

AUTOORGANIZACION GEOQUIMICA: UNA ALTERNATIVA SINERGETICA EN LA MODELIZACION DE SISTEMAS GEOLOGICOS. REVISION DE PRINCIPIOS BASICOS

M. J. Gimeno*, J. M. Tena*, L. F. Auqué*, J. Mandado*, y J. Fernández*

RESUMEN

La autoorganización geoquímica es el reflejo de la aplicación de una Ciencia más amplia, la Sinérgica, al campo de la Geología. Se trata de una línea de investigación abierta muy recientemente y, por tanto, su planteamiento se encuentra todavía restringido al análisis de relativamente pocos fenómenos. Sin embargo, su estructura operativa y su concepción globalizadora la sitúan dentro de la actual tendencia unificadora de otras ramas de la Ciencia.

En este artículo se exponen los antecedentes de los que surge esta teoría y los principios fundamentales en que se basa, haciendo especial hincapié en el concepto de autoalimentación como mecanismo generador de determinados fenómenos, y en las variables y procesos que lo condicionan.

Palabras clave: *autoorganización geoquímica, sinérgica, autoalimentación, modelización geoquímica.*

ABSTRACT

Geochemical self-organization introduces a synergetic view in modeling geological processes. It constitutes a new researching approach and so, its statement are restricted to analytical treatment of, relatively, few phenomena. However, the operative structure and generalized conceptual basis enclose this theory in the present unifying drift of Science.

In this paper, a review of antecedents in the geochemical self-organization and a general outline of its basic ground are considered. Special emphasis is made in dealing with the feedback concept, as a triggering mechanism of different phenomena, and in the related variables and processes.

Key words: *geochemical self-organization, synergetic, feed-back, geochemical modeling.*

Introducción

La actual tendencia de la Ciencia hacia la elaboración de teorías unificadoras, resulta todavía utópica en Geología, ya que sus leyes básicas carecen, por lo general, de la formalización matemática capaz de garantizar su fiable generalización.

Esta carencia se debe básicamente a tres causas: 1) Los condicionantes espacio-temporales impuestos por el objeto de estudio dificultan extraordinariamente la utilización del método científico; 2) La enorme cantidad de variables que se manejan obliga a la introducción de gran número de hipótesis y supuestos iniciales de difícil verificación; y 3) La propiedad intrínseca de ser sistemas abiertos y generalmente en desequilibrio hace imprescindible la determinación de las condiciones

limitantes y de contorno para su modelización matemática, lo cual no siempre es inmediato.

Teniendo en cuenta los puntos anteriores, es lógico que en este momento, y a pesar de las dificultades expuestas, uno de los objetivos primordiales en Geología sea la formulación de leyes básicas generalizadas o generalizables capaces de acomodarse y definir los complejos sistemas incluidos en este campo científico.

Este objetivo se ha perseguido en muy diferentes ramas de la Geología utilizando distintos tipos de modelización matemática, pero nuestro interés se centra concretamente en su aplicación a determinados procesos petrogenéticos relacionados con crecimientos cristalinos y recristalizaciones (nódulos y concreciones, cementos bandeados, zonados cristalinos, anillos de Liesegang, etc.), cuyo hallazgo ha sido habitual en las investiga-

* Area de Petrología y Geoquímica, Departamento de Ciencias de la Tierra. Universidad de Zaragoza. 50009 Zaragoza.

ciones que nuestro equipo de trabajo ha desarrollado sobre materiales paleozoicos de la Cordillera Ibérica, y cuya explicación es hasta el momento bastante controvertida a pesar del importante volumen de trabajos en los que, con planteamientos basados en los objetivos expuestos en los párrafos anteriores y sólidos fundamentos matemáticos, físicos, químicos y físico-químicos, han propuesto diversas hipótesis genéticas para explicar muchos de esos fenómenos.

En un intento de encontrar las respuestas a las cuestiones que con el enfoque anterior (considerado todavía como clásico) han quedado abiertas hasta el momento, se ha elaborado una nueva teoría (de reciente aparición en la bibliografía) íntimamente relacionada con los procesos petrogenéticos citados: se trata de la «naciente» teoría sinérgica de autoorganización geoquímica.

El interés que presenta esta teoría radica fundamentalmente en el tipo de planteamientos en que se basa, ya que realiza un tratamiento de los sistemas, utilizando los conceptos y formulaciones matemáticas y termodinámicas ampliamente desarrollados ya en trabajos clásicos, con el que es capaz de explicar muchos de sus comportamientos (considerados hasta ahora como «anómalos»), desde un punto de vista más general y, a la vez, más próximo al observado en la naturaleza.

Esta generalización se hace patente en la aplicación de los mismos principios básicos para el análisis de sistemas y procesos desarrollados a muy diferentes escalas, y es por esto por lo que podemos considerar la autoorganización geoquímica como plenamente inscrita en la tendencia hacia teorías unificadoras.

Los excelentes (aunque todavía escasos) resultados que ha proporcionado esta teoría y el desconocimiento y confusión existentes en torno a ella, nos han inducido a la realización de este artículo (y otro posterior en elaboración) con el objetivo de recopilar y exponer, a modo de síntesis, la información elaborada por autores europeos y norteamericanos respecto a los principios en que se basa dicha teoría.

La autoorganización, en sentido amplio, es un concepto derivado del de sinérgica que fue definido por Haken (1986) como la ciencia de la acción de conjunto, cuyo propósito es averiguar si, pese a la diversidad de las estructuras que nos encontramos en la naturaleza, es posible hallar unas leyes fundamentales globales que permitan explicar su formación. Es decir, descubrir las normas en que se basa la autoorganización de sistemas en los más diversos campos científicos. Es una ciencia estrechamente ligada a la ciencia del Caos, en cuanto a que el propósito de ambas es describir la manera de encontrar orden en sistemas que aparentan no tenerlo en absoluto. El Caos, considerado hasta hace menos de una década como un caprichoso caso particular, se revela actualmente como

modelo típico del comportamiento de muchos de los sistemas estudiados por la sinérgica.

Aunque la definición anterior resulte conceptualmente muy abstracta y poco ilustrativa, existe una elaborada teoría matemática desarrollada para una amplia gama de fenómenos y con la que se pueden encontrar soluciones prácticas y exactas. También en este punto existe una íntima relación sinérgica/caos, ya que cuando formulamos los problemas sinérgicos en términos matemáticos aparecen siempre las mismas ecuaciones básicas, aún cuando los sistemas en sí sean de naturaleza totalmente diferente; y he aquí que algunas de esas ecuaciones pueden implicar precisamente procesos caóticos.

La sinérgica resulta ser una ciencia más amplia que la Termodinámica y con un campo de aplicación mucho más extenso. Al igual que la mecánica clásica tuvo que ser reemplazada por la mecánica cuántica en el mundo microscópico de los átomos, se ha demostrado (Haken, 1986; Coveney, 1989) que el ya viejo principio de Boltzman de que la entropía es una medida del desorden y tiende a maximizarse, es válido únicamente en el caso de sistemas cerrados y ha sido la sinérgica la que ha sacado a la luz un nuevo principio común a la formación de estructuras en los sistemas abiertos.

Dentro de esta línea de investigación, los enfoques y aplicaciones específicos son muy diversos y, aunque por el momento parece existir cierta desconexión entre ellos, los principios conceptuales en que se basan son siempre los mismos. Por ello nos hemos aventurado a citar aquí lo que consideramos pueden ser tres escuelas: la alemana-belga (de donde parten las primeras ideas) que se dedica fundamentalmente a su aplicación en el campo de la física, la biología y la sociología, y cuyos principales representantes son Haken, Nicolis y Prigogine; la rusa, de la que sólo se conoce su aportación en la aplicación a sistemas hidrotermales (como proceso genético asociado al desarrollo de determinado tipo de mineralizaciones) y en la que destacan Barsukov, Borisov y Pek; y la estadounidense-canadiense, que es la pionera en la aplicación de esta teoría en las ciencias geológicas (Merino, Ortoleva y colaboradores).

Antecedentes

En términos de la escuela norteamericana, la autoorganización es el paso autónomo de un sistema desde un estado desordenado a otro ordenado sin la intervención de agentes externos. Para que exista autoorganización son necesarias dos condiciones: que el sistema se encuentre en desequilibrio y que, al menos, dos procesos activos en el sistema estén acoplados (Nicolis y Prigogine, 1977).

En el ámbito de la geoquímica, y teniendo en

cuenta las premisas anteriores, los procesos de autoorganización son muy comunes, ya que en los sistemas geoquímicos pueden operar diferentes circuitos de transporte y reacción, y además son sistemas abiertos generalmente en desequilibrio (Ortoleva *et al.*, 1987a y b; Coveney, 1989).

La autoorganización en sistemas geológicos se ha empezado a reconocer como tal en las últimas décadas, pero el interés en la génesis de diseños minerales ordenados, repetitivos y no heredados en las rocas, data de principios de siglo por parte de autores como Knopf (1908), Liesegang (1913, 1915) y Hedges y Myers (1922), quienes intentaron explicar ciertos bandeados minerales como resultado de la interdifusión y coprecipitación de solutos. En 1918, Davis demuestra que un sistema arcilla-gel de sílice, mezclado inicialmente de forma uniforme, puede transformarse autónomamente en capas alternantes de arcilla y gel de sílice. Propone además la hipótesis de que el gel de sílice, a través de la deshidratación y envejecimiento, puede pasar a cuarzo microcristalino o a silixita. Ostwald, en 1925, es quien sienta las bases teóricas de este mecanismo, que desde entonces lleva su nombre («Ostwald step rule») y que ha sido retomado recientemente (Lifshitz y Slyozov, 1961; Morse y Casey, 1988) para explicar la génesis de ciertos procesos diagenéticos. En 1932 Hartman y Dickey sugieren que la interdifusión tipo Liesegang podría ser la causa de las Formaciones Ferríferas Bandeadas (de importantísimo interés económico y génesis todavía controvertida). Más tarde, Turing (1952) muestra que un sistema químico uniforme puede ser inestable y generar diseños repetitivos composicionales y texturales por medio de mecanismos de interacción reacción-transporte.

La clásica teoría del fenómeno de precipitación espacial periódica explicada por Ostwald (1925) y Prager (1956) ha sido completada en las últimas décadas con el estudio del comportamiento de las ondas químicas¹ (Prigogine y Nicolis, 1967; Flicker y Ross, 1974; Ortoleva y Ross, 1972, 1973, 1974, 1975; Schmidt y Ortoleva, 1977; Feinn y Ortoleva, 1977; Feinn *et al.*, 1978; Lovett *et al.*, 1978; Schmidt y Ortoleva, 1979, 1980, 1981; Feeney *et al.*, 1983; Ortoleva y Schmidt, 1985) en el que se han introducido los conceptos de reacciones autocatalíticas, mecanismos de autoalimentación («feedback»), crecimiento competitivo de partículas y ciclos de sobresaturación-nucleación-deplección (ciclo de Ostwald-Liesegang).

En la última década, y a partir de los trabajos de Nicolis y Prigogine (1977) es cuando empieza a destacar el equipo de investigadores norteamericanos (Haase *et al.*, 1980); Merino *et al.*, 1980, 1983, 1986;

Merino, 1984, 1987; Ortoleva *et al.*, 1980, 1982, 1986a y b, 1987; Ortoleva, 1982, 1984a y b, 1987, 1988; Moore *et al.*, 1983; Fowler, 1988; Wang *et al.*, 1989 y otros colaboradores), que desarrollan un exhaustivo análisis de este tipo de procesos en busca de una modelización matemática cuantitativa.

Estos autores son los primeros en afirmar que la mayoría de las rocas (sedimentarias, metamórficas e ígneas) presentan texturas, en ocasiones muy localizadas, que evidencian la presencia de algún tipo de autoorganización geoquímica (Merino, 1984, 1987; Fowler, 1988). Tales texturas consisten en disposiciones de minerales o de caracteres texturales espacialmente ordenadas que por criterios de campo, petrográficos y químicos, se demuestra que no son heredadas.

En el momento actual los fenómenos reconocidos como de autoorganización geoquímica abarcan todas las escalas y ambientes petrogenéticos, y los más destacables son los siguientes: zonado oscilatorio en cristales de plagioclasa, bandeo metamórfico, bandeo en skarn y en yacimientos de tipo Mississippi Valley, conjuntos de estilolitos y juntas de disolución por presión, diseños repetitivos en cementos de óxidos de hierro, anillos de Liesegang, ágatas, nódulos y concreciones, frentes de reacción digitados (en yacimientos de uranio tipo «roll»), bandas alternantes de minerales ricos y pobres en hierro (como pueden ser las Formaciones Ferríferas Bandeadas), capas repetitivas en intrusiones ígneas (Skaergard, Bushvell,...) y orbículas en rocas ígneas y en las aureolas de metamorfismo de contacto.

Principios generales

Mecanismos de autoalimentación

Como es sabido, la textura de cualquier roca siempre presenta desviaciones de la uniformidad perfecta. Estas pequeñas desviaciones pueden agrandarse mediante la actuación de «bucles de autoalimentación» (feedback²) de forma que algunas de ellas crecen más deprisa que otras y llegan a dominarlas. Teniendo en cuenta este hecho podemos redefinir la autoorganización como la capacidad que posee un sistema para seleccionar un modelo de entre todas las desviaciones posibles, y amplificarlo autónomamente hasta alcanzar una estructura observable bien ordenada.

Es claro, pues, que las componentes de la fuerza generalizada que conduce a la autoorganización de un sistema son el desequilibrio y la autoalimentación. La

¹ Concepto definido por Ortoleva y Ross en 1974 como la variación periódica en el tiempo de la concentración de una o más especies químicas de acuerdo con diseños espaciales fijos o móviles.

² La traducción textual de este vocablo inglés podría ser «retroalimentación», pero en este contexto se entiende por feedback un mecanismo en el cual el desarrollo de los procesos involucrados está condicionado por sus propios resultados, y según esto consideramos que conceptualmente es más expresivo el término «autoalimentación», que será el utilizado en adelante.

primera componente puede ser impuesta en el sistema por las condiciones limitantes o por las condiciones de contorno, es decir, por la distribución espacial de las variables descriptivas en el instante inicial y durante el desarrollo del proceso. La segunda componente es realmente la causante de la ordenación mineral y textural según varios tipos de mecanismos basados en la interacción transporte-reacción.

Un determinado fenómeno se calificará como autoorganizado si, además de no ser heredado, ha sido generado por un mecanismo de autoalimentación «disparado» por el desequilibrio del sistema, aunque el desarrollo del proceso no conduzca a un diseño repetitivo.

Antes de ver algunos ejemplos de mecanismos de autoalimentación naturales, definiremos los conceptos de bucles de autoalimentación positivos y negativos. Un bucle de autoalimentación positivo es una secuencia de procesos encerrados en sí mismos de forma que cada uno de ellos se autoestimula en el bucle a través de los demás (A estimula a B, B a C y C a A). Por el contrario, un bucle negativo se caracteriza porque en un punto de la secuencia hay un término que inhibe a otro anterior de forma que esto puede inducir a un orden oscilatorio temporal (A estimula a B, B a C y C inhibe a A).

Seguidamente describiremos cualitativamente varias posibles situaciones de autoalimentación:

- a) Infiltración/reacción.
- b) Sobresaturación-nucleación-deplección (Ciclo Ostwald-Liesegang).
- c) Crecimiento autocatalítico de cristales.
- d) Inestabilidad presión-textura-disolución.
- e) Crecimiento competitivo de partículas.

a) *Infiltración/reacción*

Cuando un flujo acuoso atraviesa una roca porosa y reacciona con uno o más de sus minerales, se establece una zona o frente de reacción que avanza más o menos lentamente (con velocidad constante o no) y separa la región de la roca modificada (flujo atrás del frente) de la no modificada (flujo adelante del mismo). El flujo infiltrado avanza a través de la zona en que la porosidad inicialmente es mayor que en el resto (término A de la secuencia de procesos). De esa forma el flujo local de agua con capacidad reactiva es también mayor (término B) y, por tanto, la velocidad de disolución se hace más elevada en esa zona (término C). Al aumentar la disolución se provoca un aumento de la porosidad y permeabilidad (término A), y de nuevo estamos en el punto de partida que facilitará el avance del flujo infiltrado (fig. 1). Es decir, está claro que se trata de un bucle de autoalimentación positivo.

La interfase muestra en un principio alguna leve



Fig. 1.—Esquema del bucle de autoalimentación INFILTRACION-REACCION (modificado de Ortoleva *et al.*, 1987 a).

irregularidad procedente quizá de las condiciones de movimiento del flujo o de la textura local de la roca. Lejos de reducirse, estas pequeñas prominencias iniciales se amplifican y adoptan la forma característica de dedos (conocidos en la literatura como dedos de Saffman y Taylor, Saffman y Taylor, 1958). Posteriormente se instaura una competición entre los distintos dedos, con resultado final de que uno de ellos acaba siempre predominando y los demás dejan de crecer y se inmovilizan.

Cuanta mayor longitud alcanzan los dedos, más importante es también el alcance del agua que recogerá solutos por difusión a través de sus paredes y ya no sólo del frente. De esta forma los fluidos que alcanzan el frente de reacción se equilibran progresivamente conforme crece la relación longitud/anchura y, por tanto, el frente pierde reactividad y se frena. Este fenómeno previene la formación de dedos indefinidos y les obliga a buscar una relación morfológica dictada por los parámetros del sistema (composición del agua de infiltración, velocidad del flujo y composición de la roca inalterada).

Un caso particular de desarrollo de frentes digitados es el provocado por la competencia creada entre varios dedos. El resultado es un frente de avance festoneado más o menos paralelo y nunca demasiado desarrollado en longitud.

b) *Ciclo sobresaturación-nucleación-deplección*

Este mecanismo constituye un bucle negativo, ya que involucra la inhibición de la nucleación en un punto del espacio causada por la nucleación y crecimiento de una partícula en un punto vecino.

En este caso se necesita la infiltración de un flujo acuoso cargado con la especie X capaz de reaccionar con los granos minerales A que componen la roca. El resultado de la reacción es la especie acuosa Y, que si puede reaccionar con X produce la precipitación del mineral B.

La nucleación y crecimiento de B en un punto 1 consume especies X e Y del flujo acuoso circundante e incluso atrae, por difusión, las nuevas especies que el frente produce de forma continua en su avance

hacia adelante. Este consumo exclusivo de X e Y en las cercanías del punto 1 produce un importante descenso de su concentración, permaneciendo por debajo del valor necesario para la nucleación de B por sobresaturación en todas las localizaciones que no sean 1. Sólo cuando el frente de disolución ha avanzado lo suficientemente lejos de la primera banda de B como para que la difusión hacia ella de las especies que genera sea nula, es posible alcanzar de nuevo la concentración necesaria para la nucleación de una nueva banda de B. El esquema del ciclo descrito queda expresado en la figura 2.

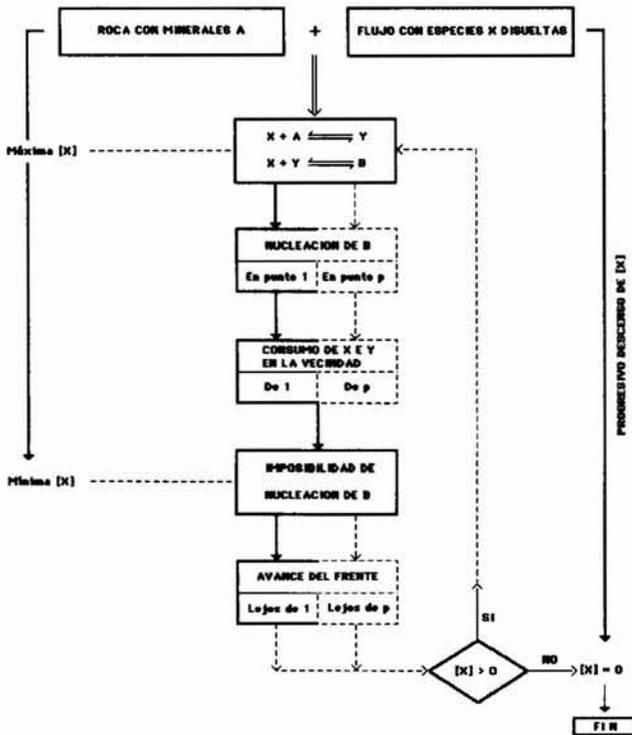


Fig. 2.—Bucle de autoalimentación SOBRESATURACION-NUCLEACION-DEPLECCION (o Ciclo de Ostwald-Liesegang). Las flechas discontinuas indican el sentido de avance del proceso después de generada la primera banda de B. El punto p tomará valores desde 2 hasta p, indicando con ello el número de veces que se ha completado el ciclo.

c) Agregación superficial autocatalítica

Este mecanismo de autoalimentación involucra el acoplamiento de dos bucles, uno positivo y otro negativo. El resultado es un diseño oscilatorio, cuyo ciclo se puede ver esquematizado en la figura 3.

Suponemos una solución con especies A y B y una roca con granos minerales A, los cuales, por la deformación reticular, las preferencias en el empaquetado geométrico, el enlace químico o simplemente los

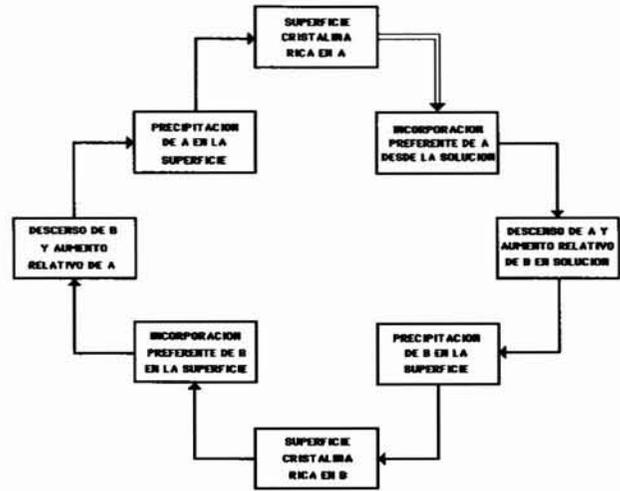


Fig. 3.—Bucle de autoalimentación por AGREGACION SUPERFICIAL AUTOCATALITICA (modificado de Ortoleva *et al.*, 1987 a).

efectos cinéticos, facilitan una precipitación más rápida de unidades A que de unidades B en su superficie. Esta promoción de precipitación de A por influjo del A previamente precipitado es un tipo de autocatálisis. Conforme progresa el crecimiento autocatalítico de A, la solución próxima al grano en crecimiento sufre un empobrecimiento (deplección) en A, de forma que B queda relativamente enriquecido, lo suficiente como para forzar el crecimiento de capas ricas en B. Si este crecimiento es también autocatalítico, el grano final resultante presentará una zonación oscilatoria de A y B.

La esencia de este modelo es que el crecimiento de granos está limitado a la agregación superficial, sin que la difusión juegue un papel importante (si no fuera así, se tendería a eliminar el gradiente de concentración generado por el crecimiento autocatalítico de cualquiera de las dos especies).

d) Proceso de autoalimentación químico-mecánico en rocas sometidas a presión

En estas rocas se pueden dar varios mecanismos de autoalimentación. Para comprender fácilmente su funcionamiento es conveniente recordar que la solubilidad de cada grano mineral es función directa de su energía libre, y que por su parte, la energía libre de un grano es también directamente proporcional a su densidad de defectos y a su estado de presión; como éstos dependen de la textura local que rodea al grano en cuestión, la disolución o el crecimiento de granos producen el desplazamiento del equilibrio químico y textural necesario para la autoorganización.

d.1. Texturas de presión-disolución acopladas:

Consideremos una roca que contiene minerales A y B y un fluido en los poros. Para simplificar, suponemos que B es insoluble en el fluido y la transmisibilidad despreciable; suponemos, también, que A es más rígido que B y que hay suficiente cantidad de A como para mantener la fábrica de la roca en el caso de que B desapareciese totalmente, con lo que podemos afirmar que la sobrepresión externa es soportada exclusivamente por A. Cuanto mayor sea la moda de A (fracción volumétrica) en un volumen dado, menor será la energía libre de Gibbs de cada uno de los granos de A. Consecuentemente, las regiones vecinas que tengan diferentes modas de A intercambiarán, por difusión, los solutos involucrados en la disolución desde las zonas de menor a las de mayor moda de A.

Un fenómeno similar se produce cuando la variable clave es la porosidad. Una zona con mayor porosidad que sus vecinas puede dar lugar a un incremento en la presión local y, por tanto, incrementar la energía libre de Gibbs y la disolución de granos en esa zona. A la vez se producirá una pérdida de los solutos resultantes que por difusión avanzan hacia zonas vecinas con menor ΔG y menor porosidad, donde precipitan. El aumento de la porosidad (por disolución de parte del material inicial) en las regiones inicialmente de elevada porosidad, completa el bucle positivo de este mecanismo.

Las rocas porosas sometidas a presión tienden a compactarse (a disminuir su porosidad) por efecto de la cementación resultante del proceso descrito. Por tanto, la compactación, se opone claramente (a la vez que es producto de ellos) a los procesos de autoalimentación de este tipo, pudiendo incluso anularlos.

d.2. Densidad de defectos y solubilidad acoplados:

La solubilidad de los granos crece también con el incremento de la densidad de defectos (Wintch y Dunning, 1985). Un grano defectuoso en una roca sometida a condiciones de presión es menos rígido que otros no defectuosos y por tanto, al no poder soportar su parte de carga, tiende a disolverse añadiendo así una presión adicional sobre los granos vecinos.

Esta presión adicional aumenta el ΔG de los vecinos y puede crear defectos en ellos (Nicolas y Poirier, 1976) hasta el punto de volverlos más solubles, completando así el bucle. También en este caso los solutos, por difusión, tenderán a las zonas menos presionadas y allí precipitarán.

En la figura 4 se representa un resumen del ciclo generado por los distintos casos descritos.

e) Crecimiento competitivo de partículas

La energía libre por unidad de masa de una partícula esférica precipitada aumenta conforme disminuye su radio debido al efecto añadido y relativamente más influyente de la tensión superficial. Según esto, una partícula puede crecer a expensas de sus vecinas más pequeñas por consumo de los solutos producidos por la disolución de esas partículas pequeñas más solubles. El flujo es direccionado hacia las partículas de tamaño mayor y por tanto, cuando interactúa la difusión con el crecimiento competitivo de partículas, se acentúan las inhomogeneidades en la distribución espacial del tamaño de partículas (fig. 5).

Este mecanismo resulta ser la generalización del ya conocido «envejecimiento Ostwald» definido inicial-

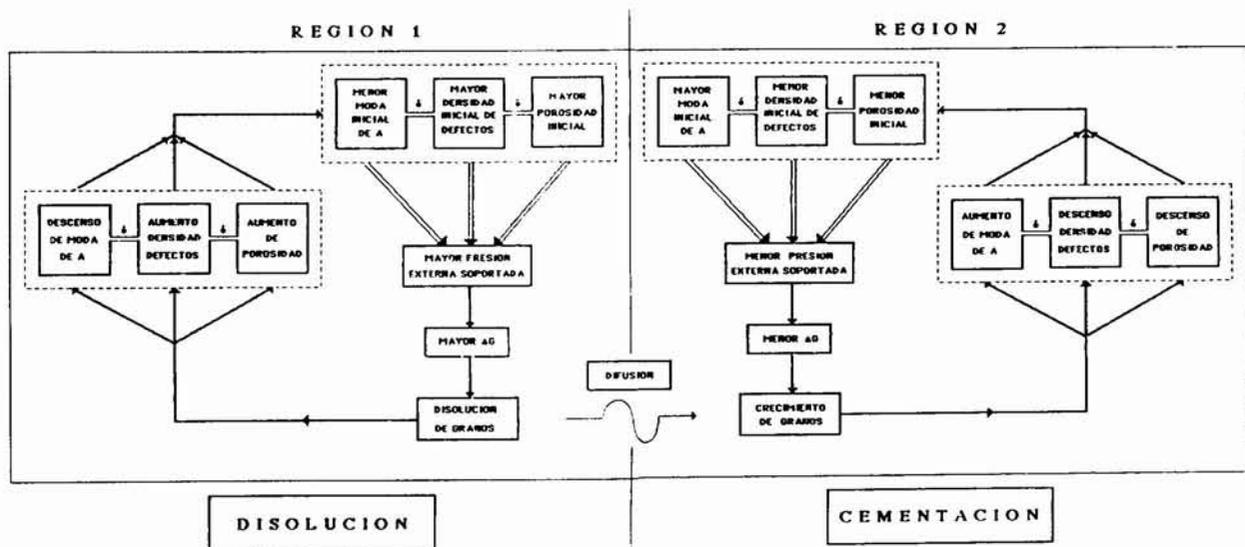


Fig. 4.—Bucles de autoalimentación física y química en rocas sometidas a presión (modificado de Ortoleva *et al.*, 1987 a).

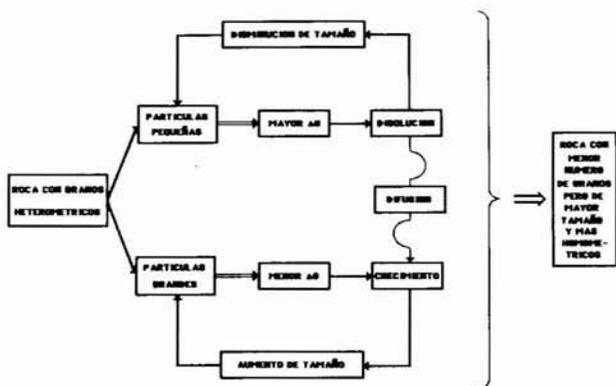


Fig. 5.—Bucle de autoalimentación por CRECIMIENTO COMPETITIVO DE PARTICULAS.

mente como la evolución de una suspensión coloidal hacia el estado de menor número de partículas pero de mayor tamaño.

Variables y procesos

Los principios generales que conforman la teoría de la autoorganización se basan en la existencia de una serie de variables descriptivas (cuya variación espacial habrá que evaluar) y procesos que operan en una situación dada. Las principales variables cuyo comportamiento se intenta describir son:

1. Concentración de solutos en los fluidos de los poros.
2. Concentración de adsorbatos en las superficies granulares.
3. Forma, volumen, orientación cristalográfica, composición y densidad de defectos de un grano y densidad numérica o moda (granos por volumen de roca).
4. Porosidad y permeabilidad de la roca.
5. Presión y temperatura.
6. Concentración isotópica en los fluidos de los poros y en los granos minerales.
7. Fluidos de los poros o velocidad de flujo plástico de la roca.

En cuanto a los procesos operativos, existe una larga lista que sugiere una variedad potencial de fenómenos de autoorganización geoquímica que en este contexto juegan un papel fundamental y complementario, y que podemos dividir en dos grupos, locales y de transporte.

Procesos locales son los que consideran las modificaciones en las variables descriptivas, dentro de un elemento de volumen dado, como debidas a intercambio de masas entre minerales y solutos. Algunos procesos locales son:

- a) Reacciones homogéneas entre especies en disolución.

- b) Sorción/desorción en superficies de grano.
- c) Nucleación, crecimiento, reemplazamiento y disolución de granos.
- d) Intercambio isotópico.
- e) Creación y destrucción de defectos de granos.

Por *procesos de transporte* se entienden aquellos que involucran una redistribución espacial de las variables descriptivas debida a los intercambios de materia y energía entre elementos de volumen. Se consideran procesos de este tipo:

- a) Difusión, dispersión y conducción térmica.
- b) Percolación, advección.
- c) Migración iónica inducida eléctricamente.

Modelización matemática

En cada caso específico de autoorganización, sólo son unos pocos los procesos que determinan la forma de las ecuaciones dinámicas que representan el desarrollo espacial de las variables descriptivas. Las ecuaciones relevantes se pueden derivar de las condiciones de conservación de masa, energía y momento (De Groot y Mazur, 1962), y aunque su forma específica dependerá estrechamente de los procesos operativos, se puede dar una ecuación general que exprese la velocidad de cambio de una variable determinada como suma de términos que expresan cada uno de los procesos que contribuyen al cambio global de dicha variable en un punto dado:

$$\delta\Psi/\delta t = \Sigma [\delta\Psi/\delta t]$$

donde $[\delta\Psi/\delta t]$, representa la contribución del proceso *i* a la tasa de cambio de la variable Ψ ($\delta\Psi/\delta t$).

Estas contribuciones no dependen únicamente de la variable determinada, sino que generalmente son función de varias, y esto es precisamente lo que representa el acoplamiento necesario para la autoorganización. Así, para un proceso dado, tendremos un determinado número de variables cuya modificación expresaremos por sumatorios de diferenciales parciales que constituirán un complejo sistema no lineal de ecuaciones.

Dado que las texturas son propiedades espaciales y que además involucran la interacción entre reacción y transporte de iones desde las posiciones de disolución de minerales hacia las de crecimiento de los mismos, los modelos teóricos construidos para su estudio (Feinn *et al.*, 1978; Berner, 1980; Dobrovolsky y Lyalko, 1978; Lichtner, 1985) han de considerar explícitamente el tiempo y, en particular, el espacio. Estamos, por tanto, plenamente en un dominio de procesos cinéticos.

La complejidad derivada del tratamiento de variables múltiples y procesos distintos enlazados cinéticamente, hace que para el desarrollo y aplicación de estos modelos sea imprescindible el uso de programas de

ordenador implementados en las estructuras informáticas adecuadas. Actualmente existen programas, de muy reciente aparición, específicamente elaborados para la modelización de sistemas autoorganizados; éste es el caso del programa REACTRAN (Ortoleva *et al.*, 1986 b), que elabora modelos utilizables para cálculos de transferencias de masa agua-roca en escalas espacio-temporales de magnitud geológica, incorporando, además de espacio y tiempo, conceptos de difusión y flujo, velocidad de reacciones homogéneas y heterogéneas, variables texturales de las rocas, mecanismos de feedback y de acoplamiento reacción-transporte y métodos matemáticos asintóticos.

Este programa se incluye dentro de la categoría genérica de modelos acoplados de transporte de masas e interacción roca-fluido. En particular, pertenece al grupo de programas que, dentro de esta categoría, adoptan el supuesto de equilibrio local («local equilibrium assumption: LEA»), es decir, realizan una aproximación a sistemas de desequilibrio a partir de situaciones sucesivas de equilibrio puntual (Helgeson, 1968). La principal característica que diferencia al REACTRAN del resto de programas del grupo es el tener específicamente implementada la capacidad de modelizar mecanismos de autoalimentación.

Esta modelización la realiza mediante el planteamiento de los sistemas de ecuaciones diferenciales descritos en los párrafos anteriores. La resolución de estas ecuaciones requiere la delimitación espacial del sistema, para lo cual es imprescindible determinar el dominio donde tiene lugar el fenómeno de interés, prestando especial atención a la superficie «límite» que lo separa del resto del «universo» y a través de la cual se comunican ambos espacios.

Por otra parte, dado que estos sistemas de ecuaciones contienen términos cuyos órdenes de magnitud son muy distintos unos de otros, el paso siguiente a la definición del sistema será la «dimensionalización» de las variables involucradas con el fin de homogeneizar magnitudes y adecuarlas a la escala geológica.

La solución numérica de las ecuaciones facilita la obtención de los valores de todas las variables descriptivas relevantes como funciones del tiempo y el espacio, permitiendo de este modo predecir la generación de texturas y distribuciones minerales de autoorganización que son consistentes con las observadas hasta el momento en la naturaleza.

Conclusiones

El desequilibrio puede crear modelos texturales o mineralógicos (repetitivos en la mayoría de los casos) en los sistemas geoquímicos en que operan e interactúan transporte y reacción. Este fenómeno se denomina autoorganización geoquímica (self-organization) y está ampliamente representado en todo tipo de rocas debido

a que en ellas, tanto el desequilibrio como los mecanismos de autoalimentación resultan ser la regla más que la excepción.

Hasta aquí hemos visto las numerosas variables descriptivas que pueden interaccionar a través de la combinación de procesos y los diversos tipos de mecanismos de feedback con que se autoalimentan. También se ha citado una serie de texturas y fenómenos petrológicos (que serán desarrollados en detalles en el anunciado artículo posterior) cuya explicación requiere la alusión a procesos de autoalimentación y, en definitiva, de autoorganización.

Todas estas razones garantizan la consideración de la autoorganización geoquímica como proceso inevitable y ampliamente extendido en rocas de todos los tipos y como fenómeno que revela directamente la complejidad de los sistemas geoquímicos.

Según esto, el estudio de la autoorganización geoquímica en un sistema concreto consiste en lo siguiente:

1. La determinación de las texturas que evidencian procesos de autoorganización. Para establecer que un diseño textural dado es un auténtico caso de autoorganización es necesaria la combinación de cuidadosos estudios de campo, petrogenéticos y químicos.

2. Una vez determinada la textura del sistema problema, el siguiente paso es el análisis y la elección del mecanismo involucrado en su génesis. Dicho mecanismo ha de ser consistente con el resto de evidencias deducidas de los estudios anteriores, fundamentalmente en relación con los procesos que se sabe han actuado sobre la roca de caja.

3. Modelización matemática de la dinámica del proceso para poder delimitar el dominio espacio-temporal del sistema en el que puede presentarse este fenómeno.

En cuanto al desarrollo de los dos primeros puntos del esquema, es obvio que, según lo expuesto hasta el momento, consistirá fundamentalmente en la adquisición del máximo número de datos (geométricos, mineralógicos, químicos, físicos y físico-químicos) correspondientes a los sistemas estudiados con el fin de determinar cuáles de las variables y procesos operativos posibles son los que han influido decisivamente en el comportamiento del sistema hasta alcanzar su estado actual; y en definitiva, si ese comportamiento ha seguido pautas de autoorganización.

La última etapa de estudio (la modelización matemática) permitirá determinar las ecuaciones básicas que gobiernan ciertos procesos, facilitando así su aplicación en casos concretos similares, simplemente introduciendo los condicionantes propios del sistema en cuestión en la formulación general deducida.

Esbozadas hasta aquí las principales ideas en que se basa la autoorganización geoquímica, podemos resumir su intención como el establecimiento de las funciones que regulan determinados procesos genéticos, sustituyendo la subjetividad del razonamiento geológico

clásico por deducciones termodinámicas, físico-químicas y cálculos matemáticos que permitan obtener las ecuaciones que regulan los estados y regímenes alcanzados en la evolución de un sistema geológico.

AGRADECIMIENTOS

Queremos expresar nuestro agradecimiento a los Drs. E. Merino y P. Ortoleva de la Universidad de Indiana (U.S.A.) por su ayuda en la recopilación bibliográfica y por permitirnos el acceso a algunos de sus trabajos todavía no publicados. Asimismo agradecemos al Dr. H. Haken del Instituto de Física Teórica de la Universidad de Stuttgart (R.F.A.) por el interés y apoyo mostrados hacia nuestro trabajo en esta nueva línea de investigación.

L. F. Auqué ha participado en este trabajo como becario del CONAI (D.G.A.).

Referencias

- Barsukov, V. L. y Borisov, M. V. (1982a). Simulation of the geochemical consequences of automixing of hydrothermal solution. Part I. Mass transfer in areas of spreading of hydrothermal solutions. *Geochemistry International* (1982), 137-150. *Trans. from Geokhimiya*, 8, 1108-1123.
- Barsukov, V. L. y Borisov, M. V. (1982b). Simulating the geochemical consequences of hydrothermal solution automixing. Part 2. Mass transfer in areas of contraction of hydrothermal flow. *Geochemistry International* (1982), 26-36. *Trans. from Geokhimiya*, 9, 1244-1256.
- Barsukov, V. L. y Borisov, M. V. (1982c). Simulating the geochemical consequences of hydrothermal solution automixing. Part 3. Mass transfer in a system with several successive automixing cycles. *Geochemistry International* (1982), 15-30. *Trans. from Geokhimiya*, 11, 1562-1580.
- Barsukov, V. L. y Borisov, M. V. (1987). Modelling of geochemical phenomena related to self-organization of a structure of the hydrothermal waters' flow. (In Russian). *Rev. Acad. Sci. USSR*, 1, 87-101.
- Barsukov, V. L. y Pek, A. A. (1980). Solution self-mixing in the production of hydrothermal vein deposits. *Geochemistry International* (1980), 110-113. *Trans. from Geokhimiya*, 12, 1780-1796.
- Berner, R. A. (1980). *Early Diagenesis*. Princeton Univ. Press, 241 pp.
- Coveney, P. V. (1989). La irreversibilidad del tiempo. *Mundo Científico*, 90, 392-401.
- Davis, E. F. (1918). The Franciscan sandstone. *Univ. Calif. Dept. of Geol. Bull.*, 11, 235-432.
- De Groot, S. R. y Mazur, P. (1962). *Nonequilibrium thermodynamics*. North-Holland, Amsterdam, 510 pp.
- Dobrovolsky, E. V. y Lyalko, V. I. (1979). Dynamic model of fluorite mineralization of carbonate-bearing rocks. *Amer. J. Sci.*, 297, 1022-1032.
- Feeney, R.; Schmidt, S. L.; Strickholm, P.; Chamdam, J. y Ortoleva, P. (1983). Periodic precipitation and coarsening waves. Applications of the competitive particle growth model. *J. Chem. Phys.*, 78, 1293-1311.
- Feinn, D. y Ortoleva, P. (1977). Catastrophe and propagation in chemical reactions. *J. Chem. Phys.*, 67, 2119-2131.
- Feinn, D.; Ortoleva, P.; Scalf, W.; Schmidt, S. y Wolff, M. (1978). Spontaneous pattern formation in precipitating systems. *J. Chem. Phys.*, 69, 27-39.
- Flicker, M. y Ross, J. (1974). Mechanism of chemical instability for periodic precipitation phenomena. *J. Chem. Phys.*, 60, 3458-3465.
- Fowler, A. D. (1988). Geochemical self-organization. *Geoscience Canada*, 15, 284-286.
- Fritz, B. (1981). Etude Thermodynamique et modelisation des reactions hydrothermales et diagenetiques. *Sciences Geologiques Mem.*, 65, 197 pp.
- Haase, C. S.; Chadam, J.; Feinn, D. y Ortoleva, P. (1980). Oscillatory zoning in plagioclase feldspar. *Science*, 209, 272-274.
- Haken, H. (1986). *Fórmulas de éxito en la naturaleza (Sinérgica. La doctrina de la acción de conjunto)*. Salvat, Barcelona, 221 pp.
- Hartman, R. J. y Dickey, R. M. (1932). The Liesegang Phenomenon applied to the Lake Superior Iron Formations. *J. Phys. Chem.*, 36, 1129-1135.
- Hedges, E. S. y Myers, J. E. (1922). *The problem of physico-chemical periodicity*. Longmans, New York, 95 pp.
- Helgeson, H. C. (1968). Evaluation of irreversible reactions in geochemical processes involving minerals and aqueous solutions I. thermodynamic relations. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 32, 853-877.
- Knopf, A. (1908). Geology of the Seward Peninsula tin deposits. *U. S. Geol. Survey Bull.*, 358, 71 pp.
- Lichtner, P. C. (1985). Continuum model for simultaneous chemical reactions and mass transport in hydrothermal systems. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 49, 779-800.
- Liesegang, R. G. (1913). *Geologische Diffusionen*. Dresden and Leipzig, Stein Kopff, 180 pp.
- Liesegang, R. G. (1915). *Die Achate*. Dresden and Leipzig, Stein Kopff, 118 pp.
- Lifshitz, I. M. y Slyozov, V. V. (1961). The kinetics of precipitation from supersaturated solid solutions. *J. Physics Chemistry Solids*, 19, 35-50.
- Lovett, R.; Ortoleva, P. y Ross, J. (1978). Kinetic instabilities in first order phase transitions. *J. Chem. Phys.*, 69, 947-955.
- Merino, E. (1984). Survey of geochemical self-patterning phenomena. In: *Chemical Instabilities. Applications in Chemistry, Engineering, Geology and Materials Science*. (Nicolis y Baras, eds.) Dordrecht, Reidel, NATO Adv. Sci. Series C 120, 305-328.
- Merino, E. (1987). Textures of low temperature self-organization. In: Rodríguez-Clemente y Tardy, eds. CSIC, 597-610.
- Merino, E. y Ortoleva, P. (1980). Temporal development of fabric in uniaxially stressed polycrystalline media. A theory. *Contrib. Mineral. Petrol.*, 71, 429-435.
- Merino, E. y Wang, Y. (1989). Self-organization in agate dynamic crystallization model of twisted-untwisted chalcidony. *Am. Geophys. Union Spring Meeting*. Baltimore, May 7-12.
- Merino, E.; Moore, C.; Ortoleva, P. y Ripley, E. (1986). Mineral zoning in sediment-hosted copper-iron sulfide deposits. A quantitative kinetic approach. In: Friedrich *et al.*, eds. Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, 559-571 pp.
- Merino, E.; Ortoleva, P. y Strickholm, P. (1983). Generation of evenly-spaced pressure-solution seams during (late) diagenesis. A kinetic theory. *Contrib. Mineral. Petrol.*, 82, 360-370.
- Moore, C.; Auchmuty, G.; Chadam, J.; Hether, J.; Larter, R.; Merino, E.; Ortoleva, P.; Ripley, E. y Sen, A. (1983). Kinetic modelling of flow/reaction instabilities in porous rocks. application to uranium roll fronts. *4th. Internat. Sympos. on Water-Rock Interaction*. Extended Abstracts. Japan, 352-355.
- Morse, J. W. y Casey, W. H. (1988). Ostwald processes and

- mineral paragenesis in sediments. *Amer. J. Sci.*, 288, 537-560.
- Nicolas, A. y Poirier, J. P. (1976). *Crystalline plasticity and solid-state flow in metamorphic rocks*. Wiley, London, 444 pp.
- Nicolis, G. y Prigogine, I. (1977). *Self-organization in non-equilibrium systems*. Wiley y Sons, New York, 491 pp.
- Ortoleva, P. (1982). Solute reaction mediated precipitate patterns in cross gradient free systems. *Z. Physik*, B49, 149-156.
- Ortoleva, P. (1984a). From nonlinear waves to spiral and speckles patterns. nonequilibrium phenomena in geological and biological systems. In: *Fronts. Interfaces and Patterns*. (Bishop, A. R.; Campbell, L. J. y Channell, P. J. eds.). Proc. Ann. Int. Conf. for Nonlinear Studies, 3d, Los Alamos, New Mexico, May 2-6, 1983, 305-320.
- Ortoleva, P. (1984b). The self-organization of Liesegang Bands and other precipitate patterns. In: *Chemical Instabilities. Applications in Chemistry, Engineering, Geology and Materials Science*. (Nicolis y Baras, eds.) Dordrecht, Reidel, NATO Adv. Sci. Series C 120, 289-297.
- Ortoleva, P. (1987). Modelling geochemical self-organization. In: *Irreversible phenomena and dynamical systems analysis in Geosciences*. (Nicolis, C. y Nicolis, G., eds.). Reidel Publishing Co., 493-510.
- Ortoleva, P. (1988). *Geochemical self-organization*. Oxford University Press, Oxford, in press.
- Ortoleva, P. y Merino, E. (1980). A pressure-solution kinetic theory of stylolites and metamorphic banding. *Geol. Soc. Am. Abs. with Progr.*, 12, 494-495.
- Ortoleva, P. y Ross, J. (1972). Local structures in chemical reactions with heterogeneous catalysis. *J. Chem. Phys.*, 56, 4397-4400.
- Ortoleva, P. y Ross, J. (1973). Phase waves in oscillatory chemical reactions. *J. Chem. Phys.*, 58, 5673-5680.
- Ortoleva, P. y Ross, J. (1974). On a variety of wave phenomena in chemical reactions. *J. Chem. Phys.*, 60, 5090-5107.
- Ortoleva, P. y Ross, J. (1975). Theory of propagation of discontinuities in kinetic systems with multiple scales. fronts, front multiplicity and pulses. *J. Chem. Phys.*, 63, 3398-3408.
- Ortoleva, P. y Schmidt, S. (1985). The variety and structures of chemical waves. In: *Oscillations and traveling waves in chemical systems*. (Field, R. J. y Burger, M., eds.). Wiley, New York, 333-413 pp.
- Ortoleva, P.; Auchmuty, G.; Chadam, J.; Hettmer, J.; Merino, E.; Moore, C. y Ripley, E. (1986a). Redox front propagation and banding modalities. *Physica*, 19D, 334-354.
- Ortoleva, P.; Chadam, J.; Merino, E. y Sen, A. (1987). Geochemical self-organization II. The reactive-infiltration instability. *Amer. J. Sci.*, 287, 1008-1040.
- Ortoleva, P.; Merino, E. y Strickholm, P. (1982). Kinetics of metamorphic layering in anisotropically stressed rocks. *Amer. J. Sci.*, 282, 617-643.
- Ortoleva, P.; Merino, E.; Moore, C. y Chadam, J. (1987). Geochemical self-organization I. reaction-transport feed-backs and modeling approach. *Amer. J. Sci.*, 287, 979-1007.
- Ortoleva, P.; Moore, C.; Chadam, J. y Hettmer, J. (1986b). Reactran user's manual. Available from Geo-Chem Research Associates.
- Ostwald, W. (1925). *Kolloid-Z.*, 36, 380.
- Prager, S. (1956). *J. Chem. Phys.*, 25, 279.
- Prigogine, I. y Nicolis, G. (1967). On symmetry-breaking instabilities in dissipative systems. *J. Chem. Phys.*, 46, 3547-3550.
- Reed, M. H. (1982). Calculation of multicomponent chemical equilibria and reaction processes in systems involving minerals, gases and an aqueous phase. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 4b, 513-528.
- Schmidt, S. y Ortoleva, P. (1977). A new chemical wave equation for ionic systems. *J. Chem. Phys.*, 67, 3771-3776.
- Schmidt, S. y Ortoleva, P. (1979). Multiples chemical waves induced by applied electric field. *J. Chem. Phys.*, 71, 1010-1015.
- Schmidt, S. y Ortoleva, P. (1980). Asymptotic solutions of the FKN chemical wave equation. *J. Chem. Phys.*, 72, 2733-2736.
- Schmidt, S. y Ortoleva, P. (1981). Electric field effects on propagating BZ waves. Predictions of an Oregonator and new pulse supporting models. *J. Chem. Phys.*, 74, 4488-4500.
- Turing, A. M. (1952). The chemical basis of morphogenesis. *Roy. Soc. London Philos. Trans. Ser.*, B237, 37-72.
- Wang, Y. y Merino, E. (1989). Textural self-organization of agate. dynamic modelling of crystallization. *28th. Internat. Geological Congress (Abs.)*, Washington, July 9-19.
- Wintsch, R. P. y Dunning, J. (1985). The effect of dislocation density on the aqueous solubility of quartz and some geological implications. a theoretical approach. *J. Geophys. Research*, 90, 3649-3657.
- Wolery, T. J. (1984). *EQ6. A computer code for reaction-path modeling of aqueous geochemical systems*. Lawrence Liver more National Lab., Livermore, CA.

Recibido el 18 de septiembre de 1989

Aceptado el 3 de octubre de 1989