲۷۳۱ (w), ۲۴۲۸ (w), ۲۳۰۱ (w), ۱۹۰۳ (m), ۱۶۷۰ (m), ۱۶۴۷ (s), ۱۵۵۰ (s), ۱۴۸۹ (s), ۱۳۸۹ (s), ۱۳۲۱ (s), ۱۲۹۰ (s), ۱۲۸۵ (m), ۱۲۶۱ (s), ۱۱۸۴ (s), ۱۱۱۹ (s), ۹۸۰ (m), ۹۲۷ (s), ۸۵۱ (s), ۸۰۲ (m), ۷۷۷ (s), ۷۶۱ (m), ۶۵۸ (m), ۵۷۱ (m), ۵۱۳ (s), ۴۵۹ (s), ۴۲۸ (s).

بحث و نتیجه گیری

بررسی داده‌های طیفی

در طیف IR این ترکیب نوار جذبی قوی در ناحیه 3404 cm^{-1} نشان دهنده گروه NH و نوار جذبی 3302 cm^{-1} مربوط به گروه O-H است. نوار جذبی در ناحیه 1670 cm^{-1} و 1647 cm^{-1} به ترتیب مربوط به فرکانس های کششی نامتقارن و متقارن گروه C=O از گروه کربوکسیلات است. نوار جذبی 1290 cm^{-1} مربوط به ارتعاش های خمشی داخل صفحه C-O-H است و نوارهای جذبی کمی ضعیفتر ناحیه cm^{-1} 1389 و 1321 نشان دهنده فرکانس های کششی نامتقارن و متقارن گروه C-O از گروه کربوکسیلات است. نوار جذبی در ناحیه 1119 cm^{-1} مربوط به فرکانس کششی C-N می باشد.

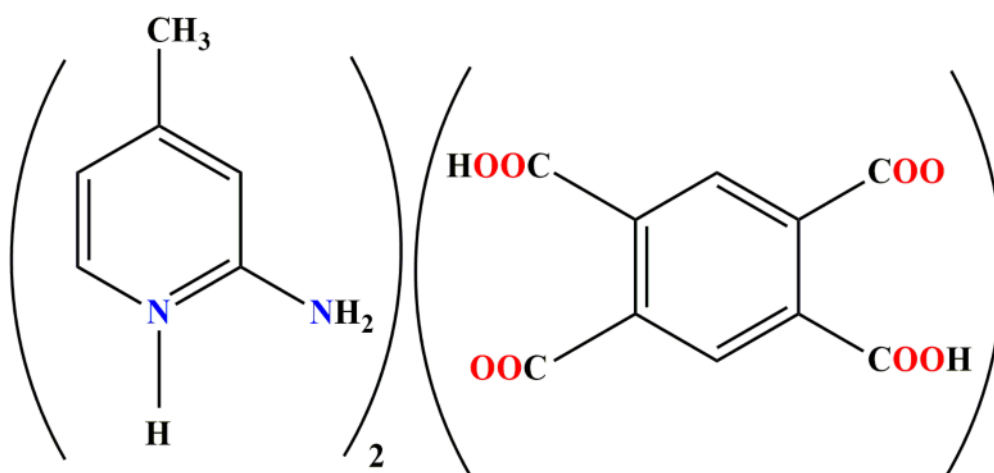
در این کار پژوهشی ساختار ترکیب انتقال پروتون به دست آمده از واکنش ۲- آمینو ۴- متیل پیریدین و بنزن-۵،۴،۲،۱-تتراکربوکسیلیک اسید به منظور مطالعه برهم کنش های بین مولکولی در این دسته از ترکیبات، بررسی شده است. ساختار شیمیایی این ترکیب در شکل ۱ نشان داده شده است.

بخش تجربی

کلیه مواد مورد استفاده با خلوص تجزیه‌ای از شرکت های مرک و فلوکا خریداری شده و بدون هیچ خالص سازی مورد استفاده قرار گرفت. طیف های IR به وسیله دستگاه طیف سنجی (IR) مدل Shimadzu (470) در محدوده $(400-4000\text{ cm}^{-1})$ با استفاده از قرص KBr ثبت شده است. ساختار بلوری به وسیله دستگاه پراش تابش تک پرتویی X مدل Bruker Kappa APEX-DUO (تابش $\text{Mo-K}\alpha$ ، گرافیت تک فام، طول موج $0.71073\text{ \AA}$ و دمای 150 K) تعیین شد. داده ها با استفاده از برنامه های SAINT و APEX2 پردازش شد [۲۰]. اصلاحات جذب با استفاده از برنامه SADABS انجام شد [۲۰]. ساختار با استفاده از برنامه SHELXTL [۲۱] حل و اصلاح شد.

روش تهیه ترکیب انتقال پروتون

واکنش بین بنزن-۵،۴،۲،۱-تتراکربوکسیلیک اسید و ۲-آمینو-۴-متیل پیریدین با نسبت مولی ۱ به ۱ انجام شد. بر این اساس به محلولی شامل بنزن-۵،۴،۲،۱-تتراکربوکسیلیک اسید (۱ میلی مول معادل ۲۵۹ میلی گرم) در ۱۰ میلی لیتر آب مقطر، محلول حاصل از ۲-آمینو-۴-متیل پیریدین (۱۰۸ میلی گرم، معادل ۱ میلی مول) در ۱۰ میلی لیتر آب اضافه شد. مخلوط



شکل ۱ ساختار شیمیایی ترکیب انتقال پروتون $(2a4mpH)_2(btcH_2)$.

بررسی داده‌های بلورنگاری

داده‌های تجربی و بلور شناسی ترکیب انتقال پروتون $(2a4mpH)_2(btcH_2)$ در جدول ۱ و برخی از طول پیوندها و زاویه‌های پیوندی به همراه زاویه‌های پیچشی در جدول ۲ آورده شده است. ساختار مولکولی این ترکیب در شکل ۲ نشان داده شده است. شکل ۳ نیز الگوی انباشتگی این ترکیب در سلول واحد را نشان می‌دهد. مطابق شکل ۲، دو پروتون از یک مولکول بنزن-۵،۴،۲،۱-تتراکربوکسیلیک اسید به دو مولکول ۲-آمینو-۴-متیل پیریدین منتقل شده و یک ترکیب انتقال پروتون را به وجود آورده است.

گستره‌ی زاویه پیوندهای $D-H\cdots A$ و طول پیوندهای $H\cdots A$ و $D\cdots A$ در این ترکیب نشان دهنده‌ی برهم‌کنش‌های هیدروژنی قوی در این ترکیب است. طول پیوند $D\cdots A$ در گستره $2.552(1)$ تا $3.357(2)$ Å تغییر می‌کند (جدول ۳). قوی‌ترین برهم‌کنش بین گروه کربوکسیلات از یک مولکول و گروه کربوکسیلیک اسید از مولکول مجاور $[3 = x-1, y, z]$ ؛ $D-H\cdots A: 1.759(19)^\circ$ ، $D\cdots A: 2.552(1)$ Å، $O1\cdots O3^{#2}$ مشاهده می‌شود (شکل ۴). برهم‌کنش‌های بین نیتروژن‌های ۲-آمینو-۴-متیل پیریدینیوم و گروه‌های کربوکسیلیک اسید نیز جزو برهم‌کنش‌های قوی محسوب می‌شوند.

جدول ۱ داده‌های بلور شناسی برای ترکیب انتقال پروتون $(2a4mpH)_2(btcH_2)$.

فرمول	$C_{22}H_{22}N_4O_8$
وزن فرمولی (گرم بر مول)	۴۷۰٫۴۴
اندازه بلور (میلی متر مکعب)	$0.36 \times 0.08 \times 0.046$
سیستم بلوری	مونوکلینیک
گروه فضایی	$P2_1/c$
a (Å)	$11.321(2)$
b (Å)	$13.553(2)$
c (Å)	$7.0261(1)$
β ($^\circ$)	$102.473(4)$
حجم سلول واحد ($\text{\AA}^3$)	$1052.7(3)$
تعداد ملکول در سلول واحد	۲
چگالی (g/cm^3)	۱٫۴۸۴
دما (کلوین)	$150(1)$
مقادیر h, k, l	$-14 \leq h \leq 14, -17 \leq k \leq 13, -9 \leq l \leq 8$
ضریب جذب	۰٫۱۱۵
$F(0\ 0\ 0)$	۴۹۲
گستره θ برای جمع‌آوری	1.84 تا 27.65
مجموع بازتاب‌ها	۹۴۰۷
بازتاب‌های مستقل	$2423 [R(\text{int}) = 0.0296]$
R_1/wR_2 کل داده‌ها	$0.0440 \square 0.0934$
R_1/wR_2 gt $I > 2\sigma(I)$	$0.0257 \square 0.0880$

جدول ۲ طول پیوندها، زاویه های پیوندی و پیچشی مهم از ترکیب انتقال پروتون $(2a4mpH)_2(btcH_2)$ (° و Å).

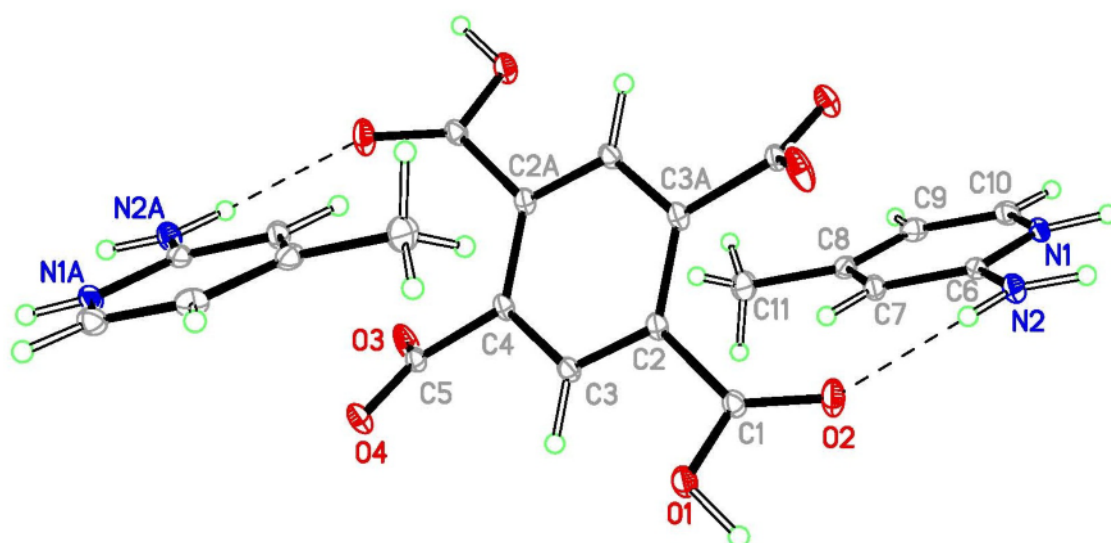
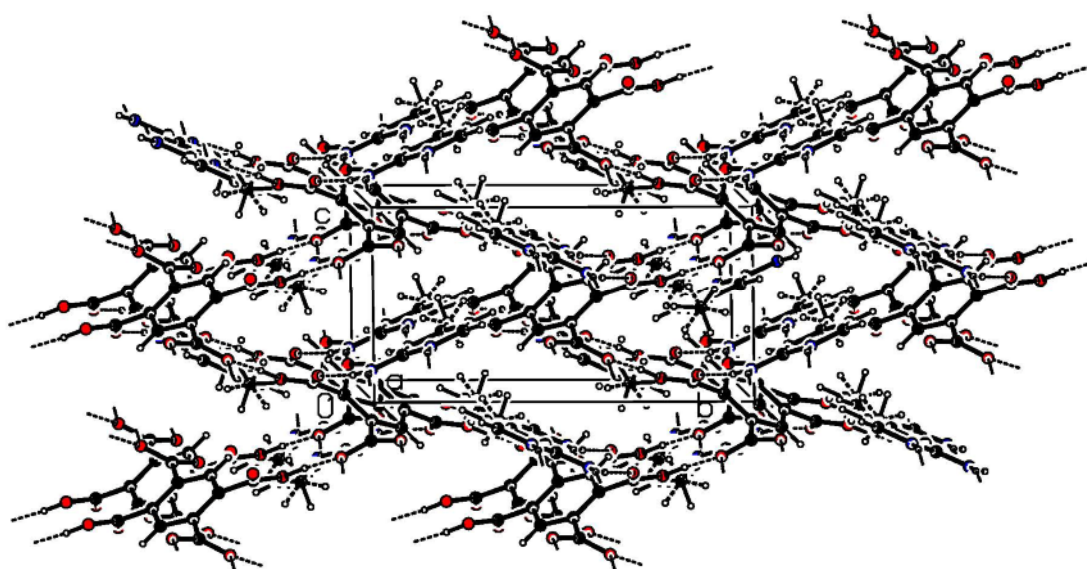
طول پیوندها (Å)			
O1-C1	۱٫۳۰۵(۲)	N1-C6	۱٫۳۵۳(۲)
O1-C1	۱٫۲۱۶(۲)	N1-C10	۱٫۳۵۷(۲)
O3-C5	۱٫۲۶۷(۲)	N2-C6	۱٫۳۲۷(۲)
O4-C5	۱٫۲۳۴(۲)	C6-C7	۱٫۴۱۴(۲)
C2-C3	۱٫۳۹۹(۲)	C7-C8	۱٫۳۶۴(۲)
C3-C4	۱٫۳۹۱(۲)	C8-C9	۱٫۴۱۴(۲)
C8-C11	۱٫۵۰۱(۲)	C9-C10	۱٫۳۶۱(۲)
زاویه های پیوندی (°)			
O2-C1-O1	۱۲۴٫۲۸(۱۱)	O4-C5-O3	۱۲۴٫۵۷(۱۱)
O2-C1-C2	۱۲۲٫۵۷(۱۱)	O4-C5-C4	۱۱۶٫۵۸(۱۰)
O1-C1-C2	۱۱۳٫۱۳(۱۰)	O3-C5-C4	۱۱۸٫۸۳(۱۰)
C3-C2-C1	۱۱۸٫۱۲(۱۱)	C6-N1-C10	۱۲۱٫۷۸(۱۰)
C4-C3-C2	۱۲۱٫۵۹(۱۱)	N2-C6-N1	۱۱۸٫۹۱(۱۱)
C3-C4-C2 ^{#1}	۱۱۸٫۵۱(۱۱)	N2-C6-C7	۱۲۲٫۹۶(۱۱)
C3-C4-C5	۱۱۷٫۴۴(۱۱)	C8-C7-C6	۱۲۱٫۰۲(۱۱)
C2 ^{#1} -C4-C5	۱۲۴٫۰۴(۱۰)	C7-C8-C9	۱۱۸٫۶۴(۱۱)
C7-C8-C11	۱۲۱٫۰۸(۱۲)	C9-C8-C11	۱۲۰٫۲۸(۱۲)
C10-C9-C8	۱۱۹٫۴۲(۱۲)	N1-C10-C9	۱۲۰٫۹۹(۱۲)
زاویه های پیچشی (°)			
O2-C1-C2-C4 ^{#1}	-۴۱٫۵۰(۱۸)	C3-C4-C5-O3	-۱۳۰٫۸۹(۱۲)
O1-C1-C2-C4 ^{#1}	۱۴۰٫۵۰(۱۲)	C2 ^{#1} -C4-C5-O3	۴۹٫۹۹(۱۷)
O2-C1-C2-C3	۱۳۳٫۶۰(۱۳)	C10-N1-C6-N2	۱۷۸٫۴۰(۱۱)
O1-C1-C2-C3	-۴۴٫۴۰(۱۶)	C10-N1-C6-C7	-۱٫۰۴(۱۷)
C4 ^{#1} -C2-C3-C4	۰٫۳(۲)	N2-C6-C7-C8	-۱۷۹٫۷۹(۱۲)
C3-C4-C5-O4	۴۷٫۹۵(۱۵)	C6-C7-C8-C11	-۱۷۹٫۴۶(۱۱)
C2 ^{#1} -C4-C5-O4	-۱۳۱٫۱۷(۱۲)	C11-C8-C9-C10	-۱۷۹٫۷۳(۱۲)

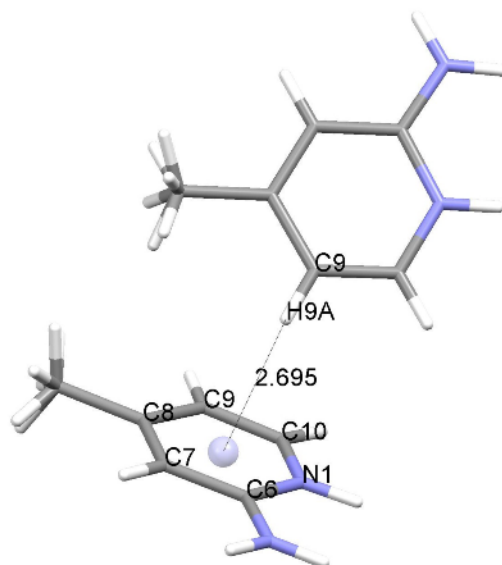
#۱ = ۲-x, ۲-y, ۲-z

جدول ۳ پیوندهای هیدروژنی در ترکیب انتقال پروتون $(2a4mpH)_2(btcH_2)$ (° و Å).

D—H...A	D—A	H...A	D...A	D—H...A
O1—H1O...O3 ^{#2}	۰٫۹۸(۲)	۱٫۵۷(۲)	۲٫۵۵۲(۱)	۱۷۵٫۹(۱۹)
N1—H1N...O3 ^{#3}	۰٫۹۴(۲)	۱٫۸۴(۲)	۲٫۷۷۲(۲)	۱۶۹٫۴(۱۷)
N2—H2N...O4 ^{#3}	۰٫۹۳(۲)	۱٫۹۱(۲)	۲٫۸۳۳(۲)	۱۷۱٫۰(۱۶)
N2—H3N...O2	۰٫۸۹(۲)	۲٫۱۳(۲)	۲٫۹۹۸(۲)	۱۶۵٫۰(۱۶)
C10—H10A...O2 ^{#4}	۰٫۹۵	۲٫۳۹	۳٫۱۸(۲)	۱۴۱
C11—H11B...O4 ^{#5}	۰٫۹۸	۲٫۵۲	۳٫۳۵۷(۲)	۱۴۴

$$\#2 = 2-x, 1/2+y, 3/2-z \quad \#3 = x-1, y, z \quad \#4 = 1-x, -1/2+y, 3/2-z \quad \#5 = 2-x, 2-y, 1-z$$

شکل ۲ ساختار مولکولی ترکیب انتقال پروتون $(2a4mpH)_2(btcH_2)$.شکل ۳ نمودار انباشتگی یاخته یک ترکیب انتقال پروتون $(2a4mpH)_2(btcH_2)$.



شکل ۴ برهمکنش $C-H \cdots \pi$ بین دو حلقه ی ۲-آمینو-۴-متیل پیریدینیوم.

اطلاعات کامل بلورشناسی ترکیب انتقال پروتون $(2a4mpH)_2(btcH_2)$ در مرکز اطلاعات بلورنگاری کمبریج (CCDC) با عدد ۱۴۱۰۶۵۵ به ثبت رسیده و از طریق آدرس قابل دریافت است. (www.ccdc.cam.ac.uk/conts/retrieving.html)

قدردانی

این مقاله از طرح تحقیقاتی با عنوان "تهیه و شناسایی لیگاندهای جدید حاوی پیرازول-۵،۳-دی کربوکسیلیک اسید و بنزن-۵،۴،۲،۱- تتراکربوکسیلیک اسید و بررسی نحوه کوئوردیناسیون این لیگاندها با فلزات" که با بودجه پژوهشی و حمایت مالی دانشگاه آزاد اسلامی واحد قم به انجام رسیده استخراج شده است.

مراجع

- [1] Moghimi A., Sharif, M. A., Aghabozorg, H., "Creatininium dipicolinate monohydrate", Acta Cryst., E60, 2004, o1790-o1792.
- [2] Soleimannejad J., Sharif M. A., Sheshmani S., Alizadeh R., Moghimi A., Aghabozorg H., "Crystal Structure of a Proton-Transfer Self-Associated Compound from 1,10-Phenanthroline-2,9-dicarboxylic Acid and Creatinine", Anal. Sci., 21, 2005, x49-x50.
- [3] Aghabozorg H., Soleimannejad J., Sharif M. A., Sheshmani S., Moghimi A., "Crystal Structure of a Proton-Transfer Compound between 2,6-

این دسته از برهم کنش‌ها به دلیل دارا بودن ویژگی‌های جهت گیری و قدرت پیوندی مناسب با اتصال واحدهای کاتیونی و آنیونی به یکدیگر در ایجاد شبکه‌ی اُبرمولکولی نقش مهمی را ایفا می کنند. دسته دوم برهم کنش‌های هیدروژنی که ضعیفتر از دسته اول بوده و جهت گیری کمتری دارند شامل برهم کنش‌های $C-H \cdots O$ [مثل: $2-x, 2-y, 1-z$; #5 = 144°] هستند. با $O1 \cdots O3^{#2}$, $D \cdots A$: $3.357(2)$ Å, $D-H \cdots A$: توجه به محدود بودن امکان تشکیل پیوندهای هیدروژنی قوی، این دسته از برهم کنش‌ها علیرغم ضعیف بودن می توانند پتانسیل یک عنصر دهنده یا پذیرنده پیوند هیدروژنی را کامل کنند [۲۳، ۲۲]. با توجه به این که گستره طبیعی برای طول این پیوندهای هیدروژنی بین 3.3 تا 3.8 Å است [۲۴]، بنابراین برهم کنش‌های بین مولکولی $C-H \cdots O$ در این ترکیب در ایجاد ساختار سه بعدی نقش مهمی ایفا می کند.

همچنین در ساختار بلوری برهم کنش‌های $C-H \cdots \pi$ بین دو حلقه ۲-آمینو-۴-متیل پیریدینیوم با فاصله $H \cdots \pi$ برابر 2.70 Å (فاصله اندازه گیری شده تا مرکز حلقه) سبب پایداری و انباشتگی بیشتر این ساختار می شود (شکل ۴). بنابراین، سه نوع پیوند هیدروژنی $N-H \cdots O$ ، $O-H \cdots O$ ، $C-H \cdots O$ و همچنین برهم کنشهای π و یونی در تشکیل شبکه بلوری سه بعدی نقش نقش به سزایی دارند.

متمم

Acid and Piperazine and Its Cobalt(II) Complex: Syntheses, Crystal Structures and Solution Studies", J. Iran. Chem. Soc., 7, 2010, 7(3), 727-739.

[13] Sharif M. A., Aghajani Z., Aghabozorg H., "Crystal Structure of a Ni(II) Complex Obtained from a Proton-Transfer Compound Containing Pyridine-2,6-dicarboxylic Acid and 2,4,6-Triamino-1,3,5-Triazine", Anal. Sci., 23, 2007, x147-x148.

[14] Tabatabaee M., Aghabozorg H., Attar Gharamaleki J., Sharif M. A., "Acridinium (6-carboxypyridine-2-carboxylato)(pyridine-2,6-dicarboxylato) zincate(II) pentahydrate", Acta Cryst., E65, 2009, m473-m474.

[15] Sharif M. A., Tabatabaee M., Beik V., Khavasi H. R., "Synthesis and Crystal Structure of a Five-Coordinate Complex of Copper(II) with 4-Nitrobenzenesulfonate and 2, 2'-Bipyridine", Acta Chim. Slov., 59, 2012, 289-293.

[16] Sharif M. A., Najafi G. R., "Synthesis, Structure and Characterization of a Helical Seven-Coordinated Pyridine-2,6-dicarboxylate-Bridged Cadmium(II) Complex", Acta Chim. Slov., 60, 2013, 138-143.

[17] Sharif M. A., Tabatabaee M., Shokrollahi A., Refahi M., "The Zinc(II) Coordination Polymer with Mixed-Ligand of 4-Hydroxypyridine-2,6-dicarboxylic Acid and Benzene-1,2,4,5-tetracarboxylic Acid in the Presence of Piperazine as a Counter Ion: Synthesis, Crystal Structure and Solution Study", J. Chem. Crystallogr., 45, 2015, 103-113.

[18] Moghimi A., Ranjbar M., Aghabozorg H., Jalali F., Shamsipur M., Yap G. P. A., Rahbarnoochi H., "A novel pyridine containing self-assembling system: synthesis, characterization, X-ray crystal structure, ¹³C solid phase NMR and solution studies", J. Mol. Struct., 605, 2002, 133-149.

[19] Moghimi A., Alizadeh R., Shokrollahi A., Aghabozorg H., Shamsipur M., Shokravi A., "First Anionic 1,10-Phenanthroline-2,9-dicarboxylate Containing Metal Complex Obtained from a Novel 1:1 Proton-Transfer Compound: Synthesis, Characterization, Crystal Structure, and Solution Studies", Inorg. Chem., 42, 2003, 1616-1624.

Pyridinedicarboxylic Acid and N,N'-Diethyl-2-amino-6-methyl-4-pyridinol", Anal. Sci., 21, 2005, x73-x74.

[4] Sharif M. A., Aghabozorg H., Shokrollahi A., Kickelbic G., Moghimi A., Shamsipur M., "Novel Proton Transfer Compounds Containing 2,6-Pyridinedicarboxylic Acid and Melamine and Their Pb^{II} Complex: Synthesis, Characterization, Crystal Structure and Solution Studies", Polish J. Chem., 80, 2006, 847-863.

[5] Sharif M. A., Tabatabaee M., Adinehloo M., Aghabozorg H., "2-Amino-4-methylpyridinium 2-carboxypyridine-6-carboxylate sesquihydrate (1/1/1.5)", Acta Cryst., E66, 2010, o3232.

[6] Li Z. T., Stein P. C., Becher J., Jensen D., Mork P., Svenstrup N., "Self-assembling Tetrathiafulvalene-based Rotaxanes and Catenanes", Chem. Eur. J., 2, 1996, 624-633.

[7] Zerkowski J. A., Seto C. T., Whitesides G. M., "Solid-state structures of rosette and crinkled tape motifs derived from the cyanuric acid melamine lattice", J. Am. Chem. Soc., 114, 1992, 5473-5475.

[8] Seto C. T., Whitesides G. M., "Synthesis, characterization, and thermodynamic analysis of a 1 + 1 self-assembling structure based on the cyanuric acid.cntdot.melamine lattice", J. Am. Chem. Soc., 115, 1993, 1330-1340.

[9] Seto C. T., Mathias J. P., Whitesides G. M., "Molecular self-assembly through hydrogen bonding: aggregation of five molecules to form a discrete supramolecular structure", J. Am. Chem. Soc., 115, 1993, 1321-1329.

[10] Zafar A., Geib S. J., Hamuro Y., Carr A. J., Hamilton A. D., "Hydrogen Bonding Control of Molecular Self-Assembly: Aggregation Behavior of Acylaminopyridine-Carboxylic Acid Derivatives in Solution and the Solid State", Tetrahedron, 56, 2000, 8419-8427.

[11] Schmuck C., "Highly Stable Self-Association of 5-(Guanidiniocarbonyl)-1H-pyrrole-2-carboxylate in DMSO - The Importance of Electrostatic Interactions", Eur. J. Org. Chem., 1999, 2397-2403.

[12] Aghabozorg H., Mahfoozi F., Sharif M. A., Shokrollahi A., Derki S., Shamsipur M., Khavasi H. R., "A Proton Transfer Self-Associated Compound from Benzene-1,2,4,5-Tetracarboxylic

- [23] Desiraju G. R., Steiner T., "*The weak hydrogen bond in structural chemistry and biology*", Oxford: Oxford University Press, 1999, 1–28.
- [24] Janiak C., "*A critical account on π - π stacking in metal complexes with aromatic nitrogen-containing ligands*", J. Chem. Soc. Dalton Trans., 2000, 3885-3896.
- [20] Bruker (2007) APEX2, SAINT & SADABS Bruker AXS Inc., Madison, Wisconsin, USA.
- [21] Sheldrick G.M., "*A short history of SHELX*", Acta Cryst., A64, 2008, 112-122.
- [22] Bhaskaran S., Selvanayagan S., Velmurugan D., Ravikumar K., Arumugan N., Raghunathan R., "*Crystal Structure of 1-N-Methyl-2[1'-N-(p-methoxyphenyl)-3'-phenylazetidine-2'-one]-3-(p-methoxybenzoyl)spiro[4.4"]-oxindole-pyrrolidine*", Anal. Sci., 22, 2006, x57-x58.