TABLE S1. MONOPOLE POPULATIONS, RADIAL PARAMETERS AND NET ATOMIC CHARGES.

ATOM	Pval	KAPPA	P00	KAPPA'	NET CHARGE
O(3)	6.182	0.996	0.000	1.000	-0.182
O(1)	6.152	0.997	0.000	1.000	-0.152
O(4)	6.141	0.996	0.000	1.000	-0.140
O(2)	6.168	0.996	0.000	1.000	-0.167
N(1)	5.160	0.997	0.000	1.000	-0.160
N(3)	5.007	0.993	0.000	1.000	-0.007
N(2)	5.131	0.997	0.000	1.000	-0.131
C(1)	4.023	0.998	0.000	1.000	-0.022
H(2NB)	0.822	1.200	0.000	1.200	+0.177
H(1NB)	0.804	1.200	0.000	1.200	+0.195
H(1O)	0.811	1.200	0.000	1.200	+0.189
H(1NA)	0.816	1.200	0.000	1.200	+0.184
H(2NA)	0.782	1.200	0.000	1.200	+0.217

TABLE S2. DIPOLE POPULATION PARAMETERS.

ATOM	D11+	D11-	D10	KAPPA'
O(3)	-0.069(5)	-0.018(5)	0.000	1.000
O(1)	0.005(5)	-0.065(5)	0.000	1.000
O(4)	-0.095(5)	-0.015(5)	0.000	1.000
O(2)	-0.077(5)	0.011(5)	0.000	1.000
N(1)	0.023(7)	0.037(6)	0.000	1.000
N(3)	-0.010(6)	0.004(6)	0.000	1.000
N(2)	0.004(7)	0.033(6)	0.000	1.000
C(1)	-0.023(8)	0.001(8)	0.000	1.000
H(2NB)	0.000	0.000	0.073(10)	1.200
H(1NB)	0.000	0.000	0.117(10)	1.200
H(1O)	0.000	0.000	0.090(10)	1.200
H(1NA)	0.000	0.000	0.121(10)	1.200
H(2NA)	0.000	0.000	0.111(10)	1.200

TABLE S3. QUADRUPOLE POPULATION PARAMETERS.

ATOM	Q20	Q21+	Q21-	Q22+	Q22-	KAPPA'
O(3)	-0.019(0)	0.000	0.000	-0.129(0)	0.022(0)	1.000
O(1)	0.025(6)	0.000	0.000	0.045(5)	0.036(5)	1.000
O(4)	-0.009(0)	0.000	0.000	-0.134(0)	-0.012(0)	1.000
O(2)	-0.009(0)	0.000	0.000	-0.119(0)	0.004(0)	1.000
N(1)	-0.009(0)	0.000	0.000	0.005(0)	-0.021(0)	1.000
N(3)	-0.177(5)	0.000	0.000	0.006(0)	-0.013(5)	1.000
N(2)	-0.007(0)	0.000	0.000	0.007(0)	-0.023(0)	1.000
C(1)	-0.226(7)	0.000	0.000	-0.033(6)	-0.009(7)	1.000
H(2NB)	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.200
H(1NB)	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.200
H(1O)	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.200
H(1NA)	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.200
H(2NA)	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.200

TABLE S4. OCTUPOLE POPULATION PARAMETERS.

ATOM	O30	O31+	O31-	O32+	O32-	O33+	O33-	KAPPA'
O(3)	0.000	0.003(7)	0.018(7)	0.000	0.000	0.035(6)	-0.004(6)	1.000
O(1)	0.000	-0.012(7)	-0.010(7)	0.000	0.000	0.080(6)	-0.011(6)	1.000
O(4)	0.000	0.003(7)	-0.020(7)	0.000	0.000	0.024(6)	0.001(6)	1.000
O(2)	0.000	0.016(8)	-0.011(8)	0.000	0.000	0.028(6)	0.008(7)	1.000
N(1)	0.000	-0.029(8)	-0.007(8)	0.000	0.000	0.170(7)	0.011(7)	1.000
N(3)	0.000	0.002(8)	0.006(8)	0.000	0.000	0.294(8)	0.003(8)	1.000
N(2)	0.000	-0.009(8)	-0.014(8)	0.000	0.000	0.176(7)	-0.003(8)	1.000
C(1)	0.000	-0.027(10)	-0.001(10)	0.000	0.000	0.336(10)	0.067(11)	1.000
H(2NB)	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.200

H(1NB)	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.200
H(1O)	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.200
H(1NA)	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.200
H(2NA)	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.200

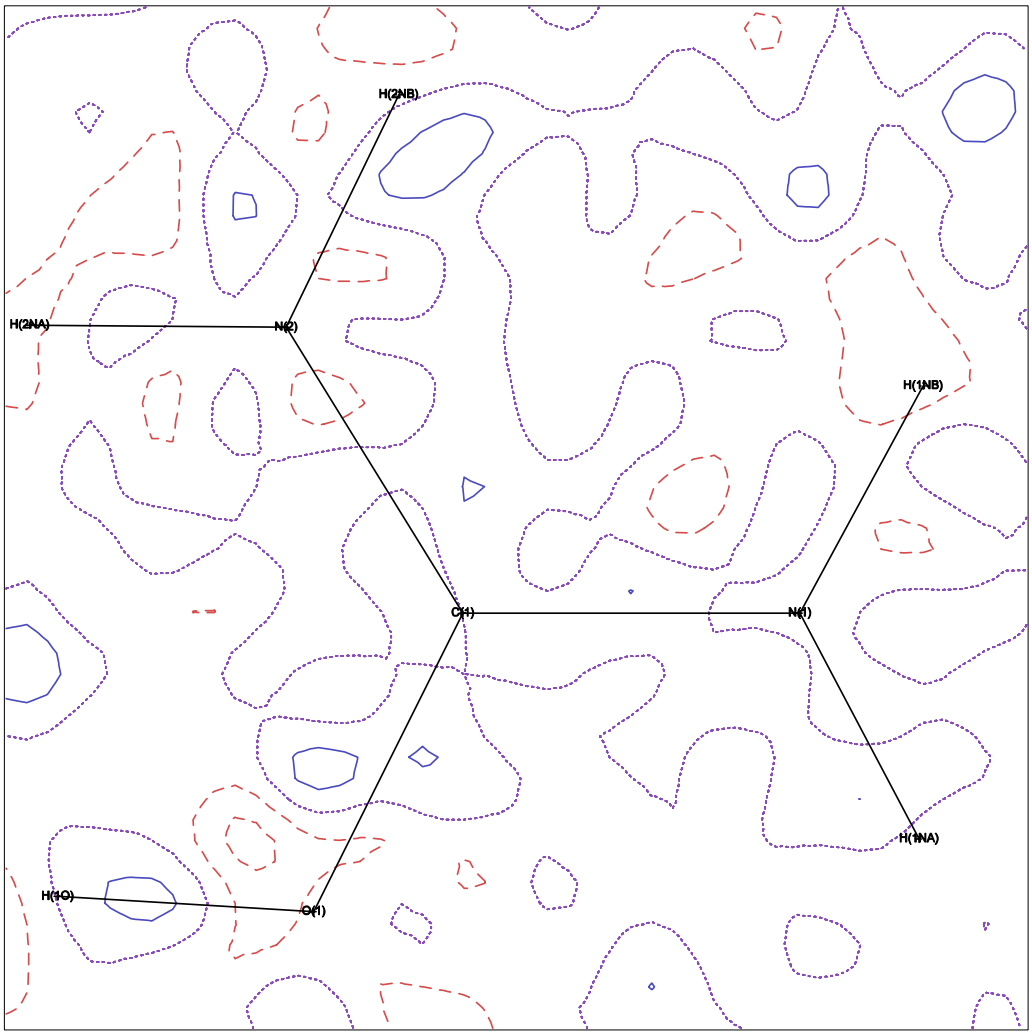
TABLE S5. HEXADECAPOLE POPULATION PARAMETERS.

ATOM	H40	H41+	H41-	H42+	H42-	H43+	H43-	H44+	H44-	KAPPA'
O(3)	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.000
O(1)	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.000
O(4)	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.000
O(2)	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.000
N(1)	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.000
N(3)	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.000
N(2)	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.000
C(1)	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.000
H(2NB)	0.035(25)	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.200
H(1NB)	0.002(23)	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.200
H(1O)	0.003(25)	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.200
H(1NA)	-0.057(25)	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.200
H(2NA)	-0.022(23)	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	1.200

```
loop_
_atom_local_axes_label
_atom_local_axes_atom0
_atom_local_axes_ax1
_atom_local_axes_atom1
_atom_local_axes_atom2
_atom_local_axes_ax2
O(3)    N(3)       X    O(3)    H(2NB)     Y
O(1)    H(1O)      X    O(1)    C(1)       Y
O(4)    N(3)       X    O(4)    O(3)       Y
O(2)    N(3)       X    O(2)    H(1NB)     Y
N(1)    H(1NA)     X    N(1)    H(1NB)     Y
N(3)    O(2)       X    N(3)    O(3)       Y
N(2)    H(2NA)     X    N(2)    H(2NB)     Y
C(1)    O(1)       X    C(1)    N(2)       Y
H(2NB)  N(2)       Z    H(2NB)  H(2NA)     Y
H(1NB)  N(1)       Z    H(1NB)  H(1NA)     Y
H(1O)   O(1)       Z    H(1O)   C(1)       Y
H(1NA)  N(1)       Z    H(1NA)  H(1NB)     Y
H(2NA)  N(2)       Z    H(2NA)  H(2NB)     Y
```

```
loop_
_atom_site_aniso_label
_atom_site_aniso_U_11
_atom_site_aniso_U_22
_atom_site_aniso_U_33
_atom_site_aniso_U_12
_atom_site_aniso_U_13
_atom_site_aniso_U_23
 O(3)    0.0139     0.0076     0.0142      0.0007     -0.0022      0.0010
 O(1)    0.0138     0.0064     0.0158     -0.0011     -0.0011      0.0000
 O(4)    0.0178     0.0066     0.0175     -0.0011     -0.0036     -0.0003
 O(2)    0.0168     0.0098     0.0189     -0.0002     -0.0076     -0.0007
 N(1)    0.0131     0.0077     0.0153      0.0004     -0.0018      0.0019
 N(3)    0.0106     0.0063     0.0111     -0.0002     -0.0007      0.0002
 N(2)    0.0126     0.0090     0.0129     -0.0005     -0.0023     -0.0005
 C(1)    0.0101     0.0065     0.0107     -0.0002      0.0003      0.0004
```

```
data_FFT
_refine_diff_density_max      0.090
_refine_diff_density_min     -0.133
_refine_diff_density_rms      0.020
```



The residual electron density map in the plane of the urea cation. Contours are drawn with 0.05 eÅ^{-3} interval, the negative ones (red) are dashed, the zero contour is drawn by a purple dot line.