

aromatic ring and the oxime side chain. The dimensions of the hydrogen bonds, O—H...N, are given in Table 2. The N...O distance is slightly longer (about 0.04 Å), and the angle O—H...N somewhat smaller, than hitherto met with in most oxime associates. The molecules are dimerized by hydrogen bonds around centres of symmetry (see Fig. 2, which shows the packing of the molecules in the crystal). Apart from the hydrogen bonds no unusual short intermolecular distances are found.

References

- Enraf-Nonius (1985). *Structure Determination Package*. Enraf-Nonius, Delft, The Netherlands.
 HJEDS, H., HANSEN, K. P. & JERSLEV, B. (1965). *Acta Chem. Scand.* **19**, 2166–2174.
 JERSLEV, B. (1983). *Acta Cryst.* **C39**, 1447–1454.
 JERSLEV, B., LERCHE, J. & LARSEN, I. K. (1983). *Acta Cryst.* **C39**, 1134–1136.
 JOHNSON, C. K. (1965). *ORTEP*. Report ORNL-3794. Oak Ridge National Laboratory, Tennessee, USA.
 SHELDRIK, G. M. (1990). *Acta Cryst.* **A46**, 467–473.

Acta Cryst. (1992). **C48**, 138–140

Structure du Bis(*p*-chlorophényl)-1,3 Bis(triméthyl-2,4,6 phényl)-2,4 Diaza-1,3 Diphosphétidine

PAR ANTOINE DUBOURG, JEAN-LOUIS DELARBRE ET LUC MAURY

Département pharmaceutique de Physique industrielle, statistique et informatique, Faculté de Pharmacie, Université de Montpellier I, Avenue Charles Flahaut, 34060 Montpellier CEDEX 1, France

ET JEAN-PAUL DECLERCQ

Laboratoire de Chimie Physique et Cristallographie, Université de Louvain-la-Neuve, 1 Place Pasteur, B-1348 Louvain-la-Neuve, Belgique

(Reçu le 1 juin 1991, accepté le 26 juin 1991)

Abstract. C₃₀H₃₀Cl₂N₂P₂, *M_r* = 551.4, monoclinic, *P*2₁/*a*, *a* = 11.947 (2), *b* = 14.067 (2), *c* = 8.557 (4) Å, β = 98.08 (1)°, *V* = 1423.8 (4) Å³, *Z* = 2, *D_x* = 1.28 Mg m⁻³, λ(Cu *K*α) = 1.5418 Å, μ = 3.3 mm⁻¹, *F*(000) = 576, *T* = 295 K, *R* = 0.051 for 1697 observed independent reflections. The molecule is centrosymmetric.

Introduction. La connaissance des structures des molécules organophosphorées est particulièrement utile dans la mesure où elle permet de lever l'ambiguïté qui peut parfois exister en ce qui concerne les liaisons du phosphore avec les atomes voisins. Nous avons donc entrepris ce travail dans le but d'analyser l'agencement d'une structure cyclique à quatre chaînons, dans laquelle l'atome de phosphore est tricoordiné. Cette molécule a été sommairement décrite dans un travail précédent (Dubourg, 1990).

Partie expérimentale. Cristal 0,2 × 0,2 × 0,3 mm. Diffractomètre utilisé: Syntex *P*2₁, balayage ω-2θ, spectre recueilli à température ambiante. Radiation utilisée: Cu *K*α (λ = 1,54178 Å) avec monochro-

mateur graphite. Maille déterminée à partir du centrage de 15 réflexions avec 10 < 2θ < 25°. Pas de correction d'absorption. La réflexion 110 contrôlée toutes les 50 mesures était stable. 2θ_{max} = 114°, 1915 réflexions indépendantes mesurées, 1697 utilisées [*I* > 2,5σ(*I*)]. Echelle des indices: *h* = -12/12, *k* = 0/14, *l* = 0/9.

La structure a été résolue par les méthodes directes de *MULTAN*80 (Main, Fiske, Hull, Lessinger, Germain, Declercq & Woolfson, 1980). La molécule étant située sur un centre de symétrie, seule une moitié de celle-ci a été révélée. Les paramètres des atomes ont été affinés en matrices complètes par la méthode des moindres carrés, utilisant *F*, de *SHELX*76 (Sheldrick, 1976). Les coefficients des facteurs de diffusion sont tirés de *International Tables for X-ray Crystallography* (1974, Tome IV). Les hydrogènes ont été placés en positions théoriques.

Après le dernier affinement anisotrope, nous avons les critères suivants: *R* = 0,051, *wR* = 0,065 avec le schéma de pondération: *w* = 1/[σ²(*F*) + 0,00279*F*²], (Δ/σ)_{max} < 0,6, *S* = 1,6. Densités électroniques résiduelles après la dernière synthèse de Fourier-différence: -0,3 < Δρ < 0,4 e Å⁻³.

Tableau 1. Coordonnées fractionnaires ($\times 10^4$) des atomes et facteurs d'agitation thermique isotrope équivalents (\AA^2)
$$B_{\text{eq}} = (8\pi^2/3) \sum_i \sum_j U_{ij} a_i^* a_j^* a_i \cdot a_j$$

| | x | y | z | B_{eq} |
|--------|-----------|-----------|----------|-----------------|
| N(1) | 5184 (2) | 495 (2) | 4061 (3) | 3,6 |
| P(2) | 5821 (1) | 405 (1) | 6003 (1) | 3,4 |
| C(5) | 5421 (2) | 1113 (2) | 2893 (3) | 3,5 |
| C(6) | 4689 (3) | 1199 (3) | 1473 (4) | 4,9 |
| C(7) | 4923 (4) | 1839 (3) | 318 (4) | 5,4 |
| C(8) | 5889 (3) | 2374 (2) | 571 (4) | 4,6 |
| C(9) | 6633 (3) | 2300 (3) | 1960 (4) | 4,8 |
| C(10) | 6394 (3) | 1661 (2) | 3099 (4) | 4,4 |
| Cl(11) | 6172 (1) | 3190 (1) | -852 (1) | 7,1 |
| C(12) | 7206 (2) | -165 (2) | 6027 (3) | 3,4 |
| C(13) | 7536 (3) | -832 (2) | 4952 (4) | 4,0 |
| C(14) | 8639 (3) | -1156 (3) | 5105 (4) | 4,6 |
| C(15) | 9454 (3) | -831 (3) | 6306 (4) | 4,3 |
| C(16) | 9139 (3) | -186 (2) | 7361 (4) | 4,4 |
| C(17) | 8043 (2) | 157 (2) | 7267 (4) | 4,0 |
| C(18) | 6713 (3) | -1245 (3) | 3625 (5) | 6,1 |
| C(19) | 10647 (3) | -1221 (3) | 6445 (5) | 5,7 |
| C(20) | 7787 (3) | 870 (3) | 8517 (5) | 6,2 |

Discussion. Le Tableau 1* donne les coordonnées fractionnaires de la moitié des atomes, l'autre moitié se déduisant par la symétrie $-x$, $-y$, $-z$. Le Tableau 2 indique les distances et angles de valence, une sélection d'angles de torsion ainsi que les angles entre normales aux plans moyens des cycles. Nous donnons sur la Fig. 1 une représentation de la molécule effectuée par le programme *PLUTO* (Motherwell & Clegg, 1978) et sur la Fig. 2 la disposition des molécules dans la maille.

Du fait de la symétrie de la molécule, le cycle (1): [N(1)—P(2)—N(1)'—P(2)'] a une planéité parfaite. L'atome N est plan [$\sum \alpha(\text{N}) = 360,0 (6)^\circ$] et le carbone C(5) est contenu dans (1). Ces résultats sont en accord avec la présence d'un atome d'azote hybridé sp^2 . En corollaire, nous retrouvons des liaisons entre azote et atomes voisins présentant des caractères de double liaison partielle: N—P = 1,732 (2) et 1,740 (2) Å et N—C = 1,384 (4) Å alors que les valeurs respectives des liaisons simples seraient de 1,80 et 1,47 Å (Pauling, 1960).

Le phosphore tricoordonné $\sigma^3\lambda^3$ est fortement pyramidalisé: la somme $\sum \alpha(\text{P})$ des angles autour de cet atome est de 295,1 (5) $^\circ$ et il est à une distance de 0,84 Å du plan de base N(1)—N(1)'—C(12).

Cette structure est à rapprocher de celle d'un composé dans lequel le phosphore est impliqué dans un cycle plan diaza-1,3 phosphétine-2 (Roques, 1989). On y relève des angles autour de P et de N dont les sommes valent $\sum \alpha(\text{P}) = 288^\circ$ et $\sum \alpha(\text{N}) = 357$

* Les listes des facteurs de structure et des facteurs d'agitation thermique anisotrope ont été déposées au dépôt d'archives de la British Library Document Supply Centre (Supplementary Publication No. SUP 54402: 10 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.

Tableau 2. Distances (Å), angles de valence ($^\circ$), sélection d'angles de torsion ($^\circ$) et angles ($^\circ$) entre normales aux principaux plans moyens

| | | | |
|----------------------|-----------|-----------------------|-----------|
| P(2)—N(1) | 1,732 (2) | C(10)—C(9) | 1,385 (5) |
| P(2)—N(1)' | 1,740 (2) | C(13)—C(12) | 1,407 (4) |
| C(5)—N(1) | 1,384 (4) | C(17)—C(12) | 1,425 (4) |
| C(12)—P(2) | 1,837 (3) | C(14)—C(13) | 1,383 (4) |
| C(6)—C(5) | 1,399 (4) | C(18)—C(13) | 1,510 (4) |
| C(10)—C(5) | 1,385 (4) | C(15)—C(14) | 1,390 (5) |
| C(7)—C(6) | 1,394 (5) | C(16)—C(15) | 1,369 (5) |
| C(8)—C(7) | 1,368 (5) | C(19)—C(15) | 1,516 (4) |
| C(9)—C(8) | 1,384 (5) | C(17)—C(16) | 1,388 (4) |
| Cl(11)—C(8) | 1,742 (3) | C(20)—C(17) | 1,528 (5) |
| | | | |
| N(1)—P(2)—N(1)' | 79,3 (2) | C(9)—C(10)—C(5) | 121,6 (3) |
| P(2)—N(1)—P(2)' | 100,7 (2) | C(13)—C(12)—P(2) | 128,2 (2) |
| C(5)—N(1)—P(2) | 129,2 (2) | C(17)—C(12)—P(2) | 113,9 (2) |
| C(5)—N(1)—P(2)' | 130,1 (2) | C(17)—C(12)—C(13) | 117,8 (3) |
| C(12)—P(2)—N(1) | 108,4 (1) | C(14)—C(13)—C(12) | 120,5 (3) |
| C(12)—P(2)—N(1)' | 107,4 (2) | C(18)—C(13)—C(12) | 122,4 (3) |
| C(6)—C(5)—N(1) | 121,0 (3) | C(18)—C(13)—C(14) | 117,0 (3) |
| C(10)—C(5)—N(1) | 120,7 (3) | C(15)—C(14)—C(13) | 121,4 (3) |
| C(10)—C(5)—C(6) | 118,2 (3) | C(16)—C(15)—C(14) | 118,4 (3) |
| C(7)—C(6)—C(5) | 120,6 (3) | C(19)—C(15)—C(14) | 119,5 (3) |
| C(8)—C(7)—C(6) | 119,4 (3) | C(19)—C(15)—C(16) | 122,0 (3) |
| C(9)—C(8)—C(7) | 121,3 (3) | C(17)—C(16)—C(15) | 122,5 (3) |
| Cl(11)—C(8)—C(7) | 119,6 (3) | C(16)—C(17)—C(12) | 119,4 (3) |
| Cl(11)—C(8)—C(9) | 119,0 (3) | C(20)—C(17)—C(12) | 122,8 (3) |
| C(10)—C(9)—C(8) | 118,8 (3) | C(20)—C(17)—C(16) | 117,8 (3) |
| | | | |
| C(5)—N(1)—P(2)—C(12) | -75 | P(2)—N(1)—C(5)—C(6) | -168 |
| C(5)—N(1)—P(2)—N(1)' | 180 | N(1)—P(2)—C(12)—C(17) | 147 |

Plan moyen (1): N(1)—P(2)—N(1)'—P(2)'

$$-8,426x + 9,183y + 3,190z = -2,618.$$

Plan moyen (2): C(5)—C(6)—C(7)—C(8)—C(9)—C(10)

$$-6,714x + 10,092y + 4,638z = -1,319.$$

Plan moyen (3): C(12)—C(13)—C(14)—C(15)—C(16)—C(17)

$$3,779x + 10,506y - 5,336z = -0,669.$$

Angles entre normales aux plans moyens

$$(1)-(2) 12 \quad (1)-(3) 84 \quad (2)-(3) 83$$

et 358 $^\circ$. La comparaison avec d'autres hétérocycles phosphorés $\sigma^3\lambda^3$ à quatre chaînons (Appel, Winkhaus & Knoch, 1986; Charrier, Maigrot, Mathey, Robert & Jeannin, 1986) montre également des similitudes quant à la planéité du cycle et à la pyramidalisation du phosphore.

Nous avons relevé quelques faibles liaisons-hydrogène autour de l'atome de chlore: Cl(11)...

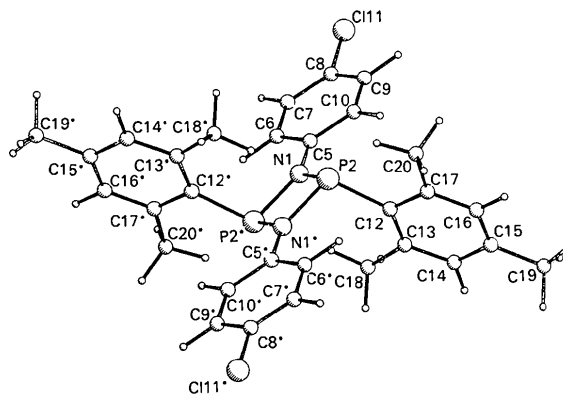


Fig. 1. Tracé de la molécule.

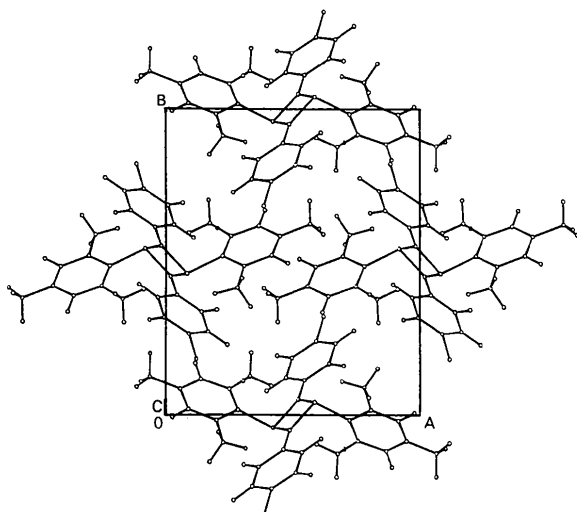


Fig. 2. Projection des molécules dans le plan xy .

$H(C16^i) = 3,00$, $Cl(11) \cdots H(C14^{ii}) = 2,92$ et $Cl(11) \cdots H''(C18^{ii}) = 2,95$ Å, avec les symétries (i) $0,5 + x$, $0,5 - y$, $1 + z$ et (ii) $1,5 - x$, $-0,5 + y$, $-z$.

Acta Cryst. (1992). **C48**, 140–142

Crystal Studies of Musk Compounds. IV. Structure of 4-Acetyl-6-*tert*-butyl-1,1-dimethylindan (Musk Celestolide)

BY DIRK J. A. DE RIDDER AND HENK SCHENK

Laboratory for Crystallography, University of Amsterdam, Nieuwe Achtergracht 166, Amsterdam, The Netherlands

(Received 5 November 1990; accepted 8 July 1991)

Abstract. C₁₇H₂₄O, $M_r = 244.38$, triclinic, $P\bar{1}$, $a = 10.160$ (2), $b = 12.230$ (2), $c = 12.796$ (1) Å, $\alpha = 105.735$ (6), $\beta = 99.58$ (2), $\gamma = 90.09$ (1)°, $V = 1507.2$ (5) Å³, $Z = 4$, $D_x = 1.08$ Mg m⁻³, $\lambda(\text{Cu } K\alpha) = 1.5418$ Å, $\mu = 0.461$ mm⁻¹, $F(000) = 536$, $T = 240$ K, final $R = 0.046$ for 4766 observed reflections. There are two independent molecules in the asymmetric unit, related to each other by a non-crystallographic twofold screw axis. The aromatic ring is essentially planar, whereas the five-membered ring is an almost ideal C(2) envelope. The torsion angle C(9)—C(4)—C(12)—O(1) has an average value of 23°. The geometries of the independent molecules are compared.

Introduction. This paper is the fourth in a series dealing with musk compounds [(I) and (II), De Ridder, Goubitz & Schenk (1990*a,b*); (III), De Ridder & Schenk (1991*a*)]. Besides the classification

Les auteurs remercient le Professeur Barrans de l'Université Paul Sabatier de Toulouse qui leur a fourni le cristal étudié ici.

Références

- APPEL, R., WINKHAUS, V. & KNOCH, F. (1986). *Chem. Ber.* **119**, 2466–2472.
- CHARRIER, C., MAIGROT, N., MATHEY, F., ROBERT, F. & JEANNIN, Y. (1986). *Organometallics*, **5**, 623–630.
- DUBOURG, A. (1990). Thèse de doctorat ès sciences, Univ. de Perpignan, France.
- MAIN, P., FISKE, S. J., HULL, S. E., LESSINGER, L., GERMAIN, G., DECLERQ, J.-P. & WOOLFSON, M. M. (1980). *MULTAN80. 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.
- MOTHERWELL, W. D. S. & CLEGG, W. (1978). *PLUTO*. Programme pour le dessin des structures moléculaires et cristallines. Univ. de Cambridge, Angleterre.
- PAULING, L. (1960). *The Nature of the Chemical Bond*, 3ième cd. Ithaca: Cornell Univ. Press.
- ROQUES, C. (1989). Thèse de doctorat de l'Univ. Paul Sabatier, Toulouse, France.
- SHELDRICK, G. M. (1976). *SHELX76*. Programme pour la détermination des structures cristallines. Univ. de Cambridge, Angleterre.

of the synthetic aromatic nitro-free musks given in the previous paper, it is also possible to divide this family by referring to the relative orientation of C atoms containing *gem*-dimethyl substitution relative to the benzene ring (Theimer & Davies, 1967). This results in the so-called *ortho* and *meta* musks as none of the known *para* compounds show muskiness. Musk tonalid (De Ridder, Goubitz & Schenk, 1990*b*) and musk phantolid (De Ridder & Schenk, 1991*a*) both belong to the *ortho* musks, while the compound described in this paper belongs to the *meta* musks.

Musk celestolide was discovered in the late fifties by Beets and his co-workers (Beets, van Essen & Meerburg, 1958). They reported it as colourless leaflets, melting point 350.1–350.4 K, having a very strong musk odour. It is also known as musk DTI.

Experimental. A sample was recrystallized by slow evaporation from methanol. Intensities collected on