

# TRẠNG THÁI CẤU TRÚC (ĐỘ TRẬT TỰ AL-SI) CỦA FELSPAT MÀU LỤC TRONG PEGMATIT CHỨA ĐÁ QUÝ VÙNG LỤC YÊN, YÊN BÁI

Nguy Tuyết Nhung<sup>1,2</sup>, Nguyễn Thị Minh Thuyết<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Khoa Địa chất, Trường Đại học Khoa học Tự nhiên, Đại học Quốc gia Hà Nội;

<sup>2</sup>Trung tâm Ngọc học, Hội Đá quý Việt Nam

**Tóm tắt:** Hai mươi mẫu feldspar với độ trong khác nhau và màu sắc thay đổi từ lục đến lam được lấy từ thân pegmatit chứa đá quý ở Lục Yên để xác định độ trật tự Al-Si bằng phương pháp nhiễu xạ Roentgen cho mẫu bột (XRD). Kết quả cho thấy độ trật tự của feldspar thể hiện qua giá trị  $\Sigma t_1$  thay đổi trong khoảng rộng từ 0,71 đến 0,95, độ xiên  $\Delta$  từ 0 đến 0,93 tương ứng với orthoclas và microclin, điều đó có nghĩa là feldspar màu lục của Lục Yên tồn tại ở hai biến thể - một nghiêng và ba nghiêng. Thành phần hóa học của 4 mẫu orthoclas và microclin được xác định bằng phương pháp phân tích vi dò điện tử (EPMA) cho thấy hàm lượng Pb và các nguyên tố kiềm Rb, Cs trong orthoclas cao hơn trong microclin. Các ion này đã cản trở Al trong quá trình sắp xếp trật tự. Chất lượng ngọc bao gồm màu sắc và độ trong của orthoclas cao hơn so với microclin. Do màu lục tồn tại cả ở orthoclas và microclin nên tác giả đề nghị sử dụng tên amazonit cho cả hai biến thể khoáng vật này cũng như cho feldspar màu lục của Lục Yên.

## 1. Mở đầu

Yên Bái là vùng có nhiều chủng loại đá quý nhất của Việt Nam, ngoài những đá quý nổi tiếng trong, ngoài nước như ruby, saphir, spinel thường gặp trong sa khoáng và đá hoa, còn có những đá quý khác liên quan với pegmatit granit trong khu vực như thạch anh, tourmalin, amazonit, trong đó, riêng amazonit chỉ được tìm thấy ở vùng này. Trong các tài liệu nhắc đến amazonit Yên Bái có thể kể đến các công bố của Ponahlo (2001), Laurs (2005), Nhung (2005), Sokolov (2007), Wilson (2007), Thuyết và nnk (2010, 2011), Huang (2012, 2017). Trong các công trình trên, các tính chất cơ bản về khoáng vật học, ngọc học của amazonit Yên Bái đã được mô tả. Tuy nhiên, có một điều chưa rõ ràng, đó là, amazonit Yên Bái là loại amazonit thực sự (microclin) hay là loại K-feldspar (orthoclas) màu lục. Một số tác giả (Huang và nnk 2012, 2016; Ponahlo, 2001; Sokolov, 2007) cho rằng loại feldspar màu lục của Yên Bái thuộc biến thể orthoclas, trong khi các phân tích của các tác giả khác (Nhung, 2005; Thuyết, 2010, 2011) lại cho kết quả tương ứng với microclin. Để làm sáng tỏ vấn đề trên, các tác giả bài báo đã thực hiện việc lựa chọn mẫu và phương pháp phân tích để đưa ra kết luận chính xác về dạng biến thể của loại đá bán quý này.

## 2. Khái quát về feldspar kali và feldspar màu lục của Lục Yên, Yên Bái

Amazonit là tên gọi cho khoáng vật microclin - biến thể hệ ba nghiêng của feldspar kali (K-feldspar) có màu từ lam - lục đến lục - lam. Đôi khi nó còn được gọi là đá amazonit, do có màu giống với một loại đá được tìm thấy ở vùng này. Amazonit thường được coi là tên riêng của loại microclin mang màu, tuy nhiên, việc phát hiện loại orthoclas màu lục rất đẹp trong pegmatit ở Broken Hill, Australia (Čech, 1971) cũng như orthoclas màu lam - lục trong khối granit Maikul ở Kazakhstan cho thấy, ngoài microclin còn có orthoclas cũng có thể mang màu lam, lục. Vì vậy, Čech đã đề nghị mở rộng tên amazonit cho cả orthoclas và các feldspar khác mang màu tương tự.

Feldspar kali thuộc nhóm feldspar là nhóm khoáng vật tạo đá rất phổ biến trên Trái đất, chiếm đến 41% trọng lượng vỏ lục địa, có mặt trong cả ba loại đá, từ magma, biến chất đến trầm tích. Các khoáng vật của nhóm feldspar thuộc loại silicat khung, có công thức tổng quát là  $X[(Al, Si)_2O_8]$ , X có thể là K, Na, Ca, hiếm hơn là Ba. Đa số khoáng vật của nhóm có thể chia thành hai phụ nhóm chính là feldspar kiềm và plagiocla. Phụ nhóm feldspar kiềm gồm các khoáng vật thuộc dãy đồng hình của hai thành phần là feldspar kali -  $K[AlSi_3O_8]$  và feldspar natri-(albit)- $Na[AlSi_3O_8]$ . Phụ nhóm plagiocla gồm các khoáng vật thuộc dãy đồng hình của hai thành phần gồm albit -  $Na[AlSi_3O_8]$  và anorthit -  $Ca[(Al, Si)_2O_8]$ . Feldspar kali gồm ba biến thể là sanidin, orthoclas và microclin khác nhau về cấu trúc mạng và tính chất quang học, liên quan với sự sắp xếp nguyên tố Si và Al trong cấu trúc tinh thể. Các đặc điểm về thành phần và cấu trúc của khoáng vật feldspar phản ánh điều kiện thành tạo của chúng cũng như các đá chứa chúng, do đó được các nhà nghiên cứu địa chất rất quan tâm.

## 2.1. Về cấu trúc

Mô hình cấu trúc cơ bản của feldpat có thể hình dung qua cấu trúc của khoáng vật sanidin  $K[AlSi_3O_8]$ . Mạng tinh thể của sanidin thuộc nhóm không gian  $C2/m$ , số đơn vị cơ sở  $Z = 4$  được xây dựng từ các tứ diện đều  $[TO_4]$  với T là Si hoặc Al. Đơn vị cơ sở của cấu trúc khung của feldpat là các vòng bốn tứ diện, trong đó các tứ diện móc nối với nhau qua trục đối xứng bậc 2. Nhân rộng các vòng bốn tứ diện này bằng các yếu tố đối xứng sẽ thu được một chuỗi xếp nếp các vòng bốn kéo dài theo trục x. Trong chuỗi này có thể phân ra hai loại vòng bốn: một loại nằm gần như song song với mặt (010), loại thứ hai vuông góc với mặt này. Liên kết các chuỗi xếp nếp vòng bốn lại sẽ được cấu trúc khung ba chiều của feldpat, tại các lỗ hổng lớn của khung phân bố các nguyên tử nguyên tố kiềm M. Trong cấu trúc các nguyên tử oxy sẽ tạo nên bốn hệ quy tắc điểm là  $O_A O_B O_C O_D$ . Các nguyên tử  $O_A$  chiếm các vị trí riêng và phân thành hai phụ nhóm: các nguyên tử  $O_{A1}$  nằm trên trục bậc hai, các nguyên tử  $O_{A2}$  nằm trên mặt phẳng đối xứng. Các nguyên tử còn lại  $O_B O_C O_D$  chiếm các vị trí tổng quát. Các nguyên tử T (Si, Al) tạo nên hai hệ quy tắc điểm là  $T_1$  và  $T_2$ . Các nguyên tử M (K) tạo nên một hệ quy tắc điểm và nằm trên mặt phẳng đối xứng. Mô hình trên là mô hình đơn giản hóa và lý tưởng của feldpat hệ một nghiêng. Sự phân bố của Al, Si ở các vị trí T tạo nên sự khác biệt về độ trật tự Al-Si dẫn tới sự hình thành các biến thể khác nhau của feldpat nói chung và feldpat K nói riêng.

## 2.2. Về độ trật tự Al-Si

Khi nghiên cứu về khoáng vật feldpat, đặc điểm phân bố nguyên tử Al và Si ở các vị trí tinh thể học - độ trật tự Al-Si - là một trong số các vấn đề được quan tâm nhiều nhất vì nó thể hiện rõ điều kiện nhiệt động (nhiệt độ - T, áp suất - P) thành tạo. Feldpat hoàn toàn mất trật tự khi các nguyên tử Al phân bố với xác suất thống kê bằng nhau ở tất cả các vị trí tinh thể học không tương đương. Ngược lại, feldpat hoàn toàn trật tự khi các nguyên tử Al chỉ phân bố ở một vị trí tinh thể học nhất định. Để hiểu hơn về độ trật tự Al-Si có thể xem xét mô hình đơn giản sau của feldpat kali  $K[AlSi_3O_8]$ . Trong cấu trúc của feldpat thuộc hệ ba nghiêng, các nguyên tử Si và Al được phân bố ở bốn vị trí tinh thể học T không tương đương, được ký hiệu là 1, 2, 3, 4. Nếu thể hiện xác suất của Al trong các vị trí tinh thể học khác nhau đó bằng các chữ  $t_1, t_2, t_3, t_4$  tương ứng các vị trí 1, 2, 3, 4 thì trong trường hợp hoàn toàn trật tự khi tất cả nguyên tử Al phân bố ở vị trí 1, ta có  $t_1 = 1,0$ ;  $t_2 = t_3 = t_4 = 0,0$ . Trong trường hợp hoàn toàn mất trật tự, nguyên tử Al phân bố ở bốn vị trí không tương đương với xác suất bằng nhau  $t_1 = t_2 = t_3 = t_4 = 0,25$ . Trong feldpat có độ trật tự trung gian, xác suất Al ở các vị trí khác nhau sẽ khác nhau. Orthoclas là biến thể feldpat kali có độ trật tự trung gian với đối xứng thuộc hệ một nghiêng như sanidin. Quá trình sắp xếp trật tự nguyên tử Al dẫn đến việc giảm đối xứng của feldpat kali xuống hệ ba nghiêng (microclin) với nhóm không gian C-1, trong khi mô hình cấu trúc không đổi về cơ bản nhưng mạng bị biến dạng dẫn tới sự triệt tiêu mặt phẳng đối xứng và trục đối xứng bậc hai, đồng thời nhân đôi hai vị trí không tương đương  $T_1$  và  $T_2$  thành bốn là  $T_{1O}, T_{1m}, T_{2O}$  và  $T_{2m}$ , xác suất Al gặp trong các vị trí tương ứng là  $t_{1O}, t_{1m}, t_{2O}$  và  $t_{2m}$ . Feldpat hoàn toàn mất trật tự là sanidin nhiệt độ cao, tiếp đến là orthoclas có độ trật tự trung bình khi Al tập trung chủ yếu ở vị trí  $T_1$ , trật tự hoàn toàn là microclin cực đại khi Al tập trung hoàn toàn ở vị trí  $T_{1O}$ . Các biến thể thành tạo ở nhiệt độ cao đặc trưng bởi độ trật tự Al-Si thấp, ngược lại, các biến thể thành tạo ở nhiệt độ thấp có độ trật tự Al-Si cao.

Để xác định chính xác hàm lượng Al ở vị trí tứ diện T phải xác định khoảng cách T-O là đại lượng phụ thuộc vào kích thước nguyên tử T. Khoảng cách Al-O có giá trị dao động từ 1,75 đến 1,78Å, Si-O từ 1,60 đến 1,61Å theo sự tính toán của các tác giả khác nhau (Frank-Kamenetskii, 1983). Tuy nhiên, để xác định gần đúng độ trật tự Al-Si của feldpat có thể sử dụng các giá trị gián tiếp như “độ xiên” (tiếng Anh là triclinicity hay obliquity) -  $\Delta$  chỉ độ lệch của mạng feldpat kali hệ ba nghiêng so với mạng hệ một nghiêng,  $\Delta = 0$  ở feldpat hệ một nghiêng,  $\Delta = 1$  ở microclin cực đại (Goldsmith, 1954).  $\Delta$  được xác định theo mức độ phân tách của đỉnh nhiễu xạ 131 trên giản đồ nhiễu xạ Roentgen. Cũng như vậy, hàm lượng Al  $t_1$  ( $t_{1O}, t_{1m}$ ),  $t_2$  ( $t_{2O}$  và  $t_{2m}$ ) ở các vị trí tứ diện tương ứng  $T_1$  ( $T_{1O}, T_{1m}$ ),  $T_2$  ( $T_{2O}$  và  $T_{2m}$ ) được xác định theo thông số ô mạng cơ sở hoặc theo vị trí một số đỉnh nhiễu xạ (Kamentsev, 1977; Krol, 1987; Stewart, 1969, 1974).

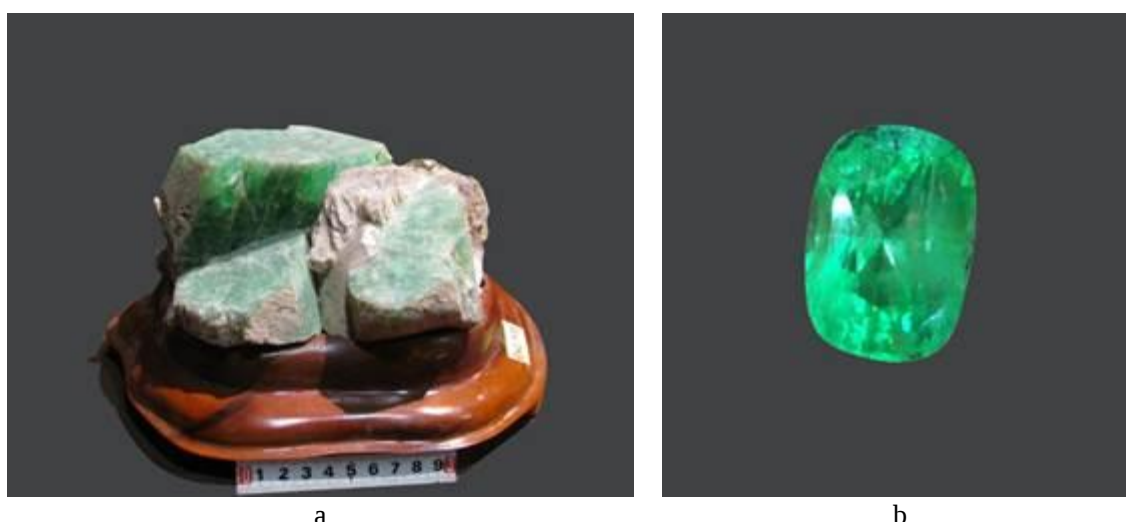
## 2.3. Về màu của amazonit và các feldpat khác

Màu đặc trưng của amazonit là lục-lam đến lam-lục. Trước đây người ta tưởng rằng tạp chất Cu gây màu cho amazonit, vì nguyên tố này thường gây nên các màu lam, lục cho nhiều loại khoáng vật và đá quý. Tuy nhiên từ khoảng giữa thế kỷ trước người ta đã nhận thấy hàm lượng Pb trong microclin-amazonit thường cao hơn hẳn so với microclin bình thường không mang màu lam, lục. Từ đó đã có nhiều công trình nghiên cứu về nguyên nhân gây màu cho amazonit trong đó cần kể đến nghiên cứu

của Hofmeister (1985, 1986), Julg (1998), Petrov (1993) đã cho những kết quả và luận giải khá thuyết phục. Tất cả kết quả nghiên cứu đều cho thấy Pb là nguyên nhân gây màu, tuy nhiên về cơ chế gây màu còn có những giải thích khác nhau.

#### **2.4. Về fenspat màu lục của Yên Bái**

Những mẫu fenspat màu xanh lục (Hình 1) bắt đầu được khai thác và thu thập ở huyện Lục Yên, tỉnh Yên Bái từ cuối những năm 90 của thế kỷ trước. Chúng được mua bán, trao đổi dưới tên amazonit Lục Yên.



Hình 1. Mẫu amazonit màu lục của Lục Yên: a) mẫu của Công ty Đá quý Địa Kim Châu; b) mẫu của Công ty Đá quý Việt Phương, trọng lượng 17,61 cts

Thông tin đầu tiên về amazonit này được Ponahlo và cộng sự công bố trong một hội thảo khoa học về ngọc học tại Madrid (Tây Ban Nha) vào năm 2001. Các kết quả phân tích bằng phương pháp nhiễu xạ tia Roentgen (XRD) cho thấy chúng thuộc biến thể orthoclas nên được các tác giả trên gọi là “orthoclas màu lục kiểu amazonit”. Sử dụng các phương pháp phân tích khác nhau như phổ hồng ngoại (IR) (Laurs, 2005), phổ Raman (Huong, 2012), XRD (Huong, 2016; Sokolov, 2007) đều cho kết quả fenspat màu lục của Yên Bái là biến thể orthoclas, vì thế nó được gọi bằng những tên khác nhau như orthoclas màu lục (Huong, 2012; 2016; Laurs, 2005) hay orthoclas amazonit (Sokolov, 2007). Tuy nhiên, theo nghiên cứu của các tác giả bài báo này (Nhưng, 2005, 2010); Thuyết, 2011) lại cho thấy loại fenspat màu lam - lục của Lục Yên thuộc biến thể microclin có độ trật tự Al-Si trung gian, vì thế nó được gọi là amazonit.

#### **3. Đặc điểm địa chất vùng Lục Yên**

Lục Yên là một trong số 7 huyện của tỉnh Yên Bái, cách Hà Nội 270 km về phía Đông Bắc, giới hạn trong tọa độ: 21°54-22°18 vĩ tuyến Bắc và 104°34-104°55 kinh độ Đông. Sông Chảy chạy ngang huyện theo hướng TB-ĐN, còn sông Hồng nằm ở phía Tây huyện. Về mặt địa chất, Lục Yên thuộc hai đới cấu trúc là Lô Gâm và Sông Hồng với ranh giới là đứt gãy Sông Chảy (Xuyen, 2000; Vinh, 2005). Các thân pegmatit chứa đá quý chỉ được phát hiện trong đới cấu trúc Lô Gâm. Trong khu vực này lộ ra các đá trầm tích cổ tuổi Proterozoi bị biến chất gồm đá phiến thạch anh mica bị migmatit hóa, gneis hóa xen kẹp các thấu kính đá hoa, quartzit của hệ tầng Thác Bà và đá hoa, đá phiến hai mica của hệ tầng An Phú. Phủ trực tiếp lên các đá của hệ tầng Thác Bà và hệ tầng An Phú là các đá trầm tích bờ rời có tuổi Đệ tứ chứa các đá quý dạng sa khoáng. Các đá magma trong khu vực gồm syenit, granosyenit phức hệ Phia Ma tuổi Paleozoi, gabro phức hệ Núi Chúa và granit biotit phức hệ Phia Bioc cùng tuổi Trias. Trong khu vực lộ ra rất nhiều thân pegmatit được cho là thuộc phức hệ Phia Ma hoặc phức hệ Phia Bioc, hoặc không rõ nguồn gốc (Xuyen, 2000). Trong số này đã phát hiện được một số thân pegmatit chứa đá quý (tourmalin, amazonit, lepidolit, thạch anh) ở các địa điểm thuộc các xã Minh Tiến,

An Phú, Khai Trung và Tân Lập. Felspat màu lục gặp trong các thân pegmatit ở Minh Tiến và An Phú. Pegmatit chứa đá quý này được xác định thuộc họ pegmatit LCT, tức là pegmatit giàu nguyên tố liti, cesi và tantan (Thuyết, 2016) theo sơ đồ phân loại của Cerny và Ecart, 2005. Các kết quả phân tích tuổi đồng vị K-Ar trên felspat kali của pegmatit Minh Tiến tại Phòng thí nghiệm Địa chất và Địa niên biểu thuộc Viện Nghiên cứu Khoa học Trái đất của Trường Đại học Khoa học Okayama (Nhật Bản) cho tuổi 30,58 Tr.n (Nhưng, 2007). Như vậy có thể thấy các thân pegmatit này được thành tạo ở giai đoạn muộn hơn rất nhiều so với các pha hoạt động magma tuổi Paleozoi và Mezozoi tạo nên các khối xâm nhập lớn lộ ra trong khu vực. Nhiều khả năng các đá pegmatit này được thành tạo trong pha magma - kiến tạo Oligocen (33-23 Tr.n) với sự phát triển magma nóng chảy vỏ kiểu Himalaya (Searle, 2006).

#### 4. Mẫu và phương pháp nghiên cứu

Trong các công trình nghiên cứu về felspat màu lục - lam của Lục Yên được công bố từ 2001 đến nay, để xác định loại biến thể người ta đã sử dụng các phương pháp khác nhau bao gồm phương pháp XRD, phương pháp phổ FTIR, phương pháp phổ Raman. Tất cả các phương pháp trên đều dùng phương pháp đối chiếu giản đồ thu được từ mẫu nghiên cứu với mẫu chuẩn (orthoclas và microclin) trong ngân hàng dữ liệu để rút ra kết luận. Điều này có thể dẫn đến khó khăn khi mẫu nghiên cứu có đặc điểm trung gian giữa các biến thể một nghiêng và ba nghiêng do có độ trật tự Al-Si trung gian. Để khắc phục điều này, tác giả bài báo đã chọn phương pháp XRD cho mẫu bột để xác định độ trật tự Al-Si cho các mẫu felspat. So với các công trình trước, mẫu phân tích được tăng lên về số lượng và đa dạng hơn về màu sắc, độ trong suốt, bao gồm hai mươi mẫu felspat có màu từ lục đến lam với độ đậm nhạt và độ trong suốt thay đổi. Mẫu được nghiền nhỏ đến kích thước 1-2 mm và chọn dưới kính hiển vi soi nổi để loại trừ các khoáng vật cộng sinh như thạch anh, mica, và đặc biệt là albit.

Thiết bị được sử dụng là máy nhiễu xạ D5005 Siemens, bức xạ Cu ( $K\alpha_1 = 1,54056 \text{ \AA}$ ). Mỗi mẫu được chụp ở hai chế độ:

1. Giản đồ toàn phần với góc quay  $2\theta$  của ống đếm từ  $5^\circ$  đến  $70^\circ$ , tốc độ quay  $0,030^\circ / 1,0$  giây.
2. Giản đồ từng phần với tốc độ quay chậm hơn là  $0,003^\circ / 1,0$  giây hoặc  $0,005^\circ / 1,0$  giây cho đỉnh nhiễu xạ 131, 1-31 (khoảng góc quay  $2\theta = 29-32^\circ$ ), đỉnh 060 ( $41-43^\circ$ ) và đỉnh -204 ( $50-52^\circ$ ) với mục đích xác định chính xác vị trí các đỉnh nhiễu xạ trên.

Phân tích XRD được thực hiện tại phòng Nhiễu xạ Roentgen thuộc Trung tâm Khoa học Vật liệu, Trường Đại học Khoa học Tự nhiên, Đại học Quốc gia Hà nội.

Dựa vào sự thể hiện của đỉnh nhiễu xạ 131 để phân biệt biến thể hệ một nghiêng (orthoclas) với biến thể hệ ba nghiêng (microclin). Biến thể hệ một nghiêng chỉ thể hiện một đỉnh nhiễu xạ 131, trong khi các biến thể hệ ba nghiêng có hai đỉnh nhiễu xạ 131 và 1-31. “Độ xiên” được xác định dựa vào sự tách của các đỉnh nhiễu xạ 131 và 1-31 theo biểu thức (1) của Goldsmith và Laves, 1954.

$$\Delta = 12,5 (d_{1-31} - d_{131}) \quad (1)$$

Độ trật tự Al-Si được đánh giá qua hàm lượng Al ở hai vị trí  $T_1$  ( $t_{10}$  và  $t_{1m}$ ) và được xác định dựa vào các đỉnh nhiễu xạ 060 và -204 theo phương pháp của Kroll và Ribbe, 1987 bằng biểu thức (2) nếu mẫu là biến thể microclin, bằng biểu thức (3) nếu mẫu là biến thể orthoclas.

$$\sum t_1 = \frac{2\theta (060) + 8,3063 - 0,96459 [2\theta (-204)]}{-6,5616 + 0,15724 [2\theta (-204)]} \quad (2)$$

$$\sum t_1 = \frac{2\theta (060) + 12,1814 - 1,04093 [2\theta (-204)]}{0,6112 + 0,01592 [2\theta (-204)]} \quad (3)$$

Bốn mẫu feldspar màu lục của Lục Yên (hai mẫu thuộc biến thể microclin, hai mẫu còn lại - orthoclas) được xác định thành phần hóa học bằng phương pháp phân tích vi dò điện tử (EPMA) trên thiết bị SXFive - CAMECA của Viện Địa chất, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam ở điều kiện áp 15 kV, cường độ dòng 20 nA, kích thước chùm tia điện tử 1-2  $\mu\text{m}$ . Ngoài các nguyên tố tạo đá chính, một số nguyên tố khác được quan tâm, đó là Pb- được cho là nguyên nhân gây màu cho feldspar, Cs và Rb- liên quan với môi trường thành tạo.

## 5. Kết quả nghiên cứu

Trong số 20 mẫu feldspar được nghiên cứu đã phát hiện được 8 mẫu thuộc hệ ba nghiêng (microclin) và 12 mẫu thuộc hệ một nghiêng (orthoclas). Các mẫu orthoclas đặc trưng bởi một đỉnh nhiễu xạ 131 (Hình 2a), trong khi microclin thể hiện hai đỉnh nhiễu xạ 131 và 1-31 (Hình 2b).

Độ xiên  $\Delta$  của các mẫu được thể hiện qua Bảng 1.

Hàm lượng Al ở vị trí cấu trúc T1( $\Sigma_{t1}$ ) cho các mẫu microclin được thể hiện trong Bảng 2, các mẫu orthoclas ở Bảng 3.

Thành phần hóa học của 4 mẫu feldspar màu lục Yên Bái xác định bằng phương pháp EPMA được trình bày trong Bảng 4. Mỗi mẫu được bắn ở 5 vị trí, giá trị phân tích được lấy trung bình. Hai trong số bốn mẫu được bắn lặp lại.

*Nhận xét:* Tất cả các mẫu feldspar đều có hàm lượng Na thay thế K thấp, giá trị này ở microclin thấp hơn ở orthoclas. Ở các mẫu microclin có thể thấy hiện tượng mọc xen feldspar kali với albit (mẫu cục Fsp 2005-1, Hình 3a) hoặc bao thể albit trong tinh thể microclin (mẫu Fsp 13, Bảng 4).



| STT | Mẫu         | d <sub>060</sub> | 2θ <sub>060</sub> | d <sub>-204</sub> | 2θ <sub>-204</sub> | Σt <sub>1</sub> | Δ    |
|-----|-------------|------------------|-------------------|-------------------|--------------------|-----------------|------|
| 1   | Fsp-2005-3  | 2,1580           | 41,8334           | 1,8002            | 50,6666            | 0,90            | 0,69 |
| 2   | FSp 2013-1  | 2,1560           | 41,8666           | 1,7987            | 50,7000            | 0,90            | 0,48 |
| 3   | Fsp 2013-3  | 2,1595           | 41,8000           | 1,8000            | 50,6600            | 0,88            | 0,48 |
| 4   | Fsp-13      | 2,1568           | 41,8666           | 1,8013            | 50,6334            | 0,95            | 0,91 |
| 5   | Fsp 2014-24 | 2,1618           | 41,7666           | 1,8002            | 50,6666            | 0,85            | 0,23 |
| 6   | Fsp 21/3    | 2,1583           | 41,8334           | 1,7978            | 50,7334            | 0,85            | 0,69 |
| 7   | Fsp 19      | 2,1566           | 41,8666           | 1,7985            | 50,7334            | 0,87            | 0,40 |
| 8   | Fsp 20      | 2,1588           | 41,8000           | 1,7996            | 50,6666            | 0,88            | 0,43 |

Bảng 3. Kết quả xác định hàm lượng Al ở vị trí cấu trúc T1(Σt<sub>1</sub>) theo giá trị góc 2θ<sub>060</sub> và 2θ<sub>-204</sub> cho orthoclas màu lục của Lục Yên

| STT | Mẫu                        | d <sub>060</sub> | 2θ <sub>060</sub> | d <sub>-204</sub> | 2θ <sub>-204</sub> | Σt <sub>1</sub> |
|-----|----------------------------|------------------|-------------------|-------------------|--------------------|-----------------|
| 1   | Fsp2005-10                 | 2,1580           | 41,8334           | 1,7963            | 50,8000            | 0,80            |
| 2   | Fsp-2013-4                 | 2,1631           | 41,7334           | 1,7976            | 50,7334            | 0,78            |
| 3   | Fsp-2013-6                 | 2,1643           | 41,7000           | 1,7997            | 50,7000            | 0,78            |
| 4   | Fsp-2013-7                 | 2,1622           | 41,7334           | 1,7996            | 50,7000            | 0,80            |
| 5   | Fsp-10                     | 2,1616           | 41,7666           | 1,7957            | 50,8000            | 0,75            |
| 6   | Fsp-11                     | 2,1630           | 41,7334           | 1,7967            | 50,7666            | 0,75            |
| 7   | Fsp-12                     | 2,1623           | 41,7334           | 1,7969            | 50,7666            | 0,75            |
| 8   | Fsp-14                     | 2,1642           | 41,7000           | 1,7972            | 50,7666            | 0,73            |
| 9   | Fsp-2005-4                 | 2,1631           | 41,7334           | 1,7974            | 50,7666            | 0,75            |
| 10  | Fsp-2014-23                | 2,1638           | 41,7000           | 1,7964            | 50,8000            | 0,71            |
| 11  | Fsp-18                     | 2,1600           | 41,8000           | 1,7972            | 50,7666            | 0,81            |
| 12  | Fsp-21                     | 2,1612           | 41,7666           | 1,7971            | 50,7666            | 0,78            |
| 13  | Broken Hill<br>Orthoclas * | 2,165            | 41,7000           | 1,802             | 50,6000            | 0,85            |

Chú thích: \* Σt<sub>1</sub> được tính theo các giá trị d<sub>060</sub> và d<sub>-204</sub> cho mẫu orthoclas ở Broken Hill (Čech, 1971)

Bảng 4. Thành phần hóa học (% tl. oxyt) của feldpat màu lục Lục Yên

| Mẫu                            | Fsp2014-23 |       | Fsp 12    |        | Fsp 13    |        | Fsp2005-1 |
|--------------------------------|------------|-------|-----------|--------|-----------|--------|-----------|
| Biến thể                       | Orthoclas  |       | Orthoclas |        | Microclin |        | Microclin |
|                                | Lần 1      | Lần 2 |           | Lần 1  | Lần 2     | Lần 2  |           |
| SiO <sub>2</sub>               | 65,57      | 65,66 | 63,66     | 65,62  | 65,33     | 68,62  | 65,05     |
| Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | 21,30      | 17,63 | 21,49     | 20,49  | 18,83     | 19,57  | 19,44     |
| TiO <sub>2</sub>               | 0,02       | 0,00  | 0,01      | 0,01   | 0,00      | 0,00   | 0,01      |
| FeO                            | 0,00       | 0,02  | 0,01      | 0,02   | 0,02      | 0,04   | 0,03      |
| MgO                            | 0,00       | 0,00  | 0,00      | 0,00   | 0,00      | 0,00   | 0,00      |
| PbO                            | 0,38       | 0,72  | 0,29      | 0,00   | 0,20      | 0,69   | 0,29      |
| CaO                            | 0,00       | 0,00  | 0,00      | 0,00   | 0,00      | 0,02   | 0,00      |
| K <sub>2</sub> O               | 12,37      | 13,36 | 12,58     | 14,82  | 14,97     | 2,24   | 14,23     |
| Na <sub>2</sub> O              | 1,28       | 0,86  | 0,87      | 0,60   | 0,49      | 9,17   | 0,72      |
| Cs <sub>2</sub> O              | 0,27       | 0,22  | 0,20      | 0,05   | 0,04      | 0,03   | 0,03      |
| Rb <sub>2</sub> O              | 0,00       | 0,15  | 0,00      | 0,00   | 0,00      | 0,00   | 0,00      |
|                                | 100,54     | 98,64 | 99,10     | 101,67 | 99,88     | 100,37 | 99,81     |
| Σ t <sub>1</sub>               | 0,71       |       | 0,75      |        | 0,95      |        | 0,90      |
| Δ                              |            |       |           |        | 0,91      |        | 0,69      |

Hàm lượng các nguyên tố Ti, Fe, Mg, Ca trong feldpat kali đều rất thấp, thậm chí dưới ngưỡng phát hiện của thiết bị (các nguyên tố Ca, Mg).

Nguyên tố Pb được phát hiện trong tất cả các mẫu. Hàm lượng Pb trong orthoclas cao hơn (0,29% đến 0,72% tl. oxyt) so với microclin (0,20% đến 0,29%). Áp dụng phương pháp tạo bản đồ màu cho mẫu orthoclas (mẫu Fsp 2014-23) cho thấy Pb phân bố khá đồng đều trong mẫu.

Nguyên tố Cs được phát hiện trong tất cả các mẫu với hàm lượng trong mẫu orthoclas (0,20 đến 0,27% tl. oxyt) cao hơn so với microclin (0,03 đến 0,05%). Nguyên tố Rb chỉ được phát hiện trong mẫu orthoclas.

## 5. Thảo luận

Từ các kết quả phân tích thu được có thể nhận thấy là feldspar màu lục của Lục Yên có độ trật tự Al-Si thay đổi với biên độ khá rộng. Tổng hàm lượng Al ở vị trí T1 ( $\Sigma t_1$ ) dao động từ 0,71 đến 0,81 ở các mẫu orthoclas và từ 0,85 đến 0,95 ở các mẫu microclin. Các giá trị này xấp xỉ với các giá trị (0,82 và 0,79) cho các mẫu tương ứng (Fsp10 và Fsp11) được xác định qua thông số ô mạng (Hương và nnk, 2016). Giá trị độ xiên  $\Delta$  của các mẫu microclin dao động từ 0,23 (mẫu Fsp 2014-24 với  $\Sigma t_1=0,85$ ) đến 0,91 (mẫu Fsp 13 với  $\Sigma t_1=0,95$ ). Giữa các giá trị  $\Sigma t_1$  và  $\Delta$  có thể thấy mối quan hệ tuyến tính mặc dù không thực sự chặt chẽ. Sự thay thế K bởi nguyên tố Na giảm dần từ orthoclas đến microclin. Ở microclin thường gặp hiện tượng mọc xen với albit và tourmalin màu đen (Hình 3a). Hàm lượng nguyên tố Pb giảm dần theo sự tăng độ trật tự Al-Si (thể hiện qua giá trị  $\Sigma t_1$ ) từ orthoclas (0,29-0,72%) đến microclin (0,0-0,29%). Kết quả này cũng xấp xỉ với các số liệu phân tích (0,29-0,81% cho orthoclas) của các tác giả khác (Laurs và nnk, 2005; Petrov và nnk, 1993; Sokolov và nnk, 2007) và cao hơn so với giá trị 0,09% cho microclin trong công trình của Thuyết và nnk (2011). Tương tự như Pb, hàm lượng các nguyên tố Cs và Rb trong orthoclas cao hơn trong microclin và có xu hướng giảm dần theo sự tăng của độ trật tự. Điều này phù hợp với nhận định của Ostrooumov và nnk (1982) về sự thay thế nguyên tố K bởi Pb và các nguyên tố kiềm có bán kính lớn đã cản trở sự sắp xếp lại của Al để cấu trúc đạt được độ trật tự cao. Các kết quả của Thuyết và nnk (2011) cho hàm lượng Rb trong microclin rất cao (1,30-1,96% tl. RbO<sub>2</sub>) có thể liên quan với các bao thể mica giàu Rb, Cs trong feldspar. Nghiên cứu của Ostrooumov (2005) đối với amazonit trong pegmatit granit tại bán đảo Kola (Nga) cho thấy, theo chiều từ rìa vào tâm của thân pegmatit, microclin có hàm lượng Na giảm nhưng Pb, Rb, Cs tăng, đồng thời màu cũng thay đổi từ lam đến lục pha lam và cuối cùng là lục và độ trật tự của microclin ở rìa cao hơn ở tâm. Vết lộ thân pegmatit chứa đá quý ở Lục Yên không đủ lớn và rõ để quan sát lát cắt từ rìa vào tâm cũng như cho việc thu thập mẫu nhưng vận dụng quy luật mà Ostrooumov ghi nhận được cho amazonit trong pegmatit ở bán đảo Kola thì có thể nhận định rằng orthoclas Lục Yên được thành tạo sau microclin và tập trung ở phần tâm của thân pegmatit. Điều này giống với quy luật chung khi các khoáng vật đá quý có chất lượng ngọc cao nhất (độ trong cao, kích thước lớn) thường tập trung trong các hốc, buồng ở phần tâm của thân pegmatit. Orthoclas được thành tạo sau microclin, ở nhiệt độ thấp hơn, dường như trái quy luật, nếu như không được giải thích bởi quá trình sắp xếp trật tự diễn ra trong một thời gian dài sau kết tinh và sự có mặt với hàm lượng cao của Pb và các ion kiềm kích thước lớn như Rb, Cs trong cấu trúc đã cản trở quá trình này. Trên cơ sở nghiên cứu amazonit của nhiều vùng trên thế giới, Ostrooumov et al, 1982 (Ostrooumov và nnk, 1982) nhận thấy amazonit trong pegmatit tuổi cổ có độ trật tự cao hơn amazonit trong pegmatit tuổi trẻ. Điều này phù hợp với độ trật tự trung bình của feldspar màu lục Lục Yên khi pegmatit chứa chúng có tuổi Oligocen. Pegmatit Broken Hill tuy có tuổi cổ (Arkei hoặc Proterozoi muộn) nhưng chứa feldspar màu lục với độ trật tự không cao ( $\Sigma t_1=0,85$ ) có thể vì hàm lượng Pb, Rb, nhất là Pb trong feldspar đặc biệt cao.



Hình 3. Màu và độ trong điển hình của feldpat màu lục Lục Yên: a) microclin; b) orthoclas

Về màu sắc của feldpat màu lục Lục Yên (Hình 3) có thể thấy phần lớn microclin thường có màu lục pha lam đến lam nhạt kèm sắc xám, hiếm khi có màu lục đậm, lục tươi. Độ trong của các mẫu microclin thường thấp, thích hợp để làm đồ mỹ nghệ hoặc đá trưng bày (Hình 3a). Trái lại, các mẫu orthoclas thường có màu lục tươi và độ trong cao hơn, một lượng nhỏ đạt chất lượng ngọc cao, có thể chế tác làm đồ trang sức như mặt nhẫn (Hình 3b), có lẽ sự tồn tại đồng thời của microclin và orthoclas màu lục trong pegmatit Lục Yên cũng như sự hạn chế số về lượng mẫu xác định mà các nhóm nghiên cứu đã thu được các kết quả khác nhau về dạng biến thể của loại đá này.

## 6. Kết luận

Các kết quả xác định độ trật tự Al-Si của feldpat màu lục của Lục Yên cho thấy giá trị này dao động trong một khoảng khá lớn với  $\sum t_1$  từ 0,71 đến 0,95, độ xen  $\Delta$  từ 0 đến 0,91, tương ứng với orthoclas và microclin, điều đó có nghĩa là feldpat màu lục của Lục Yên tồn tại ở hai biến thể là một nghiêng và ba nghiêng.

Các nguyên tố Pb và hiếm Rb, Cs có mặt trong orthoclas đã gây cản trở quá trình sắp xếp trật tự nguyên tố Al. Chất lượng ngọc bao gồm màu sắc và độ trong ở orthoclas cao hơn so với microclin. Do màu lục tồn tại cả ở orthoclas và microclin nên tác giả bài báo này đề nghị sử dụng tên amazonit cho cả hai biến thể khoáng vật này và cho feldpat màu lục của Lục Yên.

**Lời cảm ơn:** Bài báo là một phần kết quả của đề tài mã số 105.02-2011.01 được tài trợ bởi Quỹ Phát triển Khoa học và Công nghệ Quốc gia (NAFOSTED). Các tác giả bài báo cảm ơn Viện Địa chất, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam đã hỗ trợ trong việc phân tích mẫu bằng phương pháp EPMA, Phòng Nhiễu xạ tia X, Trung tâm Khoa học Vật liệu, Trường Đại học Khoa học Tự nhiên, Đại học Quốc gia Hà Nội trong việc phân tích mẫu bằng phương pháp XRD. Tập thể tác giả cũng cảm ơn các Công ty Đá quý Việt Phương và Địa Kim Châu đã giúp đỡ trong việc sưu tập và chụp ảnh mẫu.

## Văn liệu

Čech F, Misař Z. and Povondra P, 1971. A green lead - containing orthoclase. *Tschermaks mineralogist and petrologist*, pp. 213-231.

Cerny P, Ecrut T.S, 2005. The classification of granitic pegmatites revisited. *The Canadian Mineralogist*, 43:2005-2026.

Frank-Kamenetskii V.A. (Chủ biên), 1983. Roentgen học các kiểu cơ bản của khoáng vật tạo đá (silicat lớp và khung). Nxb "Nhedra" 359 tr.(Tiếng Nga)

Goldsmith J.R, Laves F, 1954. The microcline-sanidine stability relations. *Geochim. Et cosmochim. Acta*, 5:1-19

Julg A, 1998. A theoretical study of the absorption spectra of  $Pb^{+}$  and  $Pb^{3+}$  inside  $K^{+}$  of Microcline: application to the color of amazonite. *Phys Chem Minerals*, 25:229-233.

Hofmeister A.M. and Rossman G.R, 1985. A spectroscopic study of irradiation coloring of amazonite: Structurally hydrous, Pb-bearing feldpat. *American Mineralogist*, 70:794-804.

- Hofmeister A.M. and Rossman G.R., 1986.** A spectroscopic study of blue radiation coloring in plagioclase. *American Mineralogist*, 71:95-98.
- Huong L.T.T, Häger T, Hofmeister W, Hauzenberger C, Schwarz D, Long P.V, Khoi N.N, Nhung N.T, 2012.** Gemstones from Vietnam: An Update. *Gems @ Gemology*, 48/3:158-176.
- Huong L.T.T, Nhung N.T, Kien N.D.T, M. Zubko, Häger T, Hofmeister W, 2016.** Structural investigation of K-feldspar  $\text{KAlSi}_3\text{O}_8$  crystals by XRD and Raman spectroscopy: An application to petrological study of Luc Yen pegmatites, Yen Bai province, Vietnam. *Acta physica Polonica A*, 129:892-893.
- Kamentsev I.E, Xmetannikova O.G, 1977.** Xác độ trật tự và thành phần của feldspar bằng phương pháp bột. *Tập chuyên san của Hội Khoáng vật học toàn Liên bang*, 106:476-481 (tiếng Nga).
- Krol H, Ribbe P.H, 1987.** Determining (Al, Si) distribution and strain in alkali feldspars using lattice parameters and diffraction-peak positions: A review, *Amer. Mineral.*, 72:491-506.
- Laurs B.M, Rossman G.R, Shipley J.E, 2005.** Gem News International: Green orthoclase feldspar from Vietnam. *Gems @ Gemology*, 41/4:354-355.
- Nguy T. Nhung, Le T.T. Huong, Nguyen T.M. Thuyet, Tobias Häger, Nguyen T.L. Quyen, Tran T. Duyen, 2017.** An Update on Tourmaline from Luc Yen, Vietnam. *Gems @ Gemology*, 53/2:190-203.
- Nguy T. Nhung, Nguyễn N. Khôi, Nguyễn T.M. Thuyết, Nguyễn V. Nam, Phan V. Quỳnh, Vũ V. Tích, 2007.** Nghiên cứu xác lập một số loại hình mỏ đá quý có triển vọng công nghiệp của Việt Nam. *Đề tài trọng điểm, mã số QGTD.05.01, Đại học Quốc gia Hà Nội*.
- Nguy T. Nhung, Nguyễn T.M. Thuyết, Nguyễn N. Trường, Vũ N. Anh, Nguyễn V. Nam, 2005.** Đặc điểm thành phần khoáng vật của pegmatit chứa đá quý vùng Lục Yên. *Tuyển tập báo cáo Hội nghị Khoa học 60 năm Địa chất Việt Nam*, 713-722.
- Nguyen T.M. Thuyet, Nguy T. Nhung, Wolfgang Hofmeister, 2010.** Amazonite from the Luc Yen mining, Yen Bai, Vietnam. *The fifth International Workshop on Provenance and Properties of Gem and Geo - Materials, Hanoi, Vietnam*, pp.40-51.
- Nguyễn T.M. Thuyết, Nguy T. Nhung, 2011.** Xác định biến loại của feldspar trong pegmatit granit Minh Tiến, Lục Yên. *Tạp chí Các Khoa học về Trái đất*, 33/4:635-641.
- Nguyễn T.M. Thuyết, Nguy T. Nhung, 2016.** Định danh pegmatite chứa đá quý vùng mỏ Lục Yên, Yên Bái. *TC Khoa học ĐHQGHN. Các Khoa học Trái đất và Môi trường*, 32/28:164-176.
- Ostrooumov M, Banerjee A, 2005.** Typomorphic features of amazonitic K-feldspar from the Keivy granitic pegmatite (Kola Peninsula, Russia). *Schweizerische Mineralogische und Petrographische Mitteilungen* 85:89-102.
- Ostrooumov M, Vokhmentsev A, Marin I.U, 1982.** Về trạng thái cấu trúc của amazonit. *Tập chuyên san của Hội Khoáng vật học toàn Liên bang*, 106:476-481 (tiếng Nga).
- Petrov I, Mineeva R.M, Bershov L.V, Agel A., 1993.** EPR of  $[\text{Pb-Pb}]^{3+}$  mixed valence pairs in amazonite - type microcline. *American Mineralogist*, 78:500-510.
- Ponahlo J, Tam T.T, Brandstaetter F. and Wilder M, 2001.** Transparent green orthoclase, a new ornamental stone from North Vietnam. *28th International Gemmological Conference - Extended Abstracts. Madrid, Spain*, pp 71-75
- Searle M.P, 2006.** Role of the Red River Shear zone, Yunnan and Vietnam, in the continental extrusion of SE Asia. *Journal of Geological Society, London*, 163:1025-1036
- Sokolov M, Martin R.F. and Patterson J.E, 2007.** The unusual “noble” amazonitic orthoclase in the minh Tien “hybrid” granitic pegmatite, Luc Yen district, Vietnam. *Frontiers in Mineral Sciences, June 26-28, Cambridge, UK*.
- Stewart D.B, Ribbe P.H, 1969.** Structural explanation for variations in cell parameters of alkali feldspar with Al/Si ordering. *American Journal of Science*. A/267:444-462
- Stewart D.B, Wright T.L, 1974.** Al/Si order and symmetry of natural potassic feldspars and the relationship of strained cell parameters to bulk composition. *Bulletin de la Société française de Mineralogie et de Cristallographie*, 97:356-377.
- Xuyen T, Ed, 2000.** Geology and Mineral Resources Map of Vietnam, Bac Quang Sheet, Scale 1: 200.000 (F 48 XV). *Department of Geology and Minerals of Vietnam, Hanoi*.
- Vinh N, Ed, 2005.** Geology and Mineral Resources of Vietnam, Yen Bai Sheet, Scale 1: 200.000 (F 48 XXI). *Department of Geology and Minerals of Vietnam, Hanoi*

**Wilson W.E, 2007.** Tourmaline from the Minh Tien pegmatite, Luc Yen Mining District, Yenbai Province, Vietnam. *Mineralogical Record*, 38/6:453-457.