

Table S1. Atomic coordinates ($\times 10^4$) and equivalent isotropic displacement parameters ($\text{\AA}^2 \times 10^3$) for $\text{OsHCl(NBD)(PPh}_3)_2$.

<i>Atom</i>	<i>x</i>	<i>y</i>	<i>z</i>	<i>U(eq)</i>
Os(1)	4476(1)	284(1)	2026(1)	23(1)
P(1)	3041(1)	1119(1)	1556(1)	27(1)
P(2)	5741(1)	1088(1)	2868(1)	25(1)
Cl(1)	3858(1)	-2(1)	3442(1)	38(1)
C(1)	3666(4)	-769(2)	1582(3)	33(1)
C(2)	4038(4)	-449(2)	860(3)	31(1)
C(3)	5748(4)	-416(2)	1686(3)	32(1)
C(4)	5391(4)	-735(2)	2407(3)	33(1)
C(5)	4542(4)	-1310(2)	2012(3)	36(1)
C(6)	5123(4)	-786(2)	850(3)	34(1)
C(7)	4989(5)	-1577(2)	1192(3)	41(1)
C(8)	2248(3)	800(2)	492(2)	30(1)
C(9)	2252(4)	1148(3)	-316(3)	43(1)
C(10)	1714(4)	846(3)	-1103(3)	51(1)
C(11)	1162(5)	196(3)	-1100(3)	53(1)
C(12)	1142(4)	-149(3)	-304(4)	48(1)
C(13)	1659(4)	149(2)	481(3)	40(1)
C(14)	2020(3)	1278(2)	2229(3)	32(1)
C(15)	955(4)	1307(3)	1855(3)	44(1)
C(16)	203(4)	1481(3)	2359(4)	52(1)
C(17)	514(4)	1639(3)	3248(4)	48(1)
C(18)	1564(5)	1642(3)	3619(3)	47(1)
C(19)	2330(4)	1453(2)	3130(3)	39(1)
C(20)	3339(3)	2080(2)	1277(3)	31(1)
C(21)	2732(4)	2681(3)	1461(4)	52(1)
C(22)	2974(5)	3398(3)	1242(4)	67(2)
C(23)	3822(5)	3527(3)	842(4)	67(2)

C(24)	4426(5)	2949(3)	650(3)	52(1)
C(25)	4174(4)	2227(2)	864(3)	37(1)
C(26)	5313(3)	1740(2)	3654(3)	31(1)
C(27)	4821(4)	2390(3)	3325(3)	44(1)
C(28)	4410(4)	2882(3)	3879(4)	55(1)
C(29)	4504(4)	2718(3)	4768(4)	57(1)
C(30)	4982(5)	2078(3)	5095(4)	65(2)
C(31)	5401(5)	1588(3)	4552(3)	50(1)
C(32)	6825(3)	564(2)	3534(3)	29(1)
C(33)	6635(4)	91(2)	4218(3)	36(1)
C(34)	7450(5)	-326(2)	4696(3)	47(1)
C(35)	8432(5)	-318(3)	4495(4)	53(1)
C(36)	8637(4)	124(3)	3801(4)	53(1)
C(37)	7844(4)	565(3)	3346(3)	42(1)
C(38)	6479(3)	1701(2)	2231(2)	29(1)
C(39)	6953(4)	2352(2)	2612(3)	43(1)
C(40)	7517(4)	2800(3)	2120(4)	51(1)
C(41)	7636(4)	2604(3)	1290(3)	50(1)
C(42)	7217(4)	1953(3)	928(3)	44(1)
C(43)	6641(3)	1501(2)	1391(3)	35(1)

U(eq) is defined as one third of the trace of the orthogonalized Uij tensor.

Table S2. Bond lengths (Å) and angles (°) for OsHCl(NBD)(PPh₃)₂.

Os(1)-P(1)	2.3918(11)	Os(1)-P(2)	2.3739(10)
Os(1)-Cl(1)	2.4997(10)	Os(1)-H(1)	1.727
Os(1)-C(1)	2.211(4)	Os(1)-C(2)	2.206(4)
Os(1)-C(3)	2.209(4)	Os(1)-C(4)	2.201(4)
C(1)-C(2)	1.410(6)	C(3)-C(4)	1.397(6)
C(1)-C(5)	1.543(6)	C(2)-C(6)	1.529(6)
C(3)-C(6)	1.531(6)	C(4)-C(5)	1.546(6)
C(5)-C(7)	1.553(6)	C(6)-C(7)	1.539(6)
P(1)-C(20)	1.840(4)	P(2)-C(32)	1.831(4)
P(1)-C(14)	1.842(4)	P(2)-C(26)	1.838(4)
P(1)-C(8)	1.845(4)	P(2)-C(38)	1.853(4)
C(8)-C(9)	1.388(6)	C(26)-C(27)	1.381(6)
C(9)-C(10)	1.383(6)	C(27)-C(28)	1.399(6)
C(10)-C(11)	1.372(7)	C(28)-C(29)	1.375(7)
C(11)-C(12)	1.372(8)	C(29)-C(30)	1.359(8)
C(12)-C(13)	1.370(7)	C(30)-C(31)	1.389(6)
C(8)-C(13)	1.397(6)	C(26)-C(31)	1.386(6)
C(14)-C(15)	1.388(6)	C(32)-C(33)	1.407(6)
C(15)-C(16)	1.385(6)	C(33)-C(34)	1.384(7)
C(16)-C(17)	1.374(7)	C(34)-C(35)	1.362(8)
C(17)-C(18)	1.368(7)	C(35)-C(36)	1.392(7)
C(18)-C(19)	1.391(6)	C(36)-C(37)	1.378(7)
C(14)-C(19)	1.398(6)	C(32)-C(37)	1.399(6)
C(20)-C(21)	1.396(6)	C(38)-C(39)	1.398(6)
C(21)-C(22)	1.386(7)	C(39)-C(40)	1.399(6)
C(22)-C(23)	1.371(8)	C(40)-C(41)	1.355(7)
C(23)-C(24)	1.366(7)	C(41)-C(42)	1.365(7)
C(24)-C(25)	1.395(6)	C(42)-C(43)	1.385(6)
C(20)-C(25)	1.375(6)	C(38)-C(43)	1.389(5)

P(1)-Os(1)-P(2)	101.18(4)	P(1)-Os(1)-Cl(1)	91.94(4)
P(2)-Os(1)-Cl(1)	87.40(4)	Cl(1)-Os(1)-H(1)	163.70
P(1)-Os(1)-C(1)	98.75(12)	P(1)-Os(1)-C(2)	93.83(12)
P(1)-Os(1)-C(3)	148.97(11)	P(1)-Os(1)-C(4)	162.12(12)
P(2)-Os(1)-C(1)	158.17(12)	P(2)-Os(1)-C(2)	148.17(12)
P(2)-Os(1)-C(3)	90.60(12)	P(2)-Os(1)-C(4)	94.91(12)
Cl(1)-Os(1)-C(1)	83.11(11)	Cl(1)-Os(1)-C(2)	120.23(11)
Cl(1)-Os(1)-C(3)	117.42(11)	Cl(1)-Os(1)-C(4)	80.97(11)
C(1)-Os(1)-C(2)	37.23(15)	C(3)-Os(1)-C(4)	36.93(15)
C(1)-Os(1)-C(3)	76.59(16)	C(2)-Os(1)-C(3)	63.68(16)
C(1)-Os(1)-C(4)	64.25(17)	C(2)-Os(1)-C(4)	76.02(16)
C(2)-C(1)-Os(1)	71.2(2)	C(1)-C(2)-Os(1)	71.5(2)
C(5)-C(1)-Os(1)	98.3(3)	C(6)-C(2)-Os(1)	98.6(3)
C(4)-C(3)-Os(1)	71.2(2)	C(3)-C(4)-Os(1)	71.8(2)
C(6)-C(3)-Os(1)	98.4(3)	C(5)-C(4)-Os(1)	98.6(3)
C(2)-C(1)-C(5)	105.2(4)	C(1)-C(2)-C(6)	107.1(4)
C(4)-C(3)-C(6)	106.3(4)	C(3)-C(4)-C(5)	106.4(3)
C(1)-C(5)-C(4)	98.8(3)	C(1)-C(5)-C(7)	101.9(3)
C(2)-C(6)-C(3)	99.1(3)	C(2)-C(6)-C(7)	101.7(4)
C(4)-C(5)-C(7)	100.3(4)	C(3)-C(6)-C(7)	101.2(3)
C(6)-C(7)-C(5)	94.1(3)		
C(8)-P(1)-Os(1)	109.85(13)	C(26)-P(2)-Os(1)	118.96(14)
C(14)-P(1)-Os(1)	121.69(14)	C(32)-P(2)-Os(1)	111.30(13)
C(20)-P(1)-Os(1)	118.54(14)	C(38)-P(2)-Os(1)	116.64(13)
C(20)-P(1)-C(14)	100.77(18)	C(32)-P(2)-C(26)	104.91(18)
C(20)-P(1)-C(8)	101.15(18)	C(32)-P(2)-C(38)	100.67(19)
C(14)-P(1)-C(8)	101.84(19)	C(26)-P(2)-C(38)	102.19(18)
C(9)-C(8)-P(1)	123.5(3)	C(27)-C(26)-P(2)	118.5(3)
C(13)-C(8)-P(1)	118.9(3)	C(31)-C(26)-P(2)	123.0(3)
C(9)-C(8)-C(13)	117.5(4)	C(27)-C(26)-C(31)	118.3(4)

C(10)-C(9)-C(8)	120.9(4)	C(26)-C(27)-C(28)	121.2(5)
C(11)-C(10)-C(9)	120.6(5)	C(29)-C(28)-C(27)	119.4(5)
C(12)-C(11)-C(10)	119.1(5)	C(30)-C(29)-C(28)	119.7(4)
C(13)-C(12)-C(11)	120.9(5)	C(29)-C(30)-C(31)	121.3(5)
C(12)-C(13)-C(8)	120.9(4)	C(26)-C(31)-C(30)	120.0(5)
C(15)-C(14)-P(1)	122.2(3)	C(37)-C(32)-P(2)	122.3(3)
C(19)-C(14)-P(1)	119.0(3)	C(33)-C(32)-P(2)	120.3(3)
C(15)-C(14)-C(19)	118.5(4)	C(37)-C(32)-C(33)	117.1(4)
C(16)-C(15)-C(14)	121.5(4)	C(34)-C(33)-C(32)	120.1(4)
C(17)-C(16)-C(15)	119.6(5)	C(35)-C(34)-C(33)	121.5(5)
C(18)-C(17)-C(16)	119.6(5)	C(34)-C(35)-C(36)	119.9(5)
C(17)-C(18)-C(19)	121.7(5)	C(37)-C(36)-C(35)	119.0(5)
C(18)-C(19)-C(14)	119.0(5)	C(36)-C(37)-C(32)	122.3(4)
C(25)-C(20)-P(1)	120.3(3)	C(43)-C(38)-P(2)	120.9(3)
C(21)-C(20)-P(1)	122.2(3)	C(39)-C(38)-P(2)	120.6(3)
C(25)-C(20)-C(21)	117.5(4)	C(43)-C(38)-C(39)	118.3(4)
C(22)-C(21)-C(20)	120.9(5)	C(38)-C(39)-C(40)	119.4(4)
C(23)-C(22)-C(21)	120.1(5)	C(41)-C(40)-C(39)	121.1(4)
C(24)-C(23)-C(22)	120.3(5)	C(40)-C(41)-C(42)	119.9(4)
C(23)-C(24)-C(25)	119.5(5)	C(41)-C(42)-C(43)	120.5(4)
C(20)-C(25)-C(24)	121.7(4)	C(42)-C(43)-C(38)	120.7(4)

Table S3. Anisotropic displacement parameters ($\text{\AA}^2 \times 10^3$) for $\text{OsHCl(NBD)(PPh}_3)_2$.

Atom	U11	U22	U33	U23	U13	U12
Os(1)	27(1)	21(1)	22(1)	0(1)	5(1)	0(1)
P(1)	28(1)	26(1)	28(1)	0(1)	7(1)	0(1)
P(2)	29(1)	24(1)	23(1)	-1(1)	7(1)	0(1)
Cl(1)	47(1)	39(1)	33(1)	6(1)	18(1)	1(1)
C(1)	35(2)	28(2)	38(2)	-2(2)	8(2)	-4(2)
C(2)	35(2)	26(2)	31(2)	-3(2)	4(2)	-3(2)
C(3)	36(2)	24(2)	38(2)	-5(2)	11(2)	3(2)
C(4)	39(2)	27(2)	30(2)	1(2)	-2(2)	7(2)
C(5)	49(3)	22(2)	37(2)	2(2)	10(2)	-4(2)
C(6)	42(2)	31(2)	29(2)	-3(2)	10(2)	0(2)
C(7)	52(3)	28(2)	40(2)	-5(2)	1(2)	3(2)
C(8)	29(2)	32(2)	29(2)	-1(2)	3(2)	3(2)
C(9)	44(3)	44(3)	37(2)	1(2)	3(2)	-5(2)
C(10)	52(3)	67(3)	32(2)	-1(2)	2(2)	0(3)
C(11)	54(3)	60(3)	41(3)	-16(2)	-4(2)	-1(3)
C(12)	34(3)	45(3)	64(3)	-14(2)	4(2)	-8(2)
C(13)	36(2)	40(2)	43(2)	0(2)	4(2)	-2(2)
C(14)	30(2)	34(2)	36(2)	2(2)	13(2)	0(2)
C(15)	35(2)	54(3)	44(3)	-10(2)	7(2)	-2(2)
C(16)	38(3)	48(3)	74(4)	-11(3)	20(3)	0(2)
C(17)	53(3)	38(2)	61(3)	2(2)	32(3)	6(2)
C(18)	67(4)	41(3)	38(2)	1(2)	22(3)	12(2)
C(19)	42(3)	37(2)	37(2)	3(2)	8(2)	8(2)
C(20)	33(2)	28(2)	31(2)	2(2)	2(2)	2(2)
C(21)	45(3)	37(3)	77(4)	2(2)	21(3)	8(2)
C(22)	71(4)	32(3)	103(5)	7(3)	29(4)	19(3)
C(23)	81(4)	31(2)	91(4)	19(3)	22(4)	1(3)
C(24)	63(4)	39(3)	59(3)	13(2)	23(3)	-5(2)

C(25)	40(2)	32(2)	41(2)	2(2)	9(2)	-1(2)
C(26)	28(2)	32(2)	32(2)	-10(2)	5(2)	-2(2)
C(27)	46(3)	43(3)	42(2)	-6(2)	7(2)	4(2)
C(28)	52(3)	40(3)	71(4)	-17(2)	9(3)	11(2)
C(29)	53(3)	61(3)	63(3)	-30(3)	24(3)	1(3)
C(30)	84(5)	77(4)	40(3)	-15(3)	25(3)	12(4)
C(31)	64(4)	54(3)	34(2)	-5(2)	12(2)	12(3)
C(32)	30(2)	30(2)	26(2)	-4(2)	1(2)	-1(2)
C(33)	38(2)	40(2)	32(2)	3(2)	13(2)	3(2)
C(34)	61(3)	42(3)	35(2)	6(2)	7(2)	12(2)
C(35)	52(3)	54(3)	50(3)	9(2)	1(3)	22(2)
C(36)	36(3)	63(3)	62(3)	13(3)	11(3)	13(2)
C(37)	35(2)	49(3)	45(3)	11(2)	12(2)	2(2)
C(38)	30(2)	29(2)	29(2)	2(2)	6(2)	-3(2)
C(39)	45(3)	42(3)	42(2)	-7(2)	13(2)	-9(2)
C(40)	54(3)	39(3)	62(3)	-6(2)	16(3)	-20(2)
C(41)	51(3)	50(3)	54(3)	12(2)	23(3)	-14(2)
C(42)	41(3)	61(3)	32(2)	3(2)	10(2)	-10(2)
C(43)	36(2)	37(2)	32(2)	-1(2)	8(2)	-6(2)

The anisotropic displacement factor exponent takes the form: $-2\pi^2 [h^2 a^{*2} U_{11} + \dots + 2 h k a^* b^* U_{12}]$.

Table S4. Hydrogen coordinates ($\times 10^4$) and isotropic displacement parameters ($\text{\AA}^2 \times 10^3$) for $\text{OsHCl(NBD)(PPh}_3)_2$.

<i>Atom</i>	<i>x</i>	<i>y</i>	<i>z</i>	<i>U(eq)</i>
H(1)	4902	734	1163	35
H(1A)	3010(30)	-850(20)	1740(30)	23(10)
H(2A)	3620(40)	-220(20)	360(30)	48(14)
H(3A)	6460(40)	-170(20)	1680(30)	36(12)
H(4A)	5820(40)	-740(20)	3010(30)	36(12)
H(5A)	4320(40)	-1670(20)	2430(30)	37(12)
H(6A)	5350(40)	-750(20)	330(30)	43(13)
H(7A)	5640(30)	-1810(20)	1380(30)	25(10)
H(7B)	4450(40)	-1830(30)	840(30)	40(13)
H(9A)	2622	1589	-329	51
H(10A)	1727	1087	-1638	61
H(11A)	807	-8	-1630	64
H(12A)	772	-591	-298	58
H(13A)	1617	-86	1015	48
H(15A)	741	1207	1252	53
H(16A)	-508	1491	2097	62
H(17A)	13	1744	3595	58
H(18A)	1770	1772	4214	57
H(19A)	3039	1445	3399	46
H(21A)	2157	2599	1734	62
H(22A)	2560	3793	1366	81
H(23A)	3987	4009	702	80
H(24A)	5001	3036	378	62
H(25A)	4581	1834	723	45
H(27A)	4762	2502	2724	52
H(28A)	4076	3316	3648	66
H(29A)	4242	3044	5144	69

H(30A)	5030	1965	5694	78
H(31A)	5741	1159	4792	61
H(33A)	5962	59	4350	43
H(34A)	7323	-618	5166	56
H(35A)	8966	-607	4820	64
H(36A)	9300	121	3646	64
H(37A)	7991	875	2899	51
H(39A)	6894	2486	3188	51
H(40A)	7815	3240	2367	61
H(41A)	8003	2912	968	60
H(42A)	7318	1813	365	53
H(43A)	6361	1058	1137	42
