X線回折法と高分解能電顕格子像法による斜長石の変調構造の解析

—KM** モデルと TF*** モデル, HTKJ**** モデル
および KHNE***** モデルとの比較—

Analysis of the modulated structures of plagioclase feldspar
by X-ray diffraction and electron microscopy

森本 信男 (Nobuo Morimoto)*

北村 雅夫 (Masao Kitamura)*

Abstract

The models of the modulated structure of the plagioclase feldspar based on X-ray diffraction and electron microscopy have been reviewed. Important models so far presented can be divided into two categories due to difference in evaluation of the second harmonic of the (Ca, Na) modulation wave. The first type (TF***, HTKJ**** and KHNE***** models), where the second harmonic is assumed to be negligible, gives the ordered arrangement of Na and Ca among the neighbouring subcells. On the other hand, in the second type (KM** model) the second harmonic is strong enough to give the alternating bands of the albite-like and anorthite-like structures. Because of the weak intensities of the second satellite reflections corresponding to the second harmonic, the final answer between the model types has not been obtained using only the X-ray diffraction method. However, the fine textures with the antiphase domain boundaries and crystal-chemical considerations of the plagioclase feldspars support the existence of the second harmonic, or, of the alternating bands of the albite-like and anorthite-like structures.

1. はじめに

鉱物学における斜長石の重要性についてはここで今さらのべるまでもなく、すでに出版された多数の解説書 (たとえば Bragg and Claringbull 1965; Smith 1974; Ribbe 1975) に繰り返しのべられている。また、1970年頃までの斜長石の結晶構造についての記述も、そ

* 京都大学理学部地質学鉱物学教室

** Kitamura & Morimoto

*** Toman & Frueh

**** Horst, Tagai, Korekawa & Jagodzinski

***** Kumao, Hashimoto, Nissen & Endo

これらの本にくわしく与えられている。1970年以降の斜長石の構造の研究、なかでもとくにその超構造（または変調構造, modulated structure）の研究については Morimoto (1979) や北村と森本 (1980) により解説されている。

しかし、実際のところ、一つには斜長石の超構造が非常に複雑なため、また一つには別々のグループがそれぞれ自分達の超構造の研究結果が正しく、他のグループの結果がまちがっているとか、もしくは不完全であるとするために、構造研究の現状を正しく知ることが困難なようである。

この解説では、斜長石の超構造について、現在正しいと思われる北村・森本によるモデルを簡単に説明した後、他のモデルと比較して、それらの受け入れ難い理由をのべることにする。このことは自身達の研究結果が正しく他のグループの結果が不完全であるとするものの例に含まれることになり、現状の正しい把握を困難にするという上の結論と論理的矛盾に陥ることになるが、これ以外に道がなさそうなので、敢て説明させて頂くことにする。

2. 斜長石の構造

長石の基本構造は Taylor (1933) によって, sanidine について最初に決定された。基本構造は SiO_4 と AlO_4 の四面体 (T サイト) からなる三次元の framework で、そのなかに行ける約11配位の間隙を Na, Ca, K 原子が占めている (Bragg and Claringbull 1965; Smith 1974; Rible 1975)。組成と共に単位格子の大きさや空間群が変る。第1表に anorthite の単位格子 ($a \approx 8.2 \text{ \AA}$, $b \approx 12.9 \text{ \AA}$, $c \approx 14.2 \text{ \AA}$, $\alpha \approx 93^\circ$, $\beta \approx 116^\circ$, $\gamma \approx 91^\circ$) を用いて、K 長石, albite, anorthite 端成分の長石の単位格子を示す。

第1表 端組成の単位格子と空間群の関係。単位格子は灰長石を基準に採られている

組 成	単位格子	構 造 型	空 間 群	出現する反射
Orthoclase* (KAlSi_3O_8)	$a \quad b \quad \frac{1}{2}c$	高温型	$C2/m$	a
		低温型	$C\bar{1}$	a
Albite ($\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$)	$a \quad b \quad \frac{1}{2}c$	高温型	$C\bar{1}$	a
		低温型	$C\bar{1}$	a
Anorthite ($\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$)	$a \quad b \quad c$	高温型	$C\bar{1}$	a
		中温型	$I\bar{1}$	a, b
		低温型	$P\bar{1}$	a, b, c, d

* Sanidine, Orthoclase, Microcline の各鉱物名が高温型から低温型の各々の構造型に対して与えられている。

出現する回折斑点は $a(h+k=\text{偶数}, l=\text{偶数})$, $b(h+k=\text{奇数}, l=\text{奇数})$, $c(h+k=\text{偶数}, l=\text{奇数})$, $d(h+k=\text{奇数}, l=\text{偶数})$ とよばれ、第1表に示した。

K 長石にくらべて、斜長石では Na や Ca イオンが framework の間隙の大きさより小さいために、高温でも三斜晶系である。高温型は全組成領域で a 反射のみを示し、空間群 $C\bar{1}$ をもつ。しかし低温型では a 反射の外に b, c, d 反射を示すか、衛星反射 (e 反射) を示す。

X線や電子顕微鏡により低温型斜長石には次のような複雑な現象が存在していることがわかった。

a) 分相組織: $\text{An}_{\sim 5}-\text{An}_{\sim 25}$ (peristerite), $\text{An}_{\sim 40}-\text{An}_{\sim 60}$ (labradorite), $\text{An}_{\sim 65}-\text{An}_{\sim 90}$ (bytownite) の不混和領域があり、これらの領域で分相組織がみられる。

b) 反位相境界 (antiphase boundaries, 略して APB とよぶ): APB には二つのタイプがある。b 反射の散漫散乱に対応する b-APB と, c, d 反射の散漫散乱に対応する c-APB である。

第1図

$a_0^*-b_0^*$ 面での a, b, e (e_1, e_2, e_3) 反射の位置を示した。a) I-anorthite b) An_{75} c) An_{50} d) An_{25} (Kitamura and Morimoto, 1977 による)

3. e-斜長石の研究史

斜長石系列で e 反射が出現することを最初に発見したのは Chao と Taylor (1940) である。彼等は, 中間組成の斜長石が anorthite-like と albite-like 構造の互層でできているために e 反射が現われると考えた。この発見以来, この反射を示す斜長石の超構造は, 鉱物学のもっとも重要な問題の一つとして, 多くの研究者によって精力的に研究されてきた。とくに Bown と Gay (1958) は e 反射が斜長石の組成と共に, また加熱により, どのように変化するかについてくわしい研究を行なっている。Megaw (1960) は, その実験結果にもとづき, 積層欠陥構造の回折理論を拡張して, e 反射の回折を論じた。とくに An_{78} の“理想”斜長石 (e 反射が第1図bのように主反射に対してもっとも簡単な位置に現われるために Megaw はそうよんでいる) に対して, その構造モデルを提唱した (Mモデル)。このモデルは4個の anorthite cell と2個の ‘bridging’ cell の互層からなっているが, 構造の詳細, とくに (Na, Ca) と (Si, Al) 原子の分布や変位については, 合理的な説明が与えられなかった。Megaw の e 反射出現の回折理論は基本的に正しいものであったが, An_{78} に対するモデルは現実性のとぼしいものであった。

Korekawa & Jagodzinski (1967) は Megaw の考えに賛成せず, An_{50} について Na-Ca 原子の配列 (一般に density modulation とよんでいる) だけを用いてモデルを作った (KJモデル)。彼らのモデルは e 反射の出現を Na-Ca の配列だけで説明しようとしており, (Si, Al)-四面体ならびに (Na, Ca) 原子の変位や (Si, Al) の分布などを全然考慮していない。この考えはきわめて観念的であったが後の e-斜長石の構造研究に大きな影響を与えることになり, 最近の Horst, (1981) らのモデルも基本的には, このモデルを源流としている。

より実験的な立場をとる研究が Toman & Frueh (1971~1973) により行なわれた。彼等は An_{53} の X線反射 (主反射ならびに e 反射) を丹念に測定し, Patterson 法でその超構造の解析を行ない, framework を構成する原子の shift modulation を用いて超構造のモデルを提唱し, (Si, Al) と (Na, Ca) 原子の分布についても議論した (TF モデル)。この TF モデルについては後でもっとくわしくのべるが, TF モデルはすでに説明した KJ モデルと後で説明する KM モデルの中間的な立場にある。最近, Horst ら (1981) もやはり, X線反射強度を用いて一つの構造モデルを得ている (HTKJ モデル)。

KJ, TF, HTKJ モデルはいずれも An_{50} の斜長石の超構造についてのみ論じたものであり, 斜長石系列での組成変化に伴う超構造の変化については合理的な説明を与えることができない。以上は X線反射を用いた解析であったが, Kumao ら (1981, 1983) は高分解能電頭の格子像を解釈して An_{50} の構造についてのべている (KHNE モデル) が, その基

本構造は KJ モデルと同様のものである。これについても後で説明する。

森本, 北村, 中島らは1973年頃よりX線回折および高分解能電顕を用いて, 斜長石の超構造の研究を進め, Kitamura & Morimoto (1975, 1977) は An_{73} のX線構造解析によって新しい構造を得た (KM モデル)。さらに Morimoto ら (1975 b), Nakajima ら (1977) は An_{54} の labradorite の高分解電顕格子像の解釈を, X線解析から得られた An_{73} の構造にもとづいて行なった。その結果, An_{24} – An_{75} の組成範囲で連続的に変化する超構造が, 端成分でしかも低温で安定な anorthite-like および albite-like な構造の互層の仕方の連続的な変化として説明できた (Morimoto ら 1975 a)。

4. e- 斜長石の Kitamura & Morimoto (KM) モデル

Kitamura & Morimoto は組成変化によるe反射の動きを考慮して, 新しい軸 ($a_{KM}^c, b_{KM}^c, c_{KM}^c$) を用いて An_c の組成の e- 斜長石の超構造を記述した。新しい軸と, anorthite cell (a_{An}, b_{An}, c_{An}) と Megaw (1960) の cell (a_M, b_M, c_M) との関係は次式で与えられる。

$$a_{KM}^c = m \cdot a_M + n \cdot (a_M - 2b_M) = m \cdot a_{An} + n \cdot (-b_{An}) = m \cdot a(An_{75}) + n \cdot a(An_{25})$$

$$b_{KM}^c = g \cdot b_M = 9/2 \cdot (a_{An} + b_{An})$$

$$c_{KM}^c = c_M = 3/2 \cdot a_{An} + 1/2 \cdot b_{An} + 1/2 \cdot c_{An}$$

ここで m と n は公約数をもたない整数で, m/n は $(c-25)/(75-c)$ であり, c は An 成分のモルパーセントである。

なお, c 反射がみられるときは, c_{KM} を $2c_M$ と採る必要がある。

この軸を用いて解析した e- 斜長石の構造モデルのうち An_{75} と An_{50} について第2図に示す。この図から明らかなように, 一般に e- 斜長石の超構造は a_{KM} につねに平行な albite-like band (あるいは Na-rich band) と anorthite-like band (あるいは Ca-rich band) の coherent な intergrowth からなる変調構造 (modulated structure) である。組成変化と共に a_{KM} 軸が変化するが, albite-like band と anorthite-like band もそれに応じて連続的に変化する。

さらに Morimoto ら (1975 b), Nakajima ら (1977) により, Labrador 産のシラー閃光を発する labradorite (An_{52}) の電顕格子像が得られたが, それは上に得られた KM モデルの妥当性とその詳細を明らかにした。この labradorite は約 1000 Å の幅の An_{45} と

第2図

X線解析による構造モデル a) An_{75} b) An_{50} (Kitamura and Morimoto, 1975, 1977 による)

An_{60} のラメラからなり, 各ラメラ中に e 反射に対応する超構造の fringe がみられる。第3図はその部分の格子像で, その白黒コントラストは格子に対応している。格子像の白わくに囲まれた部分に対応する KM モデルを第3図の右に示した。すなわち, 格子像では anorthite-like band の I-An の周期が一对の白黒のコントラストとして見られ, anorthite-like band 相互間の反位相境界が波線で示した albite-like band に対応している。

X線解析と電顕格子像から得られた情報に基づいて, An_{25} – An_{75} の全組成範囲の超構造のモデルを模式的に画いたのが第4図である。

第4図の albite-like band での灰色の cell は第5図の albite 構造の cellを, また anor-

第3図 An_{30} の格子像と構造モデルの対応を示す。左図のわく内の領域が右図に対応する。(Morimoto ら 1975 による)

第4図 An_{75} (a), An_{50} (b), An_{42} (c), An_{25} (d) の各組成についての構造モデルの模式図。anorthite-like 領域は白黒の subcell で albite-like 領域は灰色の subcell で表わされている (Morimoto ら, 1975 による)

X線回折法と高分解能電顕格子像法による斜長石の変調構造の解析

第5図 斜長石の高温型構造，低温型アルバイト構造，低温型アノーサイト構造の模式図

thite-like band の黒と白は第5図の anorthite 構造の cell (albite cell の2倍) を示している。

以下に、今までに出された主なモデルの比較を行なうが、KJ モデルは Na/Ca の配列しか考えておらず原子の変位（これが衛星反射強度にもっとも影響する）を考慮していないので現時点では時代遅れである。Na/Ca, Si/Al 原子の配列や変位を考慮したモデルとしては TF モデル，KM モデル，と HTKJ モデルがあり，これらのモデルを比較することにする。なお，KHNE モデルは本質的に KJ モデルに依存しているが，他のモデルとの関連について誤解している人が少なくないのでのべることにする。

5. 斜長石の超構造モデルの比較

今までのべてきたように，衛星反射を伴う超構造のモデルは，X線による研究と電顕による研究にもとづいてたてられている。ここで，これらのモデルの比較をしよう。

(a) X線による研究にもとづくモデル -TF モデルおよび HTKJ モデル批判-

現在までのX線による研究から確立されている点についてまずのべよう。

衛星反射の原因となる変調波は，すべての原子の平均構造からの変位を表わす変位変調波 (shift modulation wave) と，Tサイトの (Si, Al) およびAサイトの (Na, Ca) の分布を示す密度変調波 (density modulation wave) である。変位変調波は，一次の衛星反射に対応する周期をもち，T-O 距離の変化を与える。Tサイトの (Si, Al) の密度変調（占有率）は，X線強度にほとんど寄与しないので，それを強度から直接決定することはできない。したがって T-O 距離から (Si, Al) の占有率が求められている。それによると，第4図の黒と白の領域では Si : Al が約 1 : 1 であり，黒と白の構造の違いは Si と Al の配列がいれ違いの関係になっている（第5図の anorthite cell での左右の Si と Al の配列に対応している）。一方，第4図の灰色の部分では Si : Al が 3 : 1 に近い。ここまでの関係は TF モデルも KM モデルも同じである。

TF モデルと KM モデルが対立するもっとも重要な点は (Na, Ca) の密度変調波の取り扱いにある。この密度変調波については，2次の高調波の取り扱いの違いによって二通りの考えが可能になるのである。TF モデルでは先の変位変調から確立した (Si, Al) の分布と密度変調から得られた (Na, Ca) の分布をあわせて考えると，Ca と Na の分布がそれぞれ

Si_2Al_2 および Si_3Al の分布と一致せず、単位格子スケールでの電気的中性が保たれず、結晶化学的に不安定となる。すなわち Pauling 則が満足されないことになる。この関係を単純化して第6図に示した。ちなみに、KJ モデルは、変位変調波を無視した上で、Na を含む黒いサブセルと Ca を含む白いサブセルのみから An_{50} の超構造を説明しようとしている。

HTKJ モデルでは、事実上、2次の高調波が出現しないとしている。さらに、サブセルは中心対称を有し、隣接する2種類のサブセルの平均が全体組成となると仮定している。このような取り扱いでは、第4図の黒いサブセルと白いサブセルはそれぞれ Si/Al の ordering の異なる領域に対応し、Na と Ca はつねに disorder している。この HTKJ モデルでは、

上でのべた仮定が理由なしになされておる上に、得られた構造では Si/Al の ordering だけで、Ca/Na の ordering を伴わないという不自然なものとなっている。

一方、KM モデルは、A サイト原子の変位量は原子の種類に対応する(第2図)と考えることから求めたモデルである。したがって、(Ca, Na) 原子の変位変調波に対して密度変調波は半波長になる、すなわち2次の高調波成分が大きいと考えるのである(第6図)。

その結果、第4図の黒と白の領域には主に

第6図 An_{50} についての各モデルの比較図

Ca が分布し、灰色の領域には Na が主に分布していることになる。したがって、 Si_2Al_2 の領域では Ca が、また Si_3Al の領域では Na が分布することにはなり、Pauling 則を満足すると共に、構造を anorthite-like の band と albite-like の band の intergrowth と見なすことができるのである。HTKJ モデルに基づいた An_{52} 超構造の解析は次のような R 値を与えており、それがこのモデルが正しいとする根拠になっている。すなわち 4910 反射(うち a 反射 1640, および e_1 反射 3270)に対して R 値はそれぞれ 0.080 (0.066 および 0.182) である(Horstら, 1981)。われわれは最近、上と同じ反射データを用いて KM モデルに基づいて解析を行ったが、R 値はそれぞれ 0.074 (0.065 および 0.094) を得た(Yamamoto ら, 準備中)。この結果は斜長石のような複雑な構造に対して R 値は相対的な意味しかもちえないことを示している。

X線の研究による上の三つの対立するモデルで、前二者のモデルを主張する人々の後者の KM モデルに対する唯一の批判は、実際に観測された超構造の2次衛星反射が Ca/Na の分布からの高調波成分を主張するには弱すぎるという点にある。しかしながら、結晶中で変調波が完全に周期的で方向も一定であるという条件で計算した2次反射の強度はそれほど強くなく、しかも現実の斜長石の超構造では電顕でみられるように周期や方向が完全に保持されていない。その結果、観測強度に対応するように高次の反射が急速に弱くなることは計算で示されている(山本ら, 私信)。このことは、前者の立場に立つ人々の KM モデルへの批判が的をえているとはいいい難いことを示している。

2次反射の精密な測定と変調波の乱れについての詳細なデータが得がたい現段階で、この三つのモデルの優劣をX線の結果だけから最終的に決定することは困難であるとしても、後のべる結晶化学的考察から KM モデルが最適であるといえる。

(b) 電顕格子像にもとづくモデル—KHNE モデル批判—

電顕による研究によっても、大きくわけて二つのモデルが提唱されている。この場合の電顕による研究には、格子像を用いるものと、反位相境界の分布から構造の特性を知るという二つの方法がある。

格子像の解釈から、KM モデルと KHNE モデルが提唱されている。Nakajima ら(1977)は、格子像の白黒コントラストが格子の変調を示すものであることを anorthite (An_{96}) の格子像で確かめ、この事実にもとづいて、 An_{55} の格子像が KM モデルを示すものであることを明らかにした。一方、KHNE モデルは格子像の解釈によって得られたものであるとしているが、その解釈には以下にのべるように問題点が多い。

第一の点は格子像にみられる白黒の斑点がそれぞれ Na と Ca に対応すると解釈していることである。Kumao らによる格子像を含めて、現在得られている An_{50} の超構造の格子像は、サブセルに白または黒の一つの点に対応している像がほとんどであり、像自身に A サイトの原子一つ一つが識別できる程の分解能は得られていない。したがって、これらの格子像の白黒のコントラストは格子変調を示すにすぎず、格子内での Na, Ca 分布を示すものではない。このことは次のことから明らかである。

An_{50} の格子像と同種の白黒の点を含む格子像を、 An_{96} , An_{55} について Nakajima らが、 An_{50} について北村ら(未発表)が得ている。もしこれらの像に KHNE モデルで行なわれた白黒コントラストに Na, Ca をあてはめるという解釈を適用すると、これらの試料はすべて、全体として An_{50} の組成をもつという矛盾した結果になる。

第二の点は構造モデルを光変換して得られた像がもとの回折図形に似ているということ KHNE モデルの根拠の一つにしていることである。格子像の白黒のコントラストに対応するパターンを光変換すれば電子回折像に似たパターンが得られるのは当然のことで、このことは白黒の斑点がそれぞれ Na, Ca に対応しているかどうかの検定には無意味である。たとえば、白黒のコントラストを同じ種類の原子の変位の向きの違いに対応すると考えたとしても、同じような回折図形が得られるはずである。

したがって、以上の二点からわかることは、長石の超構造のような複雑な構造については、格子像の解釈から個々の原子の配列や変位を導くことは現時点では不可能であり、格子像は X 線で得られた超構造の確認や、その超構造の local な変化を知るのにしか用いることができないということである。KHNE モデルは、X 線的には正しくないことが明らかな KJ モデルから出発して、それが正しいかどうかを Na と Ca が格子像の白黒に対応しているという間違った認識で論じているのである。

(c) 反位相境界の電顕観察

つぎに、KM モデルを支持するデーターとして、超構造を特徴づける反位相境界が試料の組成によってどのように変化するかを観察した電顕による研究をあげよう。

詳細な研究は、Grove や Wenk によってなされたが、その結果は次の通りである。anorthite に近い組成の試料では反位相境界が不規則に分布し、その存在量が少ない。Ab 成分が増加すると (An_{75} 前後からは) 反位相境界が増加し規則化する。この結果は、反位相境界そのものが Ab 成分を多く含んでいることを示しており、KM モデルにみられるように、反位相境界が Na-band と考えられる。以上の結果からも KM モデルが支持されている。

6. 結晶化学的考察

以上で主として構造解析の立場から HTKJ モデル, KHNE モデルそして KM モデルについて説明し, KM モデルがすぐれていることをのべた。結晶化学的な立場からみると, KM モデルの優位性がさらにはっきりしてくる。以下に簡単に KM モデルの特長をのべる。

(a) 超構造での A サイト原子の変位変調の振幅が原子種によっている (第 6 図) ことは, けい酸塩の結晶構造できわめて普遍的な現象である。

(b) e -斜長石の An_{25} - An_{75} の e 反射の位置・強度の連続的変化を albite-like band と anorthite-like band の coherent な intergrowth として統一的に説明でき, 他のモデルでの An_{50} 以上と以下の異なった構造モデルを考える必要がない。

(c) e -斜長石を構成している構造単位が, 低温で安定な albite および anorthite の構造を基本にしている。第 5 図のように, anorthite の cell は高温型や低温型 albite の cell の 2 倍に必ずなっており, KM モデルの anorthite-like band ではこのことが保持されている。他のモデルではこの点は十分満足されておらず, albite 構造でも anorthite 構造でもない複雑な構造が構造単位になっている。

(d) e -斜長石が中間組成をもつ高温型斜長石からの低温で安定な albite と anorthite に分解する過程での萌芽的段階 (incipient stage) に対応するという鉱物学の見解と, (c)でのべた特長は見事に一致する。

(e) b -APBs の出現頻度が An の減少につれて多くなるという観察事実は, e -斜長石の反位相境界が b -APBs の周期的に出現したもので Na に富んでいるということを支持する。

最後に, 今後の斜長石の超構造の研究において, 以下の点が中心になるとと思われる。

a) 2 次衛星反射の精密な測定により, (Ca , Na) 分布から生ずる 2 次高調波を確定すること。

b) 超構造の modulation の幅と方位が化学組成と共に連続的に変化する理由を明らかにすること

c) 高温型斜長石から超構造を示す中間型斜長石への変化のカイネティクスを追跡し明らかにする。

おわりに科学技術庁無機材質研究所の中沢弘基, 山本昭二両氏の御協力に感謝いたします。

文 献

- Bown, M. G., Gay, P. (1958): The reciprocal lattice geometry of the plagioclase feldspar structures. *Zeit. Krist.* **111**. 1—14.
- . —— (1969): The effect of heat treatment on the diffraction patterns of intermediate plagioclase. *Zeit. Krist.* **129**. 451—457.
- Bragg, W. L., Claringbull, G. F. (1965): The crystalline state, vol. IV. Crystal structure of minerals. Cornell University Press, Ithaca.
- Chao, S. H., Taylor, W. H. (1940): Isomorphous replacement and superlattice structures in the plagioclase feldspars. *Proc. Roy. Soc. (Lond.)* **176 A**. 76—87.
- Horst, W., Tagai, T., Korekawa, M., Jagodzinski, H. (1981): Modulated structure of a plagioclase An_{52} : Theory and structure determination. *Zeit. Krist.* **157**. 233—250.
- 北村雅夫, 森本信男 (1980): 斜長石の超構造。鉱物学雑誌, **14**. 特別号 2. 231—240.

- Kitamura, M., Morimoto, N. (1975): The superstructure of intermediate plagioclase. *Proc. Japan Acad.* **51**. 419—424.
- . —— (1977): The superstructure of plagioclase feldspars: a modulated coherent structure of the *e*-plagioclase. *Phys. Chem. Minerals*, **1**. 199—212.
- Korekawa, M., Jagodzinski, H. (1967): Die Satellitenreflexe des Labradorits. *Schweiz. Mineral. Petrog. Mitt.* **47**. 269—278.
- Kumao, A., Hashimoto, H., Nissen, H. -U., Endoh, H. (1981): Ca and Na positions in labradorite feldspars as derived from high-resolution electron microscopy and optical diffraction. *Acta Crystallogr.* **A 37**. 229—238.
- 橋本初次郎, 熊尾章宏 (1983): 原子レベル電子顕微鏡と光学的処理方法を併用した鉱物の構造解析。鉱物学雑誌 **16**. 特別号 1. 301—314.
- Megaw, H. D. (1960): Order and disorder. I. Theory of stacking faults and diffraction maxima. II. Theory of diffraction effects in the intermediate plagioclase feldspars. III. The structure of the intermediate plagioclase feldspars. *Proc. Roy. Soc. (Lond.)* **259 A**. 59—78. 159—183. 184—202.
- Morimoto, N. (1979): The modulated structures of feldspars. *AIP Conference Proceedings*. No. **53**. 299—310.
- Morimoto, N., Kitamura, M., Nakajima, Y. (1975 a): Antiphase relations in superstructures of the *e*-plagioclase. *Proc. Japan Acad.* **51**. 729—732.
- Morimoto, N., Nakajima, Y., Kitamura, M. (1975 b): Direct observation of the superstructure of labradorite by electron microscopy. *Proc. Japan Acad.* **51**. 725—728.
- Nakajima, Y., Morimoto, N., Kitamura, M. (1977): The superstructure of plagioclase feldspars. Electron microscopic study of anorthite and labradorite. *Phys. Chem. Minerals*, **1**. 213—225.
- Ribbe, P. H. (ed.) (1975): Feldspar mineralogy. Short Course Notes 2, Mineral. Soc. Am.
- Smith, J. V. (1974): Feldspar minerals, vol. 1. Springer-Verlag, N. Y.
- Taylor, W. H. (1933): The structure of sanidine and other feldspars. *Zeit. Krist.* **85**. 425—442.
- Toman, K., Frueh, A. J. (1971): On the origin of plagioclase satellite reflections. *Acta Crystallogr.* **B 27**. 2182—2186.
- . —— (1972): Intensity averages of plagioclase satellites: distribution in reciprocal space. *Acta Crystallogr.* **B 28**. 1657—1662.
- . —— (1973 a): The intensities and Fourier transforms of difference reflections. *Acta Crystallogr.* **A 29**. 121—127.
- . —— (1973 b): Paterson function of plagioclase satellites. *Acta Crystallogr.* **A 29**. 127—133.

(昭和58年1月31日受理)