

Tableau 2. Principales distances (Å) et principaux angles (°)

S—O(1)	1,496 (3)	C(3)—C(7)	1,539 (4)
S—C(1)	1,823 (2)	C(3)—C(11)	1,531 (4)
S—C(8)	1,791 (4)	C(4)—C(5)	1,523 (4)
O(2)—C(1)	1,424 (3)	C(5)—C(6)	1,534 (4)
O(2)—C(2)	1,455 (3)	C(5)—C(9)	1,540 (5)
C(1)—C(2)	1,461 (4)	C(5)—C(10)	1,529 (5)
C(2)—C(3)	1,507 (3)	C(6)—C(11)	1,514 (4)
C(3)—C(4)	1,544 (4)		
S—C(1)—O(2)	113,0 (2)	C(4)—C(3)—C(7)	109,0 (2)
S—C(1)—C(2)	117,0 (1)	C(4)—C(3)—C(11)	112,8 (2)
S—C(1)—C(6)	114,9 (2)	C(7)—C(3)—C(11)	108,1 (2)
O(1)—S—C(1)	106,5 (1)	C(3)—C(4)—C(5)	117,6 (2)
O(1)—S—C(8)	106,9 (2)	C(4)—C(5)—C(6)	109,6 (2)
C(1)—S—C(8)	95,8 (1)	C(4)—C(5)—C(9)	107,4 (3)
C(1)—O(2)—C(2)	61,0 (2)	C(4)—C(5)—C(10)	113,9 (2)
O(2)—C(2)—C(1)	58,4 (2)	C(6)—C(5)—C(9)	108,3 (2)
C(2)—C(1)—O(2)	60,6 (2)	C(6)—C(5)—C(10)	109,3 (3)
C(1)—C(2)—C(3)	122,4 (2)	C(9)—C(5)—C(10)	108,3 (3)
O(2)—C(2)—C(3)	116,7 (2)	C(5)—C(6)—C(1)	112,4 (2)
C(2)—C(3)—C(4)	110,2 (2)	C(6)—C(1)—O(2)	116,7 (2)
C(2)—C(3)—C(7)	108,0 (2)	C(6)—C(1)—C(2)	122,8 (2)
C(2)—C(3)—C(11)	108,7 (2)		

La conformation du groupement méthylsulfinyle dans ce composé confère aux hydrogènes H(5) et H(6) liés au C(6) un environnement chimique très peu différencié et engendre, en RMN ¹H, un singulet pour ces deux hydrogènes et un déblindage du

proton H(1) lié au C(2) si l'on compare à l'isomère (1) [3,37 contre 3,22 p.p.m. pour respectivement les stéréoisomères (2) et (1)].

En conclusion, les structures (1) et (2) présentent le groupe méthyle lié au soufre face à l'oxygène du cycle époxyde et ne diffèrent que par les positions relatives de la liaison sulfoxyde. L'accord entre les résultats fournis par les deux méthodes utilisées dans l'identification de ces composés isomères montre que les structures d'époxydes analogues, substitués par un groupement méthylsulfinyle, peuvent être simplement appréhendées par RMN ¹H.

Références

- BARILLIER, D., STROBEL, M. P., MORIN, L. & PAQUER, D. (1982). *Nouv. J. Chim.* **4**, 201–206.
- BARILLIER, D. & VAZEUX, M. (1986). *J. Org. Chem.* **51**, 2276–2285.
- CAHN, R. S., INGOLD, S. C. & PRELOG, V. (1966). *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.* **5**, 385–415.
- LECLAIRE, A., BARILLIER, D. & VAZEUX, M. (1987). *Acta Cryst.* **C43**, 947–949.
- MAIN, P., FISKE, S. J., HULL, S. E., LESSINGER, L., GERMAIN, G., DECLERCO, J.-P. & WOOLFSON, M. M. (1982). *MULTAN11/82. A System of Computer Programs for the Automatic Solution of Crystal Structures from X-ray Diffraction Data*. Univ. de York, Angleterre, et de Louvain, Belgique.

Acta Cryst. (1991). **C47**, 148–151

Structures des Tétraméthyl-3,3,5,5 Oxa-7 Bicyclo[4.1.0]heptanyl-1 Phényl Sulfoxide Diastéréoisomères

PAR ANDRÉ LECLAIRE

Laboratoire de Cristallographie et Sciences des Matériaux, CRISMAT - ISMRa, URA 1318, Bd du Maréchal Juin, 14032 Caen CEDEX, France

ET DANIEL BARILLIER ET MICHEL VAZEUX

Laboratoire des Composés Thioorganiques, UA 480, Université de Caen, 14032 Caen CEDEX, France

(Reçu le 23 juillet 1989, accepté le 6 mars 1990)

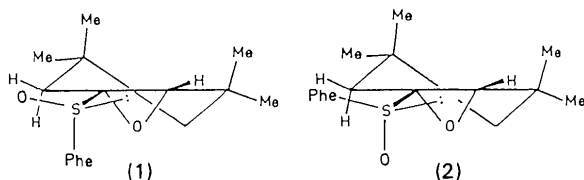
Abstract. (1): C₁₆H₂₂O₂S, *M_r* = 278·41, monoclinic, *P*2₁/*c*, *a* = 8·070 (2), *b* = 16·570 (2), *c* = 11·912 (2) Å, β = 106·28 (1)°, *V* = 1529·1 (6) Å³, *Z* = 4, *D_x* = 1·21 Mg m⁻³, λ(Mo *K*α) = 0·71073 Å, μ = 0·198 mm⁻¹, *F*(000) = 600, *T* = 293 K, *R* = 0·043 for 3030 independent reflections. (2): C₁₆H₂₂O₂S, *M_r* = 278·41, monoclinic, *P*2₁/*c*, *a* = 11·628 (1), *b* = 11·693 (2), *c* = 14·965 (2) Å, β = 131·60 (1)°, *V* = 1521·6 (6) Å³, *Z* = 4, *D_x* = 1·215 Mg m⁻³, λ(Mo *K*α) = 0·71073 Å, μ = 0·199 mm⁻¹, *F*(000) = 600, *T* = 293 K, *R* = 0·031 for 1087 independent reflections.

Simple C—C bonds in the six-membered ring are shorter near the epoxide ring. The difference between (1) and (2) comes from the inversion of the phenyl group and the sulfinyl oxygen from one compound to the other.

Introduction. Dans un travail antérieur, nous avons confirmé les structures des méthylsulfinyl-1 tétraméthyl-3,3,5,5 oxa-7 bicyclo[4.1.0]heptane diastéréoisomères (Leclaire, Barillier & Vazeux, 1987, 1991). De la même façon nous décrivons dans ce

mémoire, la stéréochimie d'époxy sulfoxydes analogues, le groupement méthyle lié à l'atome de soufre laissant la place à un phényle.

Le premier composé mentionné dans le titre de cet article est l'isomère le moins polaire [composé (1)] et, le second le plus polaire [composé (2)]. Les déterminations exactes de ces structures bicycliques s'inscrivent dans le cadre général d'une étude consacrée à la stéréochimie d'époxy sulfoxydes. En effet les stéréochimies de ces dérivés, en série acyclique et spiranique ne sont pas reportées dans la littérature.



Contrairement aux époxydes substitués par le groupe méthylsulfinyle, les deux composés (1) et (2) porteurs d'un groupe phénylsulfinyle présentent en RMN ^1H un système *AB* pour les deux hydrogènes liés au C(6) et le singulet, dû au proton du cycle époxyde, est à champ comparable. De plus, les effets induits par les solvants aromatiques sur les déplacements chimiques de ces différents protons sont peu différenciés. L'ensemble de ces résultats spectroscopiques nous a permis d'envisager les conformations des deux composés sans pouvoir les attribuer avec certitude à l'un ou l'autre isomère (Barillier & Vazeux, 1986). Pour pallier à l'insuffisance de la RMN dans l'identification des composés (1) et (2) nous avons entrepris leur étude cristallographique.

Partie expérimentale. Les composés (1) et (2) ont été préparés par action de l'ozone sur le phénylthio-1 tétraméthyl-3,3,5 cyclohexène et séparés par chromatographie sur gel de silice (Barillier & Vazeux, 1986). Paramètres de maille obtenus à partir de 25 réflexions sur CAD-4 Enraf-Nonius (Mo $K\alpha$ et monochromateur de graphite). Temps de mesure tel que $\sigma(I)/I < 0.018$ mais limité à 60 s. Absorption négligée, correction de L_p , contrôle de trois réflexions de référence toutes les 2000 s, variation inférieure à 3%.

Pour (1): cristal transparent en plaquettes; $1,08 \times 0,67 \times 0,16$ mm, mesures faites avec un balayage $\omega - \frac{4}{3}\theta$ de $(1 + 0,35\text{tg}\theta)^\circ$ et une ouverture de compteur de $(1 + \text{tg}\theta)$ mm. 7000 réflexions uniques, $-14 < h < 14$; $0 < k < 29$; $0 < l < 21$. La détermination et l'affinement de la structure réalisés avec 3030 réflexions dont $I > 3\sigma(I)$. Pour (2): cristal transparent; $0,28 \times 0,36 \times 0,12$ mm, mesures faites jusqu'à $\theta = 37^\circ$ avec un balayage $\omega - \theta$ de $(0,9 + 0,35\text{tg}\theta)^\circ$ et une ouverture de compteur de $(1 + \text{tg}\theta)$ mm. 5000 réflexions uniques, $-19 < h < 19$; $0 < k < 19$; $0 < l < 25$. La

Tableau 1. Coordonnées atomiques des isomères (1) et (2)

$$B_{\text{eq}} = (1/3)\sum_i \sum_j B_{ij} a_i^* a_j^* a_k^*$$

	x	y	z	$B_{\text{eq}}(\text{\AA}^2)$
(1)				
S	-0,08829 (5)	0,00518 (3)	0,13857 (4)	3,32 (0,01)
O(1)	-0,19914 (21)	-0,00490 (13)	0,01577 (11)	4,92 (0,04)
O(2)	0,11330 (17)	-0,09012 (9)	0,30276 (10)	3,80 (0,03)
C(1)	-0,00837 (18)	-0,09498 (9)	0,18955 (12)	2,80 (0,03)
C(2)	0,17701 (18)	-0,10690 (10)	0,20199 (14)	3,11 (0,03)
C(3)	0,25322 (20)	-0,18977 (11)	0,19876 (16)	3,52 (0,04)
C(4)	0,11767 (25)	-0,25604 (11)	0,19517 (19)	3,87 (0,04)
C(5)	-0,06802 (23)	-0,23882 (11)	0,12016 (18)	3,87 (0,04)
C(6)	-0,13677 (20)	-0,16289 (11)	0,16659 (17)	3,62 (0,04)
C(7)	0,40407 (31)	-0,20013 (18)	0,31054 (27)	5,78 (0,07)
C(8)	-0,23414 (19)	0,01852 (9)	0,22746 (14)	3,12 (0,03)
C(9)	-0,17612 (23)	0,01519 (13)	0,34884 (16)	4,04 (0,04)
C(10)	-0,29099 (30)	0,03225 (16)	0,41373 (19)	4,72 (0,05)
C(11)	-0,45989 (28)	0,05429 (14)	0,35712 (22)	4,60 (0,05)
C(12)	-0,51501 (23)	0,05839 (16)	0,23749 (22)	4,33 (0,05)
C(13)	-0,40241 (23)	0,04054 (11)	0,17058 (17)	3,77 (0,04)
C(14)	0,32847 (32)	-0,19283 (17)	0,09347 (26)	5,30 (0,07)
C(15)	-0,18141 (37)	-0,31071 (16)	0,13397 (38)	6,48 (0,09)
C(16)	-0,08290 (35)	-0,22687 (20)	-0,00998 (23)	5,67 (0,07)
(2)				
S	0,4655 (1)	0,1300 (1)	0,7082 (1)	4,37 (4)
O(1)	0,4156 (3)	0,0108 (3)	0,6604 (3)	6,31 (16)
O(2)	0,7503 (3)	0,1272 (3)	0,9253 (2)	4,39 (14)
C(1)	0,6743 (4)	0,1341 (4)	0,8015 (3)	3,33 (15)
C(2)	0,7537 (4)	0,2347 (3)	0,8788 (3)	3,52 (18)
C(3)	0,9081 (4)	0,2718 (3)	0,9215 (3)	3,50 (18)
C(4)	0,9762 (4)	0,1807 (3)	0,8938 (3)	3,68 (18)
C(5)	0,8663 (4)	0,1191 (4)	0,7729 (3)	3,82 (18)
C(6)	0,7391 (4)	0,0596 (3)	0,7623 (3)	3,82 (20)
C(7)	1,0205 (5)	0,2894 (4)	1,0577 (4)	5,16 (23)
C(8)	0,4189 (4)	0,2170 (3)	0,5897 (3)	3,45 (16)
C(9)	0,3811 (4)	0,1667 (3)	0,4901 (4)	4,43 (20)
C(10)	0,3487 (5)	0,2340 (4)	0,4004 (4)	5,27 (23)
C(11)	0,3504 (5)	0,3517 (4)	0,4096 (4)	5,22 (22)
C(12)	0,3834 (5)	0,4014 (4)	0,5075 (4)	4,88 (23)
C(13)	0,4187 (4)	0,3354 (4)	0,5987 (4)	4,10 (20)
C(14)	0,8857 (5)	0,3880 (4)	0,8640 (4)	5,10 (28)
C(15)	0,9586 (5)	0,0263 (4)	0,7713 (4)	5,76 (26)
C(16)	0,7922 (5)	0,1987 (4)	0,6653 (4)	4,88 (21)

détermination et l'affinement de la structure réalisés avec 1087 réflexions dont $I > 3\sigma(I)$.

Dans les deux cas les atomes de soufre, oxygène et carbone ont été localisés par les méthodes directes à l'aide du programme *MULTAN11/82* (Main, Fiske, Hull, Lessinger, Germain, Declercq & Woolfson, 1982). Hydrogènes localisés sur Fourier différence. L'affinement par moindres carrés (sur F avec matrice complète) des x, y, z, B_{iso} des hydrogènes et x, y, z, β_{ij} des autres atomes, avec une pondération $w = f(\sin\theta/\lambda)$ évaluée par le programme *POND* (A. Leclaire, 1980, non publié) conduit pour le composé (1) à $R = 0,043$, $wR = 0,045$, $S = 0,9$, $\Delta\rho < 0,4 \text{ e } \text{\AA}^{-3}$, $\Delta/\sigma < 0,2$ et aux paramètres du Tableau 1; et pour le composé (2) à $R = 0,031$, $wR = 0,036$, $S = 0,8$, $\Delta\rho < 0,4 \text{ e } \text{\AA}^{-3}$, $\Delta/\sigma < 0,4$ et aux paramètres du Tableau 1.* Facteurs de diffusion et dispersion anormale

* Les listes des facteurs de structure, des facteurs d'agitation thermique anisotrope et des paramètres des atomes d'hydrogène ont été déposées au dépôt d'archives de la British Library Document Supply Centre (Supplementary Publication No. SUP 53124: 32 pp.). On peut en obtenir des copies en s'adressant à: The Technical Editor, International Union of Crystallography, 5 Abbey Square, Chester CH1 2HU, Angleterre.

provenant des *International Tables for X-ray Crystallography* (1974, Tome IV, p. 72). Calculs réalisés sur IBM 3090 avec une adaptation locale des programmes classiques de calculs cristallographiques. Dessins obtenus à l'aide du programme *METRICDC* (A. Leclaire, 1985, non publié).

Discussion. Les Figs. 1 et 2 montrent les deux isomères (1) et (2) projetés selon la direction S—C(1). On observe que pour passer du composé (1) au composé (2) il suffit d'invertir l'oxygène du sulfinyle avec le groupement phényle, le doublet libre du soufre restant toujours localisé au voisinage de

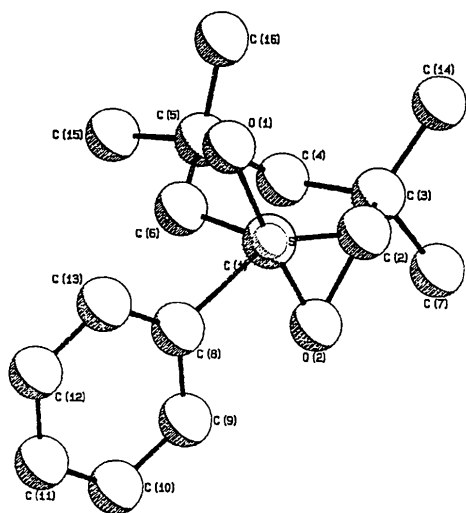


Fig. 1. Projection orthogonale du composé (1) C₁₆H₂₂O₂S selon la direction S—C(1).

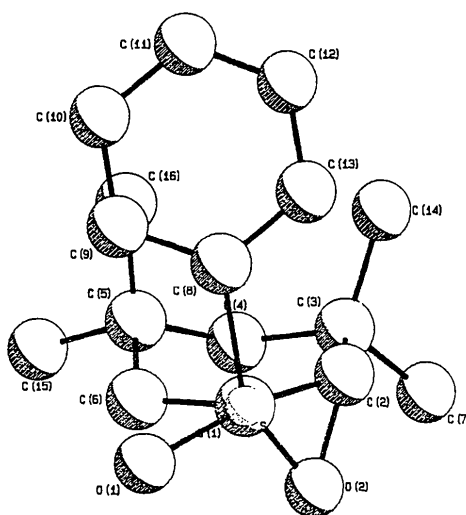


Fig. 2. Projection orthogonale du composé (2) C₁₆H₂₂O₂S selon la direction S—C(1).

Tableau 2. Principales distances (Å) et principaux angles (°)

	(1)	(2)
S—O(1)	1,495 (1)	1,497 (3)
S—C(1)	1,822 (2)	1,829 (4)
S—C(8)	1,804 (2)	1,789 (5)
O(2)—C(1)	1,431 (2)	1,430 (5)
O(2)—C(2)	1,459 (2)	1,449 (6)
C(1)—C(2)	1,475 (2)	1,468 (4)
C(2)—C(3)	1,510 (3)	1,515 (7)
C(3)—C(4)	1,542 (3)	1,540 (7)
C(3)—C(7)	1,541 (3)	1,538 (6)
C(3)—C(14)	1,540 (4)	1,535 (6)
C(4)—C(5)	1,541 (2)	1,535 (5)
C(5)—C(6)	1,539 (3)	1,544 (7)
C(5)—C(15)	1,539 (4)	1,538 (8)
C(5)—C(16)	1,534 (4)	1,536 (7)
C(6)—C(1)	1,502 (2)	1,502 (7)
C(8)—C(9)	1,390 (2)	1,375 (8)
C(9)—C(10)	1,392 (3)	1,374 (8)
C(10)—C(11)	1,390 (3)	1,382 (7)
C(11)—C(12)	1,370 (4)	1,373 (9)
C(12)—C(13)	1,389 (3)	1,372 (8)
C(13)—C(8)	1,386 (2)	1,392 (6)
S—C(1)—O(2)	110,4 (1)	110,7 (3)
S—C(1)—C(2)	114,2 (1)	116,4 (3)
S—C(1)—C(6)	117,4 (1)	116,3 (2)
O(1)—S—C(1)	106,5 (1)	106,6 (2)
O(1)—S—C(8)	106,2 (1)	106,8 (2)
C(1)—S—C(8)	98,3 (1)	96,7 (2)
C(1)—O(2)—C(2)	61,4 (1)	61,3 (3)
O(2)—C(2)—C(1)	58,4 (1)	58,7 (3)
C(2)—C(1)—O(2)	60,3 (1)	60,0 (4)
C(1)—C(2)—C(3)	121,9 (1)	120,8 (4)
O(2)—C(2)—C(3)	115,8 (1)	116,6 (3)
C(2)—C(3)—C(4)	111,0 (2)	117,4 (3)
C(2)—C(3)—C(7)	107,9 (2)	108,9 (4)
C(2)—C(3)—C(14)	107,9 (2)	107,7 (4)
C(4)—C(3)—C(7)	109,1 (2)	108,2 (4)
C(4)—C(3)—C(14)	113,1 (2)	112,8 (4)
C(7)—C(3)—C(14)	107,7 (2)	107,6 (3)
C(3)—C(4)—C(5)	116,8 (2)	117,9 (4)
C(4)—C(5)—C(6)	109,4 (1)	108,9 (4)
C(4)—C(5)—C(15)	107,8 (2)	107,8 (4)
C(4)—C(5)—C(16)	113,5 (2)	113,6 (4)
C(6)—C(5)—C(15)	108,0 (2)	108,2 (4)
C(6)—C(5)—C(16)	108,9 (2)	109,4 (4)
C(15)—C(5)—C(16)	109,1 (2)	108,9 (4)
C(1)—C(6)—C(5)	112,2 (2)	113,2 (3)
C(9)—C(8)—C(13)	121,1 (2)	120,7 (4)
C(8)—C(9)—C(10)	119,1 (2)	119,8 (4)
C(9)—C(10)—C(11)	119,9 (2)	119,7 (4)
C(10)—C(11)—C(12)	120,4 (2)	120,2 (4)
C(11)—C(12)—C(13)	120,6 (2)	120,7 (4)
C(8)—C(13)—C(12)	118,8 (2)	118,7 (4)

l'hydrogène du cycle époxyde. L'étude en RMN ¹H de ces deux isomères, basée sur les effets de solvants, suggère de tels environnements chimiques pour les deux hydrogènes H(4) et H(5) liés au C(6) et l'hydrogène H(1) commun aux deux cycles. Elle confère aux deux composés (1) et (2) des orientations *anti* et *syn* de la liaison S—O et du cycle époxyde par rapport au plan moyen de la molécule.

Ces résultats diffèrent de ceux obtenus avec les époxydes analogues, substitués par le groupe méthylsulfinyle. Pour ces derniers, les configurations relatives des diastéréoisomères résultent de l'intervention du doublet libre du soufre avec l'oxygène du sulfinyle, le substituant méthyle restant en place.

Par contre, comme le montrent les données du Tableau 2, les longueurs des liaisons C—C du cycle cyclohexyle [passant d'une longueur fortement raccourcie pour C(1)—C(2) à une longueur normale en

fonction de l'éloignement du cycle époxyde], des liaisons C—O du cycle époxyde et des liaisons S—C et S—O du groupement sulfinyle sont comparables dans les deux séries, méthyle et phényle.

Nous avons effectué le calcul du plan moyen C(1), C(2), C(3), C(6). Il montre que pour les composés (1) et (2) respectivement: (a) les atomes qui constituent le plan s'en éloignent au maximum de 0,014 et 0,008 Å; (b) le C(4) s'en écarte de 0,22 et 0,23 Å (au dessous) et le C(5) de 0,50 et 0,45 Å (au dessus), les atomes C(5) et O(2) étant situés de part et d'autre de ce plan. Ces résultats indiquent que le cyclohexyle a une conformation proche d'une demi-chaise.

Les résultats de ce travail précisent la conformation *anti* de l'isomère le moins polaire et la conformation *syn* du plus polaire et indiquent pour chacun d'eux, qu'elles sont identiques à l'état cristallisé et en solution. L'étude comparative de la stéréochimie d'époxydes diastéréoisomères dans la série bicyclo-

[4.1.0]heptane substitués par des groupements CH₃S(O) ou C₆H₅S(O) montre que pour ces deux classes d'époxydes: (a) les composés les moins polaires ont les mêmes configurations relatives et conformations et (b) les composés les polaires ont des configurations relatives identiques mais des conformations différentes.

Références

- BARILLIER, D. & VAZEUX, M. (1986). *J. Org. Chem.* **51**, 2276–2285.
 LECLAIRE, A., BARILLIER, D. & VAZEUX, M. (1987). *Acta Cryst.* **C43**, 947–949.
 LECLAIRE, A., BARILLIER, D. & VAZEUX, M. (1991). *Acta Cryst.* **C47**, 146–148.
 MAIN, P., FISKE, S. J., HULL, S. E., LESSINGER, L., GERMAIN, G., DECLERCQ, J.-P. & WOOLFSON, M. M. (1982). *MULTAN11/82. A System of Computer Programs for the Automatic Solution of Crystal Structures from X-ray Diffraction Data*. Univ. de York, Angleterre, et de Louvain, Belgique.

Acta Cryst. (1991). **C47**, 151–153

Structure of *N,N,N',N'*-Tetramethylethylenediammonium Dibromide

BY THEODORE A. ANNAN, RAJ K. CHADHA* AND DENNIS G. TUCK†

Department of Chemistry and Biochemistry, University of Windsor, Windsor, Ontario, Canada N9B 3P4

(Received 5 February 1990; accepted 3 April 1990)

Abstract. C₆H₁₈N₂²⁺2Br⁻, *M_r* = 278.05, monoclinic, *P*2₁/*c*, *a* = 5.479 (2), *b* = 10.827 (5), *c* = 9.137 (4) Å, β = 95.5 (4)°, *V* = 539.5 (5) Å³, *Z* = 2, *D_m* = 1.69, *D_x* = 1.71 g cm⁻³, λ(Mo Kα) = 0.71069 Å, μ = 38.85 cm⁻¹, *F*(000) = 276, *T* = 298 K, *R* = 0.0265 for 753 observed reflections [*I* > 3σ(*I*)]. The HMe₂NC₂H₄NMe₂H²⁺ cation is in the *anti* conformation, due in part to strong hydrogen-bonding between the counter ion (Br⁻) and the N—H bond [*r*(H⋯Br) = 2.15 Å].

Introduction. The title compound was formed as a by-product in the crystallization of the compound Ph₃SnInBr₂.tmen in a mixture of CHCl₃/CH₃OH (50:50, *v/v*) during studies of the oxidative insertion of indium monohalides into some organotin compounds (Annan & Tuck, 1987).

Experimental. A colourless crystal, 0.13 × 0.21 × 0.34 mm, was mounted along its longest dimension

on a glass fibre with epoxy resin. Cell-parameter determination (15 reflections, 20 ≤ θ ≤ 30°, *P*2₁/*c*) and data acquisition were performed using a Syntex *P*2₁ diffractometer with Mo Kα radiation. Intensities of three monitored reflections measured after every 60 reflections did not show any significant decay. An empirical absorption correction was applied to the data, with correction factors ranging from 1.749 to 3.168. Data reduction, including Lorentz and polarization corrections, was performed. Indices -6 ≤ *h* ≤ 6, 0 ≤ *k* ≤ 12, 0 ≤ *l* ≤ 10. Number of reflections measured 1183. 2θ_{max} = 40°.

The position of the Br atom was determined from a sharpened Patterson synthesis. A difference map based on the Br atom gave the position of all remaining non-H atoms. The structure was refined anisotropically by full-matrix least-squares methods using the program *SHELX* (Sheldrick, 1976), and the refinement covered at *R* = 0.0285. H atoms were then included in idealized positions with *r*(C—H) and *r*(N—H) = 0.95 Å, and after six more cycles of refinement, convergence was achieved at *R* = 0.0265 and *wR* = 0.0289, *w* = 1/[σ²(*F*) + 0.00017*F*²]. Max. Δ/σ = 0.03, max. height in final Δ*F* map =

* Present address: Department of Chemistry, University of California at San Diego, La Jolla, CA 92092, USA.

† To whom correspondence should be addressed.