Tạp chí Khoa học ĐHQGHN: Các Khoa học Trái đất và Môi trường, Tập 32, Số 2S (2016) 32-44

Nguồn gốc hình thành corindon có các riềm vỏ spinel bao quanh từ khu vực Tân Hương-Trúc Lâu, Yên Bái

Nguyễn Ngọc Khôi[1,*], Nguyễn Văn Nam[2], Christoph A. Hauzenberger[3], Chakkaphan Sutthirat[4], Dương Anh Tuấn[5]

[1]*Khoa Địa chất, Trường Đại học Khoa học Tự nhiên, Đại học Quốc gia Hà Nội, 334 Nguyễn Trãi, Thanh Xuân, Hà Nội, Việt Nam*
[2]*Viện Khoa học Địa chất và Khoáng sản, Đường Chiến Thắng, Thanh Xuân, Hà Nội, Việt Nam*
[3]*Đại học Tổng hợp Graz, Universitaetsplatz 2, 8010 Graz, CH Áo*
[4]*Đại học Tổng hợp Chulalongkorn, 254 Pathumwan, Bangkok, Thái Lan*
[5]*Tập đoàn Vàng bạc Đá quý DOJI, 44 Lê Ngọc Hân, Hai Bà Trưng, Hà Nội, Việt Nam*

Nhận ngày 10 tháng 8 năm 2016
Chỉnh sửa ngày 26 tháng 9 năm 2016; chấp nhận đăng ngày 28 tháng 10 năm 2016

Tóm tắt: Các mỏ corindon (ruby và saphir) ở Yên Bái không chỉ nằm trong đá hoa, mà còn phân bố trong các đá gneis, tương ứng chúng được chia thành kiểu mỏ trong đá hoa (khu vực Khoan Thống-An Phú) và kiểu mỏ trong đá gneis (khu vực Tân Hương-Trúc Lâu). Đối với kiểu mỏ trong đá gneis, đá chứa chủ yếu là đá gneis bị migmatit hóa một phần (chứa saphir mầu xám, trắng xám đến xám phớt lam và phớt vàng), đá pegmatoid felspat và đá hoa (chứa ruby đỏ sẫm đến hồng). Ở đây, ngoài những viên corindon tự hình, còn gặp khá nhiều corindon có riềm spinel bọc bên ngoài theo đúng hình dạng của corindon bên trong, trong cả các mỏ gốc lẫn các mỏ sa khoáng. Trên cơ sở nghiên cứu các cấu tạo phản ứng (vĩ mô và vi mô) và thành phần hóa học của corindon có riềm spinel, cũng như dựa trên các tính toán nhiệt động cân bằng pha và đặc điểm bao thể, sự hình thành tổ hợp corindon có riềm spinel bao quanh trong đá gneis có thể giải thích bằng các phản ứng:

Biotit		Corindon		Spinel		Felspat K		Nước
$K(Mg, Fe)_3[AlSi_3O_{10}](OH)_2$	+	$3Al_2O_3$	=>	$3(Mg, Fe)Al_2O_4$	+	$KAlSi_3O_8$	+	H_2O

Hoặc:

Granat		Corindon		Spinel		Silimanit
$(Fe, Mg)_3Al_2[SiO_4]_3$	+	Al_2O_3	=>	$(Mg, Fe)Al_2O_4$	+	$AlO[AlSiO_4]$

*Từ khóa: N*guồn gốc, corindon, riềm spinel, đá gneis, khu vực Tân Hương-Trúc Lâu.

1. Mở đầu

Các mỏ và điểm khoáng corindon ở miền Bắc Việt Nam không chỉ phân bố trong đá hoa, mà còn phát triển trong đá gneis bị migmatit hóa một phần, theo đó, chúng được chia thành 2 kiểu: kiểu trong đá hoa (marble-hosted type) và kiểu trong đá gneis (gneiss-hosted type).

Các mỏ kiểu trong đá gneis chủ yếu phân bố ở khu vực Tân Hương-Trúc Lâu của dãy núi Con Voi trong đới Sông Hồng. Đá gneis ở khu vực này thường chứa saphir mầu xám, trắng xám đến xám phớt lam và phớt vàng, trong khi đó ruby mầu đỏ sẫm đến hồng lại gặp trong pegmatoid felspat và đá hoa xen kẹp trong các

* Tác giả liên hệ. ĐT: 84-4-38585097
Email: nguyen.khoinn@gmail.com

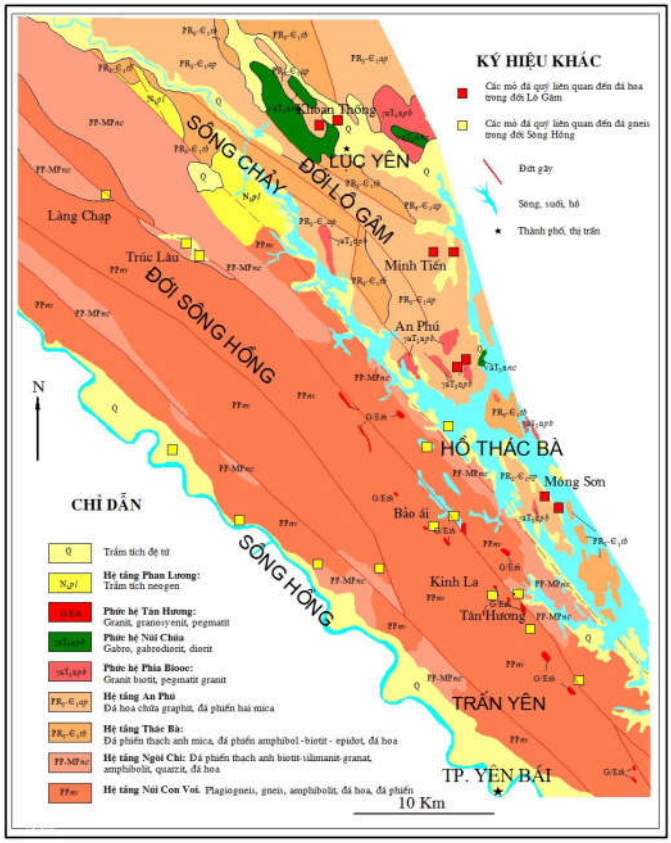
tầng đá gneis. Trong một số mỏ sa khoáng (như mỏ Trúc Lâu) và mỏ gốc nguyên sinh (như điểm Kinh La), ngoài những viên corindon tự hình, còn gặp khá nhiều viên corindon có riềm spinel bao bọc xung quanh. Đây có thể coi là một đặc điểm đặc trưng của kiểu mỏ corindon trong đá gneis khu vực Tân Hương-Trúc Lâu.

Các cấu tạo phản ứng của corindon và spinel đã được đề cập và nghiên cứu ở mức độ và theo các khía cạnh khác nhau trên thế giới, ví dụ như nghiên cứu của Schmetzer et al. [1], Sunagawa et al. [2] về ruby dạng "trapiche", Das et al. [3] đối với ruby Ấn Độ từ các mỏ eluvi, Francis et al. [4, 5] đối với ruby và saphir Sri Lanka trong đá hoa. Tuy vậy, loại corindon với riềm spinel bọc quanh lần đầu tiên được chúng tôi nghiên cứu chi tiết và đưa ra luận giải trong bài báo này.

Bài báo này trình bày các kết quả nghiên cứu về thạch học (vĩ mô và vi mô), thành phần hóa học (nguyên tố chính và vi lượng) của nhân corindon và vỏ spinel bọc ngoài, về điều kiện P-T của quá trình biến chất đá chứa, từ đó đưa ra luận giải về nguồn gốc hình thành của riềm spinel bao quanh các viên corindon dựa trên các cấu tạo phản ứng vĩ mô và vi mô liên quan với corindon, dựa trên các tính toán nhiệt động cân bằng pha và đặc điểm bao thể trong nhân corindon và riềm spinel.

2. Bối cảnh địa chất

Các mỏ corindon gốc và sa khoáng khu vực Tân Hương-Trúc Lâu phân bố trong phạm vi của dãy núi Con Voi kéo dài từ Ailao Shan ở Vân Nam (Trung Quốc) xuống miền Bắc Việt Nam (Hình 1). Dãy núi này được giới hạn bởi đới siết trượt Ailao Shan-Sông Hồng [6, 7, 8].



Hình 1. Sơ đồ địa chất khu vực Tân Hương-Trúc Lâu theo Bản đồ Địa chất và Khoáng sản Việt Nam tỉ lệ 1:200.000, tờ Bắc Quang, năm 2000, biên tập Trần Xuyên, và tờ Yên Bái, năm 2005, biên tập Nguyễn Vĩnh).

Các đá trong khu vực Tân Hương-Trúc Lâu chủ yếu bao gồm plagiogneis và các đá gneis khác nằm xen với các thấu kính và lớp kẹp amphibolit và đá hoa thuộc hệ tầng Núi Voi. Nằm trên là hệ tầng Ngòi Chi có thành phần là các đá phiến, amphibolit và đá hoa. Cả hai hệ tầng này bị xuyên cắt bởi các đá granit, syenit và pegmatit của phức hệ magma Tân Hương có tuổi thành tạo 22-25 triệu năm [9, 10].

Corindon nguyên sinh khu vực Tân Hương-Trúc Lâu có thể được chia thành 3 kiểu chính [11]: (1) Saphir trắng xám đến xám phớt lam và phớt vàng nằm trong đá gneis như ở điểm Cò Mận trong thung lũng Trúc Lâu, các điểm Khe Nhàn và Kinh La ở Tân Hương; (2) Ruby đỏ xẫm đến hồng, chất lượng ngọc trung bình đến thấp, gặp trong đá pegmatoid felspat bị phong hóa, như ở các điểm Km 12, Km 15, Km 23 dọc quốc lộ 70 và điểm Dốc 700; (3) Ruby trong các thấu kính đá hoa nằm xen kẹp trong đá gneis, đá phiến mica và amphibolit, như ở trong lõi khoan ở Tân Hương và ở mỏ Trúc Lâu.

Đá gốc chứa corindon khu vực nghiên cứu được cho là hình thành từ quá trình biến chất các trầm tích hạt mịn có thành phần khác nhau [12, 13, 14, 15, 16, 11]. Các mỏ nguyên sinh và đá gốc thường bị phong hóa mạnh, tạo nên rất nhiều các mỏ và điểm khoáng thứ sinh (eluvi, deluvi và aluvi) chứa ruby đỏ sẫm, spinel mầu nâu, cũng như granat, saphir mầu xám phớt lam, silimanit và thạch anh.

Các mẫu ruby và saphir có các riềm spinel được tìm thấy ở nhiều mỏ và điểm khoáng trong khu vực nghiên cứu. Trong nghiên cứu này các mẫu được nghiên cứu chi tiết tại điểm khoáng nguyên sinh Kinh La và mỏ sa khoáng Trúc Lâu.

Điểm khoáng Kinh La (Km 13) nằm cách mỏ Tân Hương 2 km về phía tây nam, tại tọa độ 21°48’55”N, 104°52’12”E. Thân khoáng chứa đá quý ở đây dày 0,1-1 m và kéo dài đến 100 m. Corindon có mầu từ đen, xám đến xám phớt lam với kích thước dao động từ 0,1 đến 5 cm [10].

Mỏ sa khoáng Trúc Lâu phân bố trong phạm vi một thung lũng khá lớn thuộc xã Trúc Lâu, huyện Lục Yên và bao gồm các trầm tích eluvi, deluvi và đặc biệt là aluvi. Các thành tạo aluvi có chiều dày khoảng 10 m, trong đó ruby, saphir và spinel phân bố trong một tầng sỏi sạn (sa khoáng cổ) dày chừng 1,2 đến 5 m nằm trực tiếp trên đá gneis cứng, dưới lớp trầm tích cát sét (0-3,5 m) và lớp đất trồng (0,5-1,5 m) [14].

3. Mẫu và phương pháp nghiên cứu

Để thực hiện nghiên cứu này mẫu corindon có các riềm spinel bao quanh chủ yếu được thu thập từ mỏ sa khoáng Trúc Lâu và điểm quặng gốc Kinh La. Ngoài ra, để xác định điều kiện P-T của quá trình biến chất liên quan, các mẫu đá gneis và đá phiến bị migmatit hóa cũng được thu thập từ nhiều điểm khác nhau như Km 10, Kinh La và Cò Mận (xem Hình 1).

Các mẫu trước hết được nghiên cứu dưới kính hiển vi quang học (thạch học và ngọc học) và một số mẫu được nghiên cứu bằng kính hiển vi điện tử quét. Các bao thể trong khoáng vật được xác định bằng phương pháp phổ Raman, vi dò điện tử và kính hiển vi quang học. Sau đó phương pháp vi dò (EPMA) được sử dụng để xác định thành phần hóa học của các khoáng vật, còn phương pháp ICPMS được dùng để xác định thành phần các nguyên tố vết [11].

Phương pháp EPMA được tiến hành tại Viện các Khoa học Trái Đất, ĐHTH Graz (Áo) bằng máy JEOL JXA-8200 với thế gia tốc 15kV, dòng của chùm 12nA, thời gian đếm 60’ tại các đỉnh và 30’ cho nền, đường kính của chùm ~1 µm. Giới hạn phát hiện điển hình đối với hầu hết các nguyên tố nằm trong khoảng 0,01-0,02 %tl. Công thức của các khoáng vật được tính toán bằng bộ PET Mathematica (DACHS, 1998).

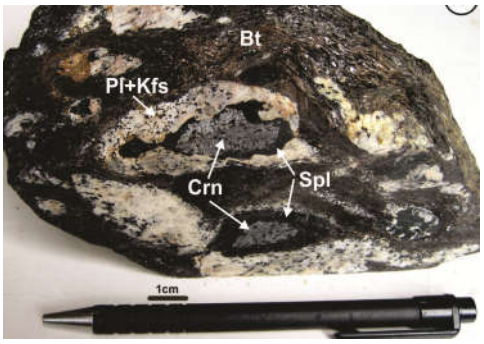
Các nguyên tố vết trong khoáng vật được xác định bằng phương pháp ICP-MS trên hệ New Wave UP 213 và ICP-MS: Agilent 7500, ICP-quadrupole MS tại Bộ môn Hóa học, Khoa Khoa học, ĐHTH Graz (CH Áo). Mẫu phân tích được ion hóa bằng tia laser 213 nm ở 5 Hz, kích thước điểm 55 µm và 85% công suất laser, tương ứng năng lượng ~7 J/cm². Khí heli được sử dụng để đưa luồng khí với tốc độ ~1,2 l/phút. Thủy tinh NIST610 được phân tích hàng ngày để chuẩn hóa và hiệu chỉnh theo độ trôi. Các mẫu chuẩn thủy tinh NIST612 và BCR-2 được phân tích như là chất chưa biết. Nhôm (Al) được sử dụng làm chất chuẩn trong.

4. Kết quả nghiên cứu

4.1. Đặc điểm thạch học

a. Mẫu corindon có riềm spinel từ mỏ quặng gốc

Tại điểm Kinh La corindon phát triển trong đá gneis migmatit hóa thành phần silimanit + biotit + plagioclas + felspat K + ilmenit ± granat ± hercynit ± magnetit. Các tinh thể corindon thường bị bao bởi loại spinel giàu thành phần hercynit (Hình 2, 6) có hoặc không có dấu hiệu bị gặm mòn. Nhân corindon ở đây chỉ có mầu xám đến xám tối, trong khi riềm spinel bao quanh lại có mầu xám tối đến đen. Độ dày của nhân corindon dao động từ 10 đến 30 mm, trong khi riềm spinel có chiều dày từ cỡ 1 mm đến hàng chục mm. Tổ hợp khoáng vật đặc trưng trong cả mẫu cục và mẫu lát mỏng thạch học là corindon + spinel (hercynit) + felspat K, plagioclas + biotit, vermiculit ± granat (Hình 2).



Hình 2. Corindon mầu xám bị bao bởi riềm spinel mầu xẫm tối trong đá gneis bị migmatit hóa thành phần silimanit + biotit + felspat K, plagioclas + ilmenit ± granat ± hercynit ± magnetit. Mẫu a-H7005, điểm Kinh La. Pl - plagioclas, Kfs - felspat K, Bt - biotit, Crn - corindon, Spl - spinel.

Dưới kính hiển vi thạch học quan sát rõ hiện tượng song tinh dạng tấm và hệ thống khe nứt trong nhân corindon. Các bao thể thường gặp trong corindon là ilmenit, magnetit, đôi khi zircon và apatit.

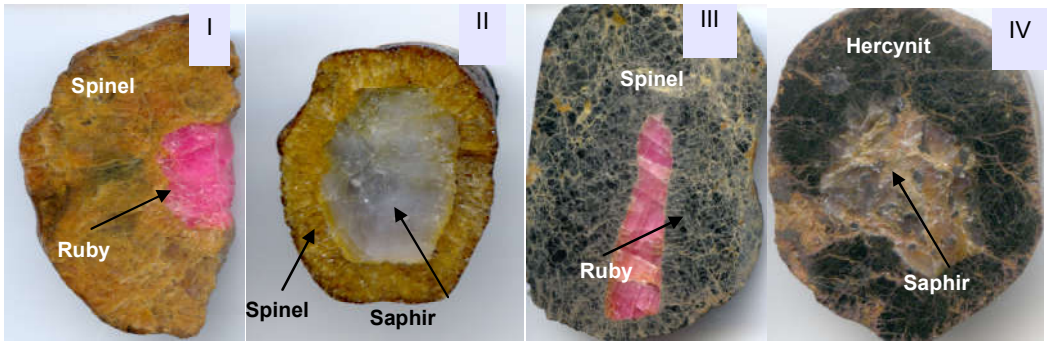
Còn riềm spinel thì dưới kính hiển vi truyền qua có mầu lục đến lục xẫm, đục và gặp dưới dạng các tinh thể tha hình thô. Các bao thể thường gặp trong riềm spinel là biotit và felspat K. Nghiên cứu thạch học cũng xác định được một số khoáng vật khác trong mẫu nghiên cứu như silimanit, granat và thạch anh.

b. Corindon với riềm spinel từ mỏ sa khoáng

Hình 3 là một số loại mẫu corindon khác nhau có riềm spinel bao quanh được thu thập từ mỏ sa khoáng Trúc Lâu [17]. Mầu sắc của các nhân corindon đa dạng hơn nhiều so với các mẫu từ mỏ nguyên sinh, thay đổi từ mầu trắng, xám đến hồng, đỏ phớt hồng và đỏ sẫm. Hình dạng của nhân corindon hầu hết là từ không đều đến nửa mài tròn, có ranh giới rõ ràng với riềm spinel do sự thay đổi đột ngột về mầu sắc giữa chúng. Dấu hiệu gặm mòn cũng khá rõ. Kích thước các nhân corindon dao động từ vài mm đến hàng trăm mm, chúng hầu như đều bị rạn nứt ở mức độ khác nhau. Còn riềm spinel thường có mầu xám đến vàng, nâu, đôi khi là hồng đến đỏ phớt hồng, với chiều dày thay đổi từ vài mm đến hàng chục mm. Riềm spinel hoặc có cấu tạo kiểu "hàng rào" (palisade) hoặc cấu tạo ngoại biến tinh (xenoblastic).

Nhìn chung, có thể phân biệt 4 kiểu mẫu corindon có riềm spinel bao quanh từ các mỏ sa khoáng [17] dựa trên đặc điểm của nhân corindon, riềm spinel cũng như các bao thể chứa trong chúng (xem Hình 3 và 4): *Kiểu I:* Tinh thể ruby được bao bởi riềm spinel Mg dày và đều hầu như không chứa bao thể (Hình 3I và 4a, b); *Kiểu II:* Tinh thể saphir được bao bởi riềm spinel mỏng cấu tạo kiểu "hàng rào" (Hình 3II, và 4c, d); *Kiểu III:* Tinh thể ruby/saphir hồng được bao bởi riềm spinel Mg-Fe-Al sẫm mầu (Hình 3III và 4e); *Kiểu IV:* Tinh thể saphir bao quanh bởi spinel giàu hercynit (Hình 3IV và 4f).

Cả bốn kiểu mẫu trên, nói chung đều chứa ít bao thể. Trong nhân corindon bao thể hydroxit Al, và ít hơn là rutil, thường hay có mặt hơn cả. Trong mẫu kiểu I bao thể felspat giàu Ba và plagioclas đã tìm thấy trong nhân corindon, còn trong riềm spinel là calcit và dolomit (hình 4a, b). Riềm spinel của mẫu kiểu II hoặc là hoàn toàn không chứa bao thể hoặc chỉ có vài bao thể nhỏ calcit và dolomit. Trong một mẫu kiểu II đã xác định được các bao thể saphirin, F-pargasit và F-phlogopit trong riềm spinel (Hình 4c).



Hình 3. Các kiểu mẫu corindon với riềm spinel bao quanh từ mỏ sa khoáng.

Trong riềm spinel của mẫu kiểu III đã tìm thấy phlogopit và chlorit (Hình 4e). Nhân corindon và riềm spinel kiểu IV chứa rất nhiều bao thể ilmenit và, ở mức độ ít hơn, là apatit, monazit và zircon (Hình 4f).

4.2. Thành phần hóa học

a. Thành phần hóa học của corindon với riềm spinel từ các mỏ gốc nguyên sinh

Thành phần nguyên tố chính và nguyên tố vết của nhân corindon trong các mẫu lấy từ điểm Kinh La được thể hiện trên các Bảng 1a-b.

Kết quả của các bảng trên cho thấy, nhân corindon của các mẫu lấy từ mỏ gốc có hàm lượng sắt cao (từ 5119 đến 5717 ppm) và hàm lượng Ti và Cr thấp (tương ứng từ 16 đến 81 và 55 đến 62 ppm). Các nguyên tố khác như Ga, Mg và V đều có mặt trong tất cả các mẫu nhưng với hàm lượng thấp.

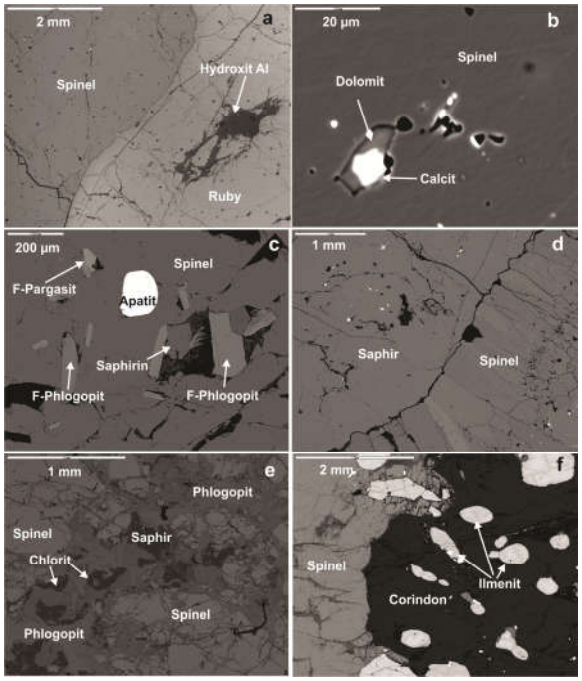
Việc phân tích đại diện thành phần hóa học của riềm spinel (Bảng 2) và một số khoáng vật đi cùng từ điểm quặng gốc Kinh La cũng đã được tiến hành để xác định khả năng xảy ra các phản ứng thành tạo riềm spinel quanh nhân corindon.

Nhìn chung, các khoáng vật gặp trong các mẫu thu thập từ điểm quặng gốc Kinh La đều có hàm lượng Fe đặc biệt cao. Spinel thuộc loại hercynit gần như tinh khiết với hàm lượng V rất thấp và không chứa Cr Granat chỉ gặp trong một mẫu với hàm lượng 80 mol%, grosular và pyrop là 10 mol% mỗi loại, trong khi spesartin nhỏ hơn 5 mol%. Biotit có thành phần annit gần như tinh khiết với hàm lượng TiO_2 có thể tới 5% trọng lượng và không phát hiện được F và Cl. Nền felspat thường có thành phần plagioclas với X_{Ab} là 0,75 và felspat K với hàm lượng albit khoảng 25 đến 30 %tl. Magnetit và ilmenit thường gặp dưới dạng là bao thể trong corindon, spinel và granat, hoặc là các khoáng vật riêng rẽ trong nền đá.

b. Thành phần hóa học của corindon với riềm spinel từ các mỏ sa khoáng

Bảng 3a-b thể hiện thành phần của nhân corindon từ mỏ sa khoáng Trúc Lâu. Ở đây nhân corindon (các mẫu TLM2, TLM3, TLM5, TLM6, và TLL5) có hàm lượng Cr_2O_3 tương đối thấp. Hàm lượng TiO_2 dưới ngưỡng phát hiện, còn hàm lượng FeO thì trên ngưỡng một chút. Nhân corindon của mẫu TLM7 chứa khoảng 0.5 %tl FeO (theo kết quả EPMA) hoặc 2572 ppm Fe (theo kết quả ICP-MS) với hàm lượng Cr_2O_3 và TiO_2 rất thấp.

Thành phần của riềm spinel được trình bày ở Bảng 4. Khác với các mẫu từ điểm quặng gốc Kinh La, riềm spinel ở đây thuộc loại spinel Al-Mg tinh khiết với một lượng FeO rất nhỏ (<0,7 %tl), trừ riềm spinel quanh nhân saphir (mẫu TLM7) có hàm lượng FeO = 1,27 %tl và hàm lượng Cr_2O_3 và ZnO còn thấp hơn.



Hình 4. Hình ảnh điện tử phản chiếu ngược BSE của các bao thể trong nhân corindon và riềm spinel bao quanh. a) Bao thể hydroxit Al trong corindon. Spinel ở đây không có bao thể (mẫu kiểu I); b) Bao thể dolomit và calcit trong riềm spinel của mẫu kiểu I; c) Bao thể apatit, saphirin, F-phlogopit và F-pargasit trong riềm spinel của mẫu kiểu II; d) Spinel cấu tạo kiểu "hàng rào" bao quanh saphir (mẫu kiểu II); e) Phlogopit, chlorit và corindon trong riềm spinel (mẫu kiểu III); f) Saphir và spinel giàu hercynit chứa các bao thể ilmenit và monazit (mẫu kiểu IV).

Bảng 1a. Thành phần nguyên tố chính của nhân corindon trong các mẫu từ Kinh La [%tl][a]

Oxit	Hàm lượng
Số mẫu	12
Al_2O_3	99,5 – 99,36 (99,25)
TiO_2	0,12 – 0,21 (0,22)
Cr_2O_3	0,00 – 0,09 (0,05)
FeO	0,45 – 0,97 (0,25)
Tổng	99,80 – 100,54 (100,10)

[a]Phân tích bằng phương pháp EPMA, trong ngoặc đơn là hàm lượng trung bình từ 3-5 lần đo cho mỗi mẫu

Bảng 1b. Thành phần nguyên tố vết của nhân corindon trong các mẫu từ Kinh La [ppm][a]

Nguyên tố	Hàm lượng
Số mẫu	3
Ti	16-81 (40)
Cr	55-62 (59)
Fe	5119-5717 (5500)
V	18-20 (19)
Ga	49-50 (49)
Mg	2-4 (4)

[a]Phân tích bằng phương pháp ICP-MS, trong ngoặc đơn là hàm lượng trung bình từ 3-5 lần đo

Bảng 2. Thành phần của riềm spinel theo kết quả EPMA [%tl]

Mẫu	H70052d	H7005sp1	Mẫu	H70052d	H7005sp1
TiO_2	0,17	0,13	Ti	0,004	0,003
Al_2O_3	55,37	51,90	Al	1,935	1,854
Cr_2O_3	<0,1	<0,1	Cr	-	-
V_2O_3	<0,1	<0,1	V	-	-
FeO	42,68	44,69	Fe^{3+}	0,058	0,138
			Fe^{2+}	1,001	0,995
MnO	0,13	0,31	Mn	0,003	0,008
MgO	<0,1	<0,1	Mg	0,000	0,000
Tổng	98,35	97,03	Tổng	3,001	2,998

Bảng 3a. Thành phần nguyên tố chính của nhân corindon trong các mẫu lấy từ mỏ sa khoáng Trúc Lâu theo kết quả EPMA [%tl][a]

Mẫu	TLM2cor	TLM3cor	TLM5cor	TLM6cor	TLM7cor	TLL5cor
Al_2O_3	99,88	99,86	99,15	99,97	99,43	99,60
TiO_2	0,035	0,040	<0,03	<0,03	0,067	0,033
Cr_2O_3	0,238	0,162	0,233	0,160	<0,03	0,090
FeO	<0,03	0,053	0,054	0,075	0,501	<0,03
Tổng	100,15	100,11	99,44	100,21	100,00	99,73

[a]*Giá trị trung bình từ 3-5 kết quả đo cho mỗi mẫu*

Bảng 3b. Thành phần nguyên tố vết của nhân corindon trong các mẫu lấy từ mỏ sa khoáng Trúc Lâu theo kết quả ICP-MS [ppm][a]

Mẫu	Be	Mg	Ti	V	Cr	Fe	Ga	Sn
TLM2	<0,05	68,1	142	196	940	15,4	61,0	6,20
TLM3	<0,05	67,6	108	231	926	30,2	31,1	0,21
TLM5	<0,05	39,4	46,	288	1304	11,1	53,3	0,18
TLM6	<0,05	57,6	82,3	349	1338	60,4	107	0,54
TLM7	<0,05	131	363	6,59	<1	2572,1	74,5	1,12
TLL5	<0,05	82,6	126	248	674	8,37	44,2	0,20

[a]*Giá trị trung bình từ 3-5 kết quả đo cho mỗi mẫu*

Bảng 4. Thành phần nguyên tố chính trong riềm spinel quanh corindon từ mỏ sa khoáng Trúc Lâu theo kết quả EPMA [%tl]

Mẫu	TLM2cor	TLM3cor	TLM5cor	TLM6cor	TLM7cor	TLL5cor
Al_2O_3	69,47	70,59	70,09	70,46	69,58	70,00
TiO_2	<0,03	<0,03	<0,03	<0,03	<0,03	<0,03
Cr_2O_3	0,208	0,114	0,266	0,130	<0,03	0,326
FeO	0,353	0,654	0,050	0,667	1,272	0,255
MgO	28,52	28,90	28,86	28,89	28,51	28,97
ZnO	0,74	0,11	<0,1	<0,1	0,16	<0,1
Tổng	99,29	100,37	99,26	100,14	99,52	99,55

[a]*Giá trị trung bình từ 3-5 kết quả đo cho mỗi mẫu*

4.3. Điều kiện P-T của quá trình biến chất trong khu vực nghiên cứu

Sự phổ biến của các đá migmatit hoặc gneis bị migmatit hóa trong khu vực phản ánh rõ ràng điều kiện biến chất cao ở đây. Để xác định điều kiện P-T của quá trình biến chất chúng tôi đã sử dụng các mẫu đá gneis và đá phiến bị migmatit hóa từ các điểm Km 10, Kinh La (mẫu R7005) và Cò Mận (mẫu Km 55, xem Hình 1). Nhiệt kế granat-biotit với hiệu chỉnh theo Holdaway et al. [18], áp kế GASP theo Koziol [19] và áp kế granat-biotit-plagioclas (Hình 5) theo Hoisch [20] đã được sử dụng cho các mẫu từ điểm Km 10. Ngoài ra, điều kiện P-T cũng được tính toán theo phần mềm TWQ (Hình 7b) trên cơ sở sử dụng bộ dữ liệu của Berman [21]. Đối với các mẫu từ Kinh La (R7005) chỉ có thể sử dụng được nhiệt kế granat-biotit. Với các mẫu Cò Mận (Trúc Lâu), mẫu Km 55 được sử dụng để tính toán điều kiện P-T. Ở đây, một lần nữa, nhiệt kế grarat-biotit, áp kế GASP và áp kế granat-biotit-plagioclas cũng được sử dụng để xác định các thông số biến chất.

Theo các kết quả tính toán nhiệt áp kế (Hình 5) thì các phản ứng granat-biotit, GASP và granat-biotit-plagioclas của mẫu Km 10 cho điều kiện P-T 700-760°C và 6.3-7.3 kbar. Bằng cách sử dụng toàn bộ tổ hợp khoáng vật, việc tính toán các thông số theo TWQ cho số liệu hơi thấp hơn là 680-720°C và 5,2-5,8 kbar. Mẫu R7005 từ Kinh La không cho phép xác định được điều kiện áp suất. Tuy nhiên, nhiệt kế granat-biotit cho kết quả gần tương tự là 700-750°C. Đối với điểm Cò Mận (Km 55), điều kiện P-T được xác định có cao hơn là 760°C và 9 ± 1 kbar [17, 11].

4.4. Về nguồn gốc của riềm spinel quanh corindon

a. Đối với mẫu corindon có riềm spinel từ các mỏ gốc nguyên sinh

Trong nhiều mẫu đá tươi chứa corindon của khu vực nghiên cứu có gặp các tinh thể corindon bao quanh bởi riềm spinel (xem các Hình 2 và 6). Spinel giàu Mg-Fe-Al trong đá cũng như spinel giàu Fe trong riềm quanh corindon được hình thành trong đá gneis bị migmatit hóa giàu Fe và nghèo SiO_2 với tổ hợp khoáng vật điển hình là corindon bao quanh bởi pha spinel-magnetit giàu hercynit => biotit giàu Fe => plagioclas, K-felspat và granat (almandin+pyrop+grosular hoặc granat giàu almandin) trong một số mẫu, và silimanit.

Các hạt spinel với hàm lượng Fe và Mg khá cao (xem Bảng 2a ở trên) và đặc điểm cấu tạo quan sát được trên các mẫu cục và mẫu thạch học lát mỏng cho ta gợi ý rằng riềm spinel có thể được hình thành do phản ứng của corindon với các khoáng vật silicat chứa Mg-Fe gặp trong đá mẹ, có thể là biotit hoặc granat [4, 5].

Cũng trong chính các đá silicat calci này có chỗ gặp khá nhiều biotit, có chỗ lại không gặp (biotit đã bị tiêu thụ hết). Như đã đề cập ở trên, đá chứa corindon ở đây đã trải qua quá trình biến chất khu vực từ phần trên của tướng amphibolit đến phần dưới của tướng granulit (khoảng 650 đến 760°C và 5,0 đến 7,6 kbar) [14]. Ngay cả trong điều kiện này thì corindon vẫn bền vững. Tuy vậy, trong điều kiện nguội đẳng áp với môi trường giàu nước, các tổ hợp chứa corindon có thể biến chất giật lùi dẫn đến sự hình thành các loại mica khác nhau như biotit hoặc phlogopit [22]. Vì vậy, trong các đá gốc này thường thấy corindon đi cùng với mica. Các quan sát cũng cho thấy, rìa ngoài của các nhân corindon thường bị gặm mòn ở mức độ khác nhau, và riềm spinel quanh các nhân corindon dần trở nên dày hơn và ít còn giữ được hình dạng của nhân corindon bên trong hơn theo các giai đoạn của phản ứng (Hình 7, các giai đoạn từ 1 đến 4). Từ các quan sát trên, có thể cho rằng ở đây đã xảy ra phản ứng giữa corindon và biotit để hình thành riềm spinel cùng với felspat K:

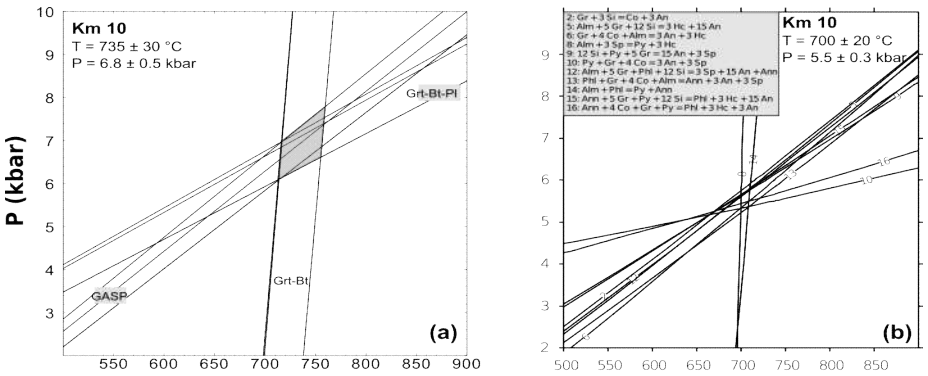
Biotit		Corindon		Spinel		Felspat K		Nước	
$K(Mg, Fe)_3[AlSi_3O_{10}](OH)_2$	+	$3Al_2O_3$	=>	$3(Mg, Fe)Al_2O_4$	+	$KAlSi_3O_8$	+	H_2O	(1)

Phản ứng này có thể tiếp diễn cho đến khi toàn bộ hạt corindon đã chuyển thành spinel (xem giai đoạn 4, Hình 7) và được biểu diễn như trên Hình 8.

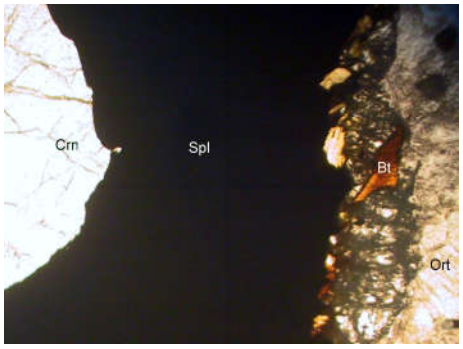
Trường hợp có mặt granat và silimanit thì phản ứng sau đây có thể là nguyên nhân dẫn đến sự hình thành riềm spinel quanh corindon:

Granat		Corindon		Spinel		Silimanit	
$(Fe, Mg)_3Al_2[SiO_4]_3$	+	Al_2O_3	=>	$(Mg, Fe)Al_2O_4$	+	$AlO[AlSiO_4]$	(2)

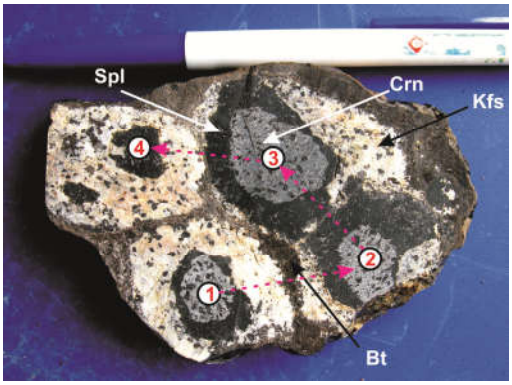
Các phản ứng (1) và (2) trên có thể diễn ra riêng rẽ hoặc đồng thời.



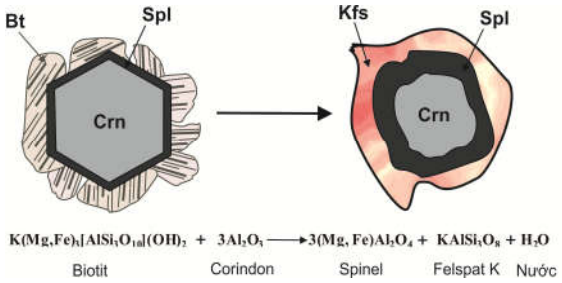
Hình 5. Điều kiện P-T tính toán cho các mẫu gneis giàu F bị migmatit hóa ở Kinh La. (a) Theo nhiệt kế granat-biotit kinh điển và áp kế GASP và granat-biotit-plagioclas. (b) Theo phương pháp đa cân bằng (multiequilibrium method) trên cơ sở phần mềm winTWQ 2.34 của Berman [21].



Hình 6. Corindon có riềm spinel giàu hercynit trong đá gneis từ điểm quặng gốc Kinh La (mẫu H7005, nicol-; d = 1,2mm). Crn - corindon, Spl - spinel, Bt - biotit, Ort - orthoclas.



Hình 7. Những giai đoạn khác nhau quan sát được của quá trình hình thành riềm spinel bao quanh corindon.



Hình 8. Sơ đồ thể hiện sự mở rộng không đều của riềm spinel do phản ứng của corindon và biotit. Bt - biotit, Spl - spinel, Crn - corindon, Kfs - felspat K.

b. Đối với mẫu corindon có riềm spinel từ các mỏ sa khoáng

Đối với các mẫu lấy từ các mỏ sa khoáng thì, do chúng không còn nằm nguyên trong đá mẹ ban đầu, nên để xác định nguyên nhân và phản ứng có thể xảy ra dẫn đến sự hình thành riềm spinel quanh corindon, ta cần dựa vào thành phần của chính nhân corindon và riềm spinel, đặc biệt là các bao thể gặp trong chúng. Thành phần của riềm spinel trong các mẫu kiểu I và II (xem Hình 3) đều là loại spinel Al-Mg tinh khiết có chứa các bao thể calcit và dolomit. Như vậy, những loại mẫu corindon có riềm spinel này nhiều khả năng hình thành trong các đá carbonat bị biến chất. Thông thường corindon được hình thành trong đá carbonat trong quá trình biến chất tiến triển từ pha hydroxit Al có nguồn gốc trầm tích ban đầu như

diaspor và/hoặc boemit. Khi nhiệt độ tăng, nếu có mặt dolomit, corindon có thể chuyển thành spinel theo phản ứng (3) trình bày phía dưới đây [17].

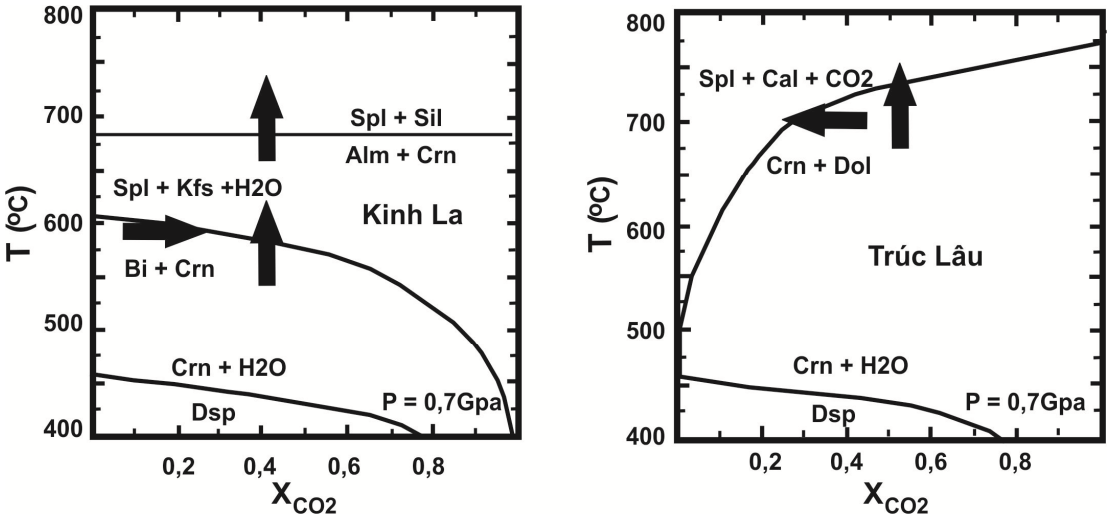
Tương tự các mẫu từ nguồn nguyên sinh, rìa của các nhân corindon trong các mẫu ở đây cũng bị gặm mòn ở mức độ khác nhau, chứng tỏ giữa nhân corindon và riềm spinel đã có sự mất cân bằng và đã xảy ra phản ứng như trên. Theo tiến độ của phản ứng tiêu thụ corindon này, riềm spinel ngày một dày thêm và ít giữ được dạng lục giác ban đầu của nhân corindon.

Còn đối với các mẫu kiểu III và IV (xem Hình 3) thì spinel trong riềm đều thuộc loại giàu hercynit và có chứa bao thể phlogopit. Trong trường hợp này, phản ứng (1) cũng có thể được đề xuất để giải thích quá trình chuyển đổi corindon => spinel.

Các phản ứng mô tả ở trên đã được tính toán trong giản đồ T - XCO_2 [17]. Các phản ứng hình thành spinel đều phụ thuộc nhiều vào XCO_2. Với các giá trị XCO_2 lớn hơn 0,2, thì cần phải có nhiệt độ cỡ 600-700°C (Hình 9) để các phản ứng có thể xảy ra.

Dolomit		Corindon		Spinel		Calcit		Dioxit carbon	(3)
$MgCa(CO_3)_2$	+	$3Al_2O_3$	=>	$3MgAl_2O_4$	+	$CaCO_3$	+	CO_2	

Điều thú vị là, corindon với riềm spinel cho đến nay chỉ gặp trong đá gneis khu vực Tân Hương-Trúc Lâu của Việt Nam [14, 15, 16, 11, 10], trong khi cấu tạo phản ứng kiểu này lại gặp trong đá hoa như ở Sri Lanka [4, 5] hoặc pegmatit như ở Myanmar [23]. Có thể coi sự có mặt của những viên corindon với riềm spinel bao quanh là một đặc điểm đặc trưng của kiểu mỏ corindon trong gneis của Việt Nam. Để giải thích cơ chế hình thành riềm spinel quanh corindon ở Sri Lanka, Francis et al. [4, 5] cũng đưa ra phản ứng gần tương tự như phản ứng (1) ở trên, chỉ khác là, thay vì biotit sẽ là phlogopit gặp trong đá hoa của vùng nghiên cứu. Các phản ứng (2) và (3) không thấy tác giả trên đề cập đến.



Hình 9. Các phản ứng dẫn đến sự hình thành riềm spinel quanh corindon. Các mũi tên chiều hướng phản ứng (nhiệt độ tăng hoặc có sự thay đổi trong thành phần chất lưu). Spl - spinel, Kfs - felspat K, Sil - silimanit, Bi - biotit, Crn - corindon, Alm - almandin, Cal - calcit, Dol - dolomite, Dsp - diaspor.

5. Kết luận

Corindon với riềm spinel bao quanh là một đặc trưng quan trọng của các mỏ corindon, cả gốc và sa khoáng, trong các đá gneis bị migmatit hóa khu vực Tân Hương-Trúc Lâu thuộc đới xiết trượt Sông Hồng. Khoáng vật corindon ở đây chủ yếu hình thành từ pha hydroxit Al nguồn gốc trầm tích ban đầu, trong điều kiện biến chất tiến triển khu vực, thuộc phần trên tướng amphibolit đến phần dưới tướng granulit (650 đến 760^{o}C và 5,0 đến 7,6 kbar).

Trong quá trình biến chất giật lùi, corindon sẽ dần chuyển thành spinel với sự hình thành của riềm spinel bên ngoài. Quá trình này có thể được giải thích bằng các phản ứng khác nhau. Đó là các phản ứng biotit + corindon => spinel + felspat K+ nước hoặc corindon + granat => spinel + silimanit đối với các đá gneis silicat calci, và corindon + dolomit => spinel + calcit + CO_2 đối với các đá carbonat biến chất. Các phản ứng này có thể diễn ra riêng rẽ hoặc đồng thời.

Lời cảm ơn

Nghiên cứu này được tài trợ bởi Quỹ phát triển Khoa học và Công nghệ Quốc gia (NAFOSTED) trong đề tài mã số 105.02-2014.05 và 105.02-2012.08 - tập thể tác giả trân trọng cảm ơn.

Tài liệu tham khảo

[1] Schmetzer, K., Hanni, H.A., Benrhardt, H.J., and Schwarz, D., Trapiche rubies, Gems & Gemology 32, 4 (1996) 242.

[2] Sunagawa, I., Bernhardt, H.J., and Schmetzer, K., Texture formation and element partitioning in trapiche ruby, Journal of Crystal Growth, 206 (1999) 322.

[3] Das S.K. and Mohanty J.K., Characterisation of Eluvial Corundum (Ruby) from Kermunda, Kalahandi District, Odisha, India, J Geol Geosci 3 (2014) 180.

[4] Francis, M.D.P.L. and Dharmaratne, P.G.R., Corundum/spinel reaction textures in carbonate-origin rocks, Sri Lanka: Preliminary observations, The Australian Gemmologist 21 (2002) 211.

[5] Francis M.D.P.L. and Matsueda H., Study of Macroscopic and Microscopic Reaction textures associated with Corundum of Balangoda Region, Sri Lanka, Proceedings of International Symposium on "Dawn of a New Natural History - Integration of Geoscience and Biodiversity Studies", Sapporo, Japan (2004) 129.

[6] Tapponier, P., Lacassin, R., Leloup, P. H., Scharer, U., Zhong Dailai, Wu Haiwei, Liu Xiaohan, Ji Shaocheng, Zhang Lianshang & Zhongg Jiayou, The Ailao Shan/Red River metamorphic belt: Tertiary left-lateral shear between Indochina and South China, Nature 343 (1990) 431.

[7] Phan Trong Trinh, Leloup, P. H., Giuliani, G., Hoang Quang Vinh, Lacassin, R. & Pham Van Long, Geodynamic role in the formation of ruby in the Red River shear zone and surrounding area, J. Geology, series B (1999) 144.

[8] Leloup, P. H., Arnaud, N., Lacassin, R., Kienast, J. R., Harrison, T. M., Phan Trong Trinh, Replumaz, A. & Tapponier, P., New constraints on the structure, thermochronology, and timing of the Ailao Shan-Red River shear zone, SE Asia, J. Geoph. Res. 106, B4 (2001) 6683.

[9] Pham Van Long, Hoang Quang Vinh., Garnier, V., Giuliani, G., Ohnenstetter, D., L'Homme, T., Schwarz, D., Fallick, A., Dubessy, J. & Phan Trong Trinh, Gem corundum deposits in Vietnam, J. Gemmology 29 (2004) 129.

[10] Nguyễn Văn Nam, Đặc điểm thành phần vật chất và điều kiện thành tạo ruby và saphir trong các đá biến chất khu vực Tân Hương-Trúc Lâu (Đới Sông Hồng), Luận án Tiến sỹ Địa chất, Viện Khoa học Địa chất và Khoáng sản Việt Nam, Hà Nội, 2012.

[11] Nguyen Ngoc Khoi, Christoph A. Hauzenberger, Duong Anh Tuan, Tobias Hager, Nguyen Van Nam, Nguyen Thuy Duong, Mineralogy and petrology of gneiss hosted corundum deposits from the Day Nui Con Voi metamorphic range, Ailaoshan-Red River shear zone (North Vietnam), Journal of Mineralogy and Geochemistry 193/2 (2016) 161.

[12] Cooray P. G and Kumarapeli. P. S., Corundum in biotite-sillimanite gneiss from near Polgahawela, Ceylon. Geological Magazine, 97, 6 (1960) 480.

[13] Simandl, G. J. & Paradiss, S., 1999. Corundum in alumina-rich metasediments, Selected British

Columbia Mineral Deposit Profiles 3: Industrial Minerals (1999) 10.

[14] Nguyen Ngoc Khoi, Sutthirat, C., Duong Anh Tuan, Nguyen Van Nam, Nguyen Thi Minh Thuyet & Nguy Tuyet Nhung, Ruby and Sapphire from the Tan Huong-Truc Lau Area, Yen Bai Province, Northern Vietnam, Gems & Gemology, 47, 3 (2011) 182.

[15] Nguyen Ngoc Khoi, Hauzenberger C. A., Sutthirat C., Duong Anh Tuan, Nguyen Thi Minh Thuyet, Nguyen Thuy Duong, Nguyen Van Nam, Chu Van Lam, The characteristics of gneiss-hosted corundum deposits of Tan Huong-Truc Lau area, Northern Vietnam, Proceedings of the 33rd International Gemmological Conference (IGC33) Hanoi, Vietnam (2013) 25.

[16] Nguyễn Ngọc Khôi, Nguyễn Thị Minh Thuyết, Nguyễn Văn Nam, Lê Thị Thảo, Dương Anh Tuấn, Một số thuộc tính đặc trưng của kiểu mỏ corindon trong đá gneis ở Việt Nam (khu vực Tân Hương-Trúc Lâu), Tạp chí Khoa học ĐHQGHN, Khoa học Tự nhiên và Công nghệ 30, 2S (2014) 51.

[17] Hauzenberger, C.A., Nguyen Ngoc Khoi, Sutthirat, C., Häger, T, Wathanakul, P., and Duong Anh Tuan, Ruby with associated spinel corona from Truc Lau and Kinh La, North Vietnam, Proceedings of the 3th International Gem & Jewelry Conference, Bangkok, Thailand (2012) 123.

[18] Holdaway, M.J., Application of new experimental and garnet Margules data to the garnet-biotite geothermometer, American Mineralogist 85 (2000) 881.

[19] Koziol, A.M., Recalibration of the garnet-plagioclase-Al_2SiO_5-quartz (GASP) geobarometer and applications to natural parageneses, EOS 70 (1989) 493.

[20] Hoisch, T. D., Empirical calibration of six geobarometers for the mineral assemblage quartz+muscovite+biotite+plagioclase+garnet, Contributions to Mineralogy and Petrology 104 (1990) 225.

[21] Berman, R.G., WinTWQ (version 2.3): a software package for performing internally-consistent thermobarometric calculations, Geological Survey of Canada, Open File 5462, 2007.

[22] Ouzegane. K., Guiraud. M and Kienast, J. R, Prograde and Retrograde Evolution in High-temperature Corundum Granulites (FMAS and KFMASH Systems) from In Ouzzal Terrane (NW Hoggar, Algeria), Journal of Petrology 44, 3 (2003) 517.

[23] Themelis, T., Gems & Mines of Mogok - The forbidden Gemland, Thailand, 2008.

Genesis of Corundum with Spinel Crust from the Tan Huong-Truc Lau Area, Yen Bai Province

Nguyen Ngoc Khoi[1], Nguyen Van Nam[2], Christoph A. Hauzenberger[3], Chakkaphan Sutthirat[4], Duong Anh Tuan[5]

[1]*VNU University of Science, 334 Nguyen Trai, Thanh Xuan, Hanoi, Vietnam*
[2]*Vietnam Institute of Geosciences and Mineral Resources, Chien Thang Road, Thanh Xuan, Hanoi, Vietnam*
[3]*Karl-Franzens-University, Universitaetsplatz 2, 8010 Graz, Austria*
[4]*Chulalongkorn University, 254 Pathumwan, Bangkok, Thailand*
[5]*DOJI Gold & Gems Group, 44 Le Ngoc Han, Hai Ba Trung, Hanoi, Vietnam*

Abstract: Corundum (ruby and sapphire) deposits in Yen Bai province are hosted not only in marbles, but also in gneisses, accordingly they are divided into marble-hosted (Khoan Thong-An Phu area) and gneiss-hosted (Tan Huong-Truc Lau area) types. As for the gneiss-hosted type, hosting rocks are mainly partly migmatized gneisses (bearing white to whitish gray, bluish to yellowish gray sapphires), and less commonly, feldspathic pegmatoids and marbles (containing dark red to pink rubies). In the latter deposit type, besides idiomorphic corundum crystals, considerable quantity of

ruby and sapphire stones with spinel crust which follows exactly the morphology of corundum core, are also encountered, both in primary and in secondary placer deposits. Based on the investigation of macro- and microscopic reaction textures associated with corundum with spinel crust around in gneisses, and their chemical compositions, on thermodynamic phase equilibria calculation and inclusions in spinel rim, genesis of spinel crust can be explained by following reactions:

Biotite		Corundum		Spinel		K-feldspar		Water
$K(Mg, Fe)_3[AlSi_3O_{10}](OH)_2$	+	$3Al_2O_3$	=>	$3(Mg, Fe)Al_2O_4$	+	$KAlSi_3O_8$	+	H_2O

or:

Garnet		Corundum		Spinel		Sillimanite
$(Fe, Mg)_3Al_2[SiO_4]_3$	+	Al_2O_3	=>	$(Mg, Fe)Al_2O_4$	+	$AlO[AlSiO_4]$

As for corundum-spinel associations in metacarbonate rocks, the next reaction could be proposed:

Dolomite		Corundum		Spinel		Calcite		Carbon dioxide
$MgCa(CO_3)_2$	+	$3Al_2O_3$	=>	$3MgAl_2O_4$	+	$CaCO_3$	+	CO_2

Keywords: Genesis, corundum, spinel crust, gneiss, Tan Huong -Truc Lau area.