

3-nitro-1,2,4-triazol-5-one의 Yb 착물 구조

Structure of Yb Complex with 3-nitro-1,2,4-triazol-5-one

김 광 주* 김 재 경* 오 기 환*
Kwang-Joo Kim, Jae-Kyung Kim, Ki-Hwan Oh

요 약

X-선 /회절법으로 3-nitro-1,2,4-triazol-5-one(NTO)와 Yb의 금속착물인 $[Yb(NTO)_3(H_2O)_4] \cdot 5H_2O$ 의 결정 구조를 조사하였다. 결정계는 단사정계, C2/c, $a=36.925(2)\text{\AA}$, $b=6.6770(4)\text{\AA}$, $c=25.6376(15)\text{\AA}$, $\beta=130.978(1)^\circ$, $V=4772.0(5)\text{\AA}^3$, $Z=8$, $D_c=1.952\text{ Mg/m}^3$ 이다. 회절반점들의 세기는 CCD 면적 검출장치를 장착한 Bruker SMART diffractometer로 얻었으며 Mo $K\alpha$ X-선을 사용하였다. 분자구조는 직접법으로 풀었으며 최소자승법으로 정밀화 하였다. 최종신뢰도 R 값은 4727개의 독립회절반점으로 335개의 파라메타에 대하여 0.0424 이었다. 4개의 배위 물분자와 NTO 음이온의 3개 카르보닐기는 pentagonal bipyramid를 이루며 Yb^{3+} 양이온과 연결되어 있고 또한 5개의 물분자가 결정수의 형태로 분자구조에 포함되어 있다.

ABSTRACT

The structure of Yb complex with 3-nitro-1,2,4-triazol-5-one(NTO), $[Yb(NTO)_3(H_2O)_4] \cdot 5H_2O$ has been investigated by X-ray diffraction method. Crystallographic data for the title compound : monoclinic, C2/c, $a=36.925(2)\text{\AA}$, $b=6.6770(4)\text{\AA}$, $c=25.6376(15)\text{\AA}$, $\beta=130.978(1)^\circ$, $V=4772.0(5)\text{\AA}^3$, $Z=8$, $D_c=1.952\text{ Mg/m}^3$. The intensity data were collected on a Bruker SMART diffractometer equipped with a CCD area detector using Mo $K\alpha$ radiation. The structure was solved by direct method and refined by full-matrix least-squares calculations to a final R value of 0.0424 for 4727 independent reflections and 335 parameters. The three carbonyls of three NTO anions and four ligand water molecules which are formed the pentagonal bipyramid are coordinated with Yb^{3+} and also five water molecules are included in the form of the crystal water in the molecular structure.

1. 서 론

NTO(3-nitro-1,2,4-triazol-5-one)는 1966년도에 Chipen 등에 의하여 그 합성방법이 최초로 보고된

이후¹⁾, 새로운 둔감화약으로 적용 가능성에 대하여 많은 관심이 집중되었다^{2,3)}. NTO의 실용적인 합성 방법이 알려지면서 NTO는 RDX(1,3,5-trinitro-1,3,5-triazacyclohexane)와 유사한 성능을 나타내면서, TATB(1,3,5-triamino-2,4,6-trinitrobenzene)와 유사한 둔감도를 보여줌이 확인되었으며^{4,5)}, 1990년대부터

* 국방과학연구소

고성능 둔감화약 및 자동차용 안전백에 사용되는 가스발생기 등의 군수 및 민수용으로 많은 주목을 받아 왔다^{6,7)}.

NTO는 흰색의 결정성 고체로서 물에 약간 녹으며 금속이온과 반응하여 NTO 금속 착물을 생성한다. 이러한 NTO 금속 착물에 대한 연구 역시 1990년대 초반부터 뇌관 등에 사용되고 있는 일차화약의 대체화약⁸⁾ 및 추진제의 연소속도 및 연소온도 조절제로의 적용을 목표로 연구가 진행되고 있다^{9,10)}. 특히, NTO 착물과 관련하여 이 화합물들의 분자구조와 관련된 화학적 결합형태, 분자의 입체적 형상, 전하분포, 결합 길이, 결합각 등을 이해하기 위하여 단결정을 성장하고 그 결정구조를 분석하는 많은 연구가 발표되고 있다¹¹⁻¹³⁾.

NTO는 다른 질소 함유 분자화약들과 같이 질소함량이 높고 밀도 및 열적 엔탈피가 크지만 둔감한 화약이다. 이러한 NTO의 화약으로서 둔감특성은 NTO 분자구조에 기인하는 것으로 알려져 있다¹⁴⁾. 즉 NTO 분자내의 결합길이는 nitramine 계열 화약의 결합길이보다 짧기 때문에 분자부피가 작고, 상대적으로 높은 밀도를 나타내고 있으며, NTO 분자내의 고립 전자쌍은 conjugation에 참여하여 분자의 방향성(aromaticity)을 증가시켜 열적 안정성이 높은 것으로 설명되고 있다. 본 연구에서는 ytterbium-NTO 금속 착물의 성능과 구조와의 관계를 깊이 있게 이해하기 위하여, 표제 화합물의 결정구조를 X-선 회절방법으로 조사하였다.

2. 실험

2.1 시료합성

Semicarbazide hydrochloride(Japan hydrazine

Co. 98.7 %)와 포름산(Hanawa pure chemical Ins., 85 %)을 축합반응시켜 중간체인 1,2,4-triazol-5-one (TO)를 합성하였다. 생성된 TO 결정을 소량의 아세트론으로 세척하면서 물에서 재결정하여 흰색 분말의 TO를 얻고, 이 재결정한 TO에 질산을 넣은 후 55~60°C로 가열하여 혼합물이 녹으면 진한 황산을 넣고 약 4시간 동안 반응시켜 NTO를 얻었다. Nitration 과정에 포함되어 있는 잔류 산들을 제거하기 위하여 물을 이용하여 재결정하고 건조하여 얻은 연 노랑색의 NTO를 착물 합성에 사용하였다. NTO 금속 착물은 NTO와 lithium hydroxide 수용액을 중화 반응시켜 Li-NTO를 합성하고 여기에 lanthanide nitrate를 반응시켜 금속 착물을 합성하는 문헌에 보고된 방법을 이용하였다¹⁵⁾.

2.2 X-선 회절실험

합성한 시료를 2차 증류수에 용해시켜 만든 포화 용액을 실온에서 서서히 증발시켜 성장시킨 프리즘형태의 황색 단결정을 사용하였다. 단결정의 크기는 0.53 × 0.56 × 0.56 mm이며, 실험 중에 시료에 포함된 결정수의 증발을 방지하기 위해 에폭시(epoxy) 수지로 도포하여 사용하였다. 실험실 온도 T=296(2) K에서 0° ≤ θ ≤ 28° 범위에 있는 20개의 측정된 회절 반점들을 최소자승법으로 정밀화하여 a=36.925(2) Å, b=6.6770(4) Å, c=25.6376(15) Å, β=130.978(1)° 이고 V=4772.0(5) Å³ 임을 알았으며, 결정계는 단사정계(monoclinic), 공간군은 C2/c, 단위포당 분자수 Z=8 이었다. 회절자료 측정은 1.59° ≤ θ ≤ 27.55°, -25 ≤ h ≤ 48, -8 ≤ k ≤ 8, -33 ≤ l ≤ 30 사이에서 5454개의 회절자료를 수집하였고, 그 중에서 4727개의 독립 회절 반점[I > 4σ(I)]을 사용하여 구조를 풀었으며, R_{int}=0.0481이었다.

[Table 1] Crystal data and structure refinement

Crystal Data	
C ₆ N ₁₂ O ₁₈ Yb	Z=8
M=701.22	T=293(2)
Monoclinic	Yellow
C2/c	$D_x=1.952 \text{ g/cm}^3$
a=36.925(2)	F(000)=2672
b=6.6770(4)	$\mu = 4.022$
c=25.6376(15)	$\lambda = 0.71073 \text{ \AA}$
$\beta = 130.9780(10)$	Mo K_α
V=4772.0(5)	Graphite
Data collection	
Bruker SMART diffractometer	h=-25 → 48
CCD area detector	k=-8 → 8
5455 measured reflections	l=-33 → 30
4727 reflections with $I > 4\sigma(I)$	$1.59 \leq \theta \leq 27.55$
Refinement	
Refinement on F^2	R=0.0424
335 parameters	wR=0.1219
Goof=1.042	$(\Delta/\sigma)_{\max} = 0.009$
$\Delta \rho_{\max} (e\text{\AA}^{-3}) = 2.17$	$\Delta \rho_{\min} (e\text{\AA}^{-3}) = -2.52$
Computing_structure_solution	SHELXS-97 (Sheldrick, 1997)
Computing_structure_refinement	SHELXL-97 (Sheldrick, 1997)
$w = 1/[\sigma^2 F_o^2 + (0.0816P)^2 + 16.4641P]$ where $P = [F_o^2 + 2F_c^2]/3$	
Atom_sites_solution_primary	direct
Atom_sites_solution_secondary	difmap
Refine_ls_extinction_method	SHELXL
Refine_ls_extinction_coef	0.00389(17)
Scattering factors from 'International Tables Vol C Tables 4.2.6.8 and 6.1.1.4'	

[Table 2] Fractional atomic coordinates and equivalent isotropic displacement parameters (\AA^2)

	x	y	z	E(eq) [*]
Yb	0.163695(8)	0.92539(3)	0.204314(11)	0.01515(14)
C1	0.2667(2)	0.8326(9)	0.3689(3)	0.0210(12)
C2	0.3320(2)	0.8452(9)	0.4695(3)	0.0197(11)
C3	0.0499(2)	0.8103(9)	0.0697(3)	0.0255(13)
C4	0.0028(2)	0.7255(9)	-0.0330(3)	0.0243(13)
C5	0.1751(2)	0.8276(9)	0.0891(3)	0.0183(11)
C6	0.1757(2)	0.8528(9)	0.0090(3)	0.0215(12)
N1	0.31423(17)	0.8333(8)	0.4037(2)	0.0205(10)
N2	0.30238(19)	0.8565(9)	0.4809(3)	0.0272(11)
N3	0.25918(17)	0.8491(9)	0.4146(2)	0.0244(11)
N4	0.38310(19)	0.8473(9)	0.5272(3)	0.0280(12)
N5	0.00430(18)	0.7885(8)	0.0466(3)	0.0265(11)
N6	-0.02670(18)	0.7340(8)	-0.0215(3)	0.0248(11)
N7	0.04878(19)	0.7694(8)	0.0179(3)	0.0275(12)
N8	-0.0160(2)	0.6703(9)	-0.1023(3)	0.0348(13)
N9	0.12973(18)	0.8191(8)	0.0279(3)	0.0245(11)
N10	0.12963(19)	0.8333(9)	-0.0248(3)	0.0267(11)
N11	0.20541(17)	0.8490(8)	0.0779(2)	0.0196(10)
N12	0.1922(2)	0.8802(9)	-0.0281(3)	0.0296(12)
O1	0.23331(15)	0.8221(7)	0.3035(2)	0.0299(11)
O2	0.40943(18)	0.8372(11)	0.5140(3)	0.0480(15)
O3	0.39725(19)	0.8574(11)	0.5855(2)	0.0502(15)
O4	0.08529(17)	0.8602(8)	0.1312(2)	0.0361(11)
O5	0.0122(2)	0.6714(15)	-0.1124(4)	0.071(2)
O6	-0.0578(2)	0.6240(11)	-0.1449(3)	0.0526(15)
O7	0.18589(16)	0.8131(7)	0.1481(2)	0.0268(10)
O8	0.1644(2)	0.8460(11)	-0.0898(3)	0.0541(16)
O9	0.2334(2)	0.9384(8)	0.0046(3)	0.0435(14)
O10	0.14957(19)	1.0612(7)	0.2694(3)	0.0335(11)
O11	0.1538(2)	0.5940(8)	0.2178(3)	0.0450(15)
O12	0.21744(18)	1.1920(8)	0.2460(2)	0.0385(12)
O13	0.12892(15)	1.1842(7)	0.1239(2)	0.0306(11)
O14	0.19562(17)	0.3979(7)	0.3346(2)	0.0295(10)
O15	0.17569(18)	0.6887(8)	0.3876(2)	0.0369(12)
O16	0.0882(2)	0.8950(10)	0.2794(3)	0.0504(15)
O17	0.0040(3)	0.8296(16)	0.3473(4)	0.086(3)
O18	0.4480(2)	0.3944(13)	0.6695(3)	0.076(2)

* U(eq) is defined as one third of the trace of the orthogonalized U_{ij} tensor.

[Table 3] Bond lengths [Å] and angles [°]

Yb - O7	2.204(4)	C4 - N7	1.329(8)
Yb - O4	2.229(5)	C4 - N8	1.468(9)
Yb - O1	2.231(4)	C5 - O7	1.291(7)
Yb - O10	2.240(5)	C5 - N11	1.334(7)
Yb - O11	2.305(5)	C5 - N9	1.351(7)
Yb - O13	2.327(4)	C6 - N10	1.313(8)
Yb - O12	2.338(5)	C6 - N11	1.334(7)
C1 - O1	1.275(7)	C6 - N12	1.443(8)
C1 - N1	1.349(8)	N2 - N3	1.371(7)
C1 - N3	1.374(8)	N4 - O2	1.223(7)
C2 - N2	1.305(8)	N4 - O3	1.220(7)
C2 - N1	1.352(7)	N5 - N6	1.366(7)
C2 - N4	1.445(8)	N8 - O6	1.206(8)
C3 - O4	1.266(8)	N8 - O5	1.228(8)
C3 - N7	1.330(9)	N9 - N10	1.350(7)
C3 - N5	1.377(8)	N12 - O8	1.216(7)
C4 - N6	1.304(8)	N12 - O9	1.222(8)
O7 - Yb - O4	102.64(18)	N6 - C4 - N7	119.1(6)
O7 - Yb - O1	89.74(17)	N6 - C4 - N8	118.9(5)
O4 - Yb - O1	142.04(19)	N7 - C4 - N8	122.0(6)
O7 - Yb - O10	172.94(17)	O7 - C5 - N11	127.1(5)
O4 - Yb - O10	84.1(2)	O7 - C5 - N9	123.6(5)
O1 - Yb - O10	86.16(18)	N11 - C5 - N9	109.3(5)
O7 - Yb - O11	86.3(2)	N10 - C6 - N11	117.2(6)
O4 - Yb - O11	72.09(19)	N10 - C6 - N12	120.2(5)
O1 - Yb - O11	73.12(18)	N11 - C6 - N12	122.6(5)
O10 - Yb - O11	98.0(2)	C1 - N1 - C2	100.5(5)
O7 - Yb - O13	84.20(17)	C2 - N2 - N3	100.7(5)
O4 - Yb - O13	75.06(17)	N2 - N3 - C1	109.7(5)
O1 - Yb - O13	142.52(17)	O2 - N4 - O3	124.2(6)
O10 - Yb - O13	95.57(18)	O2 - N4 - C2	117.3(5)
O11 - Yb - O13	142.75(17)	O3 - N4 - C2	118.5(6)
O7 - Yb - O12	89.43(18)	N6 - N5 - C3	110.1(5)
O4 - Yb - O12	141.08(19)	C4 - N6 - N5	100.2(5)
O1 - Yb - O12	73.52(18)	C3 - N7 - C4	102.1(5)
O10 - Yb - O12	83.90(18)	O6 - N8 - O5	124.6(7)
O11 - Yb - O12	146.37(19)	O6 - N8 - C4	118.0(6)
O13 - Yb - O12	69.48(17)	O5 - N8 - C4	117.4(6)
O1 - C1 - N1	126.0(6)	C5 - N9 - N10	110.3(5)
O1 - C1 - N3	124.2(6)	C6 - N10 - N9	101.1(5)
N1 - C1 - N3	109.7(5)	C5 - N11 - C6	102.0(5)
N2 - C2 - N1	119.3(5)	O8 - N12 - O9	124.3(6)
N2 - C2 - N4	119.6(5)	O8 - N12 - C6	118.1(6)
N1 - C2 - N4	121.1(5)	O9 - N12 - C6	117.5(5)
O4 - C3 - N7	128.9(6)	C1 - O1 - Yb	151.7(4)
O4 - C3 - N5	122.5(6)	C3 - O4 - Yb	144.0(5)
N7 - C3 - N5	108.6(5)	C5 - O7 - Yb	141.2(4)

[Table 4] Selected torsion angles(°)

O1-C1-N1-C2	-179.6(6)	N9-C5-N11-C6	0.2(6)
N3-C1-N1-C2	1.6(6)	N10-C6-N11-C5	-0.9(7)
N2-C2-N1-C1	-1.5(7)	N12-C6-N11-C5	178.1(6)
N4-C2-N1-C1	179.0(6)	N10-C6-N12-O9	165.2(6)
O1-C1-N3-N2	179.9(6)	O7-Yb-O1-C1	154.4(10)
O4-C3-N5-N6	-180.0(6)	O4-Yb-O1-C1	-95.1(10)
N7-C3-N5-N6	-0.4(7)	N7-C3-O4-Yb	1.2(12)
N7-C4-N6-N5	-0.8(7)	N5-C3-O4-Yb	-179.3(5)
O4-C3-N7-C4	179.5(7)	O7-Yb-O4-C3	-13.1(8)
N6-C4-N7-C3	0.5(8)	O1-Yb-O4-C3	-119.3(7)
N8-C4-N7-C3	179.7(6)	N11-C5-O7-Yb	135.9(6)
O7-C5-N9-N10	-178.4(5)	N9-C5-O7-Yb	-45.4(10)
N11-C6-N10-N9	1.2(7)	N1-C1-O1-Yb	-133.0(8)
O7-C5-N11-C6	179.1(6)	N3-C1-O1-Yb	45.6(13)

X-선 회절강도 자료는 Bruker SMART 고니오메타와 CCD(Charge Coupled Device) 면적 검출장치를 사용하였으며 X-선의 파장은 graphite로 단색화한 Mo K_{α} , $\lambda=0.71073\text{\AA}$ 이다. 측정된 회절자료는 Lorentz-polarization factor를 보정하였으며 psi-scan 방법으로 흡수보정을 하였다. 결정구조는 Bruker SHELXTL¹⁶⁾을 사용하여 직접법으로 밝혔으며, 비수소 원자는 비등방성 온도인자를 사용하여 full-matrix least squares 방법으로 정밀화하였다. 최종 신뢰도 인자는 4727개의 독립회절반점으로 335개의 파라메타에 대하여 $R=0.042$ 이었으며, $wR=0.122$, $GooF=1.042$ 이다. 실험에 대한 결정학적 자료는 Table 1에 정리되어 있고, 비수소 원자들의 최종 원자 좌표는 Table 2에, 비수소 원자들의 결합길이와 결합각은 Table 3에, 그리고 비틀림각은 Table 4에 각각 표시하였다.

3. 결과 및 논의

결정구조해석을 통하여 본 결과, 4개의 배위 물 분자 산소와 NTO 음이온의 3개 카르보닐기는 Yb^{3+} 양이온에 연결되어 $\text{Yb}(\text{NTO})_3 \cdot (\text{H}_2\text{O})_4$ 구조로 pentagonal bipyramid 배열을 하고 있으며, 배위에 참여하지 않은 5개의 물분자가 결정수 형태로 존재하여 표제 화합물 $[\text{Yb}(\text{NTO})_3 \cdot (\text{H}_2\text{O})_4] \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ 를 이루고 있다. 이에 대한 분자구조와 번호부여는 Fig. 1에 나타내었고 Fig. 2에서는 b-축으로 투영한 결정격자 내의 분자 pack diagram을 표시하였다.

Yb^{3+} 원자와 3개의 카르보닐기 산소 원자와의 결합 길이는 $2.204\sim 2.230\text{\AA}$ 이고, 4개의 배위 물분자의 산소와의 결합길이는 $2.242\sim 2.339\text{\AA}$ 사이에 있다. 두 종류의 결합거리는 명확히 다른 것으로 이와 같이 NTO 고리 산소의 결합길이가 짧은 것은 Yb^{3+} 원자

와 카르보닐기의 π -전자에 의한 유도효과(induction effect) 때문에 이들 사이에 전자밀도가 증가하게 되고 이 결과로서 결합길이는 짧아지는 것으로 볼 수 있으며, Eu-NTO, Dy-NTO 등의 구조에서 관찰된 것과 일치한다^{12,13}. 결합길이 가운데 가장 먼 거리는 Yb-O(12)로 2.339Å이고, 가장 짧은 거리는 Yb-O(7)로 2.204Å이다.

NTO 고래내의 원자간 결합길이는 C(1)-N(3) 1.374Å, C(1)-N(1) 1.349Å, N(1)-C(2) 1.352Å, N(2)-N(3) 1.371Å으로 1.349~1.374Å 이나 C(2)-N(2)의 결합길이는 1.305Å로 다른 결합길이에 비해 짧은데, 이것은 이들 결합사이에 이중결합이 존재함을 의미한다. 이들 원자간 결합길이는 Ritchie 등이 MO 방법으로 계산하여 발표한 결과 및 Sorescu 등이 ab initio MO 방법으로 계산한 결과와도 잘 일치한다^{17,18}.

NTO 분자내의 결합각은 대략 101° ~ 119° 로서

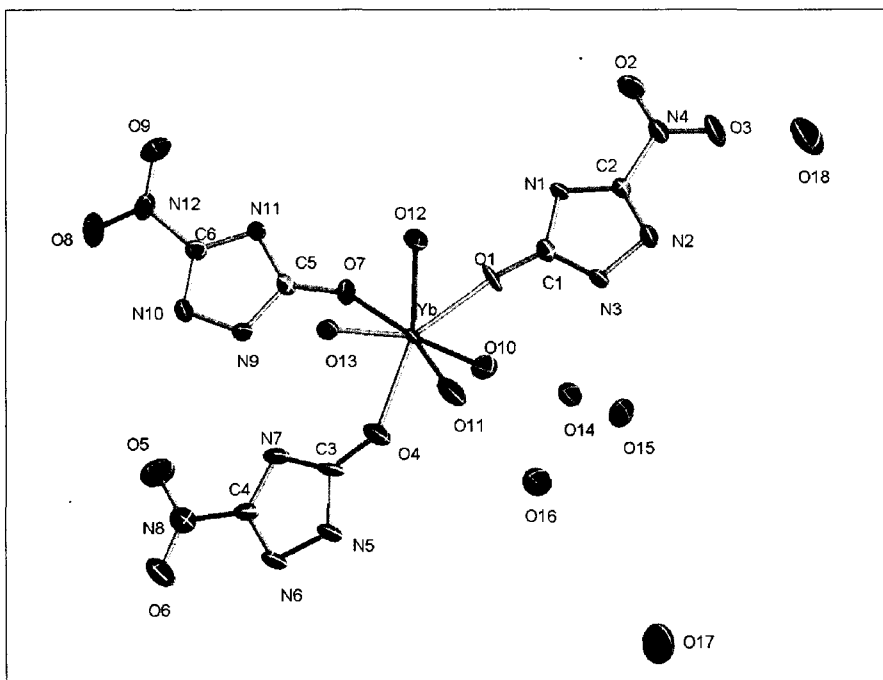
특히 C-N-C(~102°)는 nitramine 계열 C-C-C(~124°)보다 작고^{17,18} 오각형 화합물의 평균 결합각인 108°와 유사하며, 따라서 분자는 거의 평면구조를 갖는다. 평면방정식으로 나타난 Yb³⁺ 배위의 3개 NTO 고리는 ±0.008Å 이내에서 평면을 이루고 있고, 3개 NTO 고리의 평면 방정식은 다음과 같다

$$(C5-N11-C6-N10-N9) \\ -0.0766x + 0.9904y - 0.0781z = 4.9657 \quad (1)$$

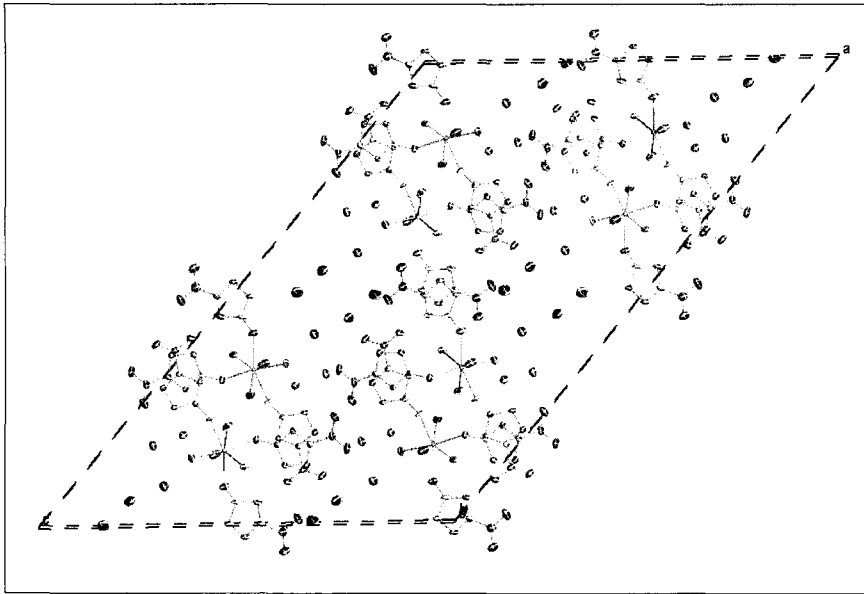
$$(C3-N7-C4-N6-N5) \\ -0.1856x + 0.9622y + 0.1985z = 4.8304 \quad (2)$$

$$(C1-N1-C2-N2-N3) \\ -0.0058x + 0.9974y + 0.0716z = 5.2967 \quad (3)$$

이들 세 개의 고리들간의 이면각의 크기는 (1)과 (2) 사이가 17.4°이고, (1)과 (3) 사이는 9.5° 그리고 (2)와 (3) 사이는 12.8°이다. Yb³⁺ 원자와 (1), (2), (3)



[Fig. 1] Molecular structure of [Yb(NTO)₃(H₂O)₄] · 5H₂O with the atomic numbering scheme showing 50% probability displacement ellipsoids. Hydrogen atoms omitted for clarity.



[Fig. 2]
Packing plot of the molecule
[Yb(NTO)₃(H₂O)₄] · 5H₂O
in the crystal lattice.

평면과의 거리는 각각 0.9261, 0.0108, 0.7485Å으로 Yb³⁺ 원자는 거의 (2) 평면의 연장면상에 위치하고 있다. 또한, Yb³⁺ 원자와 3개 NTO 고리 사이의 비틀림각을 보면 N11-C5-O7-Yb(135.9°), N7-C3-O4-Yb(1.2°), N1-C1-O1-Yb(-133.0°)로서 고리 (2)가 다른 두 개의 고리와는 다른 배좌를 보여주고 있다.

참 고 문 헌

1. G. I. Chipen, R. P. Bokalder, V. Y. Grinshtein, *Chemistry of Heterocycles*, 2, 79 (1966).
2. K. Y. Lee, L. B. Chapman, M. D. Coburn, *J. Energetic Materials*, 5, 27 (1987).
3. L. B. Chapman, *Proceeding of the 9th Symposium International on Detonation*, Portland, Oregon, 1001 (1989).
4. K. Y. Lee, M. D. Coburn, *LA-10302-MS*, Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, NM87545 (1985).
5. A. Becuew, *Fr Demande, FR2583066(C1 C06 B25/34)* (1987).
6. A. Becuwe, A. Declos, *Propellants, Explosive, Pyrotechnics*, 18, 1 (1993).
7. R. J. Spear, C. N. Louey, M. G. Wolfson, *MRL-TR-89-18(AD-A215063)*, Material Research Center, Maribyrnong Vic., Austria (1989).
8. L. D. Redman, R. J. Spear, *MRL-TN-563(AD-A220339)*, Material Research Center, Maribyrnong Vic., Austria (1990).
9. S. M. Shen, S. I. Chen, B. H. Wu, *Thermochimica Acta*, 223, 135 (1993).
10. S. W. Lee, J. N. Wang, X. Y. Fu, J. H. Zhou, *Energetic Materials(China)*, 1, 22 (1993).

11. J. A. Tervo, J. K. Hyypä, T. M. Meriläinen, *Analysis of Lithium Salts of NTO, Preceding of 25th International Conference of ICT*, Karlsruhe, Germany, June 28-July 1, 67-1 (1994).
12. J. R. Song, R. Z. Hu, F. P. Li, Z. H. Mao, Z. H. Zhou, Z. Hong, *Energetic Materials*, 4, 150 (1996).
13. R. Z. Hu, J. R. Song, F. P. Li, B. Kang, Y. H. Kuong, Z. H. Mao, Z. H. Zhou, Z. Hong, *Thermochimica Acta*, 299, 87 (1997).
14. Y. Xie, R. Hu, X. Wang, X. Fu, C. Zhu, *Thermochimica Acta*, 189, 283 (1991)
15. D. T. Song, R. Z. Hu, F. P. Li, T. L. Zhang, Z. H. Mao, Z. H. Zhou, Z. Hong, *Chinese Science Bulletin*, 41, 1806 (1996).
16. G. M. Sheldrick, *SHELXTL for NT, Program for the Solution and Refinement of Crystal Structures*, Bruker Analytical X-Ray Systems Inc., Madison, Wisconsin, USA (1998).
17. J. P. Retchie, *J. Organic Chem*, 54, 3553 (1989).
18. D. C. Sorescu, R. L. Teresa, D. L. Thompson, *J. Molecular Structure*, 384, 87 (1996).