

is considerable, it is interesting that this strain hardly affects the conformation of the other parts (*e.g.* ring *A* or *D*) of the steroid molecule.

Conformational analyses of this and other steroids will be published in a forthcoming paper (Geise, Altona & Romers, 1966).

### Molecular environment

Intermolecular distances up to 4 Å have been calculated. A projection of the structure along the *b* axis is given in Fig. 4 and a summary of the shortest intermolecular distances in Table 5. The packing of the hydrogen atoms has not been taken into account. Most close contacts exist between the original molecule and molecules related to this by a shift along the *a* axis, but also contacts are found with symmetry-related molecules. No particular short interactions are found.

We wish to express our gratitude to Prof. Dr E. Havinga for his continuous interest in this investigation. We are indebted to Dr O. A. de Bruin of Philips Duphar Research Laboratories (Weesp, The Netherlands) who provided the samples of 4-chloro- and 4-bromo-duphaston and to the direction of the above mentioned Laboratory for financial support.

All calculations were performed on the X-1 computer of the University of Leiden, with programs de-

vised by Mrs E. W. M. Rutten, Mr W. M. H. Rutten and two of us (B. H. and H. J. G.). Finally, we thank the members of the computing staff of the Centraal Reken-Instituut of the University of Leiden for their help during the calculations.

### References

- BUERGER, M. J. (1959). *Vector Space and its Application in Crystal Structure Investigation*, p. 239. New York: John Wiley.
- CRUICKSHANK, D. W. J. (1960). *Acta Cryst.* **13**, 774.
- GEISE, H. J. & ROMERS, C. (1966). *Acta Cryst.* **20**, 257.
- GEISE, H. J., ALTONA, C. & ROMERS, C. (1966). To be published.
- GEISE, H. J., ROMERS, C. & RUTTEN, E. W. M. (1966). *Acta Cryst.* **20**, 249.
- HALKES, S. J. (1964). Thesis, Univ. of Leiden.
- HALKES, S. J. & HAVINGA, E. (1965). *Rec. Trav. chim. Pays-Bas*, **84**, 889.
- IUPAC (1957). *Nomenclature of Organic Chemistry*, p. 73. London: Butterworths.
- ROLLETT, J. S. & SPARKS, R. A. (1960). *Acta Cryst.* **13**, 273.
- ROMERS, C., HEIJKOOP, E. VAN, HESPER, B. & GEISE, H. J. (1965). *Rec. Trav. chim. Pays-Bas*, **84**, 885.
- SCHÖLER, H. F. L. & DE WACHTER, A. M. (1960). *Acta Endocrinologica*, **35**, 188.
- WESTERHOF, P. & HARTOG, J. (1965). *Rec. Trav. chim. Pays-Bas*, **84**, 918.
- WESTERHOF, P. & REERINK, E. H. (1960). *Rev. Trav. chim. Pays-Bas*, **79**, 771.

*Acta Cryst.* (1966). **20**, 368

## Structure Cristalline du Subéramide

MICHEL HOSPITAL ET JACQUES HOUSTY

Laboratoire de Cristallographie, Faculté des Sciences de Bordeaux, France

(Reçu le 29 mars 1965, revu le 3 mai 1965)

The crystal structure of suberamide has been determined by three-dimensional X-ray crystallographic methods. The crystals are monoclinic with the unit-cell dimensions:

$$a = 14.44, b = 5.13, c = 14.17 \text{ \AA}; \beta = 117^\circ 30'$$

The space group is  $C2/c$  with four molecules in the unit-cell. Bond lengths and angles are consistent with the currently accepted value for aliphatic compounds.

### Introduction

La détermination de la structure cristalline du subéramide  $\text{CONH}_2\text{--[CH}_2\text{]}_6\text{--CONH}_2$  entre dans le cadre des recherches entreprises au Laboratoire sur les diamides aliphatiques. Parmi les composés de cette série seules les structures de l'oxamide (Ayerst & Duke, 1954) et du succinamide (Davies & Pasternak, 1955) ont été publiées. Nous envisageons donc de poursuivre l'étude cristallographique des autres diamides aliphatiques.

### Partie expérimentale

#### Cristallisation

Le subéramide cristallise par lente évaporation d'une solution alcoolique (mélange d'alcools amylique, pro-

pylique et éthylique) saturée. Les plaquettes monocliniques\* obtenues se clivent facilement suivant la direction [010]. Les clichés ont été faits avec un cristal de section  $0,2 \times 0,3$  mm.

#### Maille

Les paramètres sont mesurés par oscillation d'un cristal dans une chambre de Bragg.

$$\begin{aligned} a &= 14,44 \pm 0,02 \text{ \AA} \\ b &= 5,13 \pm 0,01 & \beta &= 117^\circ 30' \pm 20' \\ c &= 14,17 \pm 0,02 & V &= 932 \text{ \AA}^3 \end{aligned}$$

Densité calculée: 1,225 avec 4 molécules par maille.  
Densité mesurée par flottation: 1,230.

\* La direction d'aplatissement est (20 $\bar{1}$ ).

*Groupe spatial*

L'étude complète du réseau réciproque sur rétigrammes de De Jong a montré que l'on observe uniquement les taches données par les conditions:

$$\begin{array}{ll} hkl & h+k=2n \\ h0l & l=2n \end{array}$$

Le groupe spatial peut donc être  $C2/c$  ou  $C/c$ . L'examen de la fonction de Patterson et de ses éléments de symétrie a permis d'affirmer que le subéramide appartient au groupe  $C2/c$ . Les 4 molécules de la maille sont alors centrosymétriques.

Toutes les mesures ont été obtenues avec le rayonnement  $K\alpha$  du cuivre.

*Mesure des intensités*

Les intensités des rayons diffractés ont été mesurées dans tout l'espace réciproque sur les rétigrammes de De Jong par comparaison visuelle avec une échelle de taches étalonnée. Le nombre de réflexions observées pour les différents plans réciproques sont:

$h0l$	88 taches
$h1l$	153
$h2l$	120
$h3l$	65
$h4l$	58

Ces intensités brutes ont été corrigées des facteurs de Lorentz et de polarisation (Gay, 1954). Aucune correction d'absorption n'a été effectuée, le cristal utilisé ayant une section faible. Dans ce travail toutes les synthèses bidimensionnelles ont été obtenues à l'aide du photosommateur optique de von Eller (1955).

**Détermination de la structure***Projection suivant la direction [010]*

L'examen de la projection de la fonction de Patterson suivant la direction [010] permet de prévoir l'orientation de la molécule sur cette projection. Les pics de la projection de la fonction de Patterson sur le plan  $xOz$  sont en effet disposés sur des droites parallèles et très proches de la direction  $[20\bar{1}]$ : cette direction correspond à l'allongement de la projection des molécules.

La disposition des pics suivant cette direction et la symétrie de la molécule nous ont permis d'établir une hypothèse de départ.

Avec un coefficient d'agitation thermique de  $B=4 \text{ \AA}^2$ , un premier calcul de facteurs de structure a donné un facteur de reliabilité de 0,31 pour cette projection. La structure a ensuite été affinée automatiquement sur ordinateur IBM 1620 par la méthode de moindres carrés. L'affinement a porté sur les positions atomiques, le

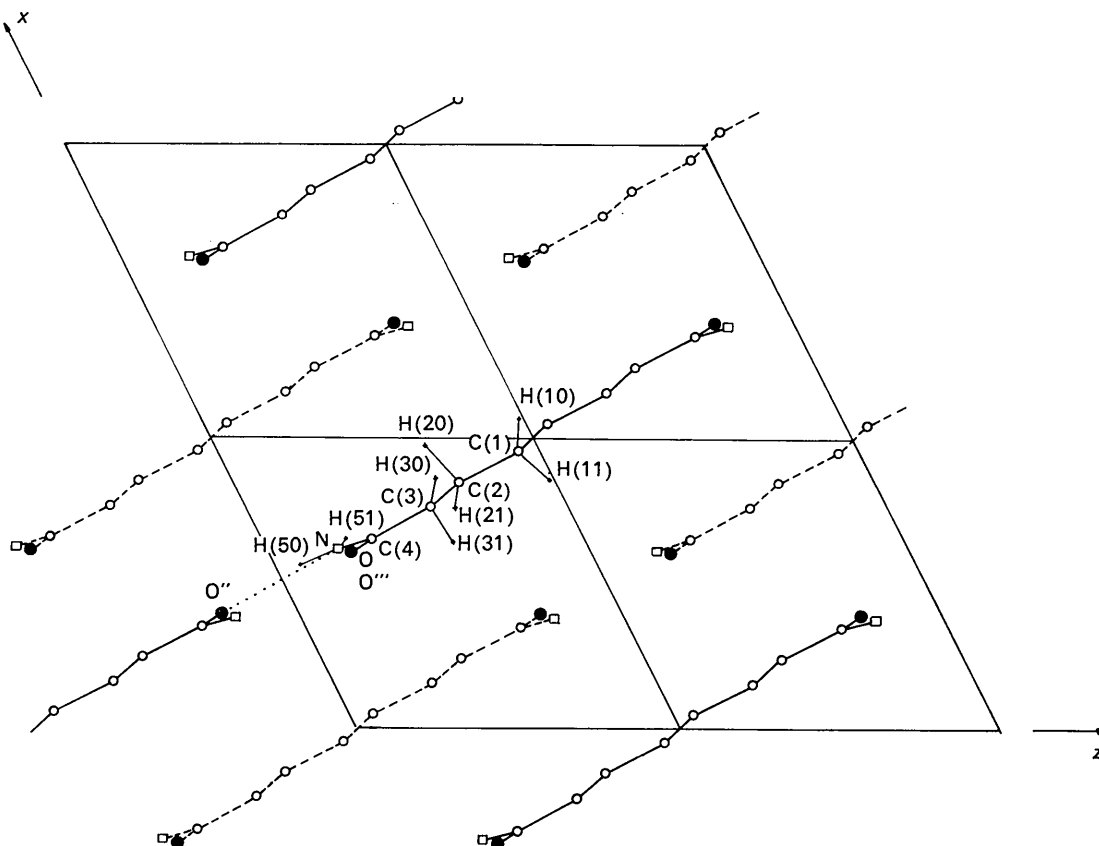


Fig. 1. Projection de la structure suivant l'axe  $Oy$ .

coefficient d'échelle et le coefficient  $B_m$  d'agitation thermique moyen pour l'ensemble de la molécule. Le facteur de reliabilité est alors descendu à 0,12.

#### Projection suivant la direction [100]

Cette projection a été résolue en considérant d'une part les résultats obtenus pour la projection précédente et d'autre part les informations données par la projection de la fonction de Patterson suivant cette direction. Le facteur de reliabilité était de 0,15.

#### Affinement tridimensionnel

En partant des coordonnées atomiques données par l'étude des deux projections nous avons réalisé un affinement tridimensionnel portant successivement sur les positions atomiques, le coefficient d'échelle, le coefficient d'agitation thermique isotrope pour chaque atome. A ce stade le facteur de reliabilité était de 0,155.

Nous avons ensuite placé les atomes d'hydrogène en tenant compte des liaisons tétraédriques du carbone et

de la longueur de la liaison C-H voisine de 1 Å. Les atomes d'hydrogène du groupement  $\text{NH}_2$  ont également été placés sur la liaison  $\text{N} \cdots \text{O}$  reliant deux molécules voisines et à la distance 1 Å de l'atome d'azote. Après quelques cycles d'affinement les atomes d'hydrogène se stabilisent, le facteur de reliabilité étant de 0,140.

Une fonction différence ( $F_o - F_c$ ) obtenue à l'aide du photosommateur de von Eller de la projection suivant [010], montre une nette anisotropie thermique de toute la molécule. Celle-ci apparaît notablement plus forte sur les atomes d'oxygène et d'azote situés en bout de chaîne. A l'aide d'un programme d'affinement mis au point au laboratoire (Bouzon, Hauw, Gaultier & Clastre, 1965), les coefficients d'agitation thermique anisotrope des atomes de carbone, d'oxygène et d'azote ont été précisés. Un dernier cycle d'affinement portant exclusivement sur les positions atomiques de toute la molécule n'a modifié que très légèrement les coordonnées des atomes d'hydrogène. Le facteur de reliabilité final s'est fixé à 0,079 pour les 484 taches observées.

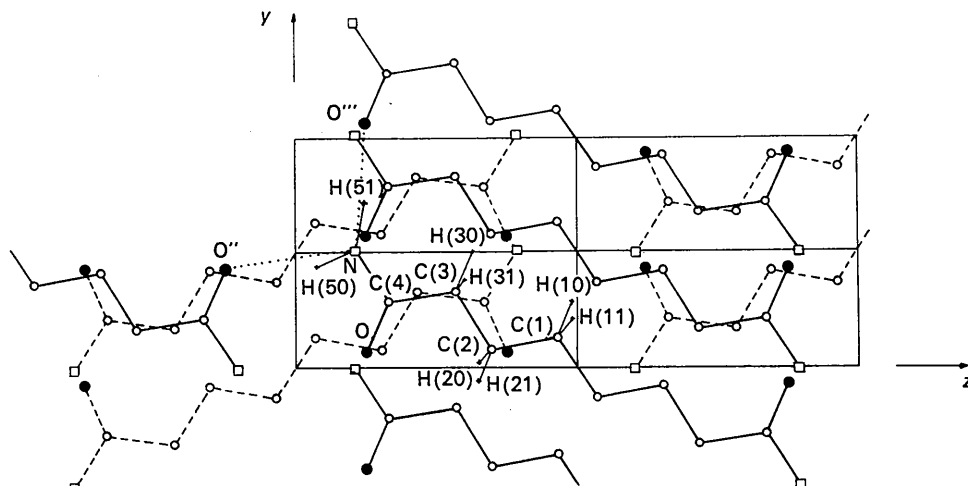


Fig. 2. Projection de la structure suivant l'axe  $Ox$ .

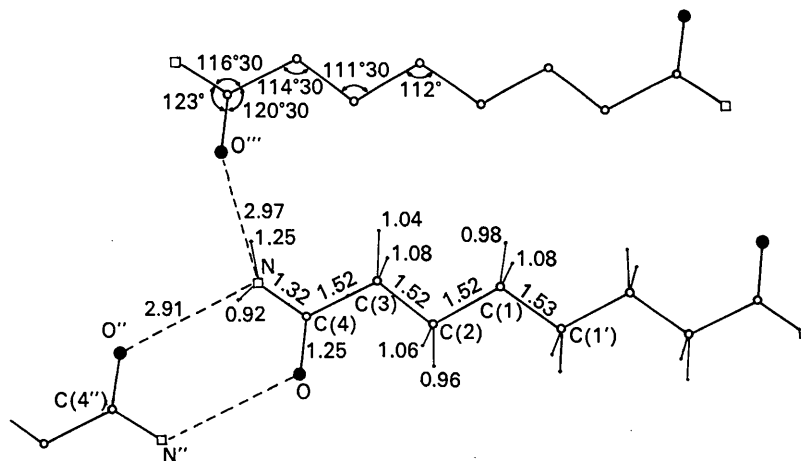


Fig. 3. Distances interatomiques et angles de liaison.

Tableau 1. *Coordonnées atomiques finales*

Les coordonnées et l'écart type de chaque atome sont donnés en fraction de maille.

	$x/a$	$\sigma(x)$	$y/b$	$\sigma(y)$	$z/c$	$\sigma(z)$
O	0,3069 ± 0,0002		0,0648 ± 0,0009		0,1268 ± 0,0002	
N	0,3108 ± 0,0003		0,5016 ± 0,0011		0,1077 ± 0,0002	
C(1)	0,4806 ± 0,0004		0,1261 ± 0,0010		0,4679 ± 0,0003	
C(2)	0,4269 ± 0,0004		0,0756 ± 0,0011		0,3489 ± 0,0003	
C(3)	0,3850 ± 0,0004		0,3252 ± 0,0011		0,2859 ± 0,0003	
C(4)	0,3302 ± 0,0003		0,2878 ± 0,0011		0,1658 ± 0,0003	
H(10)	0,5272		0,2790		0,4918	
H(11)	0,4251		0,2069		0,4913	
H(20)	0,4848		0,0168		0,3263	
H(21)	0,3743	-0,0588			0,3255	
H(30)	0,4305		0,4918		0,3171	
H(31)	0,3187		0,3725		0,2987	
H(50)	0,2746		0,4426		0,0386	
H(51)	0,3140		0,7420		0,1250	

Tableau 2. *Valeur finale des  $b_{ij}$* 

	$b_{11}$	$b_{22}$	$b_{33}$	$b_{13}$	$b_{12}$	$b_{23}$
O	0,0129	0,0556	0,0056	0,0047	0,0023	0,0180
N	0,0111	0,0501	0,0052	0,0040	-0,0110	-0,0030
C(1)	0,0088	0,0512	0,0049	0,0040	0,0020	-0,0080
C(2)	0,0080	0,0514	0,0051	0,0041	0,0020	-0,0150
C(3)	0,0091	0,0495	0,0050	0,0034	-0,0150	-0,0050
C(4)	0,0078	0,0434	0,0057	0,0048	0,0070	-0,0065

Tableau 3. *Distances et angles interatomiques*

C(1)-C(1')	1,53 ± 0,02 Å	C(1')-C(1)-C(2)	112°
C(1)-C(2)	1,52 ± 0,01	C(1)-C(2)-C(3)	111° 30'
C(2)-C(3)	1,52 ± 0,01	C(2)-C(3)-C(4)	114 30
C(3)-C(4)	1,52 ± 0,01	C(3)-C(4)-O	120 30
C(4)-N	1,32 ± 0,01	C(3)-C(4)-N	116 30
C(4)-O	1,25 ± 0,01	O-C(4)-N	123
N-O''	2,91 ± 0,02	C(2)-C(1)-H(10)	116
N-O'''	2,97 ± 0,02	C(2)-C(1)-H(11)	110
C(1)-H(10)	0,98 ± 0,05	C(1)-C(2)-H(20)	108
C(1)-H(11)	1,08 ± 0,05	C(1)-C(2)-H(21)	115
C(2)-H(20)	1,06 ± 0,05	C(2)-C(3)-H(30)	116
C(2)-H(21)	0,96 ± 0,05	C(2)-C(3)-H(31)	104
C(3)-H(30)	1,04 ± 0,05	C(4)-N-H(50)	104
C(3)-H(31)	1,08 ± 0,05	C(4)-N-H(51)	135
N-H(50)	0,92 ± 0,05	N-H(50)-O''	162
N-H(51)	1,25 ± 0,05	N-H(51)-O'''	170
		H(51)-N-H(50)	118

Tableau 4. *Longueurs et angles des liaisons des diamides aliphatiques*

Oxamide (Ayerst & Duke)		Succinamide (Davies & Pasternak)		Subéramide	
C-O	1,243 Å	C(2)-O	1,238 Å	C(4)-O	1,248 Å
C-N	1,315	C(2)-N	1,333	C(4)-N	1,322
C-C	1,542	C(1)-C(1')	1,501	C(1)-C(1')	1,532
		C(1)-C(2)	1,512	C(1)-C(2)	1,519
				C(2)-C(3)	1,518
				C(3)-C(4)	1,522
N-C-O	125,7°	N-C(2)-O	122,0°	N-C(4)-O	123°
C-C-N	114,8	C(1)-C(2)-N	115,6	C(3)-C(4)-N	116,5
C-C-O	119,5	C(1)-C(2)-O	122,4	C(3)-C(4)-O	120,5

## Résultats et discussion

Les paramètres atomiques et les valeurs des  $b_{ij}$  des différents atomes sont donnés par les Tableaux 1 et 2. Les atomes d'hydrogène ont été affectés d'un coefficient thermique isotrope  $B=4 \text{ \AA}^2$ .

Les distances interatomiques et les angles de liaisons donnés dans le Tableau 3 et représentés sur la Fig. 3 sont en accord avec ce qui est déterminé en général pour des molécules de ce type. Les longueurs et les angles de liaison de l'oxamide, du succinamide et du subéramide sont donnés dans le Tableau 4.

La valeur (114° 30') de l'angle C(2)-C(3)-C(4) est supérieure à celle de l'angle tétraédrique normal. Une valeur aussi grande a été observée dans le cas des diacides pour l'angle précédant le groupement carboxylique:

acide subérique

(Housty & Hospital, 1965b)

115°

acide adipique

(Housty & Hospital, 1965a)

114° 45'

acide succinique

(Broadley, Cruickshank, Morrison,

Robertson & Shearer, 1959)

113°

et également pour le succinamide (Ayerst & Duke, 1955) 113° 54'.

Les distances C-H sont normales et toutes comprises entre 0,96 et 1,08 Å.

L'une des liaisons N-H est également normale (0,92 Å) mais l'autre est anormalement longue (1,25 Å). La localisation d'un excès résiduel de densité électronique

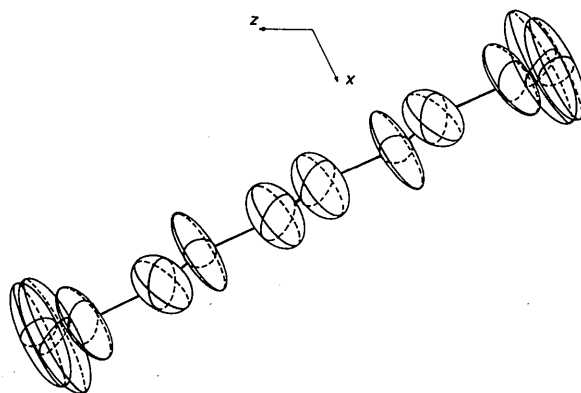


Fig. 4. Projection des ellipsoïdes d'agitation thermique sur le plan  $xOz$ .

Tableau 5. Amplitudes et orientations des ellipsoïdes d'agitation thermique

	B	$\alpha$	$\beta$	$\gamma$
O	10,0	0,835	-0,176	-0,520
	2,0	0,367	-0,523	0,768
	7,2	0,407	0,833	0,372
N	9,2	0,825	-0,343	-0,447
	3,2	0,539	0,249	0,803
	4,9	0,165	0,904	-0,393
C(1)	7,2	0,687	0,492	-0,533
	2,7	0,391	0,368	0,843
	5,3	0,607	-0,792	0,060
C(2)	7,5	0,402	0,698	-0,592
	2,0	0,265	0,530	0,805
	5,1	0,872	-0,486	0,028

Tableau 5 (suite)

	B	$\alpha$	$\beta$	$\gamma$
C(3)	9,0	0,667	-0,569	-0,480
	2,9	0,229	-0,460	0,857
	3,6	0,705	0,686	0,175
C(4)	6,8	0,612	0,589	-0,526
	2,9	0,056	0,635	0,770
	4,1	0,787	-0,503	0,354

à cet emplacement est une explication possible. La liaison hydrogène entre N et O'' de deux groupements amide se déduisant l'un de l'autre par symétrie autour d'un centre (2,91 Å) est légèrement plus courte que celle liant N et O''' (2,97 Å), de deux molécules se

Tableau 6. Facteurs de structure observés et calculés

h	k	l	F <sub>o</sub>	F <sub>c</sub>	h	k	l	F <sub>o</sub>	F <sub>c</sub>	h	k	l	F <sub>o</sub>	F <sub>c</sub>	h	k	l	F <sub>o</sub>	F <sub>c</sub>
02	00	00	20,44	-24,05	01	01	-16	7,67	6,44	09	01	-16	2,73	-1,20	06	02	-13	4,58	-4,14
04	00	00	11,12	-12,09	01	01	-15	3,04	-2,69	09	01	-15	3,46	-3,31	06	02	-12	17,53	-16,33
06	00	00	36,55	32,66	01	01	-14	7,47	6,80	09	01	-14	12,35	10,74	06	02	-11	15,46	16,07
08	00	00	27,22	-29,44	01	01	-12	4,75	-4,80	09	01	-11	15,44	-15,12	06	02	-10	6,39	6,71
10	00	00	12,63	15,00	01	01	-11	2,51	-2,02	09	01	-10	9,53	-8,76	06	02	-09	7,76	7,26
12	00	00	3,36	3,66	01	01	-10	25,01	-26,99	09	01	-09	3,69	3,96	06	02	-08	14,34	14,51
14	00	00	3,30	-2,70	01	01	-09	4,44	-7,73	09	01	-08	5,65	-4,67	06	02	-07	5,31	5,46
					01	01	-07	40,02	40,02	09	01	-07	4,56	4,12	06	02	-06	2,93	2,43
-14	00	02	3,74	3,26	01	01	-05	24,13	-25,70	09	01	-06	4,77	-7,27	06	02	-05	1,76	-2,49
-12	00	02	10,35	9,22	01	01	-05	10,43	12,50	09	01	-05	14,34	-16,54	06	02	-04	13,64	-15,17
-10	00	02	14,94	11,79	01	01	-04	2,43	2,25	09	01	-04	2,52	-2,72	06	02	-03	1,76	-2,08
-08	00	02	4,59	-6,05	01	01	-03	16,02	15,71	09	01	-03	6,31	6,35	06	02	-02	6,79	-7,07
-06	00	02	25,46	-26,04	01	01	-02	16,37	16,37	09	01	-02	2,35	-2,12	06	02	-01	15,01	-15,47
-04	00	02	207,06	223,71	01	01	-01	72,64	-76,69	09	01	-01	0,66	6,91	06	02	00	6,49	-7,03
00	00	02	20,45	-22,44	01	01	01	4,05	42,31	09	01	00	2,50	2,39	06	02	01	9,21	9,42
02	00	02	42,23	53,99	01	01	02	3,32	-7,20	09	01	01	4,19	2,56	06	02	02	26,00	-21,92
04	00	02	65,03	65,10	01	01	02	19,61	11,82	09	01	01	11,71	11,71	06	02	03	6,17	6,02
06	00	02	42,00	41,49	01	01	04	26,00	24,77	09	01	03	4,19	3,92	06	02	04	4,30	3,80
08	00	02	6,07	6,67	01	01	05	12,96	11,50	09	01	04	4,19	-2,91	06	02	05	5,61	4,77
10	00	02	8,93	-9,47	01	01	05	21,45	-20,31	09	01	05	3,03	3,03	06	02	06	13,62	12,17
12	00	02	6,55	5,68	01	01	09	17,93	-7,34	09	01	07	4,69	-4,18	06	02	07	10,60	9,87
					01	01	10	4,72	5,44	11	01	-14	3,59	-2,76	06	02	-08	4,81	-4,52
-16	00	04	3,11	-3,10	01	01	10	6,50	6,12	11	01	-13	2,89	-1,30	06	02	-09	9,62	-10,89
-14	00	04	2,56	-2,48	01	01	11	6,50	5,61	11	01	-12	2,89	-1,30	06	02	-10	9,62	-10,89
-12	00	04	2,56	-2,48	01	01	11	6,50	5,61	11	01	-11	2,89	-1,30	06	02	-11	9,62	-10,89
-10	00	04	2,27	-2,06	01	01	11	6,50	5,61	11	01	-10	2,89	-1,30	06	02	-12	9,62	-10,89
-08	00	04	00,22	00,53	01	01	15	7,58	5,55	11	01	-10	5,21	5,43	06	02	-13	9,62	-10,89
-06	00	04	11,64	-12,12	03	01	-16	6,90	5,25	11	01	-09	5,21	5,43	06	02	-14	9,62	-10,89
-04	00	04	10,72	-11,64	03	01	-14	6,37	6,80	11	01	-08	5,21	5,43	06	02	-15	9,62	-10,89
-02	00	04	51,37	49,48	03	01	-12	4,34	4,85	11	01	-08	16,54	13,77	06	02	-16	9,62	-10,89
00	00	04	75,65	-76,09	03	01	-11	13,81	-13,81	11	01	-07	2,84	-1,57	06	02	-17	9,62	-10,89
02	00	04	34,55	39,67	03	01	-10	16,33	-15,70	11	01	-06	6,09	-3,29	06	02	-18	9,62	-10,89
04	00	04	16,43	17,25	03	01	-09	16,33	-15,70	11	01	-05	6,09	-3,29	06	02	-19	9,62	-10,89
06	00	04	18,25	-18,05	03	01	-08	16,33	-15,70	11	01	-04	4,31	-4,06	06	02	-20	9,62	-10,89
08	00	04	15,50	14,59	03	01	-07	23,30	21,57	11	01	-03	4,31	-4,06	06	02	-21	9,62	-10,89
10	00	04	3,02	-2,39	03	01	-06	14,44	-15,76	11	01	-02	4,31	-4,06	06	02	-22	9,62	-10,89
12	00	04	6,95	-4,72	03	01	-05	3,32	-3,37	11	01	-01	3,32	2,27	06	02	-23	9,62	-10,89
					03	01	03	32,07	-33,27	13	01	-16	6,00	4,20	06	02	07	2,79	-2,52
-12	00	06	30,01	27,52	03	01	02	32,07	-33,27	13	01	-15	7,26	-6,40	10	02	-14	9,01	-7,53
-10	00	06	5,62	-5,37	03	01	01	42,04	-43,71	13	01	-14	7,26	-6,40	10	02	-13	9,01	-7,53
-08	00	06	25,95	27,61	03	01	00	42,04	-43,71	13	01	-13	4,05	-1,88	10	02	-12	9,01	-7,53
-06	00	06	56,84	-54,66	03	01	01	11,62	11,62	13	01	-12	2,37	-2,16	10	02	-11	9,01	-7,53
-04	00	06	91,50	90,31	03	01	02	3,27	3,27	13	01	-11	4,76	-4,71	10	02	-10	9,01	-7,53
-02	00	06	40,54	37,73	03	01	03	6,14	-7,77	13	01	-10	3,01	2,70	10	02	-09	9,01	-7,53
00	00	06	26,60	-27,70	03	01	04	17,74	-17,74	13	01	-09	3,01	2,70	10	02	-08	9,01	-7,53
02	00	06	24,07	24,95	03	01	05	29,02	32,26	13	01	-08	2,58	-1,97	10	02	-07	9,01	-7,53
04	00	06	9,47	-9,53	03	01	06	8,63	-9,61	13	01	-07	4,49	-5,00	10	02	-06	9,01	-7,53
06	00	06	7,37	-8,11	03	01	07	23,60	23,02	13	01	-06	4,49	-5,00	10	02	-05	9,01	-7,53
08	00	06	10,62	-7,50	03	01	08	7,20	-7,95	13	01	-05	2,31	2,18	10	02	-04	9,01	-7,53
					03	01	10	3,40	-2,67	15	01	-15	2,49	-1,78	10	02	-03	9,01	-7,53
-16	00	08	10,67	8,14	03	01	09	32,07	-33,27	15	01	-14	2,70	-2,03	12	02	-14	4,14	3,82
-14	00	08	2,75	2,15	03	01	08	42,04	-43,71	15	01	-13	2,70	-2,03	12	02	-13	4,14	3,82
-12	00	08	2,82	-2,01	03	01	07	11,62	11,62	15	01	-12	3,16	-2,91	12	02	-12	4,14	3,82
-10	00	08	3,27	-3,99	03	01	06	11,62	11,62	15	01	-11	3,96	-3,43	12	02	-11	4,14	3,82
-08	00	08	21,80	-21,70	05	01	-16	7,24	-6,33	00	02	01	6,27	-6,04	12	02	-10	4,14	3,82
-06	00	08	35,73	37,07	05	01	-14	4,17	-3,91	00	02	02	12,75	14,46	12	02	-09	4,14	3,82
-04	00	08	39,57	30,22	05	01	-13	5,21	-5,31	00	02	03	4,97	-4,63	12	02	-08	4,14	3,82
-02	00	08	22,97	-23,53	05	01	-12	20,04	19,79	00	02	04	5,04	-4,95	12	02	-07	4,14	3,82
00	00	08	25,17	26,26	05	01	-09	25,30	-27,92	00	02	05	5,04	-4,95	12	02	-06	4,14	3,82
02	00	08	12,37	-14,66	05	01	-08	17,21	-16,37	00	02	06	4,97	-4,63	12	02	-05	4,14	3,82
04	00	08	5,54	-5,79	05	01	-07	8,63	8,44	00	02	07	5,04	-4,95	12	02	-04	4,14	3,82
06	00	08	11,21	-11,23	05	01	-06	4,59	-10,39	00	02	08	5,04	-4,95	12	02	-03	4,14	3,82
08	00	08	1,32	-1,74	05	01	-05	10,43	10,70	00	02	09	5,04	-4,95	12	02	-02	4,14	3,82
					05	01	-04	12,70	-14,71	00	02	10	5,04	-4,95	12	02	-01	4,14	3,82
-12	00	10	6,43	-5,66	05	01	-03	37,37	-39,95	00	02	11	5,04	-4,95	12	02	00	4,14	3,82
-10	00	10	13,13	12,94	05	01	-02	11,93	-13,20	00	02								

déduisant par translation. Ces mêmes valeurs sont égales (2,94 Å) dans le succinamide.

Le plan moyen des liaisons hydrogène a pour équation:

$$x - 0,0858y - 0,0480z - 3,5003 = 0.$$

Le plan moyen du groupement amide calculé par une méthode de moindres carrés a pour équation:

$$x - 0,0778y + 0,0140z - 3,6020 = 0.$$

Les atomes de carbone constituant la chaîne semblent rigoureusement dans le plan d'équation:

$$x + 0,1372y - 0,0232z - 3,8417 = 0.$$

L'angle dièdre du plan de la chaîne de carbone et du plan du groupement amide est de 8° 30', l'arête d'intersection étant confondue avec C(3)–C(4). L'angle dièdre du plan du groupement amide et du plan des liaisons hydrogène est d'environ 3°.

Les écarts en Å des atomes d'oxygène et d'azote au plan de la chaîne sont:

$$-0,225 \text{ \AA} \text{ et } 0,263 \text{ \AA}.$$

L'arrangement des molécules dans la maille se présente comme une succession de feuillets parallèles au plan (20 $\bar{1}$ ) et équidistants d'environ 3,7 Å.

Les grandeurs et les cosinus directeurs des axes de l'ellipsoïde d'agitation thermique de chaque atome par rapport au système d'axes rectangulaires  $x'yz$  sont donnés au Tableau 5.

La Fig. 4 représente la projection de l'ellipsoïde d'agitation thermique de chaque atome suivant [010]. La plus forte valeur du coefficient thermique est dans la direction perpendiculaire au plan de la molécule et du feuillet. Les atomes d'oxygène et d'azote des bouts de chaînes ont une agitation thermique transversale (perpendiculaire au plan) plus prononcée que les atomes de carbone de la chaîne.

#### Références

- AYERST, E. M. & DUKE, J. R. C. (1954). *Acta Cryst.* **7**, 588.  
 BOUZON, C., HAUW, C., GAULTIER, J. & CLASTRE, J. (1965). *Bull. Soc. franç. Minér. Crist.* (à paraître).  
 BROADLEY, J. S., CRUICKSHANK, D. W. J., MORRISON, J. D., ROBERTSON, J. M. & SHEARER, B. M. (1959). *Proc. Roy. Soc. A.* **251**, 441.  
 DAVIES, D. R. & PASTERNAK, R. A. (1956). *Acta Cryst.* **9**, 334.  
 ELLER, G. VON (1955). *Bull. Soc. franç. Minér. Crist.* **78**, 157.  
 GAY, R. (1954). *Bull. Soc. franç. Minér. Crist.* **77**, 1330.  
 HOUSTY, J. & HOSPITAL, M. (1965a). *Acta Cryst.* **18**, 693.  
 HOUSTY, J. & HOSPITAL, M. (1965b). *Acta Cryst.* **18**, 753.

*Acta Cryst.* (1966). **20**, 373

## Sodium Silicate Hydrates. I. Crystallographic Data

BY PETER B. JAMIESON AND L. S. DENT GLASSER

*Department of Chemistry, University of Aberdeen, Scotland*

(Received 6 August 1965)

Crystals of the five hydrated sodium silicates obtainable at room temperature have been grown. Their unit cells and space groups were determined by X-ray single-crystal methods, and the results compared with goniometric data. X-ray powder patterns were obtained and indexed.

### Introduction

Extensive studies of phase equilibria in the system  $\text{Na}_2\text{O}-\text{SiO}_2-\text{H}_2\text{O}$  (Sprauer & Pearce, 1940; Lange & Stackelberg, 1948; Baker, Jue & Wills, 1950; Baker & Jue, 1950; Wills, 1950) have established the existence of a variety of sodium silicate hydrates. Table 1 lists some of these compounds, with the results of careful goniometric studies. Other work is summarized by Vail (1952). The X-ray work reported hitherto has been limited to some powder patterns (Powder Diffraction File, cards no. 1-1107, 2-0465, 3-0432; Ryskin, Stavitskaya & Mitropolsky, 1964) and a determination of the unit cell of  $\text{Na}_2\text{O} \cdot \text{SiO}_2 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$  (Lange & Stackelberg, 1948).

There have been speculations about the nature of the anions in these compounds. Thilo & Miedreich (1951) suggested that the anions are of the form  $[\text{H}_2\text{SiO}_4]^{2-}$  or  $[\text{HSiO}_4]^{3-}$  (according to the composition of the compound) basing their ideas on cryoscopic studies which are of limited relevance to the solid state. Infrared studies (Ryskin, Stavitskaya & Mitropolsky, 1964; Manvelyan, Babayan & Gazaryan, 1964) have shown the existence of Si–O–H bonding and absence of Si–O–Si bonding in at least some of the compounds. The results of extraction studies (Wiecker & Slade, 1965) are consistent with anions consisting of isolated  $[\text{H}_x\text{SiO}_4]^{(4-x)-}$  groups.

Confirmation of these speculations by X-ray structural analysis has hitherto been lacking. The present