

Table S1. Crystallographic data and refinement parameters for datolite polymorphs from the experiment.

Crystal data	2.66 GPa	3.04 GPa	9.55 GPa	15.36 GPa	20.45 GPa	22.32 GPa	27.64 GPa	33.30 GPa	35.15 GPa	37.57 GPa	40.05 GPa	43.16 GPa
Space group	$P2_1/c$											
a , Å	4.787(3)	4.7730(17)	4.6378(17)	4.579(3)	4.526(4)	4.4839(18)	4.4367(19)	4.538(3)	4.531(4)	4.479(7)	4.464(8)	4.448(10)
b , Å	7.5640(3)	7.5294(6)	7.4034(4)	7.2986(12)	7.2220(4)	7.2240(10)	7.2074(7)	6.7951(13)	6.6870(5)	6.7168(6)	6.6986(9)	6.6725(7)
c , Å	9.6012(5)	9.5786(6)	9.4840(6)	9.3814(15)	9.3443(3)	9.3484(6)	9.2808(5)	9.2277(9)	9.252(5)	9.2421(7)	9.2145(11)	9.1900(11)
β , °	90.283(13)	90.442(14)	90.729(17)	91.19(3)	91.080(13)	90.696(18)	90.900(17)	90.70(3)	90.27(8)	90.63(3)	90.76(3)	90.73(4)
Volume, Å ³	347.68(19)	344.23(13)	325.61(12)	313.5(2)	305.4(3)	302.79(13)	296.74(13)	284.50(19)	280.3(3)	278.0(4)	275.5(5)	272.7(6)
Z	4											
<i>Data collection</i>												
Wavelength, Å	0.2984											
Max. θ °	17.429	17.466	17.349	17.199	17.235	17.242	17.389	17.457	17.324	17.450	11.935	17.468
Index ranges	$-2 \leq h \leq 4$ $-15 \leq k \leq 14$ $-19 \leq l \leq 18$	$-4 \leq h \leq 5$ $-10 \leq k \leq 11$ $-15 \leq l \leq 14$	$-4 \leq h \leq 5$ $-14 \leq k \leq 13$ $-17 \leq l \leq 19$	$-4 \leq h \leq 5$ $-14 \leq k \leq 13$ $-17 \leq l \leq 18$	$-2 \leq h \leq 2$ $-14 \leq k \leq 14$ $-18 \leq l \leq 19$	$-5 \leq h \leq 4$ $-14 \leq k \leq 13$ $-18 \leq l \leq 17$	$-5 \leq h \leq 4$ $-14 \leq k \leq 13$ $-18 \leq l \leq 17$	$-4 \leq h \leq 5$ $-13 \leq k \leq 12$ $-17 \leq l \leq 18$	$-6 \leq h \leq 6$ $-12 \leq k \leq 13$ $-15 \leq l \leq 14$	$-2 \leq h \leq 2$ $-13 \leq k \leq 13$ $-17 \leq l \leq 19$	$-2 \leq h \leq 1$ $-9 \leq k \leq 9$ $-13 \leq l \leq 13$	$-2 \leq h \leq 2$ $-13 \leq k \leq 13$ $-17 \leq l \leq 19$
No.meas.refl.	1660	1857	1733	1667	1087	1403	1359	1162	1057	1051	621	1054
No.uniq.refl.	842	839	884	878	482	726	724	640	520	498	320	489
No. obs.refl ($I > 2\sigma(I)$)	737	744	790	792	395	634	577	477	437	376	241	402
<i>Refinement of the structure</i>												
No.of variables	78	78	78	77	77	77	47	53	54	71	72	48
R_{int}	0.0352	0.0390	0.0290	0.0262	0.0587	0.0261	0.0435	0.0452	0.0244	0.0536	0.0561	0.0342
R_{σ}	0.0490	0.0440	0.0365	0.0358	0.0703	0.0346	0.0600	0.0660	0.0375	0.0774	0.0944	0.0511
R_1 , $I > 2\sigma(I)$	0.0290	0.0424	0.0480	0.0500	0.0520	0.0547	0.0847	0.1133	0.0415	0.0594	0.0543	0.0495
R_1 , all data	0.0333	0.0471	0.0572	0.0542	0.0616	0.0593	0.0979	0.1283	0.0529	0.0742	0.0740	0.0604
wR_2 , $I > 2\sigma(I)$	0.0772	0.1204	0.2087	0.1584	0.1225	0.1475	0.2347	0.2900	0.1372	0.1485	0.1261	0.1224
wR_2 , all data	0.0795	0.1539	0.1709	0.1635	0.1350	0.1594	0.2645	0.3172	0.1532	0.1693	0.1406	0.1341
GooF	1.060	1.203	1.208	1.282	0.979	0.895	1.058	1.200	0.834	0.834	0.971	0.917

Table S2. Bond critical points (BCPs) coordination and distances at different pressures.

P, GPa	0.0001	2.66	3.04	9.55	15.36	20.45	22.32	27.64	33.3	35.15	37.57	40.05	43.16
Ca–O1													
<i>x</i>	-0.119	-0.122	-0.123	-0.127	-0.130	-0.131	-0.130	-0.130	-0.139	-0.138	-0.138	-0.140	-0.137
<i>y</i>	-0.395	-0.396	-0.397	-0.400	-0.403	-0.404	-0.404	-0.405	-0.413	-0.413	-0.413	-0.414	-0.414
<i>z</i>	0.063	0.064	0.064	0.066	0.068	0.069	0.069	0.070	0.081	0.082	0.082	0.082	0.082
Ca–BCP (Å)	1.146	1.142	1.141	1.128	1.117	1.115	1.115	1.108	1.135	1.139	1.131	1.131	1.125
O–BCP (Å)	1.131	1.125	1.123	1.104	1.087	1.085	1.082	1.073	1.111	1.114	1.103	1.104	1.095
ρ	0.043	0.044	0.044	0.048	0.051	0.052	0.052	0.054	0.047	0.046	0.048	0.048	0.050
λ	0.233	0.239	0.241	0.261	0.281	0.284	0.286	0.298	0.255	0.252	0.264	0.263	0.274
Ca–O1													
<i>x</i>	0.126	0.127	0.127	0.128	0.127	0.129	0.131	0.133	0.133	0.135	0.134	0.135	0.134
<i>y</i>	-0.498	-0.496	-0.496	-0.491	-0.487	-0.486	-0.486	-0.485	-0.457	-0.456	-0.457	-0.456	-0.457
<i>z</i>	0.102	0.101	0.101	0.101	0.101	0.101	0.101	0.101	0.100	0.099	0.099	0.099	0.099
Ca–BCP (Å)	1.147	1.144	1.143	1.131	1.123	1.117	1.114	1.105	1.137	1.134	1.134	1.135	1.128
O–BCP (Å)	1.131	1.126	1.124	1.105	1.093	1.085	1.079	1.068	1.110	1.105	1.104	1.106	1.095
ρ	0.042	0.043	0.044	0.047	0.049	0.052	0.052	0.055	0.046	0.047	0.048	0.047	0.049
λ	0.232	0.237	0.240	0.259	0.273	0.283	0.290	0.306	0.255	0.261	0.262	0.260	0.273
Ca–O4													
<i>x</i>	-0.156	-0.156	-0.157	-0.160	-0.163	-0.162	-0.158	-0.160	-0.168	-0.159	-0.164	-0.163	-0.162
<i>y</i>	-0.401	-0.400	-0.400	-0.397	-0.393	-0.393	-0.392	-0.392	-0.364	-0.363	-0.364	-0.364	-0.364
<i>z</i>	0.258	0.259	0.260	0.262	0.264	0.265	0.266	0.267	0.275	0.276	0.276	0.276	0.276
Ca–BCP (Å)	1.206	1.194	1.192	1.170	1.158	1.152	1.140	1.140	1.144	1.134	1.134	1.127	1.124
O–BCP (Å)	1.214	1.195	1.192	1.157	1.138	1.133	1.114	1.114	1.122	1.107	1.109	1.100	1.094
ρ	0.030	0.033	0.033	0.038	0.041	0.043	0.045	0.046	0.045	0.048	0.048	0.050	0.051
λ	0.168	0.181	0.183	0.211	0.229	0.237	0.255	0.256	0.247	0.262	0.261	0.273	0.278
Ca–O2													

x	0.169	0.166	0.165	0.156	0.151	0.150	0.149	0.150	0.137	0.140	0.138	0.136	0.136
y	-0.298	-0.298	-0.297	-0.295	-0.293	-0.292	-0.291	-0.291	-0.275	-0.273	-0.274	-0.273	-0.274
z	0.103	0.103	0.103	0.103	0.103	0.103	0.103	0.102	0.109	0.108	0.109	0.109	0.108
Ca–BCP (Å)	1.218	1.210	1.207	1.184	1.174	1.164	1.158	1.154	1.126	1.128	1.124	1.121	1.120
O–BCP (Å)	1.229	1.218	1.212	1.178	1.164	1.153	1.140	1.137	1.104	1.106	1.103	1.100	1.096
ρ	0.028	0.029	0.030	0.034	0.037	0.039	0.041	0.042	0.050	0.049	0.051	0.052	0.052
λ	0.156	0.163	0.168	0.193	0.205	0.217	0.227	0.232	0.271	0.268	0.273	0.276	0.281

Ca–O5													
x	0.133	0.133	0.132	0.129	0.126	0.127	0.129	0.131	0.143	0.139	0.143	0.142	
y	-0.487	-0.488	-0.488	-0.488	-0.488	-0.489	-0.487	-0.489	-0.027	-0.028	-0.027	-0.026	
z	0.250	0.250	0.250	0.252	0.253	0.253	0.254	0.255	-0.241	-0.240	-0.240	-0.239	
Ca–BCP (Å)	1.245	1.244	1.238	1.225	1.214	1.208	1.206	1.201	1.187	1.181	1.176	1.177	
O–BCP (Å)	1.275	1.272	1.264	1.241	1.224	1.215	1.213	1.205	1.184	1.177	1.170	1.168	
ρ	0.024	0.024	0.025	0.027	0.029	0.031	0.031	0.032	0.035	0.036	0.038	0.038	
λ	0.131	0.133	0.138	0.150	0.161	0.167	0.169	0.174	0.189	0.195	0.201	0.207	

Ca–O3													
x	0.164	0.162	0.160	0.151	0.146	0.144	0.148	0.147	0.140	0.145	0.144	0.141	0.141
y	-0.284	-0.283	-0.282	-0.280	-0.277	-0.276	-0.276	-0.276	-0.253	-0.253	-0.254	-0.254	-0.254
z	0.227	0.227	0.227	0.228	0.229	0.229	0.230	0.230	0.234	0.234	0.234	0.235	0.234
Ca–BCP (Å)	1.282	1.270	1.264	1.226	1.352	1.191	1.191	1.174	1.148	1.138	1.138	1.131	1.124
O–BCP (Å)	1.327	1.308	1.299	1.241	1.210	1.187	1.187	1.162	1.124	1.109	1.108	1.099	1.089
ρ	0.019	0.021	0.021	0.027	0.031	0.034	0.034	0.037	0.044	0.046	0.046	0.049	0.050
λ	0.106	0.115	0.119	0.151	0.171	0.189	0.188	0.208	0.245	0.260	0.261	0.272	0.283

Ca–O3													
x	-0.159	-0.159	-0.159	-0.156	-0.158	-0.155	-0.153	-0.152	-0.151	-0.148	-0.152	-0.151	-0.150
y	-0.526	-0.526	-0.526	-0.525	-0.524	-0.524	-0.524	-0.524	-0.503	-0.505	-0.505	-0.505	-0.506
z	0.186	0.187	0.187	0.188	0.190	0.191	0.191	0.191	0.198	0.197	0.198	0.198	0.198

Ca–BCP (Å)	1.304	1.290	1.282	1.243	1.223	1.205	1.202	1.196	1.133	1.132	1.133	1.125	1.122
O–BCP (Å)	1.355	1.334	1.323	1.264	1.235	1.208	1.202	1.192	1.111	1.110	1.112	1.100	1.095
ρ	0.017	0.018	0.019	0.024	0.027	0.031	0.031	0.033	0.048	0.049	0.048	0.051	0.052
λ	0.094	0.102	0.107	0.137	0.154	0.173	0.176	0.184	0.262	0.263	0.262	0.275	0.281
Ca–O5													
x	0.127	0.129	0.129	-0.134	0.138	0.138	0.135	0.137	-0.141	-0.141	-0.141	0.144	0.146
y	0.245	0.245	0.245	-0.244	0.243	0.242	0.242	0.243	-0.225	-0.224	-0.224	0.225	-0.026
z	-0.164	-0.164	-0.164	0.164	-0.165	-0.166	-0.165	-0.166	0.170	0.171	0.170	-0.171	-0.240
Ca–BCP (Å)	1.306	1.295	1.289	1.262	1.243	1.231	1.227	1.224	1.166	1.159	1.160	1.155	1.171
O–BCP (Å)	1.365	1.345	1.336	1.293	1.264	1.248	1.240	1.235	1.155	1.144	1.147	1.140	1.163
ρ	0.017	0.018	0.019	0.022	0.025	0.027	0.027	0.028	0.039	0.041	0.041	0.042	0.039
λ	0.090	0.098	0.102	0.121	0.136	0.146	0.151	0.153	0.214	0.223	0.221	0.228	0.207
Si–O1													
x	0.373	0.376	0.377	0.382	0.384	0.387	0.389	0.393	-0.584	-0.581	-0.582	-0.581	-0.582
y	0.323	0.325	0.326	0.332	0.338	0.340	0.341	0.341	0.379	0.381	0.380	0.381	0.380
z	0.065	0.064	0.064	0.062	0.060	0.060	0.059	0.059	0.046	0.045	0.045	0.045	0.045
Si–BCP (Å)	0.658	0.657	0.655	0.653	0.652	0.649	0.650	0.650	0.666	0.664	0.663	0.659	0.662
O–BCP (Å)	0.915	0.914	0.910	0.905	0.903	0.896	0.898	0.899	0.939	0.935	0.933	0.924	0.931
ρ	0.165	0.166	0.167	0.171	0.172	0.176	0.175	0.175	0.154	0.155	0.156	0.161	0.158
λ	1.043	1.054	1.077	1.124	1.139	1.198	1.180	1.177	0.931	0.958	0.974	1.034	0.994
Si–O2													
x	0.550	0.554	0.555	0.565	0.570	0.573	0.577	0.586	-0.394	-0.392	-0.391	-0.390	-0.389
y	0.238	0.238	0.239	0.241	0.243	0.243	0.243	0.243	0.262	0.262	0.262	0.262	0.262
z	0.031	0.032	0.031	0.032	0.031	0.031	0.031	0.032	0.022	0.022	0.022	0.022	0.022
Si–BCP (Å)	0.681	0.680	0.678	0.678	0.675	0.670	0.671	0.667	0.678	0.672	0.674	0.676	0.672
O–BCP (Å)	0.965	0.963	0.960	0.959	0.953	0.943	0.946	0.935	0.961	0.950	0.953	0.955	0.949
ρ	0.137	0.138	0.139	0.140	0.143	0.146	0.146	0.151	0.140	0.145	0.143	0.141	0.145

λ	0.768	0.780	0.797	0.807	0.841	0.897	0.882	0.947	0.805	0.873	0.853	0.834	0.878
Si-O3													
x	0.551	0.554	0.555	0.563	0.565	0.570	0.572	0.581	-0.401	-0.398	-0.400	-0.399	-0.398
y	0.295	0.296	0.297	0.300	0.304	0.305	0.306	0.306	0.340	0.340	0.340	0.340	0.340
z	0.137	0.137	0.137	0.137	0.137	0.137	0.136	0.136	0.129	0.129	0.129	0.129	0.129
Si-BCP (Å)	0.682	0.682	0.680	0.679	0.675	0.675	0.673	0.672	0.676	0.673	0.669	0.669	0.669
O-BCP (Å)	0.969	0.968	0.964	0.961	0.953	0.951	0.949	0.947	0.955	0.949	0.940	0.939	0.941
ρ	0.135	0.135	0.137	0.138	0.142	0.141	0.143	0.144	0.140	0.143	0.146	0.146	0.146
λ	0.750	0.758	0.779	0.794	0.843	0.853	0.871	0.884	0.839	0.874	0.933	0.934	0.925
Si-O4													
x	0.408	0.408	0.408	0.408	0.408	0.410	0.411	0.416	-0.559	-0.559	-0.558	-0.560	-0.560
y	0.191	0.193	0.194	0.198	0.203	0.204	0.206	0.206	0.245	0.247	0.246	0.246	0.247
z	0.110	0.109	0.109	0.108	0.106	0.106	0.105	0.105	0.093	0.093	0.093	0.093	0.093
Si-BCP (Å)	0.684	0.684	0.685	0.681	0.679	0.677	0.678	0.675	0.690	0.691	0.690	0.692	0.692
O-BCP (Å)	0.972	0.972	0.973	0.967	0.962	0.956	0.960	0.951	0.988	0.992	0.988	0.992	0.993
ρ	0.133	0.133	0.132	0.135	0.137	0.138	0.138	0.141	0.128	0.126	0.127	0.125	0.126
λ	0.746	0.744	0.737	0.778	0.801	0.832	0.819	0.867	0.677	0.666	0.683	0.661	0.662
Si-O1a													
x									-0.393	-0.389	-0.389	-0.390	-0.387
y									0.409	0.410	0.410	0.410	0.410
z									0.032	0.033	0.033	0.033	0.033
Si-BCP (Å)									0.772	0.755	0.760	0.753	0.754
O-BCP (Å)									1.155	1.126	1.135	1.120	1.124
ρ									0.074	0.081	0.079	0.083	0.082
λ									0.278	0.331	0.315	0.346	0.338

B-O4													
<i>x</i>	-0.395	-0.394	-0.390	-0.384	-0.378	-0.370	-0.377	-0.377	-0.382	-0.379	-0.375	-0.373	-0.372
<i>y</i>	0.030	0.030	0.029	0.026	0.022	0.021	0.021	0.021	-0.008	-0.009	-0.009	-0.009	-0.009
<i>z</i>	-0.154	-0.154	-0.153	-0.152	-0.150	-0.150	-0.150	-0.150	-0.145	-0.144	-0.145	-0.145	-0.144
B-BCP (Å)	0.484	0.486	0.484	0.480	0.479	0.468	0.477	0.477	0.472	0.473	0.470	0.469	0.469
O-BCP (Å)	0.982	0.986	0.980	0.973	0.969	0.941	0.964	0.964	0.951	0.952	0.944	0.941	0.942
ρ	0.164	0.162	0.165	0.169	0.171	0.188	0.174	0.173	0.185	0.185	0.189	0.192	0.191
λ	0.392	0.376	0.396	0.436	0.450	0.574	0.474	0.479	0.497	0.487	0.527	0.533	0.535
B-O2													
<i>x</i>	-0.400	-0.398	-0.395	-0.386	-0.378	-0.369	-0.375	-0.374	-0.370	-0.370	-0.364	-0.362	-0.361
<i>y</i>	0.125	0.125	0.125	0.123	0.120	0.119	0.119	0.120	0.099	0.097	0.098	0.098	0.098
<i>z</i>	-0.120	-0.120	-0.119	-0.117	-0.116	-0.116	-0.116	-0.116	-0.114	-0.113	-0.114	-0.114	-0.113
B-BCP (Å)	0.488	0.489	0.486	0.486	0.482	0.477	0.483	0.482	0.484	0.479	0.479	0.479	0.477
O-BCP (Å)	0.992	0.994	0.986	0.986	0.977	0.964	0.979	0.978	0.981	0.970	0.968	0.968	0.962
ρ	0.158	0.157	0.161	0.162	0.166	0.173	0.165	0.165	0.162	0.168	0.169	0.170	0.172
λ	0.357	0.355	0.384	0.387	0.429	0.476	0.431	0.437	0.433	0.484	0.493	0.477	0.524
B-O3													
<i>x</i>	-0.398	-0.396	-0.392	-0.382	-0.374	-0.366	-0.374	-0.372	-0.371	-0.371	-0.367	-0.365	-0.363
<i>y</i>	0.114	0.114	0.114	0.112	0.109	0.108	0.108	0.109	0.084	0.084	0.084	0.084	0.084
<i>z</i>	-0.202	-0.202	-0.201	-0.200	-0.199	-0.199	-0.199	-0.200	-0.196	-0.196	-0.196	-0.196	-0.195
B-BCP (Å)	0.489	0.487	0.487	0.489	0.483	0.478	0.480	0.475	0.482	0.481	0.475	0.478	0.476
O-BCP (Å)	0.996	0.990	0.990	0.996	0.981	0.968	0.974	0.960	0.978	0.977	0.960	0.967	0.960
ρ	0.156	0.159	0.159	0.156	0.163	0.170	0.166	0.174	0.163	0.162	0.171	0.167	0.170
λ	0.346	0.371	0.378	0.367	0.431	0.479	0.466	0.516	0.472	0.487	0.558	0.526	0.563
B-O5													
<i>x</i>	-0.533	-0.532	-0.529	-0.524	-0.518	-0.511	-0.519	-0.521	-0.518	-0.516	-0.512	-0.511	-0.509
<i>y</i>	0.088	0.088	0.088	0.087	0.085	0.083	0.085	0.086	0.064	0.064	0.063	0.063	0.064

<i>z</i>	-0.159	-0.159	-0.159	-0.158	-0.156	-0.155	-0.156	-0.156	-0.153	-0.154	-0.153	-0.153	-0.152
B–BCP (Å)	0.490	0.486	0.490	0.483	0.482	0.494	0.480	0.480	0.479	0.481	0.484	0.481	0.480
O–BCP (Å)	1.004	0.993	1.003	0.983	0.982	1.007	0.977	0.976	0.974	0.978	0.984	0.975	0.974
ρ	0.155	0.161	0.156	0.167	0.166	0.142	0.170	0.168	0.168	0.169	0.160	0.156	0.167
λ	0.326	0.361	0.329	0.382	0.410	0.400	0.415	0.451	0.457	0.426	0.445	0.524	0.467
H–O4													
<i>x</i>	0.269	0.275	0.271	0.277	0.269		0.266	0.259		0.267			
<i>y</i>	0.082	0.082	0.081	0.081	0.084		0.081	0.087		0.094			
<i>z</i>	-0.001	-0.003	-0.003	-0.001	-0.003		0.000	-0.003		-0.002			
H–BCP (Å)	0.981	1.044	1.056	0.881	0.964		0.846	0.964		0.791			
O–BCP (Å)	1.438	1.443	1.437	1.380	1.371		1.331	1.336		1.287			
ρ	0.015	0.014	0.014	0.018	0.018		0.021	0.020		0.025			
λ	0.057	0.057	0.058	0.073	0.076		0.087	0.086		0.104			
H–O5													
<i>x</i>	0.202	0.209	0.205	0.230	0.212	0.139	0.220	0.192	0.190	0.221	0.173	0.127	0.190
<i>y</i>	0.057	0.050	0.049	0.052	0.051	0.058	0.052	0.059	0.030	0.055	0.035	0.039	0.040
<i>z</i>	-0.097	-0.100	-0.100	-0.094	-0.097	-0.119	-0.091	-0.094	-0.100	-0.087	-0.102	-0.128	-0.095
H–BCP (Å)	0.139	0.129	0.134	0.131	0.126	0.136	0.137	0.133	0.131	0.130	0.135	0.152	0.133
O–BCP (Å)	0.735	0.716	0.727	0.723	0.716	0.739	0.739	0.733	0.734	0.734	0.739	0.763	0.740
ρ	0.422	0.458	0.438	0.448	0.461	0.413	0.421	0.430	0.432	0.433	0.421	0.373	0.422
λ	-3.152	-3.569	-3.333	-3.448	-3.614	-3.079	-3.150	-3.273	-3.299	-3.317	-3.175	-2.636	-3.190
H–O2													
<i>x</i>						-0.034						-0.029	
<i>y</i>						0.123						0.103	
<i>z</i>						-0.091						-0.095	
H–BCP (Å)						0.924						0.826	
O–BCP (Å)						1.383						1.297	

ρ	0.015									0.022		
λ	0.066									0.094		
01–01												
x	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
y	0.500	0.500	0.500	0.500	0.500	0.500	0.500	0.500	0.500	0.500	0.500	0.500
z	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
O1–BCP (Å)	1.429	1.414	1.409	1.355	1.311	1.302	1.287	1.265	1.221	1.201	1.212	1.188
O1–BCP (Å)	1.429	1.414	1.409	1.355	1.311	1.302	1.287	1.265	1.221	1.201	1.212	1.188
ρ	0.014	0.014	0.015	0.018	0.021	0.021	0.023	0.025	0.029	0.031	0.030	0.033
λ	0.054	0.057	0.058	0.072	0.086	0.089	0.095	0.104	0.122	0.134	0.128	0.143
02–05												
x	-0.010					-0.009			0.000	0.004	-0.006	0.002
y	0.147					0.134			0.125	0.133	0.113	0.118
z	-0.097					-0.085			-0.093	-0.093	-0.086	-0.085
O2–BCP (Å)	1.477					1.386			1.391	1.406	1.352	1.349
O5–BCP (Å)	1.474					1.509			1.436	1.427	1.566	1.495
ρ	0.010					0.014			0.014	0.014	0.017	0.017
λ	0.044					0.065			0.066	0.063	0.077	0.078
04–05												
x									0.278	0.276		0.262
y									0.097	0.101		0.093
z									-0.011	-0.012		-0.007
O4–BCP (Å)									1.353	1.337		1.322
O5–BCP (Å)									1.422	1.401		1.544
ρ									0.018	0.018		0.021
λ									0.082	0.080		0.093

O1–O1				
<i>x</i>	0.500	0.500	0.500	0.506
<i>y</i>	0.500	0.500	0.500	0.500
<i>z</i>	0.000	0.000	0.000	0.000
O1–BCP (Å)	1.326	1.289	1.279	1.268
O1–BCP (Å)	1.326	1.289	1.279	1.268
ρ	0.023	0.026	0.027	0.028
λ	0.091	0.106	0.112	0.118
O2–O5				
<i>x</i>	-0.275			-0.254
<i>y</i>	0.054			0.052
<i>z</i>	0.064			0.063
O2–BCP (Å)	1.385			1.251
O5–BCP (Å)	1.391			1.268
ρ	0.016			0.026
λ	0.070			0.120
O4–O5				
<i>x</i>		-0.011	-0.017	0.023
<i>y</i>		-0.012	-0.040	0.037
<i>z</i>		-0.142	-0.136	0.130
O4–BCP (Å)		1.434	1.507	1.463
O5–BCP (Å)		1.470	1.644	1.774
ρ		0.012	0.010	0.012
λ		0.056	0.044	0.052
O4–O5				
<i>x</i>				0.023
<i>y</i>				0.037

z	0.130
O25–BCP (Å)	1.463
O31–BCP (Å)	1.774
ρ	0.012
λ	0.052

Table S3. Bond distances and polyhedral parameters in datolite

Pressure	2.66 GPa	3.04 GPa	9.55 GPa	15.36 GPa	20.45 GPa	22.32 GPa	27.64 GPa	33.30 GPa	35.15 GPa	37.57 GPa	40.05 GPa	43.16 GPa
Phase	Datolite										Datolite-II	
CN(Si)	4	4	4	4	4	4	4	5	5	5	5	5
<i>SiO_n polyhedra</i>												
	<i>SiO₄</i>					<i>SiO₅</i>						
Si-O1	1.571(4)	1.567(4)	1.559(3)	1.556(3)	1.545(8)	1.549(4)	1.549(6)	1.602(8)	1.602(6)	1.596(11)	1.580(15)	1.596(8)
Si-O2	1.642(3)	1.638(3)	1.636(3)	1.628(3)	1.614(10)	1.617(3)	1.602(6)	1.637(7)	1.621(6)	1.627(9)	1.632(12)	1.621(6)
Si-O3	1.650(3)	1.644(3)	1.640(3)	1.628(3)	1.626(7)	1.621(3)	1.619(6)	1.633(7)	1.623(8)	1.608(8)	1.608(11)	1.609(6)
Si-O4	1.656(3)	1.659(3)	1.647(3)	1.641(3)	1.634(8)	1.638(3)	1.625(6)	1.680(7)	1.684(6)	1.678(7)	1.685(10)	1.685(6)
Si-O1								1.929(6)	1.882(5)	1.897(8)	1.872(11)	1.882(6)
<Si-O>	1.630	1.627	1.620	1.613	1.605	1.606	1.599	1.696	1.682	1.681	1.675	1.679
Volume	2.209	2.197	2.164	2.128	2.093	2.097	2.064	4.032	3.957	3.945	3.895	3.925
<i>BO₄ tetrahedra</i>												
	<i>BO₄</i>											
B-O4	1.471(4)	1.463(4)	1.453(4)	1.448(4)	1.407(16)	1.442(4)	1.442(6)	1.418(9)	1.425(6)	1.413(9)	1.409(14)	1.411(6)
B-O2	1.482(4)	1.472(4)	1.472(4)	1.460(4)	1.440(16)	1.462(4)	1.461(8)	1.464(10)	1.450(10)	1.447(12)	1.446(18)	1.439(8)
B-O3	1.477(4)	1.476(4)	1.484(4)	1.463(4)	1.444(18)	1.454(4)	1.435(8)	1.452(10)	1.458(11)	1.434(12)	1.445(17)	1.437(8)
B-O5	1.479(9)	1.493(7)	1.467(7)	1.463(7)	1.50(5)	1.458(7)	1.455(12)	1.471(17)	1.458(12)	1.47(3)	1.45(4)	1.454(17)
<B-O>	1.478	1.476	1.469	1.459	1.448	1.454	1.448	1.451	1.448	1.440	1.439	1.435
Volume	1.652	1.647	1.623	1.589	1.555	1.573	1.557	1.560	1.547 _я	1.527	1.520	1.510
<i>CaO_n polyhedral</i>												
	<i>CaO₈</i>											
Ca-O1	2.267(3)	2.264(3)	2.232(3)	2.203(3)	2.199(6)	2.193(3)	2.172(5)	2.249(6)	2.239(6)	2.234(8)	2.237(11)	2.218(6)
Ca-O1	2.270(3)	2.266(3)	2.234(3)	2.216(3)	2.201(6)	2.197(3)	2.182(5)	2.247(6)	2.251(7)	2.237(8)	2.243(11)	2.219(6)
Ca-O4	2.390(3)	2.385(3)	2.328(4)	2.297(3)	2.285(10)	2.254(4)	2.253(7)	2.266(7)	2.242(7)	2.244(7)	2.227(10)	2.219(7)
Ca-O2	2.429(3)	2.419(3)	2.361(3)	2.339(3)	2.319(6)	2.298(3)	2.292(6)	2.227(7)	2.234(6)	2.227(9)	2.223(12)	2.217(6)
Ca-O5	2.516(3)	2.502(3)	2.466(3)	2.438(3)	2.423(14)	2.419(3)	2.406(5)	2.321(6)	2.303(5)	2.307(8)	2.293(11)	2.298(6)
Ca-O3	2.578(3)	2.564(3)	2.467(3)	2.417(3)	2.378(6)	2.377(3)	2.336(5)	2.244(6)	2.243(6)	2.246(9)	2.226(12)	2.214(6)
Ca-O3	2.624(3)	2.606(3)	2.508(3)	2.459(3)	2.413(6)	2.405(3)	2.388(5)	2.269(7)	2.247(6)	2.246(9)	2.230(12)	2.217(6)
Ca-O5	2.641(3)	2.625(3)	2.556(3)	2.507(3)	2.479(15)	2.467(3)	2.458(5)	2.367(6)	2.359(6)	2.345(8)	2.344(11)	2.333(5)
<Ca-O>	2.464	2.454	2.394	2.359	2.337	2.326	2.311	2.274	2.265	2.261	2.253	2.242
Volume	25.509	25.181	23.348	22.337	21.710	21.346	20.900	19.963	19.742	19.606	19.429	19.098
<i>O-H</i>												
O5-H	0.87(4)	0.89(5)	0.88(5)	0.87(4)	0.90(9)	0.90(4)	0.89(7)	0.90(2)	0.89(9)	0.90(8)	0.90(2)	0.90(2)

Table S4. Equations for distances between atoms and bond critical points (BCPs) in the pressure range 0.0001–27 GPa (x – pressure in GPa, y – distances between atoms and BCPs in Å)

bond	cations and BCPs	oxygen and BCPs
Ca–O1	$y = -0.0014x + 1.1445$	$y = -0.0021x + 1.1279$
Ca–O1	$y = -0.0015x + 1.1472$	$y = -0.0023x + 1.1303$
Ca–O4	$y = -0.0025x + 1.2$	$y = -0.0037x + 1.2033$
Ca–O2	$y = -0.0024x + 1.214$	$y = -0.0034x + 1.2226$
Ca–O5	$y = -0.0017x + 1.244$	$y = -0.0027x + 1.2727$
Ca–O3	$y = -0.0034x + 1.2872$	$y = -0.0061x + 1.3168$
Ca–O3	$y = -0.0041x + 1.2948$	$y = -0.0062x + 1.3421$
Ca–O5	$y = -0.0032x + 1.2993$	$y = -0.0049x + 1.3525$
Si–O1	$y = -0.0003x + 0.6569$	$y = -0.0007x + 0.9135$
Si–O2	$y = -0.0005x + 0.681$	$y = -0.001x + 0.9654$
Si–O3	$y = -0.0004x + 0.6822$	$y = -0.0008x + 0.9683$
Si–O4	$y = -0.0004x + 0.685$	$y = -0.0008x + 0.974$
B–O4	$y = -0.0004x + 0.4846$	$y = -0.0011x + 0.9833$
B–O2	$y = -0.0003x + 0.4878$	$y = -0.0007x + 0.9912$
B–O3	$y = -0.0005x + 0.4895$	$y = -0.0012x + 0.997$
B–O5	$y = -0.0003x + 0.4889$	$y = -0.0007x + 0.9995$