

## Die Kristallstruktur von Xanthokon, $\text{Ag}_3\text{AsS}_3^*$

VON P. ENGEL UND W. NOWACKI

Abteilung für Kristallographie und Strukturlehre, Universität Bern, CH-3012 Bern, Sahlistr. 6, Schweiz

(Eingegangen am 8. Juni 1967)

Xanthoconite,  $\text{Ag}_3\text{AsS}_3$ , crystallizes in  $C2/c$  ( $C_{2h}^6$ ) with  $a_0 = 12,00 \pm 0,01$ ,  $b_0 = 6,26 \pm 0,01$ ,  $c_0 = 17,08 \pm 0,01$  Å,  $\beta_0 = 110^\circ 00' \pm 20'$  and  $Z = 8$  formula units per unit cell;  $d_x = 5,53$  g.cm<sup>-3</sup>. The structure was found by direct interpretation of a three-dimensional Patterson synthesis, considering the vector sets between two points  $a$  and  $b$  in space groups  $Cc$  ( $C_2^2$ ) and  $C2/c$  ( $C_{2h}^6$ ). The structure is composed of double sheets || (001) (= twin plane) consisting of  $\text{AsS}_3$  pyramids pointing with their As apices always outward, connected by Ag(1) and Ag(3) atoms, the Ag(2) atoms holding the sheets together. The Ag(1) and Ag(3) atoms have a planar threefold coordination with Ag-S 2.45–2.60 Å, whereas the Ag(2) atoms show a pyramidal threefold coordination with Ag-S 2.48–2.76 Å. In addition each Ag(1) and Ag(3) has 1 Ag(2) at a distance of 2.95 and 3.07 Å respectively, but Ag(2) has in addition 1 Ag(1) at 2.95, 1 S(1) at 2.96, 1 Ag(3) at 3.07 and 1 Ag(2) at 3.09 Å ( $R = 13\%$ ).

### Einleitung

Xanthokon ist neben dem roten rhomboedrischen Proustit die relativ seltene monokline Modifikation von  $\text{Ag}_3\text{AsS}_3$ . Das gelbe Mineral tritt meistens in Form von kleinen Kristallen blättrig nach {001} auf. Eine grosse Anzahl von uns untersuchter Kristalle erwies sich durchwegs als nach {001} verzwilligt. In der Schweiz wurde Xanthokon zum ersten Male im Jahre 1964 in der Grube Lengenbach (Binnatal), zusammen mit Pyrit und Marrit  $\text{PbAgAsS}_3$ , gefunden (Nowacki, Kunz & Marumo, 1964). Diese Kristalle erwiesen sich als für eine vollständige Strukturbestimmung ungeeignet (stark verwachsen und verzwilligt).

### Experimentelles

Von verschiedenen Seiten (vgl. Schluss der Arbeit) wurden uns Stufen mit Xanthokon [von Freiberg (Sachsen), Joachimsthal, Schemnitz und Chihuahua (Mexico)] zur Untersuchung zur Verfügung gestellt, von denen einige sich als Feuerblende,  $\text{Ag}_3\text{SbS}_3$ , erwiesen. Nach Spalten der kleinen Kristalle der Stufe BM. Nr. 68653 (British Museum) parallel der Zwillings-ebene (001) gelang es, einen winzigen Einkristall zu isolieren. Die Ecken liessen sich noch etwas abschleifen, so dass der Kristall schliesslich eine grob kugelige Form von 0,08 mm Durchmesser aufwies. Die gemessenen Gitterkonstanten  $a_0 = 12,00 \pm 0,01$ ,  $b_0 = 6,26 \pm 0,01$ ,  $c_0 = 17,08 \pm 0,01$  Å,  $\beta_0 = 110^\circ 00' \pm 20'$  stimmen gut mit den Werten von Peacock (1950) und von Nowacki *et al.* (1964) [ $a_0 = 11,992 \pm 0,005$ ,  $b_0 = 6,264 \pm 0,002$ ,  $c_0 = 17,048 \pm 0,007$  Å,  $\beta_0 = 110^\circ 45' \pm 10'$ ] überein. Die beiden möglichen Raumgruppen sind  $Cc$  und  $C2/c$ . Da nicht genügend Material zur Verfügung stand, konnte eine Dichtebestimmung nicht durchgeführt werden. Der von Miers & Prior (1893) bestimmte Wert von

5,54 g.cm<sup>-3</sup> wurde übernommen. Acht Formeleinheiten  $\text{Ag}_3\text{AsS}_3$  befinden sich in der Elementarzelle.  $d_x$  wird gleich 5,53 g.cm<sup>-3</sup>. Am Kristall BM. Nr. 68653 ergab eine Analyse mittels der Elektronen-Mikrosonde (G. Burri, Anal. Nr. 53, 19. Nov. 1965) die Werte: Ag 64 (65,4), As 14 (15,1), S 21,5 (19,5),  $\Sigma$  99,5 (100,0)% [Werte in ( ) = theoretisch für  $\text{Ag}_3\text{AsS}_3$ ].

1122 Reflexe wurden mit dem Supper-Pace Autodiffraktometer mit Cu  $K\alpha$ -Strahlung gemessen. Von diesen waren 353 nicht beobachtet. Als Kriterium galt  $I \geq 2,33 \cdot \sigma(I)$  [ $\sigma(I)$  = Streuung von  $I$ ] für beobachtete Reflexe. Die Daten wurden für den Lorentz-Polarisations- und den Absorptionsfaktor entsprechend einer Kugel ( $\mu \cdot R = 4,1$ ) korrigiert.

### Strukturbestimmung

Eine dreidimensionale Pattersonsumme ergab, dass die meisten hohen Maxima im oder nahe dem Schnitt  $(x, 0, z)$  und  $(x, \frac{1}{2}, z)$  liegen. Wegen dieser besonderen Anordnung war eine eindeutige Bestimmung der Harkermaxima nicht möglich. Das Durchrechnen aller Kombinationen schien sehr zeitraubend und zudem war gar nicht gewiss, ob überhaupt Harkermaxima vorhanden sind, da sowohl die Raumgruppe  $C2/c$  ( $C_{2h}^6$ ) wie auch  $Cc$  ( $C_2^2$ ) möglich sind. Es wurde daher vorerst einmal untersucht, inwieweit sich die Pattersondarstellung der beiden Raumgruppen unterscheiden. Für zwei Punkte  $a$  und  $b$  liess sich der dazugehörige Vektorsatz für jede der beiden Raumgruppen berechnen. In Fig. 1(a) ist der Vektorsatz für die Raumgruppe  $Cc$  und in Fig. 1(b) derjenige für die Raumgruppe  $C2/c$  gezeichnet. Die Anzahl der Pattersonmaxima für Punkte in allgemeiner Lage beträgt  $2 + N + \frac{1}{2}N(N-4)$  für  $Cc$  und  $2 + 2N + \frac{1}{4}N(N-8)$  für  $C2/c$ .  $N$  bedeutet die Anzahl Atome pro Elementarzelle, wobei jeweils vier bzw. acht untereinander äquivalent sein müssen. Der Vektorsatz der nichtzentrischen Raumgruppe unterscheidet sich von dem der zentrischen (Buerger,

\* Mitteilung Nr. 176. – Teil 35 über Sulfide und Sulfosalze.

1959) durch Anzahl und Höhe der Maxima. Für eine genügend grosse Anzahl gleichmässig verteilter Atome von ungefähr gleicher Elektronenzahl zeigt sich dieser Unterschied durch verschiedene Werte des  $[N(z)-z]$  Testes. Für das Mineral Xanthokon sind jedoch wesentliche Voraussetzungen für diesen Test nicht erfüllt. Daher wurde nun noch besonders untersucht, inwieweit sich die Vektorsätze für die beiden Raumgruppen in ihrer geometrischen Anordnung unterscheiden, da damit eine Entscheidung unabhängig von der Anzahl und der Art der Atome gefällt werden könnte. Aus Fig. 1(b) ist sofort ersichtlich, dass im Vektorsatz für die Raumgruppe  $C2/c$  jeweils acht der höchsten Maxima in einer ganz bestimmten Konfiguration zueinander stehen. Zwei  $aa$ - und zwei  $bb$ -Maxima bilden die Eckpunkte eines Parallelogrammes. Auf den Seitenmitten liegen jeweils  $ab$ -Maxima. Die ausgezeichnete Lage dieser Maxima ist durch die Symmetrie der Raumgruppe  $C2/c$  bedingt. In Fig. 1(b) ist ein solches Parallelogramm eingezeichnet.

Von der dreidimensionalen Pattersonsummutation wurde eine Projektion auf die  $xz$ -Ebene gezeichnet. Es zeigte sich nun, dass von je zwei unabhängigen Schweratomen die entsprechenden acht Maxima mit dieser ausgezeichneten Konfiguration leicht gefunden werden konnten, da die vier Maxima in den Ecken im Schnitt ( $x0z$ ) liegen. Damit war gleichzeitig die Lage der vier unabhängigen Schweratome bestimmt und zugleich

Tabelle 1. *Koordinaten mit Standardabweichungen der Atome von Xanthokon in Bruchteilen der Kantenlänge*

Die Werte sind mit  $10^4$  multipliziert.

	$x$	$\sigma(x)$	$y$	$\sigma(y)$	$z$	$\sigma(z)$
Ag(1)	1414	4	0347	7	2160	2
Ag(2)	0632	4	9402	6	4386	3
Ag(3)	3609	4	0457	6	1370	3
As	3573	4	0553	6	4292	2
S(1)	1542	7	1943	15	0842	6
S(2)	4240	8	1427	15	3272	6
S(3)	1655	7	1448	14	3588	5

Tabelle 2. *Temperaturfaktoren mit Standardabweichungen der Atome von Xanthokon für die Gleichung  $T = \exp[-(h^2B_{11} + k^2B_{22} + l^2B_{33} + hk2B_{12} + kl2B_{23} + lh2B_{13})]$*

Die Werte sind mit  $10^4$  multipliziert.

	$B_{11}$	$\sigma(B_{11})$	$2B_{12}$	$\sigma(2B_{12})$	$2B_{13}$	$\sigma(2B_{13})$	$B_{22}$	$\sigma(B_{22})$	$2B_{23}$	$\sigma(2B_{23})$	$B_{33}$	$\sigma(B_{33})$
Ag(1)	0096	9	-0025	9	0031	4	0319	30	-0020	6	0028	4
Ag(2)	0082	9	-0057	9	0029	4	0309	29	0044	6	0035	4
Ag(3)	0062	9	0005	7	0027	5	0208	29	-0001	7	0067	5
As	0044	9	-0009	7	0009	4	0123	29	-0004	5	0020	4
S(1)	0037	10	-0030	17	0008	7	0128	34	-0001	12	0019	5
S(2)	0046	10	0008	18	0016	8	0153	34	0021	13	0020	5
S(3)	0028	10	-0003	16	0009	7	0129	34	0006	12	0018	5

Tabelle 3. *Achsenlängen und Richtungscosinus (bezogen auf die Achsen  $a, b, c^*$ ) der Vibrationsellipsoide in Xanthokon*

	$B_{\text{iso}}$ ( $\text{\AA}^{-2}$ )	Axe	$B$ ( $\text{\AA}^{-2}$ )	Länge ( $\text{\AA}$ )	$\cos \alpha_1$	$\cos \alpha_2$	$\cos \alpha_3$
Ag(1)	4,3	1	4,8	0,247	0,7247	0,6806	-0,1072
		2	5,3	0,259	-0,6887	0,7106	-0,1441
		3	2,8	0,189	-0,0219	0,1783	0,9837
Ag(2)	4,2	1	3,7	0,216	0,7419	0,3109	0,5941
		2	6,1	0,278	-0,5699	0,7592	0,3144
		3	3,0	0,194	-0,3533	-0,5718	0,7404
Ag(3)	4,6	1	3,1	0,197	0,8677	-0,3339	0,3683
		2	3,3	0,204	0,3033	0,9425	0,1400
		3	7,5	0,309	-0,3939	-0,0097	0,9191
As	2,1	1	2,8	0,187	0,8861	-0,0604	-0,4595
		2	2,0	0,159	-0,1722	0,8776	-0,4474
		3	1,7	0,146	0,4303	0,4756	0,7672
S(1)	2,1	1	2,7	0,184	0,7672	-0,4685	-0,4382
		2	1,4	0,135	0,6407	0,5260	0,5593
		3	2,0	0,160	-0,0315	-0,7098	0,7037
S(2)	2,3	1	2,4	0,176	0,8510	0,5030	0,1511
		2	2,7	0,186	-0,5003	0,6891	0,5242
		3	1,7	0,149	0,1596	-0,5217	0,8381
S(3)	1,8	1	1,4	0,132	0,7987	-0,0054	0,6016
		2	1,9	0,156	0,3564	0,8099	-0,4659
		3	2,2	0,168	-0,4847	0,5866	0,6488

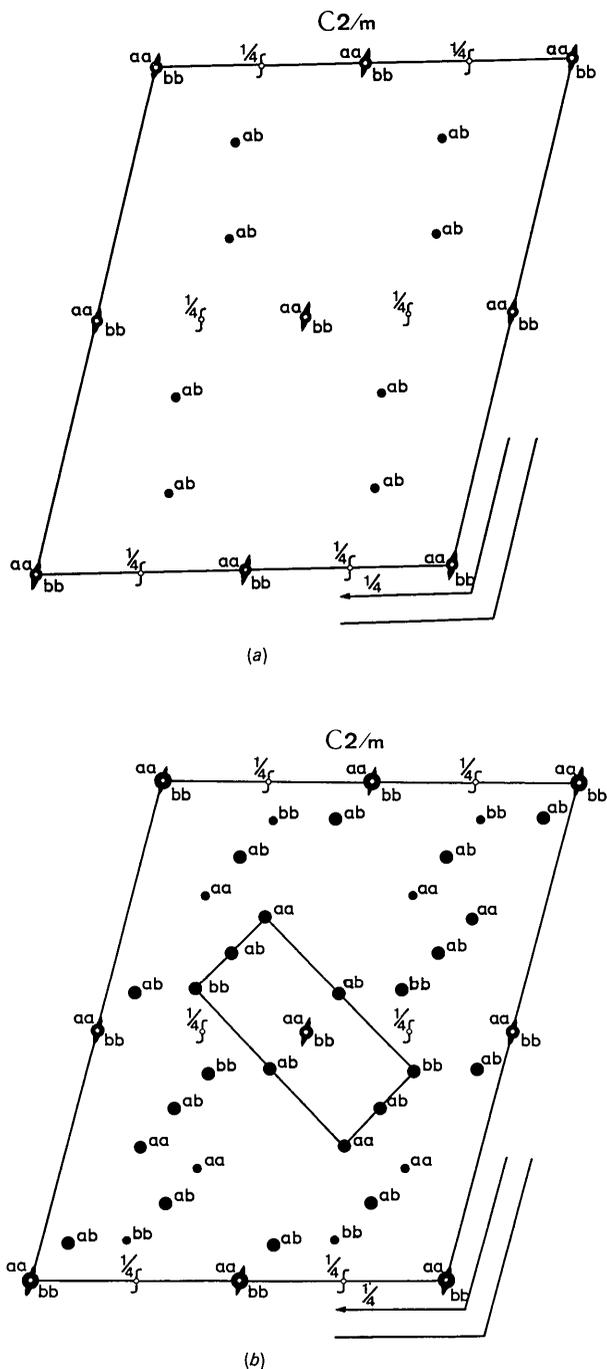


Fig. 1. (a) Darstellung des Vektorsatzes für die Punkte *a* und *b* in der Raumgruppe *Cc*. – Die Vektoren *aa*, *bb*, *aa*, *bb*, *ab*, *ab* mit den Multiplizitäten 4, 4, 2, 2, 2, 2, haben die Koordinaten 0, 0, 0; 0, 0, 0; 0, 2*y*<sub>1</sub>,  $\frac{1}{2}$ ; 0, 2*y*<sub>2</sub>,  $\frac{1}{2}$ ; *u*, *v*, *w*; *u*, *n*, *w* +  $\frac{1}{2}$  und symmetrisch äquivalente, mit *u* = *x*<sub>1</sub> – *x*<sub>2</sub>, *v* = *y*<sub>1</sub> – *y*<sub>2</sub>, *w* = *z*<sub>1</sub> – *z*<sub>2</sub>, *m* = *x*<sub>1</sub> + *x*<sub>2</sub>, *n* = *y*<sub>1</sub> + *y*<sub>2</sub>, *p* = *z*<sub>1</sub> + *z*<sub>2</sub>. (b) Darstellung des Vektorsatzes für die Punkte *a* und *b* in der Raumgruppe *C2/c*. – Die Vektoren *aa*, *bb*, *aa\**, *bb\**, *aa*, *bb*, *aa*, *bb*, *ab\**, *ab*, *ab\**, *ab* mit den Multiplizitäten 8, 8, 4, 4, 4, 4, 2, 2, 4, 4, 4, 4 haben die Koordinaten 0, 0, 0; 0, 0, 0; 2*x*<sub>1</sub>, 0,  $\frac{1}{2}$  + 2*z*<sub>1</sub>; 2*x*<sub>2</sub>, 0,  $\frac{1}{2}$  + 2*z*<sub>2</sub>; 0, 2*y*<sub>1</sub>,  $\frac{1}{2}$ ; 0, 2*y*<sub>2</sub>,  $\frac{1}{2}$ ; 2*x*<sub>1</sub>, 2*y*<sub>1</sub>, 2*z*<sub>1</sub>; 2*x*<sub>2</sub>, 2*y*<sub>2</sub>, 2*z*<sub>2</sub>; *u*, *v*, *w*; *m*, *n*, *p*; *m*, *v*, *p* +  $\frac{1}{2}$ ; *u*, *n*, *w* +  $\frac{1}{2}$  und symmetrisch äquivalente, mit *u* = *x*<sub>1</sub> – *x*<sub>2</sub>, u.s.w. wie bei (a).

konnte die Raumgruppe *C2/c* als die richtige erkannt werden. Die Lage der Schwefelatome ergab sich sofort nach der Schweratommethode. Die routinemässige Verfeinerung vorerst mit isotropen und anschliessend mit anisotropen Temperaturfaktoren auf der IBM 1620 senkte den *R*-Wert auf 13% für alle 1125 Reflexe. In Tabelle 1 sind die Atomparameter, in Tabelle 2 die anisotropen Temperaturkoeffizienten, in Tabelle 3 die Richtungscosinus der Hauptachsen der Temperatur-ellipsoide und in Tabelle 4 die Bindungs-abstände und -winkel aufgeführt. Eine *F*<sub>0</sub>, *F*<sub>c</sub>-Tabelle kann auf Wunsch von den Autoren zur Verfügung gestellt werden.

**Beschreibung der Struktur**

Xanthokon besitzt eine ausgeprägte Schichtstruktur parallel (001) (= Zwillings ebene!) (Fig. 2). Die Arsenatome besitzen eine trigonale pyramidale Koordination von drei Schwefelatomen, wie sie für Sulfosalze charakteristisch ist. Die (As–S)-Abstände liegen zwischen 2,23 und 2,27 Å [bei Proustite 2,25<sub>4</sub> Å (Engel & Nowacki, 1966)]. Die Schichten sind beidseitig von solchen isolierten AsS<sub>3</sub>-Pyramiden derart begrenzt, dass immer die Spitze mit dem Arsen nach aussen weist. Die einzelnen AsS<sub>3</sub>-Pyramiden, sowie die Schichten, sind untereinander über die Silberatome verbunden. Die Koordination der Silberatome ist in Fig. 3 dargestellt. Diese sind jeweils von drei Schwefelatomen in Ab-

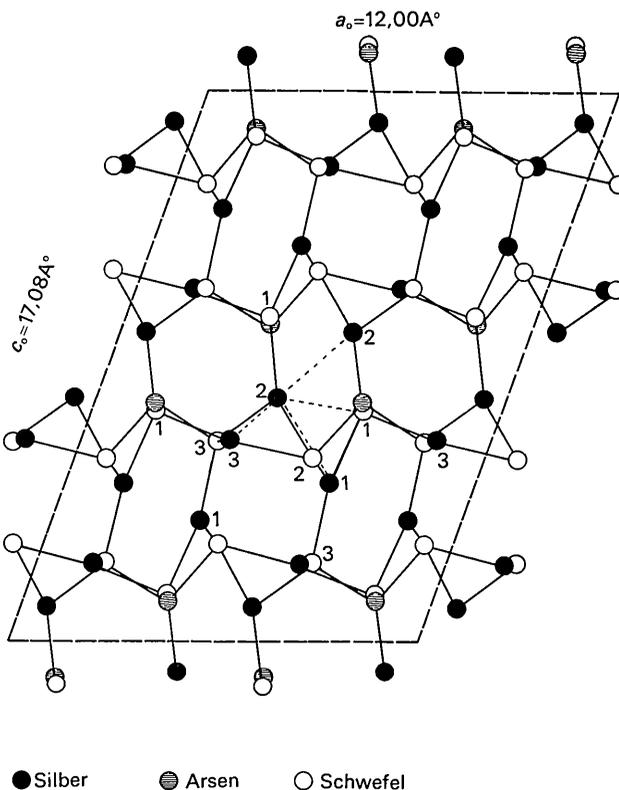


Fig. 2. Xanthokonstruktur, Projektion || *b*.

ständen zwischen 2,45 und 2,76 Å [bei Proustit 2,44<sub>8</sub> und 2,44<sub>3</sub> Å] umgeben. Bei zwei Silberatomen (1, 3) ist die Koordination eben, während beim dritten (2) die Koordination leicht pyramidal ist. Diese ebene Koordination der Silberatome konnte vor kurzem ebenfalls bei den beiden Sulfosalzen Marrit,  $\text{PbAgAsS}_3$  (Wuensch & Nowacki, 1967) und Hatchit,  $\text{PbTlAgAs}_2$ -

$\text{S}_5$  (hier flach-pyramidal) (Marumo & Nowacki, 1967) festgestellt werden.

Ein Ag(1)-Atom hat ausserdem ein Ag(2) im Abstand 2,95 Å und ein Ag(3) zudem ein Ag(2) in 3,07 Å. Diese (Ag-Ag)-Abstände stehen schief zur Ebene der koordinierten Schwefelatome. Das Ag(2) weist ausser den drei S (pyramidal) ein Ag(1) im Abstand 2,95 Å,

Tabelle 4. Zwischenatomare Abstände (Å) und Bindungswinkel in Xanthokon

	Ag(1)	Ag(2)	Ag(3)	As	S(1)	S(2)	S(3)
Ag(1)	3,96	2,95	3,36	3,64	2,52	2,60	2,45
Ag(2)	2,95	3,09	3,07	3,41	2,48	2,76	2,49
					2,96		
Ag(3)	3,36	3,07	4,10	3,59	2,50	2,51	2,53
As	3,64	3,41	3,59	3,48	2,27	2,23	2,25
S(1)	2,52	2,48	2,50	2,27	4,33	3,47	3,47
					2,96		
S(2)	2,60	2,76	2,51	2,23	3,47	3,70	3,33
S(3)	2,45	2,49	2,53	2,25	3,47	3,33	4,36
S(1)-Ag(1)-S(2)		103,3°			As-S(1)-Ag(1)		117,7°
S(1)-Ag(1)-S(3)		139,0			As-S(1)-Ag(2)		104,4
S(2)-Ag(1)-S(3)		117,6			As-S(1)-Ag(3)		115,1
					Ag(1)-S(1)-Ag(2)		128,0
					Ag(1)-S(1)-Ag(3)		84,3
S(1)-Ag(2)-S(2)		113,8			As-S(2)-Ag(1)		107,3
S(1)-Ag(2)-S(3)		126,7			As-S(2)-Ag(2)		85,7
S(2)-Ag(2)-S(3)		105,4			As-S(2)-Ag(3)		112,1
					Ag(1)-S(2)-Ag(2)		66,8
					Ag(1)-S(2)-Ag(3)		118,4
S(1)-Ag(3)-S(2)		143,3			As-S(3)-Ag(1)		101,2
S(1)-Ag(3)-S(3)		105,1			As-S(3)-Ag(2)		100,9
S(2)-Ag(3)-S(3)		111,2			As-S(3)-Ag(3)		110,2
					Ag(1)-S(3)-Ag(2)		119,6
					Ag(1)-S(3)-Ag(3)		109,6
S(1)-As-S(2)		101,0					
S(1)-As-S(3)		100,4					
S(2)-As-S(3)		96,1					

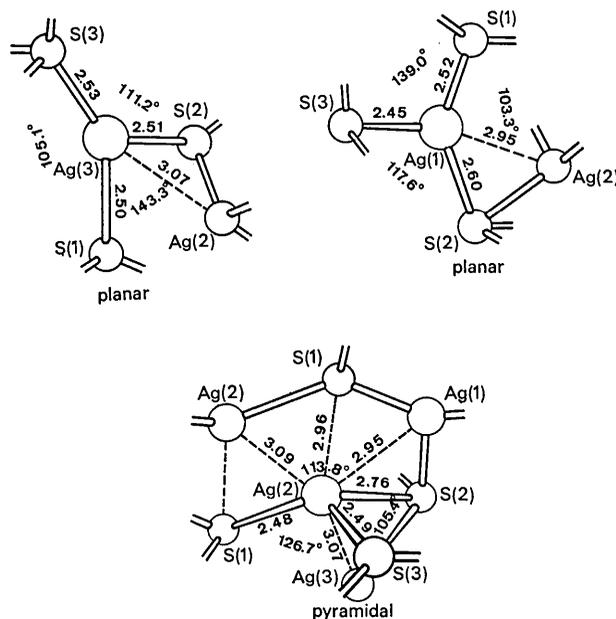


Fig. 3. Xanthokonstruktur, Koordination der Silberatome.

ein Ag(3) in 3,07 Å und ein Ag(2) in 3,09 Å auf. Die Temperaturkoeffizienten der Ag sind gross und stark anisotrop (grosse Schwingungsamplituden normal zur Ebene der drei koordinierten S).

S(1) weist ein stark deformiertes, S(3) ein ziemlich regelmässiges tetraedrisches und S(2) ein polares, einseitiges Koordinationsschema auf. Die (S–Ag, As)-Abstände sind aus Tabelle 4 ersichtlich.

Diese Modifikation von  $\text{Ag}_3\text{AsS}_3$  ist offensichtlich instabiler als Proustit (selteneres Vorkommen von Xanthokon, dreierlei kristallographisch verschiedene Ag-Atome mit z.T. ungewöhnlicher Koordination).

Unser herzlicher Dank gilt mehreren Kollegen, welche uns in liebenswürdiger Weise Xanthokon-Kristalle zur Verfügung gestellt haben, nämlich: Dr G. F. Claringbull (British Museum of Natural History, London), Prof. Cl. Frondel (Geol. Museum, Harvard University, Cambridge, Mass.), Prof. W. Scholler (Naturhistorisches Museum, Wien), Dr G. Switzer (Mu-

seum of Natural History, Washington, D.C.) und Dr H. A. Stalder (Naturhistorisches Museum, Bern). Herrn G. Burri danken wir für die Mikrosondenanalyse, dem Schweizerischen Nationalfonds (Gesuch Nr. 2609), der Kommission zur Förderung der wissenschaftlichen Forschung (Projekt Nr. 386) und der Stiftung Entwicklungsfonds Seltene Metalle für die Unterstützung bestens.

#### Literatur

- BUERGER, M. J. (1959). *Vector Space and its Application in Crystal Structure Investigation*. New York: John Wiley.  
 ENGEL, P. & NOWACKI, W. (1966). *Neues Jb. Min., Mh.* 181.  
 MARUMO, F. & NOWACKI, W. (1967). *Z. Kristallogr.* Im Druck.  
 MIERS, H. A. & PRIOR (1893). *Miner. Mag.* 10, 185.  
 NOWACKI, W., KUNZ, V. & MARUMO, F. (1964). *Schweiz. Min. Petr. Mitt.* 44, 129.  
 PEACOCK, M. A. (1950). *Miner. Mag.* 28, 346.  
 WUENSCH, B. J. & NOWACKI, W. (1967). *Z. Kristallogr.* 125, 182.

*Acta Cryst.* (1968). B24, 81

## The Crystal Structure of the Alkaloid Reserpine, $\text{C}_{33}\text{H}_{40}\text{N}_2\text{O}_9$

BY I. L. KARLE AND J. KARLE

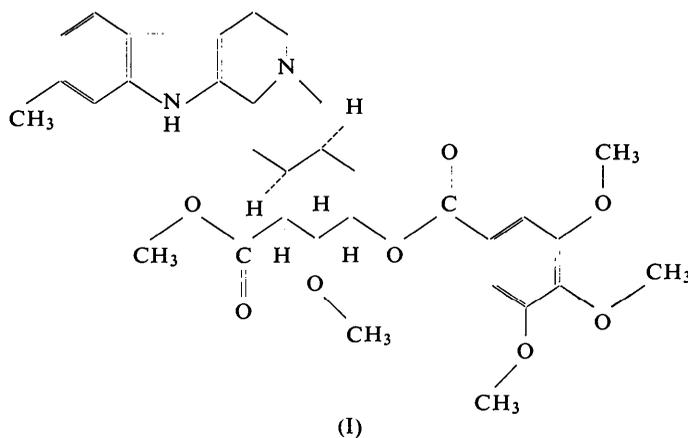
Naval Research Laboratory, Washington, D.C. 20390, U.S.A.

(Received 15 May 1967)

Reserpine crystallizes in space group  $P2_1$  with  $Z=2$  and cell parameters  $a=14.45$ ,  $b=8.98$ ,  $c=13.37$  Å and  $\beta=115.2^\circ$ . The asymmetric unit contains forty-four atoms (excluding hydrogen) of nearly equal atomic number. The structure was solved by obtaining phases directly from the magnitudes of the structure factors. The application of the symbolic addition procedure yielded a partial structure and the further use of the tangent formula based upon a recycling procedure using the partial structure yielded the complete structure. The configuration (not absolute) of the molecule as determined by chemical means is confirmed by the X-ray results.

### Introduction

The Indian snake-root, *Rauwolfia serpentina* Benth., contains a large number of closely related alkaloids. One of these, reserpine, has been found to be an important and effective drug for the treatment of hypertensive, nervous and mental disorders. Reserpine was isolated in 1952 (Müller, Schlittler & Bein) and its structural formula (I) was established soon afterwards (Dorfman, Huebner, MacPhillamy, Schlittler & St. André, 1953; Dorfman, Furlenmeier, Huebner, Lucas, MacPhillamy, Mueller, Schlittler, Schwyzer & St. André, 1954). The stereochemistry has been established by chemical means (Aldrich, Diassi, Dickel, Dylion, Hance, Huebner, Korzun, Kuehne, Liu, MacPhillamy, Robb, Roychaudhuri, Schlittler, St. André, van Tamelen, Weissenborn, Wenkert & Wintersteiner, 1959) and a total synthesis has been performed (Woodward, Bader, Bickel, Frye & Kierstead, 1958). There remained to show only the spatial arrangement of the atoms in the molecule and the crystal.



This problem provided an opportunity to apply the symbolic addition procedure for noncentrosymmetric space groups (Karle & Karle, 1966a) which yielded a partial structure. Using the phase information from the partial structure in a recycling procedure (Karle, 1968) with the tangent formula (Karle & Hauptman,