

continuous movement of Sn and S/Se atoms almost entirely along [100] direction and suggest the soft mode behaviour of the intralayer optical  $A_g$  phonon.

### References

1. Wiedemeier, H., Csillag, F. J.: Z. Kristallogr. **149**, 17 (1979)
2. von Schnering, H. G., Wiedemeier, H.: Z. Kristallogr. **156**, 143 (1981)
3. Chattopadhyay, T., Werner, A., von Schnering, H. G., Pannetier, J.: Rev. Phys. Appl. **19**, 807 (1984)
4. Chattopadhyay, T., Kress, W., von Schnering, H. G., unpublished results
5. Heger, G., Kuhs, W. F., Massing, S.: Rev. Phys. Appl. **19**, 735 (1984)

D. Cremer und E. Kraka (Institut für Organische Chemie der Universität Köln). **Neue Wege zur Analyse der Elektronendichteverteilung – Charakterisierung der chemischen Bindung ohne Promolekül und Differenzdichte.**

Die aus Röntgenbeugungsexperimenten ermittelte Differenzdichteverteilung  $\Delta\rho(r)$  liefert oft nützliche Hinweise auf die Bindungsverhältnisse in einem Molekül. Jedoch ist bei der Analyse von  $\Delta\rho(r)$  zu beachten, daß negative oder verschwindend kleine Differenzdichten auch zwischen verbundenen Atomen auftreten können, d.h.  $\Delta\rho(r)$  ist für eine eindeutige und detaillierte Charakterisierung der chemischen Bindung nicht ausreichend [1]. Zu diesem Zweck eignet sich besser die Elektronendichteverteilung  $\rho(r)$ : Die Bindungen eines Moleküls spiegeln sich im Dichtebild wider. Verbundene Atome sind stets durch einen Pfad maximaler Elektronendichte (MED) miteinander verknüpft. Entlang des MED-Pfades findet sich am Orte  $r_s$  ein stationärer Punkt von  $\rho(r)$ , der einem Sattelpunkt der Elektronendichteverteilung entspricht. Alle bisherigen Untersuchungen deuten darauf hin, daß die Existenz eines Sattelpunktes  $r_s$  im internuklearen Bereich als notwendige Bedingung für das Vorliegen einer chemischen Bindung gewertet werden darf [1, 2].

Die chemische Bindung läßt sich durch die Eigenschaften von  $\rho$  am Punkte  $r_s$  charakterisieren: 1. Aus dem Wert von  $\rho(r)$  kann eine Bindungsordnung als Maß für die Bindungsstärke abgeleitet werden [3]. 2. Die Anisotropie der Dichteverteilung am Punkte  $r_s$  hängt mit dem  $\pi$ -Charakter einer Bindung zusammen [4]. 3. Die Verschiebung des Punktes  $r_s$  relativ zum Mittelpunkt der Bindung ist ein Maß für die Bindungspolarität. 4. Die Abweichung von  $r_s$  von der internuklearen Verbindungslinie zeigt den „bent bond“-Charakter der Bindung an.

Eine Beschreibung nichtbindender Wechselwirkungen erfolgt vorzugsweise über die von  $\rho(r)$  abgeleitete Größe  $\nabla^2\rho(r)$ . Mit Hilfe von  $\nabla^2\rho(r)$  lassen sich Dichtekonzentrationen im Bereich bindender und nichtbindender Elektronenpaare sichtbar machen.

### Literatur

1. Cremer, D., Kraka, E.: *Angew. Chem.* **96**, 612 (1984)
2. Cremer, D., Kraka, E.: *Croat. Chim. Acta*, im Druck
3. Bader, R. F. W., Slee, T. S., Cremer, D., Kraka, E.: *J. Am. Chem. Soc.* **105**, 5061 (1983)
4. Cremer, D., Kraka, E., Slee, T. S., Bader, R. F. W., Lau, C. D. H., Nguyen-Dang, T. T.: *J. Am. Chem. Soc.* **105**, 5069 (1983)

M. Czank (Mineralogisch-Petrographisches Institut der Universität Kiel) and P. R. Buseck (Tempe). **Real structure of bustamite,  $(\text{Ca}, \text{Mn})_3[\text{Si}_3\text{O}_9]$ : Does natural "parabustamite" exist?**

The pyroxenoid minerals wollastonite and bustamite have similar structures containing dreier single chains of  $[\text{SiO}_4]$  tetrahedra. They differ in composition,  $\text{Ca}_3[\text{Si}_3\text{O}_9]$  and  $(\text{Ca}, \text{Mn})_3[\text{Si}_3\text{O}_9]$ , respectively, and in the relative arrangement of the chains.

For wollastonite several polytypes are known: the two simplest and most frequently occurring ones are the triclinic 1T and the monoclinic 2M modifications. 2M-wollastonite, also called parawollastonite, can be described by introducing periodic  $1/2b(100)$ -faults in the stacking of the 1T-wollastonite unit cells [1]. An analogous 2M modification of bustamite was proposed by Rapaport and Burnham [2], but it has not been reported in natural samples. However, Hesse et al. [3] synthesized monoclinic bustamite of composition  $(\text{Ca}_{2.3}\text{Mn}_{0.7})[\text{Si}_3\text{O}_9]$  and called it "parabustamite".

We have examined bustamites from four different localities using high resolution electron microscopy. In all samples chain arrangement faults were found, but no chain periodicity faults [4] occurred. In samples from one locality (Hanover, New Mexico) high concentration of these faults were observed in crystals that have an average composition of  $(\text{Ca}_{1.26}\text{Mn}_{1.33}\text{Fe}_{0.25}\text{Mg}_{0.16})[\text{Si}_3\text{O}_9]$ . Two types of faults that are parallel (100) can be distinguished: 1) stacking faults with  $1/2b$  displacement vector and 2) microtwinning. Diffraction experiments show that the twins are related by a [010] twin axis and not by a (100) twin plane. In some lamellae (up to 100 Å wide) of the crystals periodic  $1/2b(100)$  stacking faults have been observed which causes a doubling of  $d_{(100)}$  to 15 Å. Therefore, these lamellae seem to represent 2M-bustamite, i.e. "parabustamite", in analogy to parawollasto-