

# 資 料

553.22=82=956

## 交代作用過程の概説\*

D. S. Korzhinskii

小 西 善 治 訳

### 緒 論

“metasomatism” または “metasomatose” という術語は、19世紀のなかばに、仮像鉱物の生成過程に対して提唱された (K. F. Nauman)。その後この術語は、1 鉱物が他鉱物で置換されて完成される岩石の転移過程—岩石の全化学的組成の変化を伴う—を示すために取りあげられた。Goldshmitは、交代鉱物と填間溶液との間に特定の化学的反応が起こって生じるような置換現象に交代作用を限定し、交代作用と鉱染作用—原岩石の成分を含まない鉱物が岩石に沈澱する。例えば石灰岩の galena による交代—とを対比している。この metasomatose の狭義の definition は Lindgren (1925) が強く反対し、まもなく見捨てられた。現在では、metasomatose は化学的組成の変化を伴う岩石のあらゆる置換 (交代) を意味している。この場合、古い鉱物の溶解と新しい鉱物の沈澱とが同時的に行われ、岩石の交代作用過程が持続する間は岩石の固態状態 (solid condition) が維持される。溶融を伴う過程、すなわち岩石に空隙が形成され、その空隙が充填 (鉱物質物質) されるような過程は、交代作用には入れられない。交代作用 “metasomatose” という術語は、内因的 (endogenetic) ならびに外因的 (hypergenetic)—地表附近の交代作用を意味する—(交代作用) 過程に用いられる。本論文では、内因的交代現象のみをとりあげ、metasomatose は、化学的組成の変化を伴う交代作用を指すことにする。

交代作用現象は、地殻上で広域にわたって分布している。各帯において岩石の蒙っている任意交代作用には、岩石の化学的組成の変化—交代作用過程を媒介として—を伴っている。ここで次のことを附加しておく必要がある。岩石中における水および炭酸の含有量だけが変化する変成過程では、他の術語、“変成作用” と “交代作用” とが同一程度の重要性を帯びてくるから、この種の過程は metasomatose (交代作用) に入れられない。内因的鉱床の大多数は交代作用によって生成されるか、または wall rock の特徴的な交代変質を伴っている。したがって交代現象の研究を掘下げるのがいかに必要であるかは、明白である。鉱床地区における採鉱の成否は、交代現象の研究で明らかにされた indicator を正しく利用することにかゝっている。この種 indicator は採鉱する場合決定的な意味をもつてくる。

交代現象の経験的な地質学的研究では、その現象を理解するまでにはいたらない。地質学的研究と経験的なデータの解析とともに、交代作用の物理、化学的理論を発展させることが必要である。したがって本論文では、交代現象を概説するに先き立って、まず交代作用理論の主要な問題と交代作用の研究方法を簡単に述べよう。

## I. 交代作用過程の理論について

### 1. 熱力学的平衡と相律

交代作用の生成研究では交代作用の下で化学的平衡が重要な役割を指し示すような法則性が明らかにされている。例えば、岩石の組成には、量的に限られた鉱物種が干渉している。すなわち、2 種、3 種の鉱物類、ときには1種類の鉱物類 (単鉱物) からだけからなる岩石類がし

\* Коржинский, Д. С. : Очерк метасоматических процессов, Основные проблемы в учении о магматогенных рудных месторождениях, р. 335-369, Институт геологических наук, Академии наук СССР, Москва, 1955

ばしば形成されている。交代作用を蒙つた岩石のある種の型は、地球上の種々の地域および種々の地質年代の岩石累系中にきわめて広範囲域に分布している。このことは、熱力学的法則に基づいて交代作用の生成を研究する基盤となる。このような研究の意味は交代岩石の鉱物組成の分析を基礎において、交代作用過程の外的条件およびこの過程の下での化学的成分の挙動に関する結論を導きだすことにある。

熱力学的平衡に対しては次のような誤つた考え方が広く普及している。すなわち熱平衡は、完全に静的状態の下で現われる孤立系で達成される。天然においては孤立系が存在しないから、厳密に言えば、熱平衡は不可能である。しかし実際上では、熱平衡とは、系の熱力学的パラメーター間に相互連関性が存在する場合のみを意味する(系のパラメーターとはそれによつて物質系の状態が記載できるような数値であつて、例えば温度、容積、圧力などを意味する)。種種の成分からなる物質系にあつては、互に独立のパラメーター数は  $k+2$  以下にならない。いま物質系中における全熱力学的パラメーターの値が、パラメーター中の  $k+2$  の値と明らかに従属関係を示し、物質系の形成履歴に左右されないとするならば、独立パラメーターの全  $k+2$  が変化過程にあつても、その系は、完全に熱平衡にある。例えば定成分量からなる物質系では、温度と圧力成分とが変わると、各モーメントにおける系の全パラメーターは系の温度と圧力によつて決定されるから、与えられた系の変化過程では、平衡が依然として保たれる。おのおのの地域ごとに、様々な温度、圧力および滯孔溶液の濃度が支配しているから、系は非平衡状態にあるとみなされる。しかしとりあげられた各単元 (elementary) 地域では、系が平衡状態にあることを除外できない。例えば交代作用が働くと、各地域の滯孔溶液の組成は時間の経過に伴つて変化する。しかし各単元地域における滯孔溶液の組成変化が岩石組成の対応変化を迅速に誘起するならば、全体的には、もちろん、非平衡・不可逆状態で現われる所与の交代作用過程の下で、“とりあげられた各単元地域”は熱力学的に平衡(モザイック平衡)と呼ぶことができる。

系の状態を特色づけているパラメーター中では2種の値が区別できる。物質の一定量と関連性がないパラメーターは、強さ (intensity) と呼ばれる。例えば1相中における温度、圧力、濃度の度合にあたる。物質の一定量と関連性をもち、その成分量に正比例的に増大するパラメーターは、度と呼ばれる。例えばこの種パラメーターには相温度、相容積、熱容量などがあげられる。

Gibbs の有名な相律は、均衡系における相互に独立に変わる強さのパラメーターの最小数—自由度数と呼ばれる—で現わされる。

$$h = k + 2 - \phi$$

$k$ : 成分数。化学元素の最小数または群、組合せは平衡が成り立つ各相の構成から求められる。  
 $\phi$ : 相の数。このような系の部分は機械的な方法で互いに区別することができる。例えば岩石系の各鉱物はそれ自体相である。

相律は次のことを示している。物質系の相数が多くなり、強さのパラメーター (独立変数) の数が少なくなると、物質系は独立に変わる。成分数 ( $\phi = k$ ) に等しい相数の物質系では、2つの強さパラメーター、例えば温度と圧力のみは、残余のすべての強さのパラメーターがこの2つの選択パラメーターに依存して変わるから、独立に変わる。たゞし物質系の相の数は減少しないものとする。相の数は、2成分数を超える場合には、強さのパラメーター (独立変数) はそれぞれ一定の値をもっているはずであるから、相の数が減少しない間は変わり得られない。

## 2. 完全移動性成分をもつ物質系

天然の物質系を研究する場合には、どのようなパラメーターが物質系の外的条件および端初状態で決定されるかを確かめることがきわめて重要である (たゞし外的条件と端初状態とは独立変数とみなすべきであるが、後者は前者に従属する)。例えば化学的組成の変化を伴わない交代作用を考えるならば、原堆積岩の成分量は、終極状態を決定するから独立のパラメーターである。すなわち成分量は、交代作用の産物を決定するから、周辺岩石の圧力、温度と同様に岩

石系の“平衡の因数”である。他の残余のパラメーター、例えば岩石と造岩鉱物との容積、鉱物組成などは、平衡が達成された場合、上述の平衡因数に完全に左右される。

そのなかの全成分量が不変の物質系は“閉じた系”である。しかし“開かれた”平衡系もまた可能である。いま変成作用が行われた場合に、原堆積岩が一定の濃度で多数の成分を含む水溶液で洗われ、その際変成作用を蒙り易い岩石中の若干成分がこの溶液に事実上溶解しないものと想像してみよう。この場合には変成作用の最終産物は、不溶性成分および作用溶液中の溶性成分の濃度に左右される。さらに最終産物は、独立パラメーター  $k+2$  からなる外界温度と圧力とによつても異なってくる。この場合残余のパラメーター—このなかには変成岩石の溶性成分の含有量を含む—は上述の平衡因数に依存するが、原岩石の平衡因数には左右されない。

与えられた過程ではその量が平衡因数である諸成分は、非移動 (inertic) 性と呼ばれるが、残余の成分は、完全移動性と名付けられる。このような定義は次のような問題が残る。すなわちどのような条件下で成分の“分化移動”をもつ系が成立するか、換言すれば一成分は非移動挙動を、他成分は完全移動をそれぞれ示す物質系がどのような条件下で現われるかが問題となる。しかし熱力学的考え方によれば、このような物質系は理論的には可能であるとともに、平衡状態の変わる物質系の各成分が非動性となり、また完全移動を示すことは必然的に起こってくる。このことは、物質系の平衡因数中の独立パラメーターの総数には限界があるので、多数の成分が作用溶液中に同時に濃縮することが不可能であることを考えれば明らかとなる。交代作用過程の下では多数の成分が完全移動を起こすことは、後述のように1相律によつて行われた鉱物の共生関係の解析で確かめられている。しかし、もちろん、非移動、移動成分をもつ物質系の上述の例は考えられうる最も単純な例である。実際上では、完全移動成分からなる物質系の多くの型が可能である。どのようにして交代作用の下で成分の分化移動 (mobile differentiation) が行われるかの問題については、交代作用性帯状分布理論を述べる際に検討する。

相律によれば  $f=k+2-n$  である。溶液中におけるおのおのの完全移動成分の濃度は、平衡系の成立の外界条件を表わす (独立に変わりうる) 強さのパラメーター (平衡因数) であるから、おのおのの完全移動成分は、自由度をもつ平衡系を導入し、そのため共存相数が1単位減少する。例えば物質系が  $k_i$  非移動成分からなり、 $k_p$  移動成分が任意の温度、圧力の下で生成されるとするならば、平衡因子数には  $k_p+2$  の強さのパラメーターが含まれる。したがつてこのような物質系の任意の平衡状態は  $n \geq k_p+2$  となる。この場合相律 ( $f=k_i+k_p+2-n$ ) は  $f \leq k_i$  となる。すなわち共存相の極大値は、非移動成分の数に等しく、完全移動成分の数に左右されない。交代岩石にみられる同時生成鉱物中の少数のものは、交代作用過程下の成分列 (series) の完全移動性挙動と確かに関連性がある。

岩石および鉱物を相律によつて組織的に研究すると、不活動成分と完全移動成分からなる系の存在条件の下で鉱物形成過程が、行われるのが明らかになる。すなわち鉱物生成過程では、多様な成分組成の変化が様々な型で行われる。特に交代作用過程では、交代作用性帯状分布が出現する。すなわち変成 (交代) 帯が生成される場合には、変成帯は1つは不活動成分、他は非移動成分からなり、交代現象を background にして、おのおのの成分は不活動状態から完全移動状態に移行している。このようにして岩石成分の移動性の質的差異は、各成分の置換 (交代) で明らかになる。“成分の (差動) 移動性の法則”は、この相関性を一般的な型に普遍化したものである。

### 3. 交代作用および一般的な交代作用が行われた際の溶液の役割について

交代作用過程は、流体状または気体状の溶液が常に干渉して行われる。この種溶液は一成分を導入し、他成分を岩石から運び出す。この種溶液は岩石の微細な孔隙を通つて浸入するから、滯孔溶液 (pore-solution) と呼ぶことができる。孔隙は主として結晶粒の継目に沿つて配列し、交代性置換は、岩石を構成する結晶粒の継目から普通始まり、徐々に全粒に拡大してゆく。

しかし孔隙は、結晶粒間を貫ぬいているので、交代岩石の結晶粒間に“おり”(mud)がしばしば生じ、微細な液体包有物が多量に生じる。特に汚染状長石は普通液体包有物を多量に伴ない泥土岩化作用 (pelitization) と誤って記載されている。孔隙の大きさは、粒径数マイクロメートルにまでわたっている。

最近花崗岩化作用に関する外国の文献には次のような仮説が普及している。この仮説によれば、高温度下では、交代変成作用は、溶液の干渉を伴わずに、化学元素が固体の岩石中を直接拡散して行われる。この仮説が根拠薄弱なことは、交代作用現象が不均一に分布している点からみて明らかである。さらにこの種の交代作用の発達地域は溶液の浸透に好都合な(構造)弱線地帯に明らかにあたっているから、固体の岩石を通つて拡散するには、この種地帯に発達する割れ目(裂罅)は障害となるはずである。しかし固体状態の拡散を支持する人々は、造構造帯では構造運動で強きの弱まつた結晶格子を通つて拡散が促進されると主張している。

変成作用下の種々の成分の相対可動性(移動性)に関するデータは、結晶質媒質を通る拡散に相反する事実をあげている。すなわち結晶格子を媒介とする拡散の場合には、極大の移動をなす物質は原子および最小のイオン半径をもつイオンであるはずである。反対に、水溶液中では、極大移動を示す物質一迅速拡散物質一は、最小電荷をもつ最大イオン半径のイオンである。この種イオンは、溶媒の(微細な)イオン膜 (ionfilm) に吸着されるので、最低度に水和される。変成作用が働く場合には、水・炭酸・アルカリ金属が極大移動をなす。したがって結晶格子を媒介とするイオンの拡散説は完全に論駁できる。

液体包有物が交代鉱物中に常に存在することは、溶液が鉱物の形成に干渉することを立証するのに役立つ。そのほかに固体の珪酸塩媒質を媒介とするイオンの拡散は、高温度の場合でもきわめて緩徐である。Jagtish の計算によれば、実験によつて次のことを示している。700°の温度で焙焼されたメタ高陵土中のトリウムの拡散は、100万年間に、10 m以下の反応帯を形成するが、温度500°では1.8 cm以下の反応帯を形成する。しかし天然の変成過程はきわめて短期間に行われるが、この場合、特に広域変成作用が行われる場合には物質は、比較にならない大きな距離を移動する。

鉱物中の液状包有物の研究によれば、交代作用で生じる溶液は、水溶性であつて、炭酸およびハロゲン化アルカリ金属を多量に含み、アルカリ土類の硫酸塩およびその他の成分をも伴なう。低温度および高温度では、この種溶液の状態は、たしかに液状であるが、一層高温度下の現象に関しては、地質家の間に見解の差がある。この問題は他の論文でゆずり、こゝでは簡単に述べておこう。高温度溶液は、臨界点以上にあるから、溶融状態となり、凝縮が困難であるので液体に近づく。そのために水和作用に基づく変成作用は、炭酸化作用による反応と反対に深さ(条件)に著しく左右されない (Korzhinskii 1940)。

滯孔溶液は、媒質であつて、この媒質を媒介として交代される岩石の諸成分の移動が行われる。岩石中の成分の移動には、2つの極型が可能である。

- 1) 諸成分は、非移動性滯孔溶液を通つて、この成分の濃度の低下側へ移動する。濃度勾配一距離に伴なう濃度の変化一は、拡散の必要条件である。
- 2) 諸成分は、溶液の流れに吸収される。

この極型に対応して、交代作用の2型が区別できる。“拡散”性交代作用がこの場合重要な意味をもつものは、成分の拡散移動である。“浸透” infiltration 交代作用、浸透性交代作用では、諸成分は、主として岩石中を浸透する溶液の流れで移動する。

#### 4. 交代作用下における平衡因子

すでに述べたように滯孔溶液が存在することは、交代作用にとつて必要条件である。滯孔溶液の飽和度が高くなると、それに比例して変成作用の強度も増す。滯孔溶液が孔隙中の一部分を満しているときには、鉱物の一部分のみが同一時間内に完全に交代されるが、他の部分は交代

岩石中に残留型態で残存する。しかし岩石中に新しく生成される鉱物の組成は、滯孔溶液の量に左右されない。したがって滯孔溶液の量は平衡要因とならない。

普通の交代作用の場合には、平衡因子としては次のパラメーターが考えられる。温度、滯孔溶液圧（主として深度に左右される）、岩石の容積、滯孔溶液中における各不活性成分および易動性成分の（容量）含有量である。蒸気圧および炭酸は溶液の温度と溶圧（深度）の函数であるから、平衡の地質学的独立因子の数のなかに含まれない。

岩石容積の独立性は、変成過程において岩石容積が（原則として）変わらない点から明らかである〔変成作用下における容量（積）不変の法則 Lindgren 1935〕。すなわち容積は変成系の初期状態となる。しかしこの場合交代過程における岩石の圧力は、一定に保たれないで、他のパラメーター、特に溶液に存在する完全に易動性の成分の濃度によって左右される。交代作用が岩石に空隙の形成を伴わない場合には、造岩鉱物内の圧は一般に、滯孔溶液におけるよりも高くなるはずである。隣接変成帯では、鉱物圧は異なり、ある場合には物質の機械的移動を起こさせる。すなわち圧と平衡を保つ交代岩石の容積変化を招く。このような場合は、現実には起こることがある。例えば“交代作用性収縮”あるいはさらに適切な表現では交代作用性の縮まり（容積の減少）は、白雲岩中に存在するペグマタイトの交代性脱珪酸化作用に伴う（Korzhinskii 1947）。こゝでは、容積の代わりに、平衡因子として周辺岩石の圧が現われる場合をとりあげよう。岩石圧の変化は、小規模の交代作用にのみ伴う変成過程に固有なものである。しかし定圧下で強度の交代作用が働く場合はむしろ例外であるが、大多数の強度の交代作用過程は、事実において Lindgren の指摘する容積保存の法則に支配される（法則というよりも、容積保存の合法則性または原則と呼ぶのがよい）。

しかし交代作用過程における岩石容積の独立（自主）性は、必ず容積不変を意味するものではない。交代岩石の容積は造構造過程と関連してそのなかに割れ目および孔隙が現われるので増大する。これはこの種割れ目が滯孔溶液から析出する鉱物で充填されるからである。圧平衡がこのような造構造過程で小地域に外部原因として成立しない場合には、岩石の容積変化は、他のパラメーターから独立なものともみることができははずである。すなわち容積はこゝでは平衡因子となるであろう。

交代作用下の容積の不変すなわち独立性からは、次の重要な結果がでる。滯孔溶液は、原則として岩石成分で過飽和されるはずである。この種現象は、造岩鉱物圧が滯孔溶液に完全に伝達されないで、滯孔溶液がそれと接触する造岩鉱物よりも低い圧力下にあることと相関関係をもっている（Korzhinskii 1951）。この条件下では滯孔溶液の鉱物の溶解度は上昇するはずである。溶液はこの意味において過飽和となり、空隙に出会すると、滯孔溶液からは過飽和鉱物の晶出・沈澱が起きる。この場合には晶出鉱物は、周辺岩石よりも（空隙を満すまで）高い圧力を受けないので溶圧下で沈澱する。溶解がすすみ、岩石成分が滯孔溶液で運び出されるに従って、過飽和鉱物は沈澱するが、交代岩石の容積は不変で、構造・石理のある種々の特性は保持される。岩石の出会いする溶液の濃度が一層低い場合には、溶解は沈澱に卓越し、溶液で満された空隙が岩石中に形成される。この場合には、岩石内の圧力は、結局滯孔溶液の圧と等しくなる。

交代作用が働く場合、容積でなく、外圧が平衡因子であるとすると、標準交代作用の下では、同時成の安定鉱物の極大数は、相律によって不活性成分数に等しいであろう。この種鉱物は、“反応鉱物”類であつて、これらの生成物は、変成（化）岩石の不活性成分と溶液との反応によって生じるであろう。形成された各鉱物には、原岩の不活性成分類を含んでいる。しかし普通の場合、すなわち平衡因子が岩石の代りに（岩石）容積である交代作用にあつては、独立強度パラメーター数（independent intensive parameter）は1単位に減少するが、単位あたりの外延因子数（extensive factor）は増大する。そのために、単位あたりの同時成安定鉱物数は相律によって増加し最大となるはずである。したがって交代作用下では、同時成鉱物数は、普通不活性成分（単位あたりの）数に卓越する。このことはその数が不活性成分数に卓越しない

反応鉱物以外に、岩石中に1“晶出・沈澱”鉱物が存在することを示している。さらに溶液からのこの種鉱物の晶出沈澱によつて、初成鉱物が反応鉱物で置換される際に生ずる容積の減少が補整される。

##### 5. 浸透性交代作用に基づく交代性帯状分布について

滯孔溶液を媒介とする成分の拡散は、浸入溶液の成分が移動する場合に比較して、緩慢に、一層緩慢に行われる。この現象と関連して、拡散性交代作用は、上昇溶液の浸入によつて形成される一浸透性交代作用現象—に比較して従属的に発達を示す。wall rock の変質および2交代作用過程の研究から明らかなように、最深所花崗岩・花崗片麻岩の生成条件の下でも、拡散性交代作用に基づく成分の移動は10mを超えることはない。全岩石層の交代性変質は、岩石中に上昇溶液流が浸透した場合(浸透交代作用過程)にのみ起きる。

浸透交代作用の動力学的面を検討しよう。一定の原組成の上昇溶液が均一な原組成の岩石層中に出現し、岩石の孔隙系を伝わつて岩石中に浸透したものとす。いま岩石は、与えられた組成の溶液と非平衡状態にあるならば、岩石の置換(交代)が始まり、交代岩石の組成ばかりでなく、最後には溶液組成が変わるであろう。したがつて各与えられた瞬間においては、初期断面〔溶液が(与えられた)岩石に達する箇所の断面〕から種々の距離に達する溶液は種々の組成をもっているであろう。このために“交代作用性帯状分布”が生じ、溶液の浸入方向には、種々の組成の交代作用帯“柱”が形成される。溶液の流動方向には、溶液の浸入度に応じて交代作用帯が拡大してゆくであろう。その上液の背面帯には進行正面が迫り、それを交代置換するであろう。

初歩的な考え方によつては、浸透性交代柱の構造特性に関する概念を求めることはできない。この種の現象は錯雑しているから、この種現象の解明には、交代作用の物理、化学的理論を発展させ、問題を数学的に研究することが必要である。理論構造の基盤には、天然の交代現象の研究と最も標式的な特性の抽象化によつて誘導される仮説をもうけることが必要である。もちろん数学的研究にあつては、交代作用の2次的特性と因子—多くの場合決定的な影響を及ぼさない—とはもちろん無視すべきである。

著者は、次の主要仮説によつて浸透性交代作用に関する微分方程式の主要系を誘導した。

- 1) 交代作用の定義に基づいて、与えられた各瞬間に滯孔溶液中に存在する成分量 (mass) は、岩石類の量 (mass) に比較して僅少である。
- 2) 基地域 (elementary area) における岩石とその孔隙を満す滯孔溶液とは、化学的平衡下にある。したがつてその組成の変化は実際上同時に起きるはずである。
- 3) 溶液が浸入する孔隙系は、きわめて均一で、かつ微細であるから、岩石の各粒(構成)は浸入溶液で洗蝕される。
- 4) 岩石類の容積(量)は交代性置換によつて変わらない(交代作用の一般の場合に対応)。
- 5) 交代柱の延長(長)上の温度および孔隙率は変わらない。

天然の交代作用過程では、この条件は、それぞれの程度に乱される。特に“均一孔隙率”の条件は割れ目が形成されるためにしばしば乱される。しかし上述の条件が成立する限界現象に対して交代作用理論がうち立てられるならば、各条件、特に均一孔隙率の条件の乱れが極大値の場合に起きる理論の偏差の除去は困難でない。

こゝではこの仮説を基にして誘導された方程式は論じないが、この式から導かれる結果のみに限り、本題に興味あるものをあげよう。溶液の浸入にしたがつて、交代帯柱は質的变化を蒙らないが、鉱物組成の変化を伴わないで、あるいは帯の相対的幅に関して変化が起こらないで、溶液の流動方向に帯の等拡大(比例拡大)のみが生じる。溶液の浸入が等速度で行われるならば、各置換前面(正面)は等速度で移動する。置換(現象)は、質的に異なる鉱物組成からなる帯の接触面にのみ行われるが、鉱物の量的比の1変化では現わされない。このような現象

は、岩石が等孔隙率の場合には、置換が岩石中における置換（交代）鉱物の含有量の通増と被置換鉱物の含有量の通減を媒介として起きないことを意味している。すなわちその代りに顕著な置換（交代）前面が形成され、最前端には交代鉱物を欠失し、その背後には被交代鉱物が存在するであろう。例えば石灰岩が珪化作用を蒙るならば、被交代石灰岩と交代（純粋）石英質岩石との間には顕著な接触面が形成されるはずである。このような顕著な置換前面は、交代作用が働く場合には現実に普通にみられる。しかし不等孔隙率とある程度表面エネルギーの影響〔交代鉱物中にみられる置換（交代）前面の周囲には溶解度が低いために被交代鉱物の極大巨結晶がしばしば保存されていることがある（Korzhinskii 1950）〕と関連してこのような合法則性を欠失している場合が認められる。このようにして等孔隙率の場合には顕著な界面をもつ交代帯が生じる。交代帯が定組成の1鉱物から構成されているならば、置換（交代）作用は、帯の内部に及ばないので接触帯にのみ起きるから、各帯の延長上に存在する岩石の鉱物、化学組成は不変である。帯の延長上における組成のある種の変化は、組成が可変性である鉱物から構成されている場合のみ可能である。しかし理論的研究によれば、浸透性交代作用下では、拡散性交代作用と異なつて交代鉱物の組成の可変性は著しく制約される。したがつて多くの場合拡散性交代作用の条件下で可変組成をもつ鉱物類は、浸透性交代作用の下では定組成の鉱物として實際上振舞うようである（Korzhinskii 1952）。

前面帯（溶液の流動方向に沿う）自体では、溶液組成は原岩石の組成に対応（その結果先行帯の延長線に反応系列が生じる）しているから、組成（水を除く）の変化を伴わない交代作用が岩石への溶液の浸透で生じる。生成した岩石の組成は、原岩石組成の全成分（水を除く）の含有量に左右される。したがつてそこでは水を除く全成分は不活性に転移する。反対に、岩石が溶液によつて極大変質を蒙っている不活性帯では岩石の組成は、流動溶液に完全に適応している。すなわちその組成は、溶液の成分濃度に完全に依存し、原岩石の成分含有量に左右されない。このような現象は、この帯の全成分が全移動性挙動を示すことを意味している。各中間（交代）帯では、成分の一部は不活性となり、その含有量は1岩石の原含有量への従属性を保持している（この状態は、不活性成分の含有量が厳密に不変に留まるために必然的に起きるものではない）。しかしその一部は、全移動性（total movability）を示し、その含有量は溶液の濃度に左右される。前面帯から奥部（背後）へ移行するに従つて全移動成分の数が増加するが、不活性成分数は減少する。各置換前面では、全移動成分の数は1単位以上に増加しない。不活性成分数の減少とともに、帯の同時成鉱物数が減少し、最後に単鉱物からなるその背後帯が形成される。

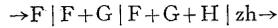
共通成分をもたない鉱物類からなる交代柱、すなわちその組成に“反応”鉱物類を欠くが、被置換岩石の成分の誘導体を伴わないで溶液から晶出した“沈澱鉱物類および初成岩石”の残留鉱物類を含む交代柱が形成されると考えられる場合を検討しよう（Korzhinskii 1951）。最も簡単な場合は、2, 3の鉱物、例えば A, B, C の鉱物類からなる岩石が溶解する場合である。この場合には、岩石中を流動する溶液は、全成分で飽和されないであろう。各鉱物類の溶解は示差速度で起きるであろう。そのうえ被溶解鉱物類の存在位置では、溶液で満された孔隙が残るであろう（これを zh で示す）。そのために鉱物類の数の減少と孔隙容積の増大とを伴う数帯が形成され、最後に岩石の完全溶解が起きる。このような交代柱の構造は次のように示されるであろう。



（矢印は溶液の浸入方向を示す）

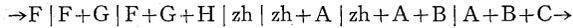
周知のように、溶解空隙はアルプス型鉱脈、結晶の凹所およびある種のペグマタイト等と出会する。空隙壁の構造問題は表面エネルギーの影響に関する章で取り扱う。一般に交代作用に基づく溶解空隙はかなり珍しい。これは主上昇溶液がそれぞれの鉱物類で過飽和されているからである。こゝで一層頻繁に出会する空隙の充填されている場合を検討しよう。いま数種の鉱

物、例えばF, G, H 鉱物類で過飽和されている溶液が“開かれた割れ目”に浸入したとしよう。この場合には、滯孔溶液による過飽和状態が形成されるが、この状態(過飽和)はすでに述べたように、滯孔溶液の圧よりも大きな圧一周辺岩石の及ぼす圧を克服するには充分でない圧一が発達してこの種溶液から結晶が晶出、沈澱できることを意味する。溶圧自体の下で鉱物類が晶出する孔隙中に浸入する溶液は、そのなかに含まれている全過飽和鉱物を晶出するはずである。したがってこの圧は、浸入溶液の(接触)干渉で成長する鉱物が晶出するので、“結晶作用圧” crystallization pressure と呼ぶのが妥当である。結晶作用圧は、溶液の濃度に左右されるとともに、溶液が任意の組成下では晶出、沈澱する各鉱物に対しても異なるであろう。晶出鉱物の集合体圧が1 鉱物の結晶作用圧を超える場合には、この鉱物は溶解を始めるはずであるが、この場所には、一層高い結晶作用圧をもつ鉱物類の晶出、沈澱が続くであろう。圧は増大し最後に極大結晶作用圧をもつ1 鉱物を残すのみとなる。そのために“開かれた割れ目”(裂罅)の位置には、次のような浸透“自動交代作用”柱が形成される。

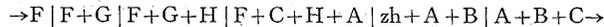


したがってこの場合には初期孔隙は数鉱物の集合体で充填されるが、この集合体は(交代)帯に沿って鉱物数の通減を伴う交代性置換を逐次蒙り、交代帯は、単鉱物岩石に転移する。

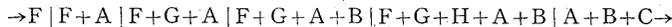
次にこの鉱物類(F, G, H)で過飽和されている溶液が他の2, 3の鉱物類(A, B, C)からなる岩石に作用する場合の過程を検討しよう。溶液が造岩鉱物で著しく飽和されていない場合は、溶解は溶液から析出する鉱物の晶出速度より迅速に進行する。この際には被溶解岩石と被晶出鉱物との間には流体で埋められていた孔隙が生じる。この場合には、上述の溶解柱と沈澱(晶出)柱との結合が起きるのである。



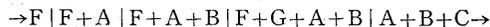
この種過程が起こりうる他の場合をある程度順序だてて、検討するために、原溶液中における被溶解岩石成分の濃度が通増するものとしよう。この場合には被置換岩石に対する原溶液の飽和度は低くなってくる。したがって原岩の溶解は緩和となり、まず第一に一溶液で充填されて全溶解帯の消失が招来される。それとともに、溶解度の比較的低い造岩鉱物が依然として保持されている帯では、溶液の晶出、沈澱が始まる。例えば



岩石の溶解がさらに緩和となると、溶解孔隙は完全に消失する。例えば



孔隙の消失とともに、置換帯における圧の上昇が始まり、最後に例えばH 鉱物の晶出が促進され、溶液は低度であるが、H 鉱物で、過飽和され、一層単純な沈澱(晶出)柱が形成されるにいたる。例えば

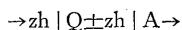


原溶液中の被置換成分の濃度がさらに上昇する場合、すなわち溶液の溶解が緩和となる場合には、溶解柱の圧上昇はG 鉱物の晶出、沈澱を促進し、そのために柱構造はさらに一層単純化される。



上述の諸現象から次のことが考えられる。2次成分が溶液から沈澱する場合には、孔隙への溶液の浸透条件が好ましい状態にあるか、または溶液が可溶性の岩石に出会う場合である。鉱物の形態で沈澱される溶液の2次成分は、次で溶液中で最も過飽和状態にある鉱物で置換されるはずである。このような鉱物としては、“脈状” 鉱物、例えば石英・炭酸塩鉱物類があげられる。この種鉱物は溶液の複雑な2次成分としてしばしば認められる。このような場合、一層可溶性(作用溶液の組成に対して)の岩石からなる置換前面または割れ目の拡大した部分には鉱物の沈澱帯が形成される。この場合、その下部に出現する単鉱物帯は脈状鉱物で置換される。

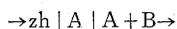
重要な意味をもっているのは次のような場合である。すなわち、造岩鉱物の溶解によつて溶液の濃度変化が起こり、そのために溶液成分の沈澱が誘起される場合である。この場合には溶液成分の化学的相互作用は初期溶液が不飽和状態にあつた溶液の成分でも沈澱を起こさせることができる。例えば、鉱物Aからなる岩石が溶解するとするならば、溶液中のQ成分の溶解度は低下し、溶解前面にQ鉱物の型態で沈澱する。この場合初期の浸透溶液がこのQ成分に対して不飽和状態にあつたとするならば、Q鉱物の沈澱に引続いて、Q鉱物の溶解が始まる。しかし溶解は、沈澱よりも緩和に進行し、次のような帯が形成される。



この場合には、すでにみた諸現象が多様に組合されている。例えば、A鉱物からなる岩石が溶解する際には、溶液成分の化学的相互作用によつてQ、R鉱物の沈澱が起きる（初期溶液がF脈状鉱物で過飽和されているとする）。この場合には浸透交代柱が形成される。



溶液成分の化学的相互作用は、被置換岩石成分で enrich された帯の形成を誘導する。例えば、A、B鉱物からなる岩石が溶解する場合にB鉱物が一層可溶性であると、A溶解前面の進行は、Bの溶解前面のそれよりも遅れる。この場合溶液中のB成分の濃度が上昇し、Aの溶解度が低下すると、Bの溶解前面には、A鉱物で enrich された帯が形成されるはずである。



この時には、B鉱物の溶解でA成分の溶解度の低下が起きるために移動不活性成分Aで富化(enrich)されることを意味している。このような晶出過程図式によれば、被置換岩石の最低移動性成分で enrich されている交代岩石、鉱物が形成される多様な例を解明できる。例えば、進入岩体がアルカリ化および珪化作用を蒙ると黄鉄鉱の型をとる移動鉄で enrich された帯か、絹雲母・紅柱石の型態をとる移動アルミナで enrich された帯かが生成される。

一成分からなるとはすでに考えられない反応鉱物が、交代柱の組成に含まれる一層複雑な場合が存在する。この場合には、特に可変性組成の鉱物が出現し、成分比はある範囲内で変わってくる。この種鉱物類は、浸透性交代分布と拡散交代分布とを識別する可能性が(原則的に)与えられるので特に興味がある。すなわち拡散交代柱には、可変性組成の鉱物は完全に出現するが、浸透性交代柱では、可変性組成の鉱物の大部分は定組成鉱物として誘導される〔交代現象の全発達帯の延長線上に定組成が保持される(1952)〕。この差異は、接触部の浸透交代柱では滯孔溶液成分の濃度に leaping 現象が必ず起きるが、拡散交代柱ではこのような現象がみられないことと相関関係がある。しかしこの問題は充分研究されていない。天然の交代柱における組成の可変性に関する報告は現在僅かである。

主特徴として反応鉱物を含有する浸透交代柱の可能な場合の図式は、上述の主要交代図式の複雑な変種である。

変質帯(浸透性ならびに拡散性)間のきわだつた境界面は、岩石の孔隙がきわめて均一で、かつ微細な場合に存在するはずである。このような場合、すなわち限界面に近づくと、交代現象によつて充分認められるようになる。實際上多くの場合交代作用帯のきわだつた境界面が鏡下でみられる。しかし多くの他の場合には、変質帯の境界面は不均一であつて、置換度の劣る鉱物、岩石の残留部分が一層高度に置換されたもののなかに保存され、被置換岩石の割れ目に交代鉱物が脈状をなして埋めている。この種の現象は被置換岩石の不均一な孔隙率と割れ目の不規則な発達とによるものである。一層珍しい置換例としては、連続交代前面が形成される場合であつて、置換鉱物粒が分散発達をなし、被置換岩石中に集積する。この場合には、まず第一に被置換鉱物中で最も微細な粒あるいは変形粒が置換されるが、一層粗粒なものあるいは均質な鉱物粒は置換を免れるから、表面エネルギーの作用が問題となる(後章参照)。

溶液の交代作用は、特に裂罅および裂罅帯に沿つて容易に進行する。したがつて単鉱物岩石の形成を伴う置換の極限階梯は、脈状塊の形態で裂罅に富む地帯に普通認められるが、岩石

塊の連続置換の型で現われることもある。裂罅帯を上昇する溶液は、岩石を交替的に置換するから、交代性鉍脈 (metasomatic vein) が形成される。

大きく開かれた割れ目が存在する場合には、割れ目を埋められる様式は様々である。上昇溶液からの物質の沈澱は、逐次層 (consecutive layer) をなして割れ目壁に起こり、割れ目が埋められると溶液は他の通路を伝わって上昇する。しかし多くの場合、割れ目が埋められても割れ目に沿う溶液の浸透が続き、逐次沈澱で生成される脈状物質は、溶液の流動作用下で交代作用を蒙り、脈(鉍)の初成充填が起きる。このような鉍脈は“自動交代鉍脈”(autometasomatic)と呼ぶ。交代鉍脈および自動交代鉍脈では、上述型の浸透交代性累帯 (infiltration, metasomatic zoning) が溶液の流動方向に認められるはずである。

熱水鉍脈には、相当の距離にわたって単鉍物類がしばしば存在している。単鉍物鉍脈は、主として石英脈であつて、ときには炭酸塩鉍脈・重晶石鉍脈・螢石鉍脈およびその他の鉍脈がみられる。この種鉍脈の生成は、上昇溶液の温度低下によつて、溶液に溶解していた物質が、“鉍物の逐次発生”の型で沈澱すると普通説明されている。しかし熱水溶液は複雑な組成をもち、様々な岩石中を上昇する際に、様々な成分で飽和されるはずであるから、沈澱によつて生じる鉍物の結晶作用は、共融性質をもち、数種の鉍物が同時沈澱する。したがつて熱水鉍脈の単鉍物性に関する一般の解釈は不十分である。多くの熱水鉍脈にみられる単鉍物性への傾向は、おそらく自動交代作用過程によるものである。上述のように、作用溶液の任意の成分で生じる交代作用の最終産物は単鉍物岩石であるはずである。単鉍物岩石は、裂罅帯の脈状充填物を形成して上昇溶液の主通路に生じるはずである。

原岩にいたるまで鉍脈の走向に沿つて、比較的小規模の置換帯が存在する。この種置換帯は、組成の本質的な変化を伴わない変質作用を蒙っている。すでに述べたように、原岩の置換前面には、溶液の2次成分の沈澱によつて好ましい条件が存在する。このような条件は前面に起きる圧低下か、あるいは溶液の2次成分の溶解度の低下か、いずれかの現象の発生と関係をもっている。このようにして熱水鉍脈の走向に沿つて尖滅する箇所には、鉍物の沈澱帯が生じる。このような鉍化帯の背面には、脈状鉍物の置換が生じるはずである。この種現象は、現実に出会すがその研究は始まつたばかりである。

しかし単純な交代累帯以外に鉍脈中ではもちろん、温度の変化と溶液の組成と関係のあるほかの種類の現象も認められる。特に鉍物の沈澱は、単鉍物帯の脈状鉍物中に割れ目に沿つてしばしば起こり、溶液の温度または組成の変化を明らかに示している。

もちろん、すべての単鉍物鉍脈が自動交代作用で生じるものではない。鉍脈が単鉍物で埋められるのは、ある場合(鉍物溶液) 膠状溶液からの単純沈澱か、あるいは側壁と溶液との反応かいずれかによつて生じる。この種の鉍脈にはあらゆる場合を通じて方解石脈・霏石脈・石膏脈および風化侵蝕帯(皮殻)にみられる他種鉍脈が属する。

次に溶液の浸入方向に温度および圧が通減して行われる交代作用をみよう。

初期の溶液柱は岩石と平衡状態にあるとしよう。この場合には、岩石と溶液との間には相互作用が働かない。しかし浸透によつて溶液の冷却と圧低下が進行するに従つて、1 鉍物の溶解度は通減し、他鉍物の溶解度は通増する。そのために溶液柱の延長上では、変質岩石中の、鉍物の含有量は他の鉍物の負担で(媒介)通増する。例えば花崗岩塊の縁端部では、後火山期の自動交代作用によつて石英含有量の通増—接触部に向かつて増大—が花崗岩の他の鉍物成分の媒介で起きる。

溶液が岩石中に貫入(非平衡状態)するならば、温度勾配が生じるので、2 交代作用過程の成立が考えられる。岩石と溶液との反応は、等温性交代(作用)柱 (isothermal metasomatic column) で述べたように、各帯間に sharp な界面をもつ数変成帯の生成を招来する。しかし温度勾配が存在するので、この種の交代変成帯の成長は不均等に行われる。それと同時に各帯の延長上では、温度勾配によつて生じる鉍物の量的比の潜在変化 (potential change) が現

われ始める。

“接触浸出”現象の記載中で出会う一層複雑な場合を検討しよう。かりに上昇溶液がA, B 鉱物からなる均一な原岩中を浸入したとしよう。たゞし著しい温度勾配条件下で、温度が定常（静止）分布を示すものとする。この場合温度が低下すると次のように溶液の性質が変わるであろう。すなわち溶液が交代作用柱の下半部に浸透するに従って、鉱物Bの溶解度は上昇するが、A 鉱物は減少する。この場合柱の下半部の延長線上の岩石は、溶液の浸透するに従ってB 鉱物を媒介（溶解）としてA 鉱物で緩徐に enrich されてゆく。反対に、柱（交代作用）の上半部の延長線上の岩石はA 媒介としてB で enrich されるであろう。いま原岩中におけるA, B 鉱物の含有量が相当高い場合には、柱の下半部には、溶液の緩浸透によつて1 鉱物A からなる変成帯が生じ、柱の上半部には、1 鉱物B からなる単鉱物岩帯が形成される。このような“交代分化”metasomatic differentiation の特性は、後述のように、高度の接触浸出現象が現われる場合にみられることがある。

## 6. 河 過 効 果

貫入岩体の周辺に形成されている鉱体の帯状分布に関する問題と、初成累帯の生成問題とを研究すると次のような考え方に到達する。すなわち異なる物質には異なる移動速度をもつ物質が天水の循環によつて拡散移動—全移動でなく—を起す。天水の循環は、緊密な割れ目 (tight fissure), 主として岩石の孔隙を通つて行われるので、溶液の部分運動は連続抑制を受け、停止する。しかしこのような現象は物質によつて異なる型で現われる (Korzhinskii 1942)。

その後 Mackany は、類似の考え方を明瞭な型で発展させた。Mackany は次のように主張している。上昇溶液が低浸透性岩石中を浸透すると、溶液の鉱物成分は抑制され、roof 状低透過岩石下に鉱物の型で沈澱する。Mackany によれば、この種の“垂河過作用”は鉱石沈澱の唯一の原因である。溶液が上昇の際に、低河過性岩石層の形態で存在する一層緻密な“障害 dam”を逐次克服してゆくとするならば、下部“dam”には捕捉 (Restrained) され易い鉱物（錫・銅）が沈澱するが、上部の一層緻密な dam 状地層には、難捕捉性鉱物（鉛・水銀）が沈澱する。Mackany は、どのような実験データによるかは引用されていないが、鉱石が roof 状低透過性岩石、すなわち頁岩下に沈澱しているきわめて興味ある鉱床例をあげている。

著者は当時 (1947年) 河過効果に関する実験データを検討し、このデータに基づいて微分方程式を誘導した。この方程式によれば、地質過程で起きる河過効果の出現確率を推定できる。

最近までは、河過効果は、コロイド物質中を浸透する無機溶液の河過現象について観察されていたにすぎなかつた（有機物フィルター）。逆に有機物質を含む溶液が無機物フィルターで河過される場合がある。B. Ershler (モスコ) は、実験的に次の事実を確認している。フィルターを流れる溶解物質の素量  $m_2$  は初期溶液濃度  $C_a$  と浸透溶液の容量  $v$ 、浸透効果係数と名付けているある係数との積で表わすことができる。 $(dm_a = \phi_a \cdot C_a \cdot d_v)$ 、係数  $\phi$  は、物質—溶液の浸透容積内の初期溶解産物—のどの部分が溶媒とともにフィルター中を流れるかを示している。与えられた成分  $a$  が河過効果を欠く場合には、係数  $\phi_a = 1$  となるが、フィルターが溶液の与えられた成分  $a$  に対して完全に不浸透性である場合には  $\phi_a = 0$  となる。 $\phi_a$  係数は、フィルターの種類と密度とに左右される。したがって係数  $\phi_a$  は、溶媒の平均部分運動速度に対するフィルター内における与えられた成分の平均部分移動速度の比に等しいといえるであろう。

晶出岩漿から派出する後火山作用期の熱水溶液の流れは、天盤の岩石層または裂罅を伝わつて浸透することが考えられる。浸入によつて溶解される物質は、溶媒よりも緩徐に上昇するから、溶液流頭は、難河過性成分をすべて奪うであろう。溶液の量が制限され、そのうえ、この種の冷却岩漿から派出した溶液の流動がある瞬間停止するならば停止溶液は上昇流の背面に残る。しかしこの種溶液も続いて上昇し、乾涸化石岩が跡に残るであろう。乾涸化石岩の孔隙には、

溶液が溶媒より緩徐に浸透するために、溶液成分の一部が残存しているであろう。この状態は砂州に波痕を残す磯波の運動に似ている。この場合浸透通路の岩石の孔隙率が不変であるとすれば、その背面の流れの濃度も不変であるであろう。したがって難洩過性の溶液成分が、後火山作用期の溶液の源泉となる岩漿溜の周辺に分散抑制性接触変成帯 (restrained aureol) を形成することは明らかである。このような溶液の分散抑制運動で生じる接触変成帯の範囲内では、難洩過性成分はことごとく捕捉されるであろう (たゞし溶液が完全に開かれた割れ目を伝わって上昇しないものとする)。しかし成分が分散接触変質帯の(存在)範囲内に濃縮沈澱するためには、もちろんさらに補足的な原因が必要である。花崗岩の貫入体の周囲に錫・タングステン・リチウム・モリブデンの小規模の分散接触変質帯が常に形成されているのは、たとえ変形された型をとつていても岩石に対するこの種溶存元素と溶液との緩洩過作用で説明できるであろう。

溶液の流れが与えられた岩石累系中を相当期間にわたって浸透するならば、最後にはすべての溶存成分もまたこの岩石類中を浸透することができるであろう。この流れは“緩流動”流あるいは“定常”流にあたるであろう。緩流動流では、対応の流れ断面の洩過効果係数  $\phi_i$  と濃度  $C_i$ — $i$  は成分を現わす—との積とは、全流に対して一定となるはずである ( $\phi_i \cdot C_i = \text{一定}$ , Korzhinskii 1947)。これは、緻密な岩石の滯孔溶液中では、 $i$  成分の  $\phi_i$  がかりに 0.2 まで減少し与えられた成分濃度は、洩過効果 ( $\phi_i = 1$ ) を与えない粗粒岩石中を流れる溶液の 5 倍以上になるはずである。

溶液はこのような濃度の上昇で過飽和状態となると仮定するならば、鉱物の位置晶出(結晶化)圧 (potential crystallization pressure) — $i$  成分からなる—は、溶圧を超えるであろう。いま成分濃度が著しく高まり、対応鉱物の(保有)位置圧が岩石の位置圧を超えると、1 鉱物が溶液から沈澱を始め、比較的低い晶出圧をもつ鉱物の交代や置換が起きる。鉱物の沈澱は、 $\phi_1$  係数値の低下域、すなわち孔隙率値が減少を示す地域——層微細な孔隙をもつ地層へ移動した場合——に生じる。

以上の点からみると、鉱液通路が狭まるか、あるいは溶液が低透過性地層中を浸透することが鉱石の濃縮沈澱を起こす原因となることは明らかである。

地質学における洩過効果の潜在的役割を考えるためには、実溶液が岩石を浸透する場合の洩過係数値を実験的に決定することが必要である。最初のこのような研究は、0.002 mm の粒径をもつ石英砂中を浸透する種々物質の溶液の洩過現象について行われた (I. N. Ovchinnikova, V. G. Maksenkova 1949)。この実験データによれば、銅・鉄・マンガン・コバルト・ニッケルの塩化物および硫酸塩溶液の  $\phi$  値は、0.4~0.6 の間にあつて、洩過効果はきわめて高いことを示している。

現在、洩過効果が他の鉱石沈澱要因系中でのどのような位置を占めているかについては知られていない。このような評価を行うには、なお特殊の地質学的、研究室的研究が必要である。しかしあらゆる場合を通じて交代作用過程における洩過効果の実際的意味については疑問の余地がない。

### 7. 浸透交代作用による成分の相対的移動性について

定組成の鉱物からなる浸透交代作用柱にあつては主方程式系は次のようである。

$$\frac{x}{v} = \varphi_a \frac{\Delta C_a}{\Delta a} = \varphi_b \frac{\Delta C_b}{\Delta b} = \dots \dots \varphi_k \frac{\Delta C_k}{\Delta k}$$

$x$  : 交代柱の発生点から溶液の流れの方向における対象断面の距離を表わす (浸透溶液の容量)

$\varphi_a - \varphi_k$  : 成分  $a \dots \dots k$  の洩過係数

$\Delta C_a = C_a^{II} - C_a^I$  : 対象断面の両側に隣接する岩石の滯孔溶液中の  $a$  成分の濃度差

$\Delta C_b \dots \dots \Delta C_k$  :  $b \dots \dots k$  成分の濃度差

(溶媒としての水の  $a \cdots k$  成分数中には含まれない)

$\Delta a \cdots \Delta k$  : 対象断面の両側に隣接する岩石の単位容積内の成分含有量の対応差

厳密に言えば、この主方程式系は次のような明白な事実を現わしている。すなわち岩石中の成分含有量が変化すると成分が溶液から沈澱するかあるいは成分が溶液に溶解するからなんらかの置換が起きる場合には、各成分含有量の変化は、溶液濃度の対応変化を伴うはずである。

成分の移動性に関する考え方を明らかにするために、浸透柱の最も単純な例をみてみよう。いま共通成分をもたない3鉱物A, B, Cからなる岩石に、各3鉱物で飽和されていない溶液一岩石を浸透するものとする一が作用するとするならば、作用の最終産物として岩石の完全溶解が起こり、1溶液で満された帯が形成される(溶液は上述のようにzhで示す)。溶解は、異なる鉱物に対して異なる溶解速度で行われるから、次のような溶解柱型が形成される。

$$\begin{array}{c|c|c|c} \text{IV} & \text{III} & \text{II} & \text{I} \\ \hline -zh & zh+A & zh+A+B & A+B+C \end{array} \rightarrow$$

1帯では、すべての3成分  $a, b, c$  は、不活性となる。これは、この種の相関関係が岩石の初成成分によるばかりか、滯孔溶液の濃度が飽和水準を持続し、独立に変わらないからである。II帯では、鉱物C成分濃度は溶解によつて、与えられた作用溶液に固有な  $C_{cc}$  準位に沈降する。すなわちII帯におけるC成分は、溶液中の濃度が外的条件で決定されるから、完全移動を始める。III帯では、 $b$  成分も完全移動を始めるが、IVでは3成分がすべて完全移動を起こす。完全移動状態への移行は同時的に行われないから、成分が完全移動状態への移行が行われる過程に一逐次移動から示唆される一によつて成分の相対的移動性を語る事ができる。すなわち溶解柱では、 $c$  成分は  $b$  成分より、 $b$  成分は  $a$  成分より、それぞれ一層移動性であるから、 $a$  は最も不活性であるといえよう。

2成分中一層移動性のものは、濃度変化を伴う反応一この場合には対応鉱物の溶解をさす一で一層迅速に拡散するもの、すなわちの  $x/v$  値の大きなものに該当するであろう。主方程式を誘導すると、この現象が速度で左右されることを示している。すなわちA鉱物の溶解前面では、次のようになる。

$$\left(\frac{x}{v}\right)_A = \varphi_a \frac{C_a^H - C_a^0}{a_1} = \varphi_b \frac{0}{0} = \varphi_c \frac{0}{0}$$

ここで  $C_a^H$  は、A鉱物に対して飽和されている溶液中の  $a$  成分濃度を示す。 $C_a^0$ —作用溶液の  $a$  濃度、 $a_1$  は溶解によつて起きる含有量の変化に等しい(原岩の単位容積内の)  $a$  成分含有量、これは  $a$  成分が溶解される場合には  $a$  成分がA鉱物組成にのみはいるからである。A鉱物の溶解前面における他成分の含有量および濃度の変化は零に等しい。これは各鉱物が1成分だけを含むという仮定から必然的に誘導される。B鉱物の溶解前面に対応する方程式は次のようである。

$$\left(\frac{x}{v}\right)_B = \varphi_b \frac{C_b^H - C_b^0}{b_1}$$

この式を比較すると、与えられた溶液中で溶解度が高く、岩石中の含有量が低いが、対応成分の  $\varphi$  係数が高い鉱物が一層迅速に溶解することを示している。この場合には、迅速に溶解される鉱物を構成する成分が一層移動し易い。

さらに複雑な浸透性交代作用は類推によつて解明できるであろう。滯孔溶液の濃度準位までの作用溶液の濃度変化は、溶液と岩石との反応を媒介として行われる。一層移動度の高い成分とは、原岩の滯孔溶液中の(成分)濃度と作用溶液中の濃度との差異が大きいが、岩石中の含有量の必要変化(濃度変化に対して)が低度の成分である。もちろん、成分の相対的移動度は、成分の透過効果差に左右される。

様々な内因的交代作用現象の研究によると、岩石の原組成は多くの場合、交代作用に基づく成分の移動度の順序に決定的な影響を及ぼし、特に移動度の近接している成分の移動度系列における配列位置を変えることがある。それとともに少なくとも与えられた温度過程または型に

対しては、相対的移動度系列における成分のある種の標式的あるいは規準的な順序(配列)を明らかにすることが可能である。例えばアルカリ金属は、アルミナおよびチタンより常に移動し易い。したがって固有の反応階梯における移動度は与えられた条件下の成分自体の性質、すなわち天然の溶液における成分の溶解度に左右されることになる。溶解度、すなわち溶液の限界濃度は様々な交代作用過程で起こりうる溶液の濃度差の次数で決定される。溶液に溶存する各種の成分の溶解度は1千倍も異なるが、同一成分に対する岩石の含有量とその透過効果の値は比較にならないほど狭い範囲で普通変わる。したがって溶解度が移動度に及ぼす影響は特に顕著であるはずである。溶解度は、溶液の温度、溶圧および酸性度で左右されるから、種々の後火山作用過程階梯における成分の相対的移動度は深度によつて異なつてくるはずである。

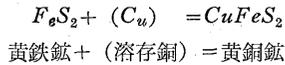
単一成分の鉱物からなる岩石の上述の最も単純な溶解例では、一成分の完全移動状態への移行(1鉱物の溶解を媒介とする)は、溶液の濃度変化もまた他成分の(岩石)含有量の変化も伴わない。しかし鉱物が共通の成分を含んでいる場合には、その1成分が完全移動状態へ移行するとその成分の濃度変化が起きるから、質量作用の法則によつて、溶存する不活性成分の濃度変化が起こり、造岩鉱物の所与の成分と結合するようになる。實際上、質量作用の法則によれば、溶液中の鉱物成分の溶解度積は一定であるはずである。したがって鉱物中の一成分の濃度変化は他の成分の濃度変化を導く。しかし不活性成分の濃度が2帯の接触部で変化する度ごとに、質量作用の法則によつて、岩石中におけるその成分の含有量も変わつてくる。したがって不活性成分の濃度変化の他の原因が存在する。上述の単純な岩石溶解例では、全岩石帯の圧は同一で、かつ溶圧に等しかつた。しかし溶蝕空隙を欠く普通の場合には、交代作用柱の様々な帯にかゝる分圧は異なるであろう。したがって様々な帯における同一鉱物の溶解度も異なるであろう。これから次の現象が考えられる。すなわち溶解かあるいは沈澱を伴う一成分の全移動状態への移行は、すべての他成分の滯孔溶液の濃度変化を誘導するが、所与の成分との結合は生じない。したがって個々の置換反応の一般的な場合には、すでに述べたように、成分のみが、全移動状態に移行し、それに伴つてすべての他成分(そのなかには不活性状態を保持するものを含む)の(岩石)含有量も変化する。

しかしすべての成分の含有量が置換によつて変わるとするならば、当然次の問題が起こつてくる。すなわち不活性成分と全移動性とを区別することがはたして可能であるか、あるいは区別することが必要であるが、たしかに各置換反応では成分の挙動対比が必要である。各置換前面に生じる主“能動”(active)反応は、一成分濃度の変化反応であつて、この濃度は作用溶液の濃度に近づく。岩石中におけるこの成分の含有量変化は、きわめて大きく、この成分の他成分(他鉱物)による置換によつて造岩鉱物の一つは完全に消失し、一般には岩石の鉱物組成が質的变化が生ずる。成分の含有量および濃度のこの種の“能動的”変化—完全移動状態に移行するために起きる—は、他成分の含有量および濃度の“受動的”変化を伴う。しかしこゝでは含有量の変化は普通驚くべきほど僅かであつて、岩石類の鉱物組成に質的变化を引き起こすには常に不充分である。例えばカリ濃度の高くない溶液がカリ長石に作用すると、カリ長石は、石英を含む絹雲母で置き換えられ、カリは運び去られる。すなわち滯孔溶液のカリ濃度の低下一カリが岩石から運び去られるために生じる—は、置換の原因となり、カリ長石の完全消失を招来する。珪酸およびアルミナの含有量は同時に変化するが、この変化は、規則通りに、僅かであつて、上述の置換では、なんらかの鉱物も消失するにいたらない(原岩中)。珪酸およびアルミナの初成含有量の局所差は、完全絹雲母化作用帯の岩石に反映されている。このようにして珪酸およびアルミナはこゝでは不活性挙動を保持し、これら成分の溶液濃度および岩石含有量の変化は、受動的に行われ、その変化は、たゞカリが能動的に運び出される結果として出現する。

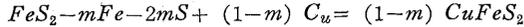
さらに一般の化学量論式の交代作用性反応の適用問題を検討しよう。文献には、このような式は、容積保存の立場から交代作用反応を正確に現わすことができないとしばしば述べられて

## 資 料

いる。例えば黄銅鉱による黄鉄鉱の置換反応をみると次のようである。



この場合鉄は不活性成分であるが、 $S$  と  $Cu$  は完全移動成分である。いま黄鉄鉱の鉄が岩石中に黄銅鉱の型で完全に残るならば、この式には、異論がないであろう。しかし最初には黄鉄鉱からなっている岩石の容積部分が結果として著しく増大することになる。この置換反応は一層複雑な形態で現わすことができる。



係数  $m$  は、置換の際鉱物の容積が変わらないか、あるいは任意の型で変わるために選ぶ。D. P. Grigorev (1948) は、容積保存の場合に対応する係数でこの反応を記載することを提案し、対応係数を次のように計算している ( $9FeS_2 + 5Cu - 4Fe - 8S = 5CuFeS_2$ )。しかし問題となる点は、このような記載に必要な係数の正確な数値は虚数(有限数で表わすことができない)であつて、温度、分圧および鉱物の孔隙率とともに変化するため、このような(反応)式は当然近似的である点である。このような(容積)式に対するおもな反対論は、交代作用が行われる場合には、岩石の総容積は一定で変わらないが、個々の鉱物が占める箇所の容積は変わる点である。したがつて黄鉄鉱の容積は、原岩の黄鉄鉱の容積であらかじめ決定できない。しかし黄鉄鉱中の鉄が、被置換岩石中に黄銅鉱の型で残存するときには、ある他の鉱物、例えば石英が同時溶解するので岩石の総容積は一定状態を保つものと考えられるであろう。もちろんこれ以外に一層複雑な相関関係が存在することがありうる。このようにして Grigorev の提案した係数は、単鉱物質の含黄鉄鉱岩石が置換される場合にだけ近似的にあてはまる。

交代作用反応の化学式を作成するためには、どの成分が不活性に転移するか、またどの成分が移動性に転移するかを明らかにすることが必要である。置換の際には、不活性成分は主として造岩鉱物の組成中に残存する。したがつて反応方程式の両側では、不活性成分は固相のみが式の構成中にはいることになる。すなわち方程式の左側にくる鉱物中の各不活性成分含有量は、式の右側鉱物の成分含有量と等しくなるはずである。このような交代反応の化学式では、この式で与えられる原鉱物と生成鉱物との量的相関関係が正確なものではないが、置換反応の正しい質的、鉱物学的特性が求められる。このような普通化学量論式は不活性成分と完全移動成分との差異を現わすとともに、所与の反応が溶液の濃度にどのように左右されるかを明確に示しているのが特に重要である。例えば、質量作用の法則を適用すると、 $FeS_2 + (Cu) = CuFeS_2$ 式から、この置換反応の平衡が溶存  $Cu$  の能動度活動度に依存するばかりか、 $S$  または  $Fe$  の能動度にも左右されることが直ちに理解される。しかし Grigorev の一層複雑な方程式からは、次のような誤まつた結論がでてくる。すなわち黄鉄鉱が存在するので定温度の下では溶液中の  $(Fe + S_2)$  原子団が変化できないから、この場合不可能であるような溶存  $S$  と  $Fe$  との“能動度”(活動度)の影響が平衡に出現することになる。

成長、拡大帯の生成を伴う交代累帯では、その帯のある部分の各成分は完全移動を起こすが、残余の成分は不活性を示す。このような累帯現象は浸透性ならびに拡散性の全交代作用過程の特徴的な容相である。この現象は、各交代作用帯では成分の移動度が量的ばかりでなく、質的にも異なり、一成分が不活性挙動の場合に他成分が完全移動性挙動を示す意味において、交代作用下での成分の“差動移動度”を示している(変成、交代作用の下での成分の差動移動法則)。

岩石の所与の置換で起きる交代作用帯の逐次配列性を研究するならば、元素および酸化物は成分が不活性度から移動度へ、極小移動から極大移動へ転移する順序によつて配列することが可能となる。このような順列は、所与の交代作用の下での成分の“相対的移動度の順列”と名づけることができるであろう。

この順列における成分の逐次性は、被置換岩石の組成、作用過程の温度および深度、溶液の

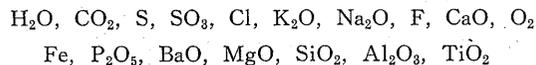
組成でいくらか変わる。しかし少なくとも、移動度にみられるある種の相関関係が、それ自体多様な内因的交代作用過程に標式的なものであることは明らかである。すなわち常に極大移動度を示すものは、水および炭酸であつて、あらゆる交代作用過程を通じて完全移動する。そのうえ水および炭酸の能動(活動)度は、原岩の組成にほとんど左右されないが、温度で決定される。そのほかに炭酸の能動度は、深度が増すと急激に上昇する。

次移動団は、8硫黄、3酸化硫黄、塩素、酸化カリウムとナトリウムである。これらの成分類は、多くの場合交代作用現象の出現下で全移動を起こす。さらに次移動度団は酸素・カルシウム・マグネシウム・鉄・珪素である。これらの成分類は、強度の交代作用過程の下でだけ全移動を起こす。そのうえこの移動度団の相対的移動度は、被置換岩石の温度、賦存深度および組成によつて著しく異なる。例えば、珪素およびカルシウムの移動度は、温度の低下に伴なつて著しく高まる。

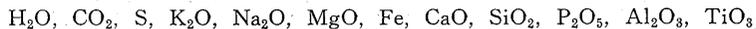
深度は、カルシウムの移動度を促進させる。石灰岩がスカン化作用を蒙ると、マグネシウムはカルシウムより移動し易いが、白雲石および超塩基性岩石がスカン化されるとマグネシウムはカルシウムより不活性となる(後章参照)。

全交代作用過程を通じて極小移動度を示すものは、磷・アルミニウムおよび特にチタンである。しかし最も強度に交代作用を蒙っている地帯では、例えば岩石が完全珪化作用を蒙っている場合にはこの種成分もまた移動性に転移する。したがつてこの種成分の不活性を述べる際にはこのような現象を除外できない。しかしアルミニウムおよびチタンの移動帯では、規則通りにあらゆる他の成分類も移動性を示している。

極大溶性岩石型が置換される場合に限るならば、交代作用過程の類似型の成分移動度の順位は一層近似している。例えばすべての金雲母質鉱体および原生代の花崗岩・花崗片麻岩地帯の白雲岩の接触部でみられる他の交代作用産物は成分の次のような移動度順位をよく保持している。



石灰質スカン帯および一般に種々の地層が蒙つた高温性およびいくぶん中温度性の交代作用過程では、普通次のような移動度順位を保持している。この順位は中部ウラルの Turinskii 銅鉱山の交代作用産物について確かめられたものである。



低温性交代作用過程では、相対的移動度順位は、Turi 河の鉱山地帯の低温性交代作用過程で識別された順位と普通類似している。



拡散交代作用の下での成分の移動度の逐次(配列性)性と浸透交代作用の移動度の逐次性は見掛上では相違していない。

## 8. 拡散性交代累帯

ある場合には、交代作用による成分の移動は、滯孔溶液による成分の拡散を媒介としておもに行われる。この場合には拡散性交代累帯の発達が始まるが、その(移動)特性の順位に関しては、浸透交代作用と近似している。

拡散交代作用の平衡因子は、温度、岩石の容積、滯孔溶液圧(溶圧)、不活性(所与の置換の際に生じる)成分と全移動成分の能動度(活動度)である。浸透交代作用と異なつて、全移動成分は、溶液の実濃度には左右されるが、溶液濃度の能動度、すなわち化学ポテンシャルには無関係である。浸透性交代作用のように、強度の拡散性交代作用の下では、岩石容積は、普通不変であるが、単位あたりの同時生成鉱物数は、不活性成分数を超えている。

Fick の法則によれば、ある断面を横切る拡散通路を利用して浸透する成分量は、移動方向

に起きるこの成分の濃度（一層正確に言えば活動度の勾配）勾配，すなわち単位距離の濃度低下に比例する。滯孔溶液からの物質の沈澱は，濃度勾配の急変化すなわち濃度低下率の減少と関係をもっているから，溶解は，濃度低下率の増大と関係がある。したがって拡散性交代作用によつて岩石から運び出される成分類は，減少側では滯孔溶液濃度の連続低下を起こすが，被置換岩石側では附加（成分）現象が生じる。

拡散性交代作用性ならびに浸透性交代作用では，明確な境界帯をもつ反応柱が生じ，一層強度の置換帯—作用溶液の任意の組成に対する最終置換産物を現わす一にいたるまで単鉱物へ移行する場合には，不活性成分数と同時生成鉱物数との通減を伴なっている。近接帯は，置換が鉱物の量的比の変化に限られていないから，質的鉱物組成で区別できるはずである。拡散性交代（作用）累帯と浸透性交代累帯との差異は，交代，反応柱に交番（alternating）組成の鉱物が存在しているので明らかである。すなわち拡散性交代作用柱の延長上では，各成分の化学ポテンシャルが連続的に変化するが，各接触帯の浸透置換（交代作用）柱では成分の化学ポテンシャルの“跳躍”すなわち変化の中断が起きることが問題である。したがって浸透柱では，鉱物組成の交番（可変性）性は著しく限られ，ときに欠く場合があるが，拡散柱では，鉱物組成の可変性は，完全に現われるので，この2型の交代作用柱を識別することが原則的に可能となる。

拡散性交代作用の最も単純な場合は，縁裂罅性交代作用または縁脈性交代作用である。この場合には，一定組成の溶液が裂罅に沿つて上昇して生成されるが，側壁の変化は，溶液—滯孔溶液—および岩石の成分の向拡散（counterdiffusion）流を媒介として行われる。この場合には，裂罅を縁取る顕著な限界交代作用の境界帯が生じ，内帯と外帯との置換が通増的に現われる。この場合は著者の初期の論文の一つに述べられている。遺憾なことには，この論文では岩石容積でなく，外圧を平衡因子としてあげた。しかしこの種因子と結び付けて，鉱物沈澱形成の可能性を考えなかつた。その後，交代（作用）累帯の拡散方程式を導入した（Korzhinskii 1952）。

火成岩体の接触部には岩石の（縁火成岩的）拡散交代作用の可能性がある。Fersman は岩石および岩漿の成分の向拡散を伴うこの種の交代作用を重視し，ペグマタイトと関係をもつ Iznrud 鉱体（円錐状）と他の鉱体の生成をこの現象で説明している。

最後に岩石が接触反応するのに適する拡散相互作用が大きな意義をもっている。しかし一般に交代作用がきわめて強度であつて，結晶片岩および片麻岩の生成を導く深所岩石累系の条件下でも，岩石の拡散相互作用は，一般に低いが，出現し，その反応帯の幅は数mm程度である。上昇溶液の循環帯では岩石の相互作用は大規模に発達し，反応帯の幅は1mに及ぶことがある。しかしこの種の相互作用には上昇溶液への一層移動し易い成分類が常に干与している。このような置換は，あたかも2重交代作用のように2岩石の共役置換（conjugated substitution）が生じるので，2重交代作用と呼ぶことができるであろう。

与えられた各地域で2重交代作用が生じるときには，上昇溶液で迅速に搬出，搬入される成分類は，全移動を起こす。たゞしこの場合には2相互作用岩石の滯孔溶液中の移動成分の濃度は同一であるとする。2岩石の滯孔溶液の難移動性成分の濃度は異なるはずである。2重交代作用では，2接触岩石の滯孔溶液中の難移動成分の濃度（一層正確に言えば化学ポテンシャルまたは活動度）に拡散補償現象が起り拡散交代作用帯が発生し，成長するようになる。そのよう置換反応には溶液の全移動成分が干与する。2重交代作用過程の一層詳しい特性については，共成組成図表を述べるさいに明らかにする。

拡散性ならびに浸透性交代作用過程の特徴的な特性は，多数の交代作用柱が同時的に存在し，その帯は脊面帯が前面（交代作用）帯に近接して成長する点である。したがって，交代岩石が他の岩石で置き換わることは，2つの時間的には異なる独立の交代作用過程の出現を立証するものと考えられるから，交代作用過程は上述の特性を基にして留意する必要がある。このような現象は，特定の場合にはきわめて明確に現われる。しかし1交代作用過程では，交代累帯の

形成が避け得られないから、反応(交代作用)帯が同時に存在し、成長して他帯による置換系列帯が形成されるのが交代作用の本来の姿である。

#### 9. 交代作用で生じる表面エネルギーと粒度の影響について

一般に固体のような結晶の表面層または流体の表面は、それ自体運動状態にあつて、大きい運動エネルギーをもっている。したがつて結晶集合体内の結晶粒の表面積が縮小一粒の円球度が増す一すると、エネルギーの一部が放出され、結晶粒は自発的に運動を行う。固体または流体の表面面積ができるだけ小さくなる傾向は“表面張力”の存在で出現する。表面張力が働くと、外圧(物質はその圧の下にある)が高まり、所与の物質成分の化学的ポテンシャルが増大する。表面張力で生じる附加圧は、粒径の減少に伴つて迅速に上昇する。したがつて細粒物質は同一鉱物集合体における粗粒物質よりも一層大きい外圧の下にある。大きい外圧の影響を蒙っている細粒は、高い溶解度をもっている。したがつて平均値の鉱物粒に関して飽和されている滯孔溶液は、一層細粒の鉱物(成分)粒に対して不飽和状態に、最も粗粒の鉱物粒に関しては過飽和状態になるであろう。このような現象を利用すれば、交代作用によると“捕集性、再結晶作用”(collecting recrystallizing crystallization)現象が明らかになる。すなわち一層粗粒の鉱物粒は、同一鉱物中の最小粒の同時溶解を媒介として成長し、粒径は一般的に大きくなる。

交代作用を蒙つた岩石の特性は、標準変成作用および火成作用を蒙つたものと較べて、粗粒鉱物が岩石中にしばしば形成され、ときには巨結晶に発達する点である。この現象は次の事実を考えればある程度明らかになる。すなわち交代作用の下では岩石類は“標準”変成作用の場合に較べて滯孔溶液で著しく飽和されているが、後火成活動源の溶液の粘性度は岩漿の粘性度より低く、捕集性再結晶作用に必要な成分の拡散を促進するからである。しかし、この場合には、交代作用に基づく結晶体の成長と再結晶作用とは、滯孔溶液が低濃度の特異な条件下で行われるから特殊な環境が重要性をもっている。

例えば灰鉄輝石質スカルン帯は、石灰岩にSiとFeとの添加が溶液の緩拡散運動で増加して形成されたものである。この場合には、石灰岩は置換されて、灰鉄輝石の柱面が成長し放射線束状連晶が生成される。すなわちSiと鉄の酸化物は、滯孔溶液によつて、石灰岩の置換前面の連晶体(灰鉄輝石)に向かつて拡散し、そこでは灰鉄輝石の柱面の附着、成長は成分の極小濃度で起こり、微細結晶体の出現と一定水準での拡散附加の維持が排除される。

しかし特異な巨結晶の成長は対位条件下でしばしば頻繁に行われる。対位条件すなわち溶解と所要鉱物成分の附加との条件下では、浸透交代作用ならびに拡散交代作用が可能である。所与の鉱物細粒は、溶液の鉱物成分濃度の低下に伴つて溶解を始め、細粒の溶解は、溶液濃度の低下を遅くらす。平均粒径の鉱物成分粒で飽和された溶液は、同時に、巨結晶および最高度に発達した結晶体でさらに過飽和される。しかし所与鉱物の全般減量、すなわち溶液濃度の全般低下が生じるにもかかわらず、結晶の成長が持続される。

極大巨結晶類は、このようにして所与鉱物の全般溶解条件下で生成される(Korzinskii 1950)。

溶解と置換とを蒙る巨鉱物結晶の生成は、この種の作用過程が所与の鉱物の安定温度限界で進行するほとんどあらゆる場合を通じて行われる。したがつて所与の鉱物に関して飽和状態であつても、溶液は、鉱物の再結晶作用を生ずることができないで、鉱物の分解、例えば水和、炭酸化作用を誘起する場合は例外として出現する。この場合を除くと置換は、被置換鉱物粒の巨大化を普通伴う。例えば石灰岩が移行帯で珪化または鉍化作用を蒙ると特有の方解石巨粒が形成される。鉍床地帯および鉍脈のwall rockには被置換鉱物の特有な巨結晶類が出現している。ペグマタイトおよび高温石英鉍脈の珪化帯の接触部には、長石および白雲母のこのような巨結晶が発達している。交代性高温石英・方解石脈およびスカルンの晶洞はザクロ石の巨結

晶の皮殻で縁取られている。置換前面に働いた巨結晶化作用で生じたこの種皮殻は、きわめてしばしば認められ、交代累帯の出現の一形式となつている。被置換鉱物粒の巨粒化の興味ある例は、ウラルの Bragodat 山産の“球顆状”鉍石である。球顆状鉍石は、閃長斑岩を磁鉄鉍が置換して生成されている。磁鉄鉍質鉍石中にみられる閃長斑岩の残存部分はその内部では中粒質であるが磁鉄鉍と閃長斑岩との接触部にはカリ長石の巨結晶縁で囲繞されている。最も大きな巨結晶は、カリ長石であつて、単結晶を形成して、閃長斑岩を置換した磁鉄鉍の密集体中に散在している。この種巨結晶は一般に自形をなすが、その結晶面には所々に溶蝕現象と磁鉄鉍が置換した跡とが認められる。この種結晶の成長と置換、この種物質の沈澱と溶解とは、長石質物質を磁鉄鉍が盛んに置換した際に同時的に行われたものである。

岩石中にみられる種々の溶解空隙類は、側壁の組成中に含まれていると同一鉍物のみごとな結晶類の晶洞皮膜で縁取られている。この種空隙には、ミアロリイテック空隙、変成岩(結晶片岩)のアルプス型鉍脈、水晶鉍脈および石英脈の凹所などがあげられる。このような箇所では、空隙の形成を伴う溶解が始まり、次でその空隙壁に晶洞皮膜の結晶の沈澱が起こつたことが考えられる。しかし多くのデータは、側壁の溶解と晶洞結晶の成長との同時性を物語っている。例えば、アルプス型鉍脈と水晶の凹所との記載には、結晶が空隙壁および天井から抜落ち、次で碎屑結晶が落下後成長を持續し、その結果結晶類が全面発達をした例が多数みられる。この種の結晶類の習癖は晶洞皮膜の結晶の成長の下で空隙壁が溶蝕され、そのために造構造運動が干渉しないで結晶類が空隙壁からもぎ取られたことで説明するのが妥当であろう。側壁の全般溶解で遊離した緑泥石、絹雲母およびその他の難溶性鉍物の鱗片状結晶が石英の結晶面上に(一定の方向に)散点、配列しているのは、石英結晶の成長が空隙壁の岩石の溶解と同時的に行われたことを物語っている。さらに一定の方向性をもつこの種の散点状結晶は石英結晶内に認められる。若干の晶洞皮膜に二酸化チタン(金紅石・銳錐石・板チタン石)鉍物が濃集しているのは、この種鉍物類が空隙形成後溶液から沈澱したことで説明することは困難である。すなわち天然の条件下ではチタンは明らかに天然の溶液中では溶解度が低く著しく移動度の低い元素である。晶洞を側壁の溶解皮膜とみなすならば、最も溶け難い鉍物が晶洞に濃集して再結晶しているのはまづたく自然の法則に適つていることを示している(Korzhinskii 1950)。

このようにして、晶洞皮膜は、溶解空隙の生成で形成される溶解皮膜の形態とみなすことができる。

もちろん、これは、晶洞結晶がまづたく、交代作用に基づいて成長することを意味するものではない。結晶面(頭)は、溶液中で確かに自由に成長するが、結晶の成長は盤を構成する一層微細な結晶類の溶解と同時的に進行する。この問題は、G. G. Lemleinom の指摘した空隙溶解で起きる注入対流(centered convection)が(成長過程)存在するので複雑となる。すなわち対流が起きるので一区域面では溶解作用、他の区域面では結晶作用が卓越する。

溶解に基づく晶洞皮膜の形成は、他の方法、例えば、ある種鉍脈が完成される場合にみられるように結晶が初期形成の空隙壁面上に成長することも除外できない。したがって晶洞皮膜を伴う空隙および鉍脈の種々型の形成方法を確かめるために特殊の研究を行うことが必要である。

交代(作用)累帯の理論を述べた際には、表面エネルギーを無視した。表面エネルギーの影響下では交代作用帯間の接触部は交代鉍物粒間の移行帯に一層粒径の大きい、かつ完全に成長した被置換鉍物の単体粒が保存される可能性があるから、Sharpe 型をとらなくなる。

#### 10. 交代作用の下での化学的組成と鉍物学的組成との相関関係について

すでに述べたように、交代作用性置換柱の各帯では、一成分は不活性挙動を、他成分は全移動挙動を示す。そのうえ同時に生成される安定鉍物の最大数は、不活性成分数にのみ左右される。すなわち標準交代作用過程およびある種の交代作用の場合一平衡因子として温度および岩圧が出現する一には、同時生成鉍物の最大数は不活性成分数に等しい。平衡因子が岩圧でな

く岩石の容積である一般の交代作用にあつては、最大鉱物数は(単位あたり)不活性成分数が卓越している。岩石の鉱物組成は、一方では鉱物中の不活性成分の相関関係により他方では外的条件—平衡のすべての強因子が理解できる—によつて左右される。平衡の強因子としては、温度、溶圧、全移動成分の濃度、すなわち化学ポテンシャルの度があげられる。交代岩石中の不活性成分の含有量は原岩中の含有量といくぶん異なつてはいるが、あらゆる場合を通じて、原岩の不活性成分含有量の偏差は、その置換産物に反映している。しかし全移動成分に関してはこのような現象が起こらない。

同一外的条件—特にそれぞれの成分の全移動性挙動による—および同一溶液濃度によつて形成される交代岩石は、1“交代相”(metasomatic phase)に属している。1交代相の限界領域は、不活性成分の含有量の差だけで形成されるから、岩石の鉱物組成の多様性は、制限され不活性成分数がかりに3の値に等しいものとするならば、岩石中の不活性成分の含有量に対する鉱物組成の依存度は普通の成分三角形図で容易に現わすことができる。後で述べるように、交代作用の生成状態を概観する際には、このような図表に化学的および鉱物学的組成の結付きを投影し、交代作用の生成構造に関する若干の知識を伝えるようにすべきである。

化学的および鉱物学的組成の相関関係を明らかにするために、1交代相の条件で生成した—できるかぎり—多種多様の組成をもつ交代岩石が研究されている。さらにどの成分が全移動性挙動を示すかを明らかにするために不活性成分だけをとりあげる。不活性成分数は非常に多いので、3成分系に簡単化する目的で、不活性成分を形式指標で分類を行うと次のようになる。まず“混合成分”が区分できる。この混合成分は、研究対象の岩石の鉱物中に微量の混合物の形態ばかりで出会い、限界含有量の1鉱物に常に達しないものである。したがつて研究対象の岩石中におけるこの種成分の含有量の偏差は、岩石の鉱物組成の質的变化を起こさない。すなわち1鉱物を他鉱物が置換することは起こらない。例えば普通の岩石に含まれているバリウム・ルビニウム・マンガンは、混合成分であるが、その含有量が著しく多くなれば岩石の鉱物組成に影響を及ぼす。共生関係の図表解析によれば、重要でない混合物の含有量は無視できるが、一層重要な類質同像混合物は、置き換えられる成分と結合する。さらに不活性成分は“単成分”に分けられる。この種単成分は、他の不活性成分と結合し化合物を生成しないが、単鉱物の形態(所与の交代相)で晶出し、その組成中には、全移動成分を含んでいる。この種単成分としては、単一鉱物組成に対応する全化学成分群が区別される。例えば単鉱物としては、燐灰石・ジルコニウム(珪素で飽和された岩石)、榭石(CaとSiの含有量が金紅石を榭石に転化するに十分な量の岩石)などの組成に対応する化学成分群があげられる。例えばこの場合には、燐・ジルコニウム・チタニウムの代りに、所与の岩石族中で他鉱物と反応しないような鉱物の化学式に対応して量的に他元素が析出する。

最後に解析図表に記載される不活性成分数を縮少するために、さらに“過剰成分”を条件的に区分する。過剰成分は、全岩石中に単鉱物の型で存在する。例えば含石英岩石に限定して検討すると、シリカが過剰成分として析出する。しかしこの場合求められた鉱物の共生法則は、シリカで飽和されていない岩石に対してはあてはまらない。過剰成分は共生関係をなして単に純粋の形態ばかりでなく全移動成分と化合して存在する。例えば、全移動成分が $\text{CO}_2$ の場合には、含方解石岩石中の過剰成分としては、 $\text{CaO}$ または $\text{CaCO}_3$ であろう。しかし移動度によれば $\text{CO}_2$ とは偏差がみられない。

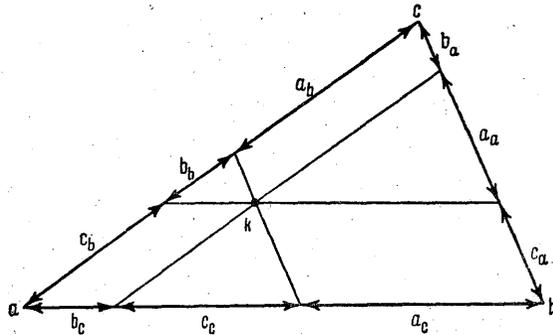
上述のグループにはいらぬ不活性成分はこれらの成分の比が析出岩石の鉱物組成に質的な影響を及ぼすから、仮想成分(virtual component)と名付けられるであろう。研究対象の岩石を鉱物群、例えば含石英、含方解石に区分すると、仮想不活性成分数を3成分、すなわち平面上でグラフ解析ができる数に普通減らすことが可能となる。

#### a) 全移動性成分

- b) 不活性成分 { 混合成分  
 単離成分  
 過剰成分  
 仮想成分

与えられた交代，変成相に属する岩石系が3仮想成分のみを含むとするならば，一般に用いられている“組成—共生成分”の三角形図で造岩鉱物組成と岩石の仮想成分比との相関関係を現わすことができる。

組成の三角形図に造岩鉱物組成を点示するためには 圧中心座標 (baricentra-coordinate) を利用する。例えば  $a, b, c$  の任意の形態の三角形図 (第1図) では，頂点  $a$  は  $a, b, c$  成分



第1図  $k$  組成と  $a_a : b_a : c_a = a_b : b_b : c_b = a_c : b_c : c_c$  成分比とを任意の形態の成分三角形図を利用して表わす

中から  $a$  のみを含む組成を，頂点  $b$  は  $b$  のみで構成される組成を点示する。 $b$  を含まないで  $a$  と  $c$  とからなる組成は，三角形図の  $ac$  辺に点示される。3成分系図の構成は第1図に示されてある。この図では  $k$  点は， $a_k : b_k : c_k$  の比をもつ組成を現わしている。いま  $k$  点を通つて三角形の各辺に平行な3直線を引けば，この直線は三角形の各辺を3の部分に截切り，各線分の長さの比は成分の含有量に比例し， $a_a : b_a : c_a = a_b : b_b : c_b = a_c : b_c : c_c = a_k : b_k : c_k$  を現わす。各截片の配列は第1図によつて明らかである。反対に与えられた組成を投影するには，まず3截片の1辺を分割し，次で2分割点から三角形図の他の2辺に平行に直線を引けばよい。

60°の角度の割線で3つの部分に分たれているグラフ紙があれば，等辺三角形図として利用するに適している。このようなグラフ紙が利用できない場合には，普通のミリメータグラフ紙によつて，組成の二等辺三角形(直角)図が求めることができる。第2図には，反応成分比， $a_k : b_k : c_k$  をもつ組成を現わす  $k$  点投影図が示されてある。

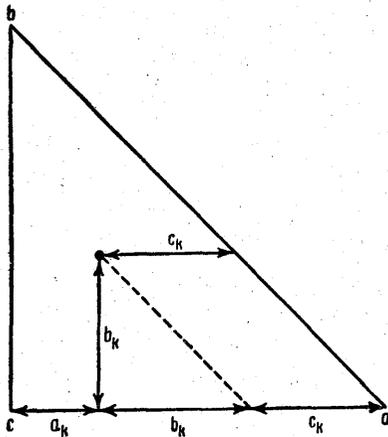
三角形図に鉱物組成を点示する場合には，3仮想成分相互関係にのみに留意し，全移動成分，混合成分，単離成分，および過剰成分の含有量は考慮に入れない。

組成—共生三角形図の1例として東部シベリヤの金雲母鉱床の岩石で求められた三角形図をみてみよう(1947)。この三角形図は，東部シベリヤに発達する原生代の花崗片麻岩累系(Aldana-Slindyansk)の岩石中に最も広域に分布する“標式”的な交代，変成相に対応し方解石を含むか，あるいは方解石で飽和されている変成岩を代表している。三角形図の横には  $\ll +CaCO_3K_a \gg$  の記号を記入し，方解石の鉱物形態でカルシウム過剰を現わす。すなわち少なくともカルシウムに対してこの地域の全岩石類が飽和されていることを示す。こゝでは記号  $\downarrow$  を使用して，全移動成分を現わし，移動度の通減順位によつて記入する。この場合には移動度は， $H_2O, CO_2, SO_3, K_2O, Na_2O, O_2, Fe$  の順序となるであろう。さらに特殊の鉱物を構成する単離成分は成分名の前に+の符号をつけ，この種の鉱物の記号の型で現わす。例えば An は

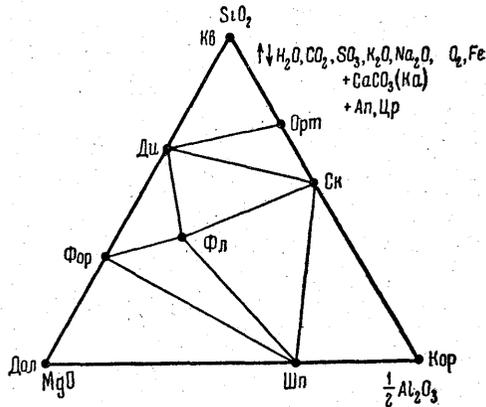
燐灰石, tsr はジルコンである。第3図の仮想不動成分としては  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{MgO}$  があげられる。成分の単位量としては金属の原子量が選ばれる。すなわち珪素, アルミナ, マグネシウム原子の数の相関関係または  $\text{SiO}_2 : \frac{1}{2} \text{Al}_2\text{O}_3 : \text{MgO}$  分子の相関関係で現わされる。図の黒点は交代変成の次のような鉱物である。

- Kv 石英  $\text{SiO}_2$
- A<sub>1</sub> (透輝石)  $\text{CaO} \cdot \text{MgO} \cdot 2\text{SiO}_2$
- S<sub>c</sub> (Scapolite) 柱石  $7\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8 \cdot \frac{1}{3}\text{Ca}(\text{CO}_3, \text{SO}_4)]_3 [\text{NaAlSi}_3\text{O}_8 \cdot \frac{1}{3}\text{Na}(\text{ClHSO}_4, \text{HCO}_3)]$
- Ort (Orthodase) 正長石  $\text{K}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_2 \cdot 6\text{SiO}_2$
- Fh (Phlogopit) 金雲母  $2\text{H}_2\text{O} \cdot \text{K}_2\text{O} \cdot 6\text{MgO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 6\text{SiO}_2$
- Fr (forsterite) 苦土カンラン石  $2\text{MgO} \cdot \text{SiO}_2$
- Dol (Dolomite) 白雲石  $\text{CaO} \cdot \text{MgO} \cdot 2\text{CO}_2$
- Sh<sub>n</sub> (Spinel) 尖晶石  $\text{MgO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3$
- Cor (Corundum) 鋼玉  $\text{Al}_2\text{O}_3$

これらの鉱物類の組成点は,  $\text{SiO}_2 : \frac{1}{2} \text{Al}_2\text{O}_3 : \text{MgO}$  の仮想成分の相関関係のみを考慮に入



第2図 組成二等辺三角形における  $a_k : b_k : c_k$  成分比をもつ k 組成を示す



第3図 東部シベリヤの原生代の花崗片麻岩累系中の強度に変成作用を蒙った石灰岩の組成-共生成分(鉱物)三角形図

れて点示されている。

交代相の平衡共生鉱物（成分）の研究を基において、次に“内包”直線で求められた鉱物の組成点を結ぶ。求められた直線は2鉱物の共生関係の安定度を示している。このようにすれば直角三角形図はさらに小三角形系に内包直線で区分される。このようにして求められた小三角形はその頂点に位置する3鉱物のおおのこの構成成分区画を現わしている。したがって第3図は次の3鉱物の共生関係を示している。

- 1) 石英+透輝石+正長石
- 2) 透輝石+正長石+柱石
- 3) 柱石+透輝石+金雲母
- 4) 透輝石+金雲母+苦土カンラン石
- 5) 苦土カンラン石+金雲母+尖晶石
- 6) 柱石+金雲母+尖晶石
- 7) 白雲石+苦土カンラン石+尖晶石
- 8) 柱石+尖晶石+鋼玉

各共生鉱物中には第4鉱物として方解石が存在する。内包直線で結び付けられない鉱物類は共存できない。すなわちこの交代、変成相では、石英は、柱石・金雲母・尖晶石・苦土カンラン石・白雲石および鋼玉とともに同時生成鉱物として出会しない。柱石は、苦土カンラン石および白雲石と会合しない。このような共生の“禁制”は、同時生成の安定鉱物数を制約する相律によるものである。

この三角形図は特に2つの場合にあてはまる。このことは、強度の変成作用を蒙った白雲石と珪酸塩の共生関係の研究で立証されている。たゞし変成作用は定圧下で行われ、アルカリ金属の挙動は全移動性を示すが、方解石は過剰不活成分として変成作用に干渉するものとする。この場合同時生成鉱物数は不動第4鉱物成分数に等しくなるはずである。この反変成過程ではカルシウムは過剰成分であるが、Si, Al, Mgは仮想成分となる。しかしこの三角形図では、可変圧、定容量の下で生成される金雲母鉱床の交代相に対応している。この場合には、相律により、鉱物数は、単位あたりの不活性成分数より大きくなるはずである。しかしこの反応過程ではカルシウムが隣接白雲石から被置換（交代）珪酸塩中に運ばれ、方解石の型態で交代岩石中一置換には分圧の低下を伴う一に沈澱するから、不活成分は3成分だけである。

この場合にはカルシウムは、不活性過剰成分でなく、“全移動過剰成分”である。したがって方解石はこゝでは“全移動過剰鉱物”であるといえよう。多くの交代作用過程（アブライト化、グライゼン化作用等）でも類似の現象が起こり、石英は“全移動過剰鉱物”として出現する。

このように、交代作用が標準交代作用に特に特徴的な定圧下で行われるならば、“反応鉱物”のみが生成され、その数は、不活性成分数に等しい。そのうえ岩石の鉱物組成は、不活性成分との相関関係だけによつて異なってくる。交代作用が定容量（積）の下で行われるならば、被反応鉱物には“被沈澱”鉱物が附加され、初成鉱物が反応鉱物で置換される際に生じる容量（積）の減少が補われる。沈澱鉱物の組成は作用溶液の組成に左右される。すなわち溶液の組成が一定の場合には、与えられた交代、変成相の“全移動過剰鉱物”で代表される一種類の沈澱鉱物が普通沈澱する。交代作用の移行階梯では複雑な現象が起きる。この階梯では、置換岩石には初め一交代、変成帯の前面一種類の沈澱鉱物が一層多量に沈積し、次でこの種沈澱鉱物は、与えられた交代、変成相の主過剰全移動性鉱物で置換され、次交代、変成帯を形成する。このような現象は、鉱物の沈澱生成される場合に出会い、本来の交代性岩石の生成には本質的な意味をもっていない。したがって本論文では、被反応鉱物に附加される一種類の全移動性過剰鉱物が常にとりあげられている。

鉱物組成と不活性成分比との従属関係を示す三角形図は、外的条件の変化によつてその容相が変わってくる。容相変化は、内包直線の配列状態の変化の型をとつて現われ、三角形図には

1 鉱物が消失するとともに他鉱物が出現する。溶液中に共存する全移動成分中の1成分の濃度が上昇すると、質量作用の法則によつて、不活性成分の与えられた相関関係の下で初成成分より移動成分に一層 enrich された共生関係が生成される。例えば、不活性成分が同一相関関係を保つ場合には溶液中に溶存する鉄の濃度が上昇すると、鉄の含有量が高くなるはずであるから、透輝石+金雲母+柱石（第3図参照）の共生関係の代りに角閃石が生成される。反対の現象は、溶存する全移動成分中の1成分の濃度が低下する場合に起きる。

変成現象の研究によれば、珪酸塩岩石が完全変成作用を蒙ると水と炭酸の全移動が起きることを示している。温度の上昇は、水と炭酸との遊離を伴う反応が起きるが、反応強度の増大率は、水の活性度の著しい変化を伴わずに、炭酸圧（濃度）の上昇率と同一値を示す（Korzhinskii 1940）。

岩石の内成交代作用は、上昇溶液の岩石に及ぼす作用で起こり、その作用は、主要岩石塊の滯孔溶液が所与の岩石類中に浸透する間持続する。多くの場合この種の交代作用の持続性は、外的条件が置換像を変えることができない意味において大きくない。このような状態下ではすべての造岩鉱物類がある温度条件で生成されたことを示している。他の場合には、岩石の変化は持続するか、低下温度の条件の下で消滅する。この状態の下では“ヒステロ源の (hystero-genetic) 鉱物とその共生関係—従属的に発達を示す—とが生成される。最後に、さらに単一な変成、交代過程が岩石に出現する場合がしばしばみられる。組成—共生の各三角形図は、反応過程—交代、変成過程—のある温度階梯における状態変化だけを示すものである。したがつて、その温度範囲では、外的条件の変化が造岩鉱物の共生的相互関係の変化を透導できないことは明らかである。

## II. 交代現象概説

### A. 交代現象の一般的特性

#### 1. 火成作用、変成作用と鉱床生成との関連性について

内成交代作用は、変成作用の特殊の場合、すなわち岩石の化学的組成の本質的な変化を伴う変成作用である。初期には、広域変成作用および“標式接触”変成作用は岩石に対するある種の加熱作用の影響で完成され、岩石の化学組成の変化を伴わないと考えられていた。したがつて変成作用過程は交代作用過程に対立するものであると規定されていた。しかし珪酸塩岩石の任意の変成作用は、最後には岩石中に共存する水および炭酸物質の含有量の変化を伴う。すなわち岩石の化学的組成にある程度の変化が起きる。さらに任意の変成過程では、以上の現象とともに、個々の変成帯には典型的な交代作用過程が出現する。このような現象の発生は次の点を考えれば明らかである。すなわち変成作用はすでに述べたように、上昇溶液が岩石に影響を及ぼすために生じることと関連性をもっているからである。この種溶液が岩石と反応する場合には、上昇溶液は岩石中を浸透し、交代性帯状分布が生じるはずである。交代柱の上方帯では、岩石の変化は“標式的”変成作用の特性を帯び、化学組成の根本的な変化を伴わない。このような現象がみられるのは、上方帯での移動成分は水と炭酸物質だけであるからである。下部帯では溶液と岩石との反応が一層強度に行われ、岩石の交代性変化が起きる。このようにして交代作用は、変成作用と連続的に結び付き、一層強度の変成現象を代表している。

溶液が岩石中を浸透する場合には、著しい抵抗に会する。割れ目が発達し、弱線帯が存在する箇所では上昇溶液はこれらの地帯を利用する。したがつて割れ目および弱線帯の周辺では、交代作用過程は最も強度に現われる。溶液と岩石とが最も強度に反応している地帯—主として割れ目に沿う地帯—では、岩石の初成の成分類は、著しく運び出され、そこに溶液の成分類、特に鉱石類が沈澱するであろう。鉱化帯および鉱脈の生成は、しばしば交代作用過程の端現象 (end phenomenon) を現わしている。鉱石が割れ目を充填する型で沈澱している場合でも、交代作

## 資 料

用は鉱化溶液の連続、浸透影響の下では、自変質作用的性質を獲得する。

それとともに、変成作用と火成現象との連続的な結び付きが確かめられている。接触および広域変成現象は、火成岩岩塊の生成を常に伴なっている。大多数の内成鉱床の生成は、後火成溶液と明らかに関連性をもっている。高温相の広域変成作用が発達している地域では、花崗岩化作用が出現し、変成岩は片麻岩状融合岩と花崗岩で置換されている。P. Termeは1910年に初めてこの現象から次のような仮説を誘導した。岩石に変成作用を与える移動成分の上昇流、特に水は、一層下部層準の堆積物を選択的に溶融し、花崗岩漿が生成される。上昇溶液で生じる浸入交代柱 (infiltration column) についても述べることができる。この場合上部帯には標式変成作用が生じ、その下帯には増進交代帯が形成されるが、下部帯一極大反応帯と最高温度帯一では岩石は共融岩漿で置換されている。溶液の上昇が連続的に行われるにしたがつて、全帯にわたって上部帯は下部帯との置換が行われる。特に岩漿と接触する地帯では、岩石の“火成活動的の浸入置換”が起こり、岩石は変成、交代作用を蒙るにいたる。花崗岩化作用ならびに晩期の後火成作用によつて生ずる上昇水溶液の一般的な成因としては重力偏差 (gravitational differential) があげられる。この種偏差は、岩石類よりも密度の低い水溶液の表面に絞り取り作用 (squeezing action) の型で現われる。

このようにして火成作用、変成作用、交代作用および内成鉱床生成作用の諸過程は、それ自体連続的に結び付いている。すべてこれらの諸過程は、地殻の深部 (下部層準) から溶液と岩漿 (酸性および塩基性) の上昇によつて形成される。

(以下続きは追つて月報本欄に掲載する予定)