

ESTRUCTURA CRISTALINA DEL N-ISOPROPIL-2-CIANO-3(5'-NITROFURIL)ACRILAMIDA

Ramón Pomés Hernández*, Julio Duque Rodrigues

Centro Nacional de Investigaciones Científicas - Apartado Postal 6990 - Ciudad de La Habana - Cuba

Héctor Novoa de Armas

Centro de Química Farmacéutica - Apartado 16042 - Ciudad de La Habana - Cuba

Ruben Alfredo Toscano

Instituto de Química - UNAM - México - 04510 - DF

Recebido em 3/1/96; aceite em 16/7/97

CRYSTAL STRUCTURE OF N-ISOPROPYL-2-CYANO-3(5'-NITROFURYL)ACRYLAMIDE. $C_{11}H_{11}N_3O_4$, Mr = 249.23, triclinic, $P\bar{1}$, $a = 5.453(1)$, $b = 22.873(5)$, $c = 4.893(1)$ Å, $\alpha = 94.47(3)$, $\beta = 96.36(3)$, $\gamma = 86.27(3)^\circ$, $V = 603.7(8)\text{Å}^3$, $Z = 2$, $D_x = 1.371 \text{ Mg/m}^{-3}$, $\lambda(\text{Cu } K_{\alpha 1}) = 1.54178\text{Å}$, $\mu = 0.86\text{mm}^{-1}$, room temperature. The crystal structure of N-isopropyl-2-cyano-3(5'-nitrofuryl)acrylamide has been determined by Direct Methods and refined to $R = 0.086$ for 797 observed reflections. The molecules in the crystal are packed at normal van der Waals forces and by an hydrogen bond between $N_1-H_1\dots O2^i$ ($N_1\dots O2^i$: $2.910(1)\text{Å}$), with $i=x,y,z+1$.

Keywords: crystal structure; bioactive compounds; furanic derivatives.

INTRODUCCION

Los derivados furánicos son compuestos que presentan gran interés en la industria química moderna, ya que poseen un conjunto de propiedades bioactivas que posibilitan su uso como fungicidas, bactericidas, agentes farmacológicos y anticorrosivos que hacen muy variada su aplicación en la agricultura y muy especialmente en la industria médico farmacéutica¹. Sin embargo, no existen en la literatura suficientes trabajos dedicados al estudio roentgenoestructural de los mismos.

En trabajos anteriores se realizaron determinaciones de estructuras cristalinas de varios de estos derivados²⁻⁴. En el presente trabajo se reporta la estructura cristalina del N-isopropil-2-ciano-3(5'-nitrofuril)acrilamida.

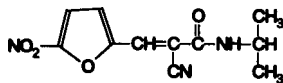


Figura 1. Estructura cristalina del N-isopropil-2-ciano-3(5'-nitrofuril)acrilamida.

PARTE EXPERIMENTAL

Los cristales del compuesto N-isopropil-2-ciano-3(5'-nitrofuril)acrilamida (esquema 1) son amarillos, transparentes y alargados en forma de listón a lo largo de la dirección cristalográfica [001]. El tamaño del monocristal seleccionado para la medición de las intensidades integrales de los máximos de difracción fue de sólo $0.02 \times 0.08 \times 0.30$ mm. Para la medición de los parámetros de la red se utilizaron 25 reflexiones independientes medidas en el intervalo $16 < 2\theta < 40^\circ$. Estas mediciones al igual que la de las intensidades integrales se realizaron en un difractoro de cuatro círculos SIEMENS P3/PC, con radiación de $\text{Cu } K_{\alpha 1}$ (filtrada) ($\lambda = 1.5418\text{Å}$). Las intensidades se registraron mediante el método de barrido $\theta/2\theta$ con $2\theta < 50^\circ$. Los índices de Miller se variaron en los siguientes intervalos: $0 < h < 5$, $-22 < K < 22$ y $-4 < l < 4$. Fueron registradas 1417 reflexiones de las cuales 1249 resultaron independientes y 797 cumplieron con la condición de que su intensidad integral fuese mayor que $3\sigma(I)$, utilizándose las

mismas en el proceso de determinación de la estructura y su refinamiento. A estas mediciones se le introdujeron las correcciones correspondientes a los factores de Lorentz y polarización⁵ no así correcciones por la absorción de los rayos X dado su pequeño valor. Tres reflexiones de referencia fueron seleccionadas para ser medidas cada 50 observaciones con vistas a valorar la variación de las intensidades, este parámetro fue inferior a 3% ($R_{int} = 0.022$). La estructura se determinó mediante el uso de los métodos directos^{6,7} con $|E| > 1.2$ y un 94% de probabilidad en la determinación de las fases. De la mejor variante se calculó la síntesis de $E(x,y,z)$ a partir de la cual se obtuvo la mayoría de los átomos de la molécula con excepción de aquellos con gran movimiento térmico y los átomos de hidrógeno. Los restantes átomos y el átomo H1 del grupo amino se encontraron en sucesivas síntesis de diferencias de Fourier de la densidad electrónica $\rho(x,y,z)$. Los restantes átomos de hidrógeno fueron calculados.

Los átomos no hidrógenos se refinaron mediante mínimos cuadrados en aproximación anisotrópica hasta un valor de $R = 0.086$. Para el refinamiento se utilizaron los factores de estructura (F^2), con sistema de pesos estadísticos $w = (\sigma^2 F + 0.0001227F^2)^{-1}$, obteniéndose un factor de mérito $wR = 0.104$, para los 167 parámetros refinados. La diferencia de densidad electrónica residual observada es $\Delta\rho_{max} = 0.31$ y $\Delta\rho_{min} = -0.22e \text{ Å}^{-3}$. Para todos los cálculos se utilizó el sistema de programas para cálculos cristalográficos SHELXL-Plus⁸.

RESULTADOS Y DISCUSION

Las coordenadas atómicas de los átomos no-hidrógenos están dadas en la tabla 1. Las distancias de enlace y ángulos de enlace se reportan en la tabla 2. Las coordenadas posicionales y térmicas de los átomos hidrógeno, los factores térmicos anisotrópicos de los átomos no hidrógenos y los factores de estructura de cada reflexión medida pueden ser obtenidos a pedido en la Base de Datos de Estructuras Orgánicas, Inorgánicas y Organometálicas del CENIC⁹ o desde el Cambridge Structural Data Base¹⁰. La conformación molecular del compuesto aparece en la figura 2.

Los átomos N_1-H_1 del grupo amino forman un puente de hidrógeno intermolecular¹¹ con el O2 del grupo carbonilo de la

Tabla 1. Coordenadas atómicas ($\times 10^4$) y factores térmicos ($\text{\AA}^2 \times 10^3$).

Átomos	x	y	z	U*
O(1)	8585	6450	533	63(1)
O(2)	4767	8253	6251	69(1)
O(3)	12570	5796	1907	107(1)
O(4)	11831	5214	-1813	104(1)
N(1)	3310	8393	1817	64(1)
N(2)	10214	7351	5821	85(1)
N(3)	11284	5647	-289	83(1)
C(2)	6362	6678	-608	56(1)
C(3)	5532	6355	-2833	64(1)
C(4)	7281	5889	-3188	68(1)
C(5)	9045	5969	-1142	59(1)
C(6)	5305	7220	612	59(1)
C(7)	6150	7566	2788	57(1)
C(8)	4688	8115	3779	53(1)
C(9)	8459	7434	4452	60(1)
C(11)	1636	8892	2472	69(1)
C(12)	-383	8954	289	99(1)
C(13)	2959	9428	3056	142(1)

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

molécula vecina, (N1...O2: 2.910(1)Å, N1—H1...O2: 172.8°, operación de simetría: x, y, z + 1). Las moléculas están empaquetadas por la acción del puente de hidrógeno intermolecular y contactos débiles de van der Waals. Las distancias de enlace están acordes con las reportadas en la literatura para este tipo de interacciones¹².

CONCLUSIONES

Se determinó la estructura cristalina del $C_{11}H_{11}N_3O_4$, con un valor final de $R = 0.086$. La molécula presenta un puente de hidrógeno intermolecular entre el grupo amino y el grupo carbonilo de la molécula vecina. El relativo alto valor del factor R (8.6%) se debe en primer lugar al pequeñísimo tamaño del monocristal que creció por la evaporación lenta de etanol, así como por el fuerte movimiento térmico de los grupos terminales de esta estructura.

Tabla 2. Distancias de enlace (Å) y ángulos de enlace (°). Las desviaciones estándar se muestran entre paréntesis.

O(1)-C(2)	1.366(1)	O(1)-C(5)	1.346(1)
O(2)-C(8)	1.223(1)	O(3)-N(3)	1.253(1)
O(4)-N(3)	1.234(1)	N(1)-C(8)	1.328(1)
N(1)-C(11)	1.453(1)	N(2)-C(9)	1.120(1)
N(3)-C(5)	1.424(1)	C(2)-C(3)	1.320(1)
C(2)-C(6)	1.448(1)	C(3)-C(4)	1.397(1)
C(4)-C(5)	1.320(1)	C(6)-C(7)	1.334(1)
C(7)-C(8)	1.519(1)	C(7)-C(9)	1.450(1)
C(11)-C(12)	1.455(1)	C(11)-C(13)	1.457(1)
C(2)-O(1)-C(5)	103.6(1)	C(8)-N(1)-C(11)	121.5(1)
O(3)-N(3)-O(4)	123.0(1)	O(3)-N(3)-C(5)	121.1(1)
O(4)-N(3)-C(5)	115.9(1)	O(1)-C(2)-C(3)	111.2(1)
O(1)-C(2)-C(6)	119.3(1)	C(3)-C(2)-C(6)	129.4(1)
C(2)-C(3)-C(4)	106.9(1)	C(3)-C(4)-C(5)	105.5(1)
O(1)-C(5)-N(3)	113.5(1)	O(1)-C(5)-C(4)	112.8(1)
N(3)-C(5)-C(4)	133.7(1)	C(2)-C(6)-C(7)	130.6(1)
C(6)-C(7)-C(8)	122.0(1)	C(6)-C(7)-C(9)	122.8(1)
C(8)-C(7)-C(9)	115.1(1)	O(2)-C(8)-N(1)	125.3(1)
O(2)-C(8)-C(7)	119.3(1)	N(1)-C(8)-C(7)	115.3(1)
N(2)-C(9)-C(7)	176.9(1)	N(1)-C(11)-C(12)	111.0(1)
N(1)-C(11)-C(13)	111.1(1)	C(12)-C(11)-C(13)	111.8(1)

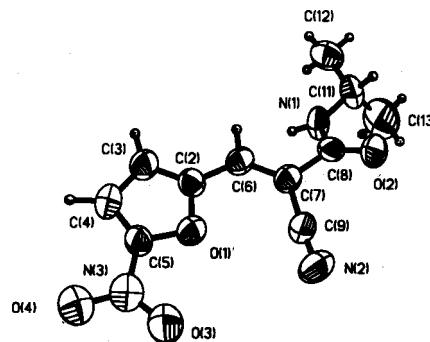


Figura 2. Conformación molecular del compuesto $C_{11}H_{11}N_3O_4$.

REFERENCIAS

- Bartroli, R.; Tesis de Doctorado. Univ. de Las Villas, Villa Clara, Cuba, 1985.
- Fajardo, F.; Shepelev, Y.; Smolin, Y. y Pomés, R.; *Rev. Cubana de Física* **1984**, 2, 17.
- Durruthy, O.; Pomés, R.; Fajardo, F.; Dago, A.; *Rev. Ciencias Técnicas, Físicas y Matemáticas* **1989**, 8, 27.
- Pomés, R.; Novoa, H.; Duque, J.; Toscano, R.; *Revista Copaquí* **1995**, 15, 647.
- Pomés, R.; Tesis en opción al grado de Doctor en Ciencias Físico Matemáticas, Univ. de Humbolt, Berlín, 1982.
- Hauptman, H.; *Sciences* **1986**, 233, 178.
- Hauptman, H.; *Chemica Scripta* **1986**, 26, 277.
- SHELXTL TM Plus. Siemens Crystallographic Research (USA), 1992.
- Base de Datos de Estructuras Orgánicas, Inorgánicas y Organometálicas del CENIC. Lab de Difracción de Rayos X, Centro Nacional de Investigaciones Científicas. La Habana, Cuba.
- Allen, F. H.; Bellard, S.; Brice, M. D.; Cartwright, B. A.; Doubleday, A.; Higgs, H.; Hummekink-Peters, B. G.; Kennard, O.; Motherwell, W. D. S.; Rodgers, J. R.; Watson, D. G.; *Acta Cryst.* **1979**, B35, 2331.
- Sutor, D. J.; *Nature* **1962**, 195, 68
- A. I. Kitaigorodskii. *Stroenie Organicheskogo Bechetsvo*, Izd. Nauka Rossiia, 1985.