

# 佛冈高分异 I 型花岗岩的成因: 来自 Nb-Ta-Zr-Hf 等元素的制约\*

陈璟元<sup>1,2</sup> 杨进辉<sup>1</sup>

CHEN JingYuan<sup>1,2</sup> and YANG JinHui<sup>1</sup>

1. 中国科学院地质与地球物理研究所岩石圈演化国家重点实验室, 北京 100029

2. 中国科学院大学, 北京 100049

1. State Key Laboratory of Lithospheric Evolution, Institute of Geology and Geophysics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029, China

2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

2014-05-20 收稿, 2014-12-15 改回.

**Chen JY and Yang JH. 2015. Petrogenesis of the Fogang highly fractionated I-type granitoids: Constraints from Nb, Ta, Zr and Hf. Acta Petrologica Sinica, 31(3):846–854**

**Abstract** Jurassic granitoids are widespread in the interior of South China. However, the genetic types of some plutons are still controversial. In this paper, we show an example (Fogang batholith) of how to distinguish I-, S- and A-type granitoids. Fogang batholith is the largest Jurassic granitic pluton, located in the Guangdong Province. With increasing differentiation, the contents of Nb and Ta progressively increase, whereas those of Zr and Hf show gradual decrease. Both Nb/Ta and Zr/Hf ratios show decrease with the fractionation of granitoids (15.3 ~ 3.6 and 38.9 ~ 17.3 respectively). Fractionation of zircons result in lower Zr/Hf ratio with strongly decreasing Zr concentration. Fractionation of amphibole and biotite produce decreased Nb/Ta ratio with the differentiation of granitoids. The Nb/Ta ratios of the Fogang granites correlate positively with Y/Ho ratios, indicating that the fluid also played a key role in the variation of the contents of Nb and Ta and Nb/Ta ratios in Fogang granitoids. The absence of Al-rich minerals and the negative correlation between Zr and P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> preclude the Fogang batholith to be S-type granite. Ga/Al and FeO<sup>T</sup>/MgO ratios correlate positively with the Ta and Nb contents, and Y/Ho and Nb/Ta ratios, implying that the high Ga/Al and FeO<sup>T</sup>/MgO ratios of Fogang granites result from fractionation and fluid-magma interaction. Therefore, the Fogang batholith is deduced to be metaluminous to slightly peraluminous I-type granitoids rather than A-type granites. This work highlights that the fluid-melt/rock interaction makes it difficult to directly define the genetic types of some granitic plutons.

**Key words** Zr/Hf and Nb/Ta; Granite; Geochemistry; Genetic classification; South China

**摘要** 华南南岭地区发育有大面积的与钨锡成矿相关的侏罗纪花岗岩,然而其中有些花岗岩的成因类型却难以确定。本文以佛冈岩体为例,结合前人已发表数据,对佛冈花岗岩体中 Nb、Ta、Zr 和 Hf 等元素的迁移特征及其原理进行探讨,并对佛冈花岗岩的成因类型进行了厘定。随着分异程度增加,佛冈花岗岩 Nb 和 Ta 含量增加, Nb/Ta (3.6 ~ 15.3) 和 Zr/Hf (17.3 ~ 38.9) 比值降低并发生分异。随着 Zr 含量的降低,佛冈花岗岩的 Zr/Hf 比值降低,这一特征表明锆石的分离结晶作用使得佛冈花岗岩的 Zr/Hf 比值分异。Nb/Ta 比值分异可能与角闪石和黑云母的分离结晶作用有关。随着 Nb/Ta 比值降低, Y/Ho 比值增加,这一特征表明佛冈花岗岩 Nb/Ta 比值的分异也和岩浆演化后期的流体有关。佛冈花岗岩不含原生的富铝矿物,为准铝质到弱过铝质岩石。随着分异程度增加,佛冈花岗岩 P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 含量降低,表明它不是 S 型花岗岩。随着 Y/Ho 比值增加和 Nb/Ta 和 Zr/Hf 比值降低,佛冈花岗岩 Ga/Al 和 FeO<sup>T</sup>/MgO 比值增加,从典型 I 型花岗岩特征演化到类似 A 型花岗岩的地球化学特征。因此,我们认为佛冈花岗岩不是 A 型花岗岩而是高分异的 I 型花岗岩。区域上与成矿相关的流体和花岗质岩浆的相互作用和分离结晶作用,使得华南南岭地区的花岗岩地球化学特征复杂,所以其成因类型也变的难以确定。

**关键词** Zr/Hf 和 Nb/Ta; 花岗岩; 地球化学; 岩石成因; 华南

**中图法分类号** P581; P588.121

\* 本文受国家 973 计划项目(2012CB416702)资助。

第一作者简介: 陈璟元,男,1985 年生,博士生,岩石学专业, E-mail: chenjingyuan999@gmail.com

花岗岩是大陆地壳的主要组成部分,记录着大陆地壳形成、演化、增生、改造和壳-幔相互作用过程的丰富信息。通过前人的研究,以岩浆源区性质区分的 I、S 型花岗岩分类方案被大部分学者所接受。加上目前经常讨论的 A 型花岗岩和较为少见的 M 型花岗岩, MISA 是目前最常用的花岗岩分类方案(吴福元等, 2007)。角闪石、堇青石和碱性暗色矿物是判别 I、S 和 A 型花岗岩的重要矿物学标志,而白云母和石榴石并不是鉴定 S 型花岗岩的有效标志(吴福元等, 2007)。然而,无论是 I 型、A 型或者 S 型花岗岩,当它们经历了强烈的分离结晶作用之后,其矿物组成和化学成分都趋近于低共结花岗岩,使得花岗岩的成因类型难以确定。例如,我国华南南岭地区一些与成矿相关的侏罗纪花岗质岩石的成因类型一直以来都难以确定(李献华等, 2007),由于经历了强烈的分离结晶作用,这些花岗质岩石的源岩的性质很难限定。一个典型的实例是佛冈岩体中的钙碱性花岗质岩石,不同研究者从不同角度将其划分为 S 型(陈小明等, 2002)、I 型(庄文明等, 2000; Li *et al.*, 2007)和铝质 A 型花岗岩(包志伟和赵振华, 2003)。前人的研究工作对南岭花岗岩的源岩性质较为关注,而忽视了岩浆演化过程对岩石地球化学特征的影响,只有揭示出岩浆演化过程对岩石地球化学特征的改造机理才能更深刻的理解这些花岗岩的成因。

Nb 和 Ta、Zr 和 Hf 都是高场强元素,分别具有相同的离子价态(Nb 和 Ta 为 +5 价; Zr 和 Hf 为 +4 价)和相似的离子半径( $r_{\text{CN},6}^{\text{Nb}} = 0.72$ ,  $r_{\text{CN},6}^{\text{Ta}} = 0.71$ ,  $r_{\text{CN},6}^{\text{Zr}} = 0.64$ ,  $r_{\text{CN},6}^{\text{Hf}} = 0.64$ ),因此它们被认为具有相似的地球化学行为。前人研究表明, Nb/Ta 和 Zr/Hf 比值相对稳定,与地幔演化相关的岩浆过程中很难发生分馏(Hofmann, 1988),球粒陨石的 Nb/Ta 和 Zr/Hf 比值较高(Nb/Ta =  $19.9 \pm 0.6$ , Zr/Hf =  $34.3 \pm 0.3$ )(Münker *et al.*, 2003), MORB 和 OIB 都是具有相近的低于球粒陨石值的 Nb/Ta 比值(前者约为 14.2, 后者约为  $15.9 \pm 0.6$ )(Münker *et al.*, 2003; Pfänder *et al.*, 2007), MORB 和 OIB 具有高于球粒陨石的 Zr/Hf 比值(34 ~ 42)(Buchl *et al.*, 2002; Pfänder *et al.*, 2007)。大陆地壳的平均 Nb/Ta 比值为 13.4 左右, Zr/Hf 比值为 36.7 左右(Rudnick and Gao, 2004),均低于球粒陨石的值。由此可见,在大陆地壳分异和演化过程中, Nb/Ta 和 Zr/Hf 比值并非完全固定,彼此之间可能会发生分异(Dostal and Chatterjee, 2000)。如, Hoffmann *et al.* (2011)通过对太古代 TTG 的研究认为,麻粒岩相下地壳部分熔融会产生具有较高 Nb/Ta 比值的岩浆,这些岩浆通过底侵到达中地壳,然后经过分异形成具有低 Nb/Ta 比值的上地壳。然而, Nb/Ta 和 Zr/Hf 分异的机制一直以来都存在争议(Huang *et al.*, 2011),如有些学者认为分异是由于相关矿物分离结晶或者在高压下残留造成(Münker *et al.*, 2004),而有些学者认为可能是流(熔)体和岩浆相互作用形成的(Green, 1995; Dostal and Chatterjee, 2000),还有学者认为在超临界流体媒介下热扩散能使得 Nb 和 Ta 在低温部位发生重大分异(Ding *et al.*, 2009)。

本文以佛冈岩体为例,结合前人发表的地球化学数据,对佛冈花岗岩的 Nb、Ta、Zr 和 Hf 等元素的迁移特征及 Nb/Ta 和 Zr/Hf 分异的原理进行探讨,进而对佛冈花岗质岩石的成因类型进行限定。

## 1 岩石学特征及研究现状

我国华南分布大面积的中生代花岗质岩石,其中南岭地区主要发育侏罗纪花岗岩,而沿海地区主要发育白垩纪花岗岩(图 1)(Zhou *et al.*, 2006)。南岭地区侏罗纪花岗岩的矿物组成极为简单,主要由石英和两种长石组成,有时会含有少量的白云母和石榴石。这些侏罗纪花岗岩主要包括黑云母二长花岗岩和黑云母钾长花岗岩,以及少量的角闪石花岗岩,二云母花岗岩和石榴石花岗岩。它们具有高的  $\text{SiO}_2$  和  $\text{K}_2\text{O}$  含量,高的 K/Na 比值,与众多大型 W、Sn、Nb、Ta 和 REE 矿床相伴生(毛景文等, 2007)。花岗岩和矿之间有密切的时间、空间和成因上的联系,使得这些花岗岩的成因一直以来都受到广大研究者的关注(Zhou *et al.*, 2006)。

广东佛冈复式岩体, 出露面积为 5000 ~ 6000  $\text{km}^2$ , 是南岭地区最大的复式岩基(陈小明等, 2002; 徐夕生等, 2007)(图 1)。前人对佛冈岩体的研究表明,佛冈岩体主体岩性为中粗粒斑状黑云母花岗岩、中粗粒黑云母二长花岗岩,局部出露含角闪石的花岗闪长岩,另外也出露一些闪长岩和辉长岩,它们侵入到早侏罗世砂页岩中(包志伟和赵振华, 2003)。Li *et al.* (2007)通过锆石 U-Pb 定年确定佛冈岩体形成于  $161 \pm 4 \text{Ma}$ 。佛冈岩体受到不同研究者的重视,主要有以下三点原因:(1)佛冈岩体呈东西向展布,不同与沿海的花岗岩体的北东向展布(庄文明等, 2000; 陈小明等, 2002; 包志伟和赵振华, 2003);(2)多期次不同来源的岩石相互伴生,对认识佛冈花岗岩的成因、壳幔相互作用、岩浆分异或混合等问题有重要意义(庄文明等, 2000; 陈小明等, 2002; 包志伟和赵振华, 2003; 徐夕生等, 2007);(3)佛冈岩体经历过强烈的分异作用,很难确定它是 S 型、I 型还是 A 型,为花岗岩成因分类标准的确立具有很好的指导意义(Li *et al.*, 2007)。

佛冈花岗岩具有高硅、低镁、富碱的特征,为准铝质到弱过铝质。这些特征与中-基性岩石经过部分熔融实验产生的熔体特征相似,表明佛冈岩体中的钙碱性花岗岩由地壳物质部分熔融形成(陈小明等, 2002; 包志伟和赵振华, 2003; 徐夕生等, 2007; Li *et al.*, 2007)。佛冈花岗岩与少量基性岩相伴生,它的 Sr-Nd-Hf 同位素组成变化较大,这些特征表明佛冈花岗岩在形成过程中有地幔物质的参与(Li *et al.*, 2007),这些地幔物质为佛冈花岗岩的形成提供了热源和物源。由此可见,地幔来源的热基性岩浆底侵,诱发了中-下地壳岩石的部分熔融,地幔来源的基性岩浆与地壳部分熔融形成的酸性岩浆互相混合形成了佛冈花岗岩(Li *et al.*, 2007)。前人认为由于佛冈花岗岩的母岩浆经历了强烈的分

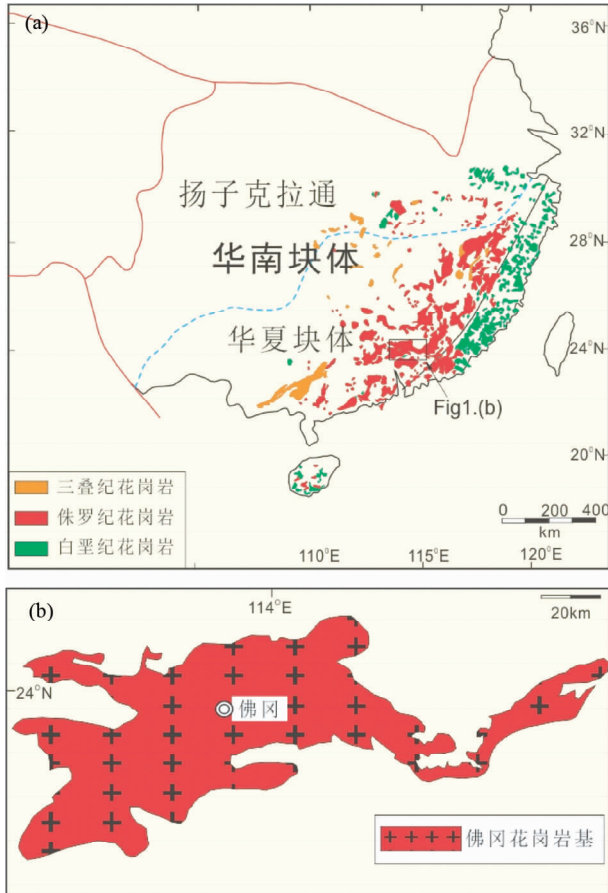


图1 华南块体简图及中生代花岗岩分布简图(a)和佛冈岩体简图(b,据 Li *et al.*, 2007 修改)

Fig.1 Simplified geological map of South China, showing major tectonic units and Mesozoic intrusions (a) and geological map of the Fogang batholith (b, modified after Li *et al.*, 2007)

离结晶作用,使得确定其原始岩浆的地球化学特征变得困难,以至于很难厘定佛冈花岗岩的成因类型(陈小明等, 2002; 包志伟和赵振华, 2003; 徐夕生等, 2007; Li *et al.*, 2007)。

## 2 地球化学特征

佛冈花岗岩为准铝质到弱过铝质( $ACNK = 0.89 \sim 1.13$ )岩石,有较大的主量元素变化范围,其中 $SiO_2$ 含量为63.5%~77.3%, $Al_2O_3$ 含量为11.7%~16.1%, $MgO$ 含量为0.08%~2.99%, $Fe_2O_3$ 为1.4%~6.4%, $CaO$ 为0.47%~4.95%(Li *et al.*, 2007)。它的 $K_2O$ 含量较高(3.1%~5.9%),而 $Na_2O$ 的含量一般都小于 $K_2O$ 的含量(陈小明等, 2002; 包志伟和赵振华, 2003; Li *et al.*, 2007)。

随着 $SiO_2$ 含量的增加,花岗岩通常会经历一个由Zr不饱和向Zr饱和演化的过程,这一过程与岩浆演化的趋势相

一致。因此,本文将佛冈花岗岩的部分主微量元素和Zr含量做了相关图解,进而对其岩浆演化过程进行揭示。随着Zr含量的降低, $Al_2O_3$ 、 $TiO_2$ 、 $Fe_2O_3$ 、 $MgO$ 、 $MnO$ 、 $CaO$ 、 $P_2O_5$ 、Sr和Ba的含量降低, $K_2O$ 和Rb的含量增加(Li *et al.*, 2007)。此外,随着Zr含量的降低,Hf、Ga和La的含量降低(图2)。这些特征都表明佛冈花岗岩在岩浆演化过程中经历了镁铁质矿物、长石、铁钛氧化物、磷灰石和锆石的分离结晶(Li *et al.*, 2007)。随着岩浆分异程度的增加,佛冈花岗岩的稀土元素含量降低,而且显示出四分组效应的特征,可能和独居石、榍石、褐帘石和磷灰石等副矿物的分离结晶有关(Li *et al.*, 2007)。随着岩浆分异程度的增加,岩浆中的微量元素,特别是赋存在特定矿物中的微量元素(如Zr和Hf一般只赋存在锆石之中,LREEs主要赋存在独居石和帘石族矿物之中)的含量都降低(图2)。

随着佛冈花岗岩的演化,Nb的含量略有增加,Ta的含量基本不变(图2),Nb/Ta比值逐渐降低,而且Nb/Ta比值变化范围较大(3.6~15.3),不同于球粒陨石的值(~19.9)(Münker *et al.*, 2003),发生了明显的分异,部分样品的Nb/Ta比值远低于上地壳的平均值(~13.4)(Rudnick and Gao, 2004)。随着佛冈花岗岩Nb和Ta含量的增加,岩石的 $TiO_2$ 含量降低(图2),显示富Ti矿物的分离结晶并没有使得岩浆中的Nb和Ta含量降低。Zr和Hf主要富集在锆石中,Zr和Hf元素在花岗岩中含量的降低往往和Zr饱和之后的锆石分离结晶相互联系(Watson and Harrison, 1983, 1984)。随着Zr含量的降低,Zr/Hf比值也降低。佛冈花岗岩的Zr/Hf比值变化较大(17.3~38.9),不同于球粒陨石的组成(~34.3; Münker *et al.*, 2003),发生了明显的分异,Zr/Hf比值显著低于大陆地壳的平均值(~36.7; Rudnick and Gao, 2004)。佛冈岩体随着演化程度增加,Nb/Ta和Zr/Hf比值降低并发生分异的趋势与华南的含Nb-Ta矿的花岗岩类似(图2)。

## 3 Nb/Ta和Zr/Hf分异的控制因素

佛冈花岗岩的地球化学特征显示,其母岩浆在演化过程中经历了强烈的分离结晶作用。随着分离结晶作用的进行,Zr和Hf的含量逐渐降低。对主要的造岩矿物而言,它们的分离结晶会对岩浆的Nb/Ta和Zr/Hf比值产生一定的影响(Münker *et al.*, 2004),但由于其不是Zr和Hf的主要载体,它们的分离结晶作用只会对岩浆的Zr/Hf比值产生微弱的影响(Münker *et al.*, 2004)。锆石是花岗质岩石中Zr和Hf的主要载体,当岩石达到Zr饱和而分离出锆石时,岩石的Zr和Hf含量会逐渐降低。由于锆石具有较高的Zr/Hf比值(普遍高于40),当锆石发生分离结晶作用的时候,残余岩浆的Zr/Hf比值会逐渐降低。前人的研究表明,佛冈花岗岩主要由古老的下地壳部分熔融形成,而且有少量的地幔物质和上地壳物质的参与(Li *et al.*, 2007)。由于地幔物质具有较高的Zr/Hf比值和较低的Zr含量,地幔物质的参与会使得佛

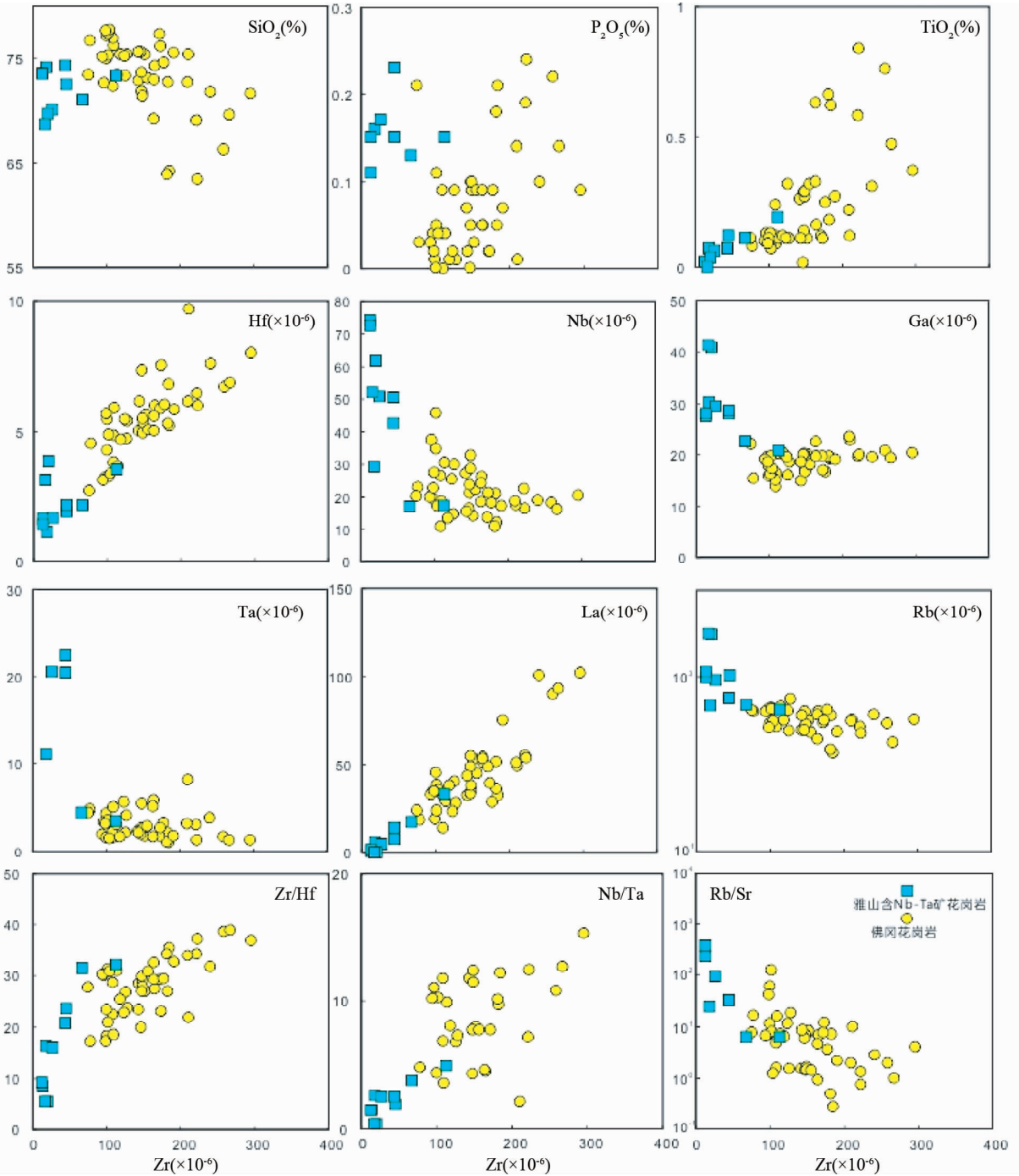


图2 佛冈岩体中 Zr 含量和 SiO<sub>2</sub>、P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>、TiO<sub>2</sub>、Hf、Nb、Ga、Ta、La、Rb、Zr/Hf、Nb/Ta 和 Rb/Sr 相关性图解

佛冈花岗岩数据来自庄文明等, 2000; 包志伟和赵振华, 2003; Li *et al.*, 2007; 雅山含 Nb-Ta 矿花岗岩数据来自李洁和黄小龙, 2013. 图3、图4 数据来源同此图

Fig.2 Variations of Zr vs. SiO<sub>2</sub>, P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, TiO<sub>2</sub>, Hf, Nb, Ga, Ta, La, Rb, Zr/Hf, Nb/Ta and Rb/Sr ratios of the rocks from Fogang batholith

Data of Fogang granites from Zhuang and Chen, 2000; Bao and Zhao, 2003; Li *et al.*, 2007; data of Nb-Ta mineralized Yashan granites from Li and Huang, 2013. The data sources of Fig. 3 and Fig. 4 are the same as those in this figure

冈花岗岩具有较高的 Zr/Hf 比值和低的 Zr 含量, 而不会产生随着 Zr 含量降低 Zr/Hf 比值降低的趋势。所以, 佛冈花岗岩 Zr/Hf 分异是因为锆石的分离结晶作用产生的。类似佛冈岩

体 Zr/Hf 分异的例子, 前人在苏州花岗岩体和崂山花岗岩体中也曾经报道过 (Wang *et al.*, 1996, 1997)。锆石作为 Zr 和 Hf 的主要载体矿物是花岗岩中最常见的副矿物之一, 前

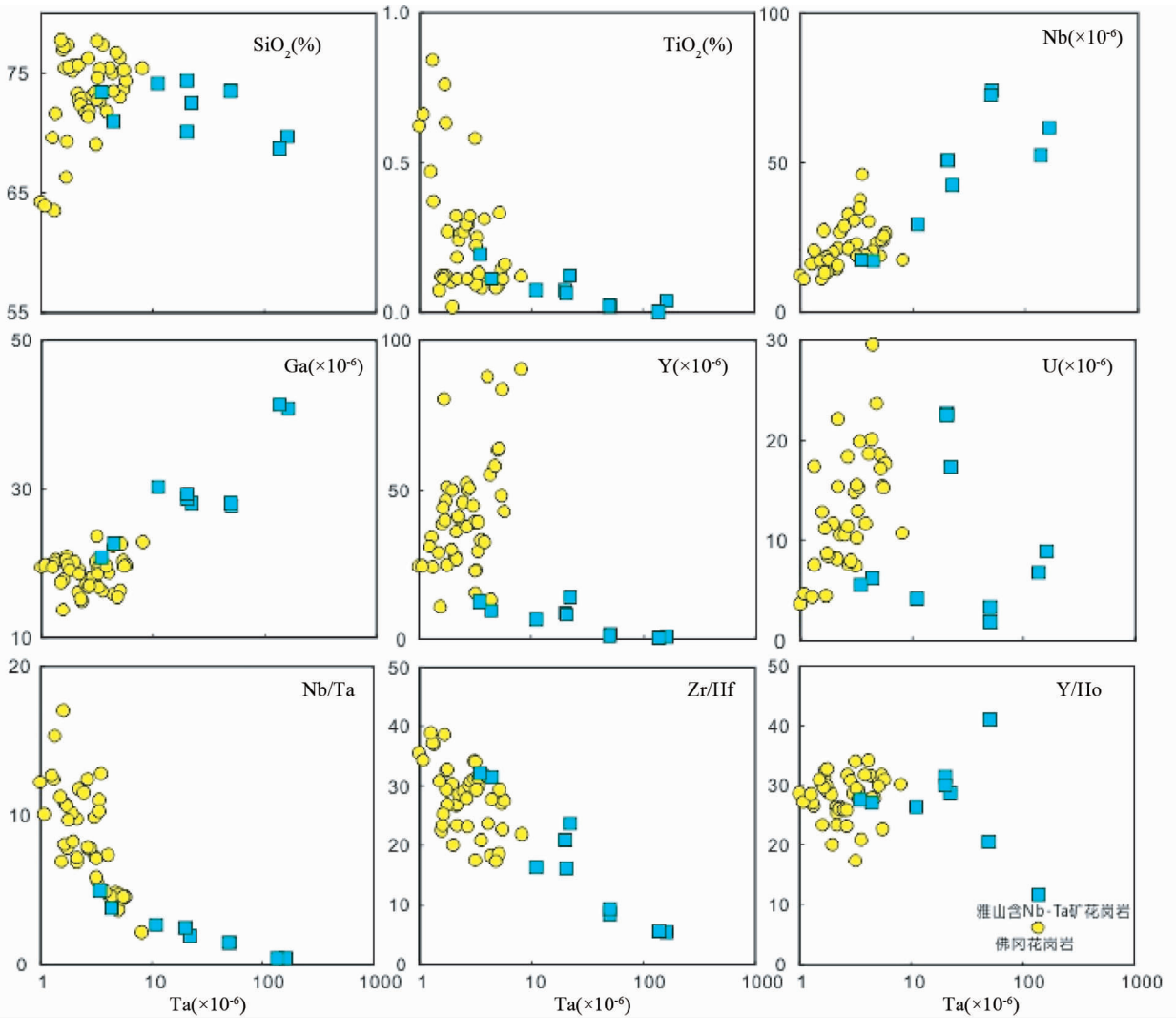


图3 佛冈岩体中 Ta 含量和  $\text{SiO}_2$ 、 $\text{TiO}_2$ 、Nb、Ga、Y、U、Zr/Hf、Nb/Ta、Zr/Hf 和 Y/Ho 相关性图解

Fig. 3 Variations of Ta vs.  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{TiO}_2$ , Nb, Ga, Y, U, Zr/Hf, Nb/Ta, Zr/Hf and Y/Ho ratios of the rocks from Fogang batholith

人认为锆石的分离结晶使得整个岩浆产生了 Zr/Hf 分异 (Wang *et al.*, 1996, 1997)。前人对苏州岩体的锆石的研究表明其边部相对于核部富集 Hf (Wang *et al.*, 1996, 1997)。前人认为,随着岩浆分异程度的增加,Zr 与 Hf 的置换比例增大,随着 Hf 含量升高,Zr/Hf 比值降低。佛冈花岗岩的 Zr/Hf 和 Y/Ho 比值呈正相关,随着 Y/Ho 比值增加,Zr/Hf 比值降低,显示出岩浆 Zr/Hf 比值的分异也和岩浆演化晚期的流体有关。伟晶岩的研究也表明,Zr/Hf 的分异与成矿流体的加入有关 (Zhang *et al.*, 2008)。

随着分异程度的增加,佛冈花岗岩 Nb 含量逐渐增加,这一特征表明在富 Ti 矿物的分离结晶过程中,Nb 和 Ta 并没有大量的进入到已经被分离掉的富 Ti 矿物中,Nb 和 Ta 主要残留在残余岩浆之中。随着 Nb 和 Ta 含量的增加,Nb/Ta 比值逐渐降低。虽然佛冈花岗岩由地幔岩浆和地壳岩浆经过

混合形成,然而地幔岩浆具有高的 Nb/Ta 比值和低的 Nb 含量,地幔物质的参与也无法解释随着 Nb/Ta 比值降低,Nb 和 Ta 含量升高的趋势(图 3)。与球粒陨石相比,上地壳物质具有相对较低的 Nb/Ta 和 Zr/Hf 比值和低的 Nb 和 Ta 含量,上地壳物质的混染,也很难解释 Nb 和 Ta 含量随着 Nb/Ta 比值降低而增加的趋势。因此,地幔物质的混合以及上地壳物质的混染都不能解释佛冈花岗岩 Nb 和 Ta 含量随着 Nb/Ta 比值降低而增加的变化趋势(图 3)。角闪石是花岗岩演化后期主要发生分离结晶的镁铁质矿物之一,研究表明对低镁角闪石而言, $D_{\text{Nb/Ta}}$  大于 1,低镁角闪石的分离结晶会降低残余岩浆的 Nb/Ta 比值,其分离结晶作用可能使得佛冈花岗岩 Nb/Ta 比值降低 (Pfänder *et al.*, 2007)。最新的研究表明,黑云母分离结晶会使得花岗岩岩浆富集 Ta,而且会使得岩浆的 Nb/Ta 比值升高 (Stepanov and Hermann, 2013; Stepanov

*et al.*, 2014)。金红石和钛铁矿也是 Nb 和 Ta 的重要载体矿物, Linnen and Keppler (1997) 认为 Nb/Ta 的分异和富 Nb、Ta 副矿物的分离结晶有关。由于对金红石和钛铁矿来说,  $D_{Nb/Ta}$  小于 1, 少量金红石和钛铁矿的分离结晶会使残余岩浆的 Nb 含量降低, Nb/Ta 比值升高。佛冈花岗岩随着分异程度增加, Ti 含量降低, Nb 含量增加, Nb/Ta 比值降低, 说明金红石和钛铁矿的分离结晶作用并不能使得佛冈花岗岩的 Nb/Ta 比值降低 (Pfänder *et al.*, 2007)。角闪石和黑云母的分异结晶可能是佛冈花岗岩 Nb/Ta 分异的重要机制。

在 Nb-Y/Ho 和 Nb-Ta-Y/Ho 图解上, 随着 Nb 含量的增加和 Nb/Ta 比值的降低, Y/Ho 比值增加, 因此花岗岩中 Nb 和 Ta 元素的富集与其岩浆体系发生高度分异演化形成的流体相关。Green (1994) 认为, 岩浆演化后期的流体促使分异晚期的岩浆更容易富集 Ta 而不是 Nb, 使得岩浆的 Nb/Ta 比值随着演化程度的增加而降低。前人对富含 Nb-Ta 矿的花岗岩的研究表明, 随着稀有金属花岗岩的演化, 整个岩浆的 Li、F 和 P 元素的含量增加, 降低了岩浆的粘度和固相线的温度, 使得 Nb、Ta 等金属阳离子在硅酸盐熔体中的溶解度增加, 从而导致 Nb 和 Ta 逐渐富集。Ta<sup>5+</sup> 的离子半径 (0.73 Å) 略大于 Nb<sup>5+</sup> 的离子半径 (0.70 Å), 其与 O 形成更强的共价键, 相较于 Nb<sup>5+</sup> 更易保留在熔体中 (Linnen, 1998), 使得 Nb/Ta 比值在岩浆演化过程中逐渐降低。然而近年来越来越多的研究发现, 这些低 Nb/Ta 特征的岩石往往都出现在岩体的边部, 从岩体核部到边部的 Ta 含量增加而 Nb/Ta 比值降低 (Dostal and Chatterjee, 2000)。如果岩浆演化晚期出现的流体更富集 Ta, 那么 Ta 富集和 Nb/Ta 比值较低的岩石应该出现在岩体的核部才对, 这一点明显和地质事实不符。虽然一些学者对富 F 流体使得花岗质岩浆产生 Nb/Ta 分异的观点持怀疑态度 (Fiege *et al.*, 2011), 富 F 和 Nb 的流体仍可能是造成岩浆演化到晚期富集 Nb 和 Nb/Ta 分异的主要原因 (Anderson *et al.*, 2013)。最近, Ding *et al.* (2014) 提出了富 F 流体中 Nb 和 Ta 的“自分异效应”, 认为富 F 流体萃取了花岗岩中的 Nb 和 Ta, 形成稳定的酸基络合物, 由于两者酸基络合物具有不一致的水解特点, 导致在应对温度、压力等环境变化时, 流体自身的 Nb/Ta 比值发生了显著变化。Ding *et al.* (2009) 通过热迁移实验证明了在中酸性岩浆体系中以超临界流体为媒介, 热梯度也能驱使 Nb 和 Ta 在低温部位发生重大分异。无论哪种机制, 毫无疑问佛冈花岗岩 Nb/Ta 比值随着花岗岩分异程度增加而降低的趋势和流体有着密切的关系。结合区域上的钨锡成矿作用, 我们认为在佛冈花岗岩演化的晚期, 区域上与钨锡成矿作用相关的富 F 的碱性流体的参与使得佛冈花岗岩产生了 Nb/Ta 比值的分异 (Linnen, 1998)。

佛冈花岗岩在演化的后期, 经历了强烈的结晶分异作用, 并受到了流体的改造。由于锆石的分离结晶, 使得佛冈花岗岩的 Zr/Hf 比值发生分异; 而角闪石和云母的分异结晶和岩浆-流体相互作用使得佛冈花岗岩产生了 Nb/Ta 比值分

异, 而且使得晚期岩浆富集高场强元素。

## 4 花岗岩成因类型的限定

花岗岩成因类型的限定是华南南岭地区侏罗纪花岗岩研究中存在争议的问题之一, 一个花岗岩体经常被不同的研究者定义为 I 型、A 型或者 S 型, 以至于对它们的成因和构造背景都有不同的解释。I 和 S 型花岗岩的分类基于源区岩石的性质 (Chappell and White, 1974), 而 A 型花岗岩主要通过特征性的地球化学指标来判定 (如高的 Ga/Al、FeO<sup>T</sup>/MgO 比值和 HFSE 元素含量) (Whalen *et al.*, 1987)。由于佛冈花岗岩具有复杂的地球化学特征, 不同的研究者将其确定为 I、S 或 A 型花岗岩。然而确定花岗岩类型的关键并不是花岗岩本身所具有的地球化学特征, 而取决于花岗岩的母岩浆所具有的初始的地球化学特征。

前人研究表明, 由于佛冈花岗岩经历了强烈的分异, 其成因类型难以确定。佛冈花岗岩具有较大的主量元素变化范围 (SiO<sub>2</sub> 含量为 63.5% ~ 77.3%), 这一特征表明分异强弱并不是佛冈花岗岩成因类型难以确定的主要原因。岩浆演化后期的分异作用和流体作用使得佛冈岩体富集高场强元素 (HFSE), 这些地球化学特征是岩浆演化到后期被改造的结果, 而不是花岗岩初始母岩浆的特征, 所以这些特征不能用来直接判定花岗岩的成因类型。

佛冈岩体具有高的 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/(MgO + FeO<sup>T</sup>) 和 CaO/(MgO + FeO<sup>T</sup>) 比值, 前人认为这一特征类似于变质沉积岩部分熔融形成的熔体, 所以前人认为佛冈花岗岩的源岩为沉积岩 (徐夕生等, 2007)。然而, 熔融实验产生的熔体的 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/(MgO + FeO<sup>T</sup>) 和 CaO/(MgO + FeO<sup>T</sup>) 比值主要由源区的富 Al 和 Ca 的矿物和铁镁矿物的比例控制, 如果源区的火成岩富集斜长石而只含有少量的辉石等镁铁矿物, 熔融形成的熔体也会具有高的 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/(MgO + FeO<sup>T</sup>) 和 CaO/(MgO + FeO<sup>T</sup>) 比值 (如高铝玄武岩或堆晶角闪辉长岩熔融产生的熔体)。Sisson *et al.* (2005) 通过部分熔融实验产生的熔体具有高的 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/(MgO + FeO<sup>T</sup>) 和 CaO/(MgO + FeO<sup>T</sup>) 比值, 而它的源岩恰恰是火成岩。另外, 受到变质沉积岩混染的花岗岩的母岩浆也会具有高的 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/(MgO + FeO<sup>T</sup>) 和 CaO/(MgO + FeO<sup>T</sup>) 比值, 而它的母岩浆的源岩也是火成岩。因此, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/(MgO + FeO<sup>T</sup>) 和 CaO/(MgO + FeO<sup>T</sup>) 比值并不能有效的确定佛冈岩体的源岩是沉积岩还是火成岩。通过岩相学和地球化学研究, 我们认为佛冈花岗岩不是变质沉积岩部分熔融形成的 S 型花岗岩, 主要原因有以下二点。第一, 从岩相学角度来看, 佛冈花岗岩不含有典型的 S 型花岗岩所含有的特征性的富铝矿物, 如堇青石、石榴石和原生的白云母等 (李献华等, 2007)。佛冈岩体与世界范围内被划分为 S 型的花岗岩 (如澳大利亚拉克兰造山带和欧洲的海西造山带的花岗岩) 的矿物的组成有明显的不同, 缺少特征性的富铝矿物。南岭地区燕山期的少量花岗岩体中虽含有少量的石榴石或者白

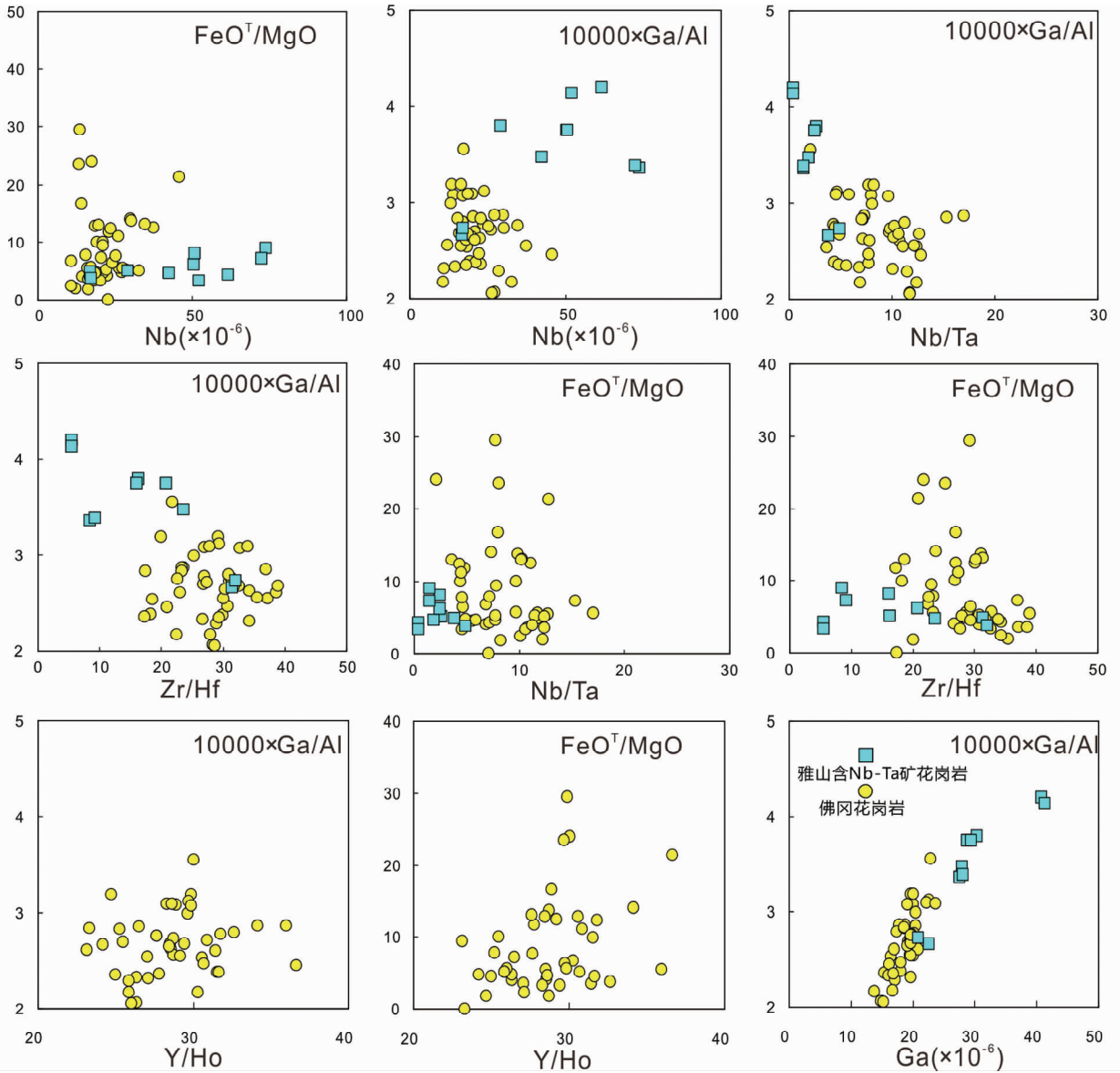


图4 佛冈岩体中  $10000\text{Ga}/\text{Al}$  以及  $\text{FeO}^{\text{T}}/\text{MgO}$  和  $\text{Ta}$ 、 $\text{Ga}$ 、 $\text{Nb}/\text{Ta}$ 、 $\text{Zr}/\text{Hf}$  和  $\text{Y}/\text{Ho}$  相关性图解

Fig. 4 Variations of  $10000\text{Ga}/\text{Al}$  or  $\text{FeO}^{\text{T}}/\text{MgO}$  vs.  $\text{Ta}$ ,  $\text{Ga}$ ,  $\text{Nb}/\text{Ta}$ ,  $\text{Zr}/\text{Hf}$  and  $\text{Y}/\text{Ho}$  ratios of the rocks from Fogang batholith

云母,但研究表明这些石榴子石以富  $\text{Mn}$ 、 $\text{Fe}$  和贫  $\text{Mg}$ 、 $\text{Ca}$  为特征,白云母以高  $\text{Fe}$  和低  $\text{Al}$ 、 $\text{Na}$  为特征,它们都是岩浆高度结晶分异演化的产物,不同于典型的 S 型花岗岩中原生的石榴石和白云母的组成(于津海等, 2004)。第二,从地球化学的角度来看,佛冈岩体为准铝质到弱过铝质 ( $A/\text{CNK} = 0.89 \sim 1.13$ ),并没有变质沉积岩发生部分熔融形成熔体的强过铝质的特征。随着分异程度的增加, S 型花岗岩的  $\text{P}_2\text{O}_5$  含量会出现升高的趋势(李献华等, 2007),而佛冈花岗岩的  $\text{P}_2\text{O}_5$  含量随着分异程度的增加而降低,不同于 S 型花岗岩(李献华等, 2007)。

佛冈花岗岩具有高  $\text{Ga}/\text{Al}$  和  $\text{FeO}^{\text{T}}/\text{MgO}$  比值,高 HFSE 元素含量,大部分样品点落在了 Whalen *et al.* (1987) 的花岗岩判别图解中的 A 型花岗岩区域,所以有一些研究者认为佛

冈花岗岩是 A 型花岗岩(包志伟和赵振华, 2003)。然而随着岩浆分异程度的增加,岩浆的  $\text{Ga}/\text{Al}$  和  $\text{FeO}^{\text{T}}/\text{MgO}$  比值会逐渐增加,常常会使得一些高分异的 I 型花岗岩落入 A 型花岗岩的范围(Eby, 1992)。因此,佛冈岩体是不是 A 型花岗岩的关键在于佛冈岩体类似 A 型花岗岩的特征(高  $\text{Ga}/\text{Al}$ 、 $\text{FeO}^{\text{T}}/\text{MgO}$  比值和 HFSE 元素含量)是初始部分熔融产生的岩浆还是后期的岩浆分异过程或者流体改造形成的特征。一般来说在花岗岩成因类型鉴别过程中,相对基性的端元能够更为有效的指示花岗岩的成因类型(吴福元等, 2007)。在  $\text{Ta}$ - $10000\text{Ga}/\text{Al}$ 、 $\text{Ta}$ - $\text{FeO}^{\text{T}}/\text{MgO}$ 、 $\text{Nb}/\text{Ta}$ - $10000\text{Ga}/\text{Al}$  和  $\text{Nb}/\text{Ta}$ - $\text{FeO}^{\text{T}}/\text{MgO}$  图解上,随着演化程度的增加, $\text{Ga}/\text{Al}$  和  $\text{FeO}^{\text{T}}/\text{MgO}$  比值增加(图 4),佛冈岩体的初始岩浆具有低的  $\text{Ga}/\text{Al}$  和  $\text{FeO}^{\text{T}}/\text{MgO}$  比值,应该属于 I 型花岗岩。在  $\text{Y}/\text{Ho}$ - $\text{Ga}/\text{Al}$ ,

Y/Ho-FeO<sup>T</sup>/MgO 和 Y/Ho-Ta 图解上, 随着 Y/Ho 比值增加, Ga/Al 和 FeO<sup>T</sup>/MgO 比值以及 Ta 含量都显著增加 (图 4)。这一特征表明, 流体与岩浆的相互作用使得佛冈花岗岩具有高的 Ga/Al 和 FeO<sup>T</sup>/MgO 比值以及高的 HFSE 元素含量, 显示出 A 型花岗岩的特征。佛冈岩体的初始岩浆具有 I 型花岗岩的特征, 其特殊的地球化学特征是岩浆演化后期和流体相互作用的结果。南岭地区广泛分布有侏罗纪与高分异花岗岩相关的钨锡矿床, 钨锡成矿作用被认为是花岗岩高度分异演化、成矿元素和碱质以及挥发组份高度富集的结果, 这些流体可能和区域钨锡成矿相关。

因此, 佛冈岩体是钙碱性的 I 型花岗岩, 由火成岩部分熔融形成, 经历了岩浆混合和分离结晶作用, 其地球化学特征受到了晚期流体作用的改造, 而这一过程也改变了岩石的地球化学特征, 使得花岗岩的成因类型难以确定。

## 5 结论

佛冈花岗岩在演化晚期经历了强烈的分离结晶作用和岩浆-流体相互作用, 使其相对富集高场强元素, 并产生了较大的 Nb/Ta 和 Zr/Hf 分异, 地球化学特征变得复杂。我们认为流体和花岗岩的相互作用是佛冈岩体成因类型难以确定的根本原因, 佛冈岩体是高分异的 I 型花岗岩, 而不是 S 型或 A 型花岗岩。

**致谢** 感谢两位匿名审稿人的评审并提出宝贵的修改意见, 谨此致谢。

## References

Anderson MO, Lentz DR, McFarlane CRM and Falck H. 2013. A geological, geochemical and textural study of an LCT pegmatite: Implications for the magmatic versus metasomatic origin of Nb-Ta mineralization in the Moose II pegmatite, Northwest Territories, Canada. *Journal of Geosciences*, 58(4): 299–320

Bao ZW and Zhao ZH. 2003. Geochemistry and tectonic setting of the Fugang aluminous A-type granite, Guangdong Province, China: A preliminary study. *Geology-Geochemistry*, 31(1): 52–61 (in Chinese with English abstract)

Büchl A, Münker C, Mezger K and Hofmann AW. 2002. High-precision Nb/Ta and Zr/Hf ratios in global MORB. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 66(15A): A108–A108

Chappell BW and White AJR. 1974. Two contrasting granite types. *Pacific Geology*, 8: 173–174

Chen XM, Wang RC, Liu CS, Hu H, Zhang WL and Gao JF. 2002. Isotopic dating and genesis for Fogang biotite granites of Conghua area, Guangdong Province. *Geological Journal of China Universities*, 8(3): 293–307 (in Chinese with English abstract)

Ding X, Lundstrom C, Huang F, Li J, Zhang ZM, Sun XM, Liang JL and Sun WD. 2009. Natural and experimental constraints on formation of the continental crust based on niobium-tantalum fractionation. *International Geology Review*, 51(6): 473–501

Ding X, Wang YR and Sun WD. 2014. Hydrolysis of niobium and tantalum fluoride complexes: Implication on Nb/Ta fractionation. *Goldschmidt, 2014 Abstract*, 560

Dostal J and Chatterjee AK. 2000. Contrasting behaviour of Nb/Ta and Zr/Hf ratios in a peraluminous granitic pluton (Nova Scotia, Canada). *Chemical Geology*, 163(1–4): 207–218

Eby GN. 1992. Chemical subdivision of the A-type granitoids: Petrogenetic and tectonic implications. *Geology*, 20(7): 641–644

Fiege A, Kirchner C, Holtz F, Linnen RL and Dziony W. 2011. Influence of fluorine on the solubility of manganotantalite (MnTa<sub>2</sub>O<sub>6</sub>) and manganocolumbite (MnNb<sub>2</sub>O<sub>6</sub>) in granitic melts: An experimental study. *Lithos*, 122(3–4): 165–174

Green TH. 1994. Experimental studies of trace-element partitioning applicable to igneous petrogenesis-Sedona 16 years later. *Chemical Geology*, 117(1–4): 1–36

Green TH. 1995. Significance of Nb/Ta as an indicator of geochemical processes in the crust-mantle system. *Chemical Geology*, 120(3–4): 347–359

Hoffmann JE, Münker C, Naeraa T, Rosing MT, Herwartz D, Garbe-Schonberg D and Svahnberg H. 2011. Mechanisms of Archean crust formation inferred from high-precision HFSE systematics in TTGs. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 75(15): 4157–4178

Hofmann AW. 1988. Chemical differentiation of the Earth: The relationship between mantle, continental crust, and oceanic crust. *Earth and Planetary Science Letters*, 90(3): 297–314

Huang H, Niu YL, Zhao ZD, Hei HX and Zhu DC. 2011. On the enigma of Nb-Ta and Zr-Hf fractionation: A critical review. *Journal of Earth Science*, 22(1): 52–66

Li J and Huang XL. 2013. Mechanism of Ta-Nb enrichment and magmatic evolution in the Yashan granites, Jiangxi Province, South China. *Acta Petrologica Sinica*, 29(12): 4311–4322 (in Chinese with English abstract)

Li XH, Li ZX, Li WX, Liu Y, Yuan C, Wei GJ and Qi CS. 2007. U-Pb zircon, geochemical and Sr-Nd-Hf isotopic constraints on age and origin of Jurassic I- and A-type granites from central Guangdong, SE China: A major igneous event in response to foundering of a subducted flat-slab? *Lithos*, 96(1–2): 186–204

Li XH, Li WX and Li ZX. 2007. On the genetic classification and tectonic implications of the Early Yanshanian granitoids in the Nanling Range, South China. *Chinese Science Bulletin*, 52(14): 1873–1885

Linnen RL and Keppler H. 1997. Columbite solubility in granitic melts: Consequences for the enrichment and fractionation of Nb and Ta in the Earth's crust. *Contributions to Mineralogy and Petrology*, 128(2–3): 213–227

Linnen RL. 1998. The solubility of Nb-Ta-Zr-Hf-W in granitic melts with Li and Li + F: Constraints for mineralization in rare metal granites and pegmatites. *Economic Geology*, 93(7): 1013–1025

Mao JW, Xie GQ, Guo CL and Chen YC. 2007. Large-scale tungsten-tin mineralization in the Nanling region, South China: Metallogenic ages and corresponding geodynamic processes. *Acta Petrologica Sinica*, 23(10): 2329–2338 (in Chinese with English abstract)

Münker C, Pfänder JA, Weyer S, Büchl A, Kleine T and Mezger K. 2003. Evolution of planetary cores and the earth-moon system from Nb/Ta systematics. *Science*, 301(5629): 84–87

Münker C, Wörner G, Yagodinski G and Churikova T. 2004. Behaviour of high field strength elements in subduction zones: Constraints from Kamchatka-Aleutian arc lavas. *Earth and Planetary Science Letters*, 224(3–4): 275–293

Pfänder JA, Münker C, Stracke A and Mezger K. 2007. Nb/Ta and Zr/Hf in ocean island basalts: Implications for crust-mantle differentiation and the fate of niobium. *Earth and Planetary Science Letters*, 254(1–2): 158–172

Rudnick RL and Gao S. 2004. Composition of the continental crust. In: Holland HD and Turekian KK (eds.). *Treatise on Geochemistry*. Amsterdam: Elsevier, 3: 1–64

Sisson TW, Ratajeski K, Hankins WB and Glazner AF. 2005. Voluminous granitic magmas from common basaltic sources. *Contributions to Mineralogy and Petrology*, 148(6): 635–661

Stepanov AS and Hermann J. 2013. Fractionation of Nb and Ta by biotite and phengite: Implications for the “missing Nb paradox”. *Geology*,



41(3): 303–306

- Stepanov AS, Mavrogenes JA, Meffre S and Davidson P. 2014. The key role of mica during igneous concentration of tantalum. *Contributions to Mineralogy and Petrology*, 167: 1009
- Wang RC, Fontan F, Xu SJ, Chen XM and Monchoux XM. 1996. Hafnian zircon from the apical part of the Suzhou granite, China. *The Canadian Mineralogist*, 34: 1001–1010
- Wang RC, Fontan F, Xu SJ, Chen XM and Monchoux XM. 1997. The association of columbite, tantalite and tapiolite in the Suzhou granite, China. *The Canadian Mineralogist*, 35: 699–706
- Watson EB and Harrison TM. 1983. Zircon saturation revisited: Temperature and composition effects in a variety of crustal magma types. *Earth and Planetary Science Letters*, 64(2): 295–304
- Watson EB and Harrison TM. 1984. Accessory minerals and the geochemical evolution of crustal magmatic systems: A summary and prospectus of experimental approaches. *Physics of the Earth and Planetary Interiors*, 35(1–3): 19–30
- Whalen JB, Currie KL and Chappell BW. 1987. A-type granites: Geochemical characteristics, discrimination and petrogenesis. *Contributions to Mineralogy and Petrology*, 95(4): 407–419
- Wu FY, Li XH, Yang JH and Zheng YF. 2007. Discussions on the petrogenesis of granites. *Acta Petrologica Sinica*, 23(6): 1217–1238 (in Chinese with English abstract)
- Xu XS, Lu WM and He ZY. 2007. Age and generation of Fogang granite batholith and Wushi diorite-hornblende gabbro body. *Science in China (Series D)*, 50(2): 209–220
- Yu JH, Zhao L and Zhou X. 2004. Mineralogical characteristics and origin of garnet bearing I-type granitoids in southeastern Fujian Province. *Geological Journal of China Universities*, 10(3): 364–377 (in Chinese with English abstract)
- Zhang AC, Wang RC, Li Y, Hu H, Lu X, Ji J and Zhang H. 2008. Tourmalines from the Koptokay No. 3 pegmatite, Altai, NW China: Spectroscopic characterization and relationships with the pegmatite evolution. *European Journal of Mineralogy*, 20(1): 143–154
- Zhou XM, Sun T, Shen WZ, Shu LS and Niu YL. 2006. Petrogenesis of Mesozoic granitoids and volcanic rocks in South China: A response to

tectonic evolution. *Episodes*, 29(1): 26–33

- Zhuang WM, Chen SQ and Huang YY. 2000. Geological and geochemical characteristics of Fogang composite pluton and its source rock. *Guangdong Geology*, 15(3): 1–12 (in Chinese with English abstract)

## 附中文参考文献

- 包志伟, 赵振华. 2003. 佛冈铝质 A 型花岗岩的地球化学及其形成环境初探. *地质地球化学*, 31(1): 52–61
- 陈小明, 王汝成, 刘昌实, 胡欢, 张文兰, 高剑锋. 2002. 广东从化佛冈(主体)黑云母花岗岩定年和成因. *高校地质学报*, 8(3): 293–307
- 李洁, 黄小龙. 2013. 江西雅山花岗岩岩浆演化及其 Ta-Nb 富集机制. *岩石学报*, 29(12): 4311–4322
- 李献华, 李武显, 李正祥. 2007. 再论南岭燕山早期花岗岩的成因类型与构造意义. *科学通报*, 52(9): 981–991
- 毛景文, 谢桂青, 郭春丽, 陈毓川. 2007. 南岭地区大规模钨锡多金属成矿作用: 成矿时限及地球动力学背景. *岩石学报*, 23(10): 2329–2338
- 吴福元, 李献华, 杨进辉, 郑永飞. 2007. 花岗岩成因研究的若干问题. *岩石学报*, 23(6): 1217–1238
- 徐夕生, 鲁为敏, 贺振宇. 2007. 佛冈花岗岩基及乌石闪长岩-角闪辉长岩体的形成年龄和起源. *中国科学(D辑)*, 37(1): 27–38
- 于津海, 赵蕾, 周旋. 2004. 闽东南含石榴子石 I 型花岗岩的矿物学特征及成因. *高校地质学报*, 10(3): 364–377
- 庄文明, 陈绍前, 黄友义. 2000. 佛冈复式岩体地质地球化学特征及其成岩源岩. *广东地质*, 15(3): 1–12