

## Genèse des granites à métaux rares : revue comparative des modèles géochimiques

L. Raimbault \*

Mots-clés : Modèle, Genèse, Granite, Métal rare, Fusion partielle, Diffusion, Immiscibilité.

### Résumé

L'interprétation des données géochimiques sur les granites à métaux rares (GMR) dont le granite de Beauvoir représente un bon exemple, peut se faire sur la base des modèles couramment utilisés en géochimie : cristallisation fractionnée ou en équilibre, fusion partielle en équilibre ; dans ce dernier cas, la fusion est généralement non-modal. Ces modèles impliquent des taux d'évolution très forts ou des taux de fusion très faibles.

Cependant, l'examen critique de ces modèles montre qu'ils peuvent se révéler inadaptés aux conditions de la genèse des GMR : la présence de phases se rééquilibrant peu pendant la fusion, telles que zircon, apatite ou monazite, rend quelque peu caduc le modèle à l'équilibre, pour de faibles taux de fusion. Un modèle de fusion en déséquilibre a donc été développé, en supposant une diffusion nulle dans les solides : cette hypothèse est symétrique à celle qui sous-tend le modèle de cristallisation fractionnée, mais l'équation résultante, linéaire, est de nature complètement différente. Des processus en déséquilibre créent donc une différence nette entre fusion et cristallisation.

De même, la précipitation de phases telles que zircon ou monazite interdit l'utilisation de la loi de Rayleigh sous sa forme usuelle : on montre qu'une forme différentielle de cette loi possède une validité extrêmement générale qui permet, moyennant la connaissance de la dépendance du rapport R entre les concentrations c' dans le solide et c dans le liquide vis-à-vis de c et f, la modélisation du comportement de tout élément chimique.

Enfin, les propriétés très particulières des GMR permettent d'envisager l'influence de processus plus particuliers tels que thermogravitation ou immiscibilité ; une méthode de reconnaissance graphique est proposée.

### Abstract

*The geochemical modeling of rare-metal granite genesis : a comparative review.*

The geochemical interpretation of rare-metal granites (RMG), such as the Beauvoir granite, can be made in terms of several well-known models : fractional or equilibrium crystallization implies a high differentiation grade, due to very low partition coefficients for rare metals, while non-modal partial melting requires small degrees of melting.

However, a critical review of these models shows that they are sometime inappropriate to the conditions of RMG genesis : the equilibrium partial melting model is thus somewhat invalidated by the presence of phases with a low reequilibration ability, such as zircon, apatite or monazite, at least for very small degrees of melting. A disequilibrium partial melting model has therefore been developed, assuming there is no diffusion in the solid phase : although this hypothesis leads to the Rayleigh's law, when applied to crystallization phenomena, we obtain in this case a linear equation. If we note p<sub>i</sub> the proportion of phase i participating to the melt and c' the concentrations, the resulting concentration in the liquid phase can be written as :  $c = \sum p_i c'$ .

Disequilibrium phenomena thus create an important distinction between fusion and crystallization processes.

In the same way, precipitation of accessory phases such as zircon or monazite prohibits the use of the integrated form of the Rayleigh's law for the modelization of Zr or LREE behaviour respectively ; a differential form :  $dc/c = (R-1) df/f$  where R is the ratio of the concentration in the solid to that in the liquid, and may therefore be taken as a variable, has a much more extensive validity which enables us to predict the behaviour of any element, as soon as the R-dependancy is known.

Finally, the properties of RMG may be considered as a favourable factor for the importance of more specific processes such as thermogravitation or liquation ; a graphic method is presented (figure 3) for the identification of these kinds of liquid-liquid interactions.

\* Laboratoire de géologie, École nationale supérieure des mines de Saint-Étienne, U.A. C.N.R.S. n° 384 « Métallogénie et pétrologie », 158 Cours Fauriel, F-42023 Saint-Étienne Cedex 2 et Laboratoire Pierre Sue, Groupe des Sciences de la Terre, C.E.N. Saclay, B.P. n° 2, F-91191 Gif-sur-Yvette Cedex.

## Introduction

Le granite de Beauvoir dans le massif d'Échassières représente un cas particulièrement bien typé de granite riche en métaux rares (Nb, Ta, Sn, Be, Li, Rb, Cs). De tels magmas, bien que peu courants, sont connus dans divers contextes, aussi bien, à l'état plutonique (e.g. Montebras -Aubert, 1969- ou Cinovec -Lange et al., 1972- dans la chaîne hercynienne; Dajishan -Burnol et al., 1986- en Chine du Sud, dans la chaîne yenshanienne ; Zhanchiblanski -Gerel et Valzhinnyam, 1984- en Mongolie Orientale ; etc.) qu'à l'état subvolcanique (ongonites de Mongolie et Sibérie Orientale, Kovaleenko et al., 1971 ; microgranite de Richemont, Burnol, 1974) ou même volcanique (macusanites du Pérou, Kontak et al., 1984 ; Pichavant et al., 1987). L'association spatiale de ces granites à métaux rares (GMR) avec des massifs plus importants en volume, et composés de leucogranites et/ou de granites à biotite, semble être la règle générale : cette observation géologique pose le problème de savoir si une telle relation traduit des liens de cogénétisme entre les différents ensembles du massif considéré (e.g. à Échassières, entre le leucogranite des Colettes et le granite à métaux rares de Beauvoir) ou s'il ne s'agit que de liens purement spatiaux.

Le but de cette note n'est pas de trancher ce problème, mais de présenter les différents modèles géochimiques dont l'application à chaque cas particulier permettra d'accepter ou d'éliminer les hypothèses sous-tendant chacun de ces modèles. Nous ne discuterons pas en détail les principaux modèles classiques de fusion, cristallisation, etc. pour lesquels nous renvoyons le lecteur aux articles de Hart et Allègre (1980) ou Allègre et Minster (1978) : nous contenterons ici de décrire les conséquences qu'ils impliquent dans les cas de taux de cristallisation très forts, ou de taux de fusion très faibles, qui correspondent aux GMR, les coefficients de partage silicate/liquide de ces éléments étant faibles.

Pour la commodité de l'exposé, nous présenterons ces modèles en les regroupant suivant la nature des échanges de matière mis en jeu :

1. effets liquide/solide (cristallisation) ;
2. effets solide/liquide (fusion, assimilation) ;
3. effets liquide/liquide (diffusion, immiscibilité, mélange) ;
4. effets liquide/fluides.

Dans cette dernière catégorie, entrent en particulier les interactions tardi- ou post-magmatiques avec les phases fluides, qui compliquent souvent les distributions magmatiques des éléments : il convient dans chaque cas, d'éliminer leurs effets avant de pouvoir identifier le processus pétrogénétique qui justifie au mieux les résultats analytiques.

Dans la suite, nous adopterons les notations suivantes :

R est le rapport des concentrations dans le solide et dans le liquide pour l'élément considéré (« coefficient de partage ») : *il n'a généralement pas valeur de coefficient de partage* (au sens strict du terme) ; lorsque ce sera le cas, nous noterons ce rapport par la notation usuelle D, mais ceci imposera la vérification d'un certain nombre d'hypothèses, en particulier l'application de la loi de Henry ;

W est la masse instantanée de liquide ;

$W_0$  est la masse initiale du système (solide ou liquide) ;  
 $f = W/W_0$  est la proportion de liquide par rapport au système initial ;  
 $m$  est la masse de l'élément dans le liquide ;  
 $c = m/W$  est la concentration de l'élément dans le liquide ;  
 $C_0$  est la concentration de l'élément dans le système initial (solide ou liquide) ;  
 $c'$  est la concentration *instantanée* dans le solide.

## 1. — Effets liquide/solide : phénomènes de cristallisation

### 1.1. — Équations

Les hypothèses couramment admises pour les systèmes en cours de cristallisation conduisent à deux modèles simples : la cristallisation en équilibre et la cristallisation fractionnée, régis par les lois de Berthelot-Nernst (1) et de Rayleigh (2) :

$$(1) \quad c/c_0 = 1 / (D + f \cdot (1 - D))$$

$$(2) \quad c/c_0 = f^{(D-1)}$$

Ces modèles de base peuvent être rendus plus complexes par l'adjonction d'hypothèses supplémentaires (e.g. extraction continue de liquide, Cann, 1982), mais ne sont guère modifiés dans leur principe.

La démonstration de l'équation (2) nécessite l'hypothèse que D reste constant, ce qui n'est pas toujours justifié dans les systèmes géologiques courants, en particulier si l'élément entre comme constituant majeur d'une phase accessoire : dans ce cas, si  $x$  représente la proportion de cette phase dans la fraction solide et  $c'$  la concentration de l'élément dans cette phase, le coefficient de répartition s'écrira (en négligeant les concentrations de l'élément dans les phases majeures où il n'apparaît que comme trace) :

$$(3) \quad R = x \cdot c''/c$$

et n'aura plus valeur de coefficient de partage, ni ne restera constant puisque si  $c''$  peut rester sensiblement constant,  $c$  au contraire est susceptible de varier. En effet, si la concentration dans le liquide est fixée par la solubilité de ces phases accessoires, pour une température et une composition du liquide données, cette solubilité varie considérablement en fonction de ces deux paramètres, et il convient donc de tenir compte des différences de températures existant entre les magmas originels des granites à biotite ou à deux micas, et des GMR, dont les teneurs en volatils (F, éventuellement B) abaissent considérablement ces températures (Manning, 1982), dans l'hypothèse d'une relation génétique entre ces ensembles. Pour de tels éléments, R sera donc fixé par la solubilité des phases accessoires, mais variera d'un magma à l'autre ; c'est le cas par exemple de Zr dans le zircon, phase ubiquiste dans les systèmes granitiques, de Ce dans la monazite ou l'allanite... Il est alors possible d'utiliser une forme différentielle de la loi de Rayleigh n'utilisant que la seule hypo-

thèse de conservation de la matière, qui s'écrit pour une cristallisation fractionnée :  $dm = c \cdot dW$ ; en différenciant l'équation  $c = m/W$ , en la divisant par  $m$  et en utilisant la définition de  $R = c'/c$ , on obtient l'équation :

$$(4) \quad \frac{dc}{c} = (R - 1) \frac{df}{f}$$

exprimant la proportionnalité des dérivées logarithmiques de  $c$  et de  $f$  (cette dernière étant égale à celle de  $W$ ). Cette équation (4) n'est en fait qu'une étape lors de la démonstration de l'équation (2), qui en représente la forme intégrée lorsque  $D$  peut être considéré comme constant; une forme intégrale analogue à l'équation (4), avec un coefficient de répartition variable, a été proposée par Greenland (1970) mais cet auteur impose la vérification de la loi Henry, ce qui de toute évidence n'est pas nécessaire : l'équation (4) peut en particulier s'appliquer aux éléments majeurs, qu'ils le soient dans toutes les phases ou seulement dans un accessoire. De plus, la formulation très agréable de cette équation devrait la faire préférer à la forme alambiquée donnée par Greenland (équation (6), p. 457).

## 1.2. — Application

Cette forme différentielle de la loi de Rayleigh, d'application extrêmement générale, permet la modélisation quantitative du comportement de tout élément dont on connaît la loi de variation de  $R$  en fonction de  $c$  et de  $f$ ; en particulier, dans le cas évoqué ci-dessus, l'utilisation de la relation (3) permet par intégration d'obtenir la loi d'évolution d'éléments comme Zr lorsqu'il y a cristallisation de zircon :

$$(5) \quad \frac{c}{c_0} = \frac{x \cdot c''}{c_0} - \frac{1}{f} \cdot \left( \frac{x \cdot c''}{c_0} - 1 \right)$$

Cette expression est très différente de l'équation (2) : ceci permet d'expliquer la différence de comportement entre des éléments de propriétés chimiques très voisines comme Zr et Hf, si l'on admet que ce dernier possède un coefficient de partage à peu près constant, dans la mesure où il s'agit d'un élément suffisamment dilué pour que l'on puisse appliquer la loi de Henry ; la figure 1 montre les variations importantes du

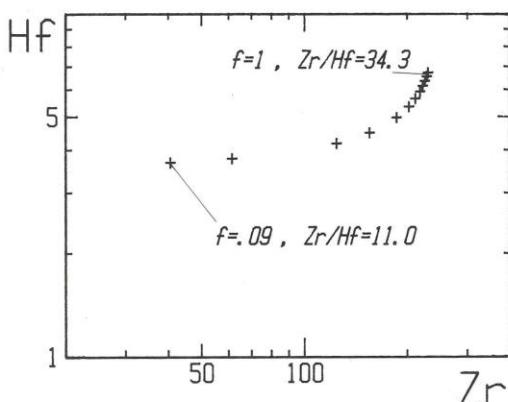


Fig. 1. — Fractionnement Zr/Hf au cours de la cristallisation fractionnée de zircon. Les paramètres choisis sont  $x_{\text{zircon}} = .0005$  et  $D^{\text{Hf}}_{\text{zircon}} = 2500$ .

Zr/Hf behaviour during fractional crystallization of zircon.  
Model parameters are  $x_{\text{zircon}} = .0005$  and  $D^{\text{Hf}}_{\text{zircon}} = 2500$ .

rapport Zr/Hf que l'on peut attendre d'un tel modèle ; de telles variations correspondent à des phénomènes rencontrés lors d'études d'exemples naturels (le rapport Zr/Hf varie de 35 à 26, 22, 15, 10, 5 dans les différents faciès granitiques de Dajishan-Raimbault et al., 1987).

La discussion de l'adéquation des modèles de cristallisation à l'étude de la genèse des GMR passe donc par la détermination de la nature et des proportions des phases solides ; de la vraisemblance de cet assemblage dépendra la validation ou l'invalidation du modèle. De manière générale, l'enrichissement très fort en métaux rares (particulièrement Ta et Sn) s'accorde mieux avec des processus de cristallisation fractionnée au cours desquels ces éléments ont un comportement « hygromagnaphile » avec  $D \ll 1$ , qu'avec des processus de cristallisation à l'équilibre : à conditions égales de  $D$  et  $f$ , l'enrichissement devient rapidement plus important dans le premier cas lorsque  $f$  devient faible.

Il reste à envisager la démixtion d'une phase fluide lorsque l'évolution du magma par cristallisation conduit à des conditions de saturation en eau : la modélisation de ce phénomène peut se faire avec le même modèle, en considérant simplement le fluide comme une phase supplémentaire intervenant dans le calcul de  $D$  (ou  $R$ ) ; cependant, comme les coefficients de partage fluide/magma sont très dépendants du chimisme du fluide (e.g. Flynn et Burnham, 1978, dans le cas des terres rares), et que celui-ci variera nécessairement au cours de la distillation, il est nécessaire pour une modélisation correcte d'utiliser la forme différentielle de la loi de Rayleigh, et donc de connaître la dépendance de  $R$  vis-à-vis de  $f$  et de  $c$ .

## 1.3. — Interprétation des hypothèses

Afin de pouvoir comparer les différents modèles entre eux, il est utile d'interpréter les hypothèses décrivant les processus en utilisant les mêmes termes ; dans ce but, on suppose que solide et liquide restent en contact au cours de l'évolution : les modèles décrits s'interprètent tous deux comme nécessitant une diffusion instantanée dans le liquide (ou des coefficients de diffusion infinis), mais dans le cas de cristallisation fractionnée, la diffusion dans le solide est nulle (« équilibre » de surface) et pour la cristallisation en équilibre, cette diffusion est instantanée. Ces deux modèles correspondent donc à des extrêmes relativement aux vitesses de croissance des minéraux ; il conviendrait donc de tenir compte des effets cinétiques (Albarède et Bottinga, 1972) mais, comme cela a été vu plus haut, la modélisation ne nécessite pas la connaissance exacte des coefficients de partage s.s., mais de coefficients de répartition effectifs qui peuvent donc tenir compte de ces effets cinétiques.

## 2. — Effets solide/liquide : modèles de fusion

### 2.1. — Modèles classiques

Les modèles décrivant les processus de fusion répondent à ceux utilisés pour l'étude des phénomènes de cristallisation (e.g. Shaw, 1970) : soit équilibrage constant entre solide et liquide (fusion partielle à l'équilibre), soit extraction cons-

tante du liquide formé (fusion partielle fractionnée), hypothèse qui conduisent aux équations suivantes :

$$(6) \quad \frac{c}{c_0} = \frac{1}{D_0 + f \cdot (1 - P)}$$

$$(7) \quad \frac{c}{c_0} = \frac{1}{D_0} \cdot \left( 1 - \frac{fP}{D_0} \right)^{(1/P)-1}$$

où  $P$  est la somme des coefficients de partage de chaque phase minérale pour l'élément considéré, pondérés par leurs proportions dans la phase fondu. Dans le cas de la genèse de granites, il est vraisemblable que la fusion est non-modale, car le matériau soumis à fusion ne correspond généralement pas au minimum ternaire, et  $P$  n'est pas un coefficient de répartition puisqu'il ne représente pas le rapport  $c'/c$ ; cependant, pour l'étude des GMR, l'abondance dans le liquide, d'éléments à coefficients de partage  $D \ll 1$ , impose en prérequis à l'utilisation de ces modèles de fusion, un taux de fusion partielle très faible dans la mesure où les teneurs dans les matériaux crustaux usuels sont d'environ 2 ordres de grandeur plus faibles. Dès lors, la différence entre fusion modale et fusion non modale s'estompe pour les éléments pour lesquels  $P < D_0$  ou  $P$  et  $D_0$  sont du même ordre, et  $c/c_0$  tend vers  $1/D_0$  lorsque le taux de fusion partielle devient très faible ; c'est le cas, notamment, pour tous les éléments qui ne sont pas concentrés dans les feldspaths, puisque ce sont ces minéraux essentiellement qui participent à la fusion de taux faible.

Dans des cas de forte sous-saturation en eau lors de la fusion, muscovite et biotite peuvent également participer à la composition du liquide (Cuney, comm. pers.); cependant la part de la biotite reste faible, si l'on en juge par les très faibles teneurs en Mg, Ti et Fe des GMR. Si l'on excepte donc les alcalins, Ba, Sr (donc Eu<sup>2+</sup> aussi), on pourra remplacer la fusion non modale, par la fusion modale lors de l'étude de l'adéquation de ces modèles au cas des GMR.

## 2.2. — Interprétation des hypothèses en termes de diffusion

Si l'on reprend la description des modèles en termes de diffusion, il apparaît immédiatement qu'ils se traduisent par une diffusion instantanée dans le solide et dans le liquide pour la fusion en équilibre ; par contre la fusion fractionnée correspondrait à une diffusion nulle dans le liquide et instantanée dans le solide, ce qui semble paradoxal et montre que ce modèle particulier ne peut s'appliquer réellement que dans le cas d'extraction continue du liquide, ce qui peut sembler délicat lorsque le liquide ne fait que « mouiller » la surface des cristaux (Jurewicz et Watson, 1985). En outre, cette interprétation indique sans ambiguïté que le modèle de fusion partielle fractionnée n'est pas le symétrique (sur le plan théorique) du modèle de cristallisation fractionnée : nous étudierons dans le paragraphe suivant un modèle de fusion partielle répondant aux mêmes critères que ce dernier.

Auparavant, il convient de se demander si cette hypothèse de diffusion nulle dans le solide a quelque réalité géologique ; les expériences de Watson *et al.* (1985) sur les apatites et de Harrison et Watson (1983) sur les zircons montrent que l'équilibre est rarement atteint lors d'épisodes de fusion cristalline, au moins en ce qui concerne ces phases accessoires (Watson et Harrison, 1984) : par suite, cette hypothèse de diffusion nulle peut être adoptée, en première approximation, pour la modélisation du comportement des éléments concentrés dans ces phases accessoires (en particulier les terres rares, Zr, Hf, dans une moindre mesure Nb et Ta...);

par contre, il est probable que des éléments comme les métaux alcalins ou les éléments de transition 3d, présents dans les minéraux majeurs des roches, subiront un rééquilibrage plus important voire complet. Le choix du modèle géochimique destiné à expliquer les données observées dépendra donc non seulement de la roche elle-même, mais également de l'élément dont le comportement doit être modélisé.

## 2.3. — Modèle de fusion partielle en déséquilibre

Comme nous l'avons vu, ce modèle est basé sur un non-rééquilibrage des cristaux de la roche soumise à fusion. Notons  $p_i$  la proportion de la phase  $i$  participant à la constitution du liquide,  $c^i$  la concentration de l'élément dans cette phase ; si l'on admet qu'il n'y a pas de précipitation de nouvelles phases au cours de l'anatexie, l'hypothèse de diffusion nulle dans les solides implique que l'ensemble des éléments en traces contenus initialement dans les phases solides prenant part à la fusion doit être incorporé dans le liquide formé, ce qui s'exprime par l'équation :

$$(8) \quad c = \sum_i p_i c^i$$

Il s'agit d'une loi linéaire qui est donc complètement différente de la loi exponentielle dérivée des mêmes hypothèses, appliquées au cas de la cristallisation : *lors de processus au cours desquels un déséquilibre intervient dans le solide, les phénomènes de fusion et de cristallisation ne sont absolument pas symétriques.*

## 2.4. — Application des modèles de fusion aux GMR

Le calcul de la composition d'un liquide issu d'une roche par fusion partielle en déséquilibre n'est donc pas difficile à effectuer ; il nécessite cependant l'analyse des différentes phases solides présentes lors de la fusion, et doit donc être mené indépendamment dans chaque cas concret. Nous envisagerons ici, à titre d'exemple, une fusion partielle au minimum ternaire du système haplogranitique avec 1 % F (29 % quartz, 45 % albite et 26 % orthose, Manning, 1982) dans le but de nous rapprocher des caractéristiques géochimiques des GMR. Les analyses des phases sont celles de l'échantillon Qt18 de Fourcade (1981) pour les minéraux majeurs et l'apatite, le zircon est extrait de Nagasawa (1970) et la monazite de Charoy (1986) ; la figure 2 présente les résultats des calculs pour les terres rares dans le cas du minimum ternaire pur, puis en ajoutant successivement les accessoires (apatite, zircon, monazite) en tenant compte de solubilités respectivement égales à 0,14 % P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> (Watson et Capobianco, 1981), 80 ppm Zr (Watson et Harrison, 1983), et 10 ppm La (estimation maximale d'après des analyses de granite peraluminieux, en accord avec des données expérimentales, Montel, 1986). La courbe globale, normalement fractionnée et sans anomalie en europium, est très différente des courbes non fractionnées observées dans les ongonites ; au contraire, la première courbe correspondant au minimum ternaire pur est très semblable au spectre de terres rares de ségrégations granitiques dans des terrains anatexiques du Dakota (Shearer *et al.*, 1987) : ces auteurs interprètent ce spectre comme résultant d'un effet cumulatif de feldspaths intervenant sur une fusion partielle des roches encaissantes. Au vu des résultats précédents, il apparaît plus simple -et donc plus probable- que ce spectre est dû à des phénomènes de fusion partielle en déséquilibre, à des taux tellement faibles que l'équilibre avec

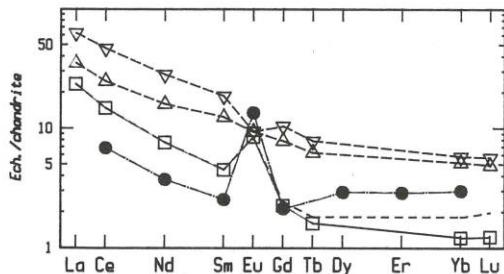


Fig. 2. — Spectres de terres rares calculés pour un modèle de fusion partielle en déséquilibre : minimum ternaire (carrés), puis avec contribution du zircon (tirets), de l'apatite (triangles), du zircon, de l'apatite et de la monazite (triangles, courbe du haut). Les cercles noirs représentent une analyse de ségrégation granitique en milieu faiblement anatexique (Shearer *et al.*, 1987).

Chondrite-normalized REE spectra  
for a disequilibrium partial melting model:  
ternary minimum melt for 1% F ( $Qz_{29} Ab_{45} Or_{26}$ , Manning, 1982) — squares;  
with zircon up to 80 ppm Zr in melt (Watson and Harrison, 1983) — broken line;  
with apatite up to .14 %  $P_2O_5$  in melt (Watson and Capobianco, 1981) — triangles;  
with zircon, apatite and monazite — triangles, upper curve.  
Filled circles — natural granitic segregation in a weakly anatexic domain (Shearer *et al.*, 1987): note the similitude with the first spectrum.

les phases accessoires n'est que très peu réalisé (il est possible également qu'il s'agisse d'un cas où la solubilité des accessoires est très faible). De même, des leucogranites de Corse présentent des spectres comparables (Cocherie, 1985, p. 162) et pourraient être interprétés de la même manière (Cocherie, comm. pers.). Des taux de fusion supérieurs s'accompagneraient vraisemblablement d'équilibrages plus importants, conduisant à un modèle intermédiaire entre le déséquilibre complet et l'équilibre : les limites d'application de ces différents modèles seraient ainsi liés au taux de fusion atteint par le système. Par contre, il est douteux que des minéraux comme le zircon se rééquilibrent complètement, même à des taux de fusion plus forts, et il faudra dans ce cas appliquer le modèle de déséquilibre. Si l'on admet, en première approximation, que Zr et Hf sont contenus principalement dans le zircon, l'application de la relation (8) implique que le rapport Zr/Hf du produit de fusion sera identique à celui du matériau initial : il s'agit là d'une contrainte importante lors de l'identification du matériau source.

### 2.5. — Influence des phases fluides

Shaw (1978) a montré que l'existence d'une phase fluide au cours de l'anatexie pouvait modifier profondément les rapports entre éléments de comportement différents vis-à-vis de ce fluide ; cependant, un tel modèle impliquerait surtout l'appauvrissement, dans le liquide, des éléments incorporés préférentiellement dans le fluide : s'il peut expliquer l'existence de minéralisations liées à des manifestations péranaïtiques (e.g. le gisement de scheelite de la Favière, dans le massif du Tanneron, Sonnet *et al.*, 1985), il ne peut guère être plus efficace que les modèles classiques de fusion pour justifier l'enrichissement de certains éléments dans les magmas. Il est donc plus simple de se contenter de discuter ceux-ci lors de l'étude des GMR.

Par contre, si la fusion est induite par un fluide provenant de l'extérieur du système, celui-ci est susceptible d'y introduire certains éléments dissous et d'enrichir ainsi le magma formé : par exemple, Weber *et al.* (1985) montrent un enrichissement en U et Rb dans les migmatites de Saint-Malo. Cependant, à cause des très faibles solubilités de certains éléments dans les fluides hydrothermaux, des quantités prohibitives de fluides seraient requises : un tel modèle ne peut donc être appliqué que dans le cas d'éléments facilement solubles dans les fluides (alcalins, U, W, Sn entre autres) et doit donc être discuté en détail pour une application éventuelle à chaque cas de GMR.

## 3. — Échanges liquide/liquide

### 3.1. — Phénomènes de diffusion

La diffusion pure ne semble pas pouvoir jouer un rôle important dans la différenciation d'ensembles magmatiques importants (Bowen, 1921) ; plus récemment, de nouveaux modèles ont été développés, combinant diffusion par effet Soret (création d'un gradient de concentration sous l'influence d'un gradient de température) et convection dans la chambre magmatique (Shaw, 1974) : il s'agit de l'effet thermogravitationnel, dont l'efficacité sera liée à divers paramètres, parmi lesquels la différence de température entre l'intrusion et son encaissant, donc entre les zones « chaude » et « froide » du magma, la taille et la géométrie de la chambre magmatique, et la viscosité du liquide jouent un rôle important (Schott, 1983, p. 255). Les niveaux d'intrusion des GMR, souvent élevés dans la croûte, leurs dimensions généralement réduites et leur viscosité plus faible due à de fortes concentrations en F (Mysen et Virgo, 1985), sont autant d'arguments positifs en faveur d'une importance plus grande de ces phénomènes dans les GMR que dans les granites « normaux ». Dans ce dernier cas, les tendances évolutives généralement observées ne correspondent pas aux données expérimentales de Walker et Delong (1982) ou de Lesher (1986), qui observent un enrichissement en Si vers le pôle le plus chaud, et des mouvements opposés pour la plupart des autres éléments étudiés ; il n'est pas exclu cependant que les conditions propres aux GMR puissent résulter en une influence plus importante de ce mode de différenciation.

### 3.2. — Phénomènes d'immissibilité

Des phénomènes d'immissibilité entre liquides acides et basiques ont été reconnus dans plusieurs situations géologiques (e.g. Roedder, 1978 ; Eby, 1980 ; Philpotts, 1982, 1984 ; Martin-Lauzer *et al.*, 1986) et analysés expérimentalement (e.g. Watson, 1976 ; Ryerson et Hess, 1978) ; mais ces cas concernent des systèmes beaucoup moins évolués que les leucogranites ou les GMR auxquels il semble donc difficile d'appliquer ce modèle. Les expériences de Stempak (1982) sur le système granite-NaF et de Bragina et Anfilogov (1981) dans le système albite-NaF révèlent l'apparition de domaines d'immissibilité entre liquides silicatés et fluorés pour de fortes teneurs en F, mais les expériences de Manning (1981) limitent de tels phénomènes à des teneurs supérieures à 4 % pds F. Cependant, si l'on superpose les effets dépolymérisateurs de F et P (formant des complexes aluminophosphatés, Manning, 1981 ou aluminophosphatés, Mysen *et al.*, 1981), puis des alcalins libérés par cette complexation de Al (voir la

discussion de ces phénomènes dans Pichavant et al., 1987, p. 370), il est possible d'imaginer un regroupement de ces complexes dans le liquide silicaté initial, amorçant un début de démixtion ; il resterait à imaginer un processus permettant la formation de plus grandes unités. Si les caractéristiques géochimiques des GMR semblent donc favorables à l'existence de tels phénomènes, il manque encore à l'heure actuelle des arguments aptes à prouver leur réalité.

### 3.3. — Modélisation

Pour un système dans lequel apparaissent des immiscibilités, la relation liant les concentrations dans les deux liquides s'écrira :

$$(9) \quad K = c_i/c_o$$

soit encore :

$$(10) \quad \log(c_i) = \log(c_o) + \log(K)$$

Si l'on considère alors plusieurs systèmes de caractéristiques physiques (conditions P, T principalement) et chimiques (composition en éléments majeurs principalement) suffisamment voisines pour que l'on puisse considérer, en première approximation, que les  $K$  ne varient pas d'un système à l'autre, l'équation (10) montre que dans un diagramme bilogarithmique de type  $\log(c') = f(\log(c))$ , les vecteurs reliant les points représentatifs des couples de liquides immiscibles doivent être égaux entre eux, et ont pour valeur commune  $(\log(K), \log(K'))$  (fig. 3). On obtient ainsi une caractérisation de ces échanges liquide/liquide, à condition que l'on puisse comparer plusieurs systèmes de caractéristiques physico-chimiques voisines.

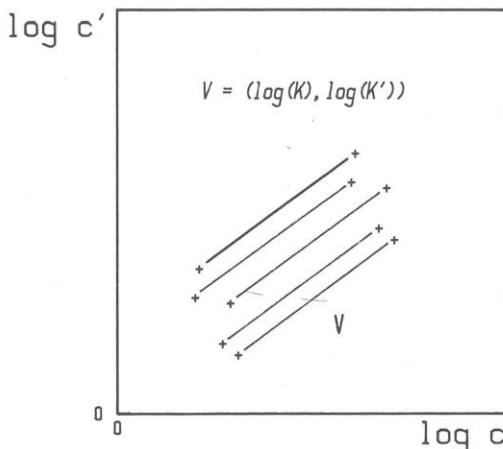


Fig. 3. — Représentation schématique de paires de liquides obtenus par des processus d'immiscibilité : dans des milieux de propriétés voisines, les deux points représentatifs des liquides dans un diagramme bilogarithmique doivent être parallèles au même vecteur  $V$ .

Schematic representation of the separation of liquid pairs by liquation processes : if several media have similar physico-chemical properties, the tie-lines between the two resulting liquids in a bilogarithmic diagram must be parallel to the same vector  $V$ .

Il serait théoriquement possible d'effectuer le même raisonnement dans le cas d'un système soumis à effet thermogravitationnel, lorsque l'état stationnaire est atteint ; le système initial est alors divisé en deux parties correspondant aux pôles « chaud » et « froid », les états intermédiaires devenant très réduits, et le facteur de séparation s'écrit :

$$(11) \quad q_s = c^{\text{sup}}/c^{\text{inf}}$$

ce qui est comparable à l'équation (9) ; cependant, dans ce cas-ci la difficulté de trouver des systèmes vraiment comparables rend la méthode proposée délicate à mettre en œuvre et il semble préférable de comparer les facteurs observés dans chaque cas réel, aux données expérimentales de Lesher (1986).

### 3.4. — Remarque : les processus de mélanges entre magmas

Ce mode de différenciation des magmas n'a pas été abordé ici dans la mesure où les équations linéaires qui résultent de ce modèle sont très simples et bien connues, et surtout parce que ce processus ne pourrait que diluer les magmas de type GMR, exigeant ainsi, pour justifier les compositions observées, que l'un des termes du mélange ait des caractéristiques encore plus poussées que le magma résultant : on ne fait ainsi que repousser le problème sans le résoudre.

## Conclusions

La discussion de la genèse de magmas très évolutifs de type GMR peut être menée, sur un plan géochimique, sur la base de plusieurs modèles simples exposés ci-dessus ; il ne faut cependant pas perdre de vue que l'identification de la loi de variation des données expérimentales, ne permet pas nécessairement l'identification du modèle pétrogénétique : par exemple, une loi linéaire peut correspondre soit à des processus de mélange, soit à des phénomènes de fusion partielle en déséquilibre ; une loi hyperbolique pourra être la trace de cristallisation ou de fusion en équilibre... En fin de compte, l'identification définitive du modèle le plus plausible ne pourra se faire qu'en examinant la vraisemblance des paramètres physico-chimiques déduits de l'étude exhaustive des conséquences de chaque modèle.

De plus, chaque modèle représente une simplification du cas réel, en négligeant suivant les cas les effets secondaires dus aux coefficients de diffusion, aux possibilités d'interaction avec les fluides... Il apparaît donc clairement que l'étude du même exemple réel peut se traduire par des modèles différents, suivant que l'élément choisi est sensible ou non aux phases fluides,... : le choix de l'élément modélisé dépend donc du type de processus ou de paramètre du système, que l'on veut identifier.

Si chaque cas de GMR doit être traité individuellement en raison de la variabilité des paramètres géochimiques (au moins dans le détail), il n'en reste pas moins que la comparaison des différents cas connus permet d'ores et déjà de se faire une idée des contraintes inhérentes aux différents modèles : la genèse de GMR par cristallisation fractionnée ou en équilibre nécessite des taux de cristallisation très importants, et la

fusion partielle doit être de taux très faible pour justifier les concentrations observées ; enfin des processus tels que la thermogravitation ou l'immiscibilité pourraient apparaître comme importants dans certains cas.

### Remerciements

Une première version de cet article a été considérablement améliorée grâce à des remarques perspicaces et des discussions constructives de la part de Michel Cuney et Alain Cocherie que je tiens à remercier ici. Le support financier d'une telle réflexion est difficile à évaluer et repose en grande partie sur le programme Géologie Profonde de la France, mais aussi sur l'A.T.P. Transferts (contrat 1576AP85) ou l'aide de la C.C.E. (contrat MSM040F).

### Références bibliographiques

- ALBARÈDE F., BOTTINGA Y. (1972). — Kinetic disequilibrium trace-element partitioning between phenocrysts and host lava. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **36**, pp. 141-156.
- ALLÈGRE C.J., MINSTER J.F. (1978). — Quantitative models of trace element behavior in magmatic processes. *Earth Planet Sci. Lett.*, **38**, pp. 1-25.
- AUBERT G., (1969). — Les coupoles granitiques de Montebras et d'Échassière et la genèse de leurs minéralisations. Mémoires du BRGM **46**, 349 p.
- BOWEN N.L. (1921). — Diffusion in silicate melts. *J. Geol.*, **29**, pp. 295-317.
- BRAGINA G.I., ANFILOGOV V.N. (1981). — Phase relations and unmixing in the  $\text{Na}_2\text{O}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2-\text{NaF}$  system. *Geochem. Int.*, **17**, pp. 71-75.
- BURNOL L. (1974). — Géochimie du beryllium et types de concentrations dans les leucogranites du Massif central français. Mémoires du BRGM, **85**, 168 p.
- BURNOL L., FONTEILLES M., GUO Q.T., LIU Y.M., ZHANG Y.X., RAIMBAULT L. (1986). — Étude géochimique du gisement de W de Dajishan (Jiangxi, RPC) : résultats préliminaires. 11<sup>e</sup> R.S.T., Clermont-Ferrand, Soc. Geol. Fr. édit, 28.
- CANN J.R. (1982). — Rayleigh fractionation with continuous removal of liquid. *Earth Planet Sci. Lett.*, **60**, pp. 114-116.
- CHAROY B. (1986). — The genesis of the Cornubian batholith (South-West England) : the example of the Carnmenellis pluton. *J. Petrol.*, **27**, pp. 571-604.
- COCHERIE A. (1985). — Interaction manteau-croûte : son rôle dans la genèse d'associations plutoniques calco-alcalines, contraintes géochimiques (éléments en traces et isotopes du strontium et de l'oxygène). Document du BRGM **90**, 246 p.
- EBY G.N. (1980). — Minor and trace element partitioning between immiscible ocelli-matrix pairs from lamprophyre dikes and sills, Monteregian Hills petrographic province, Quebec. *Contrib. Mineral. Petrol.*, **75**, pp. 269-278.
- FLYNN R.T., BURNHAM C.W. (1978). — An experimental determination of rare earth partition coefficients between a chloride containing vapor phase and silicate melts. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **42**, pp. 685-701.
- FOURCADE S. (1981). — Géochimie des granitoïdes. Thèse, université Paris VII, 189 p.
- GEREL O., VALZHINNYAM V. (1984). — Pétrologie et métallogénie des granites à métaux rares : l'exemple du massif de Zanchivianski, Mongolie Orientale (en russe). 27<sup>e</sup> I.G.C., Moskva. Abstracts, vol. IV, pp. 314-315.
- GREENLAND L.P. (1970). — An equation for trace-element distribution during magmatic crystallization. *Am. Mineral.*, **55**, pp. 455-465.
- HARRISON T.M., WATSON E.B. (1983). — Kinetics of zircon dissolution and zirconium diffusion in granitic melts of variable water content. *Contrib. Mineral. Petrol.*, **84**, pp. 66-72.
- HART S.R., ALLÈGRE C.J. (1980). — Trace-element constraints on magma genesis. In Hargraves R.B., ed. Physics of magmatic processes, Princeton Univ. press, pp. 121-159.
- JUREWICZ R.J., WATSON E.B. (1985). — The distribution of partial melt in a granitic system : the application of liquid phase sintering theory. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **49**, pp. 1109-1121.
- KONTAK D.J., PICHAVANT M., CLARK A.H. (1984). — Petrology of the pliocene peraluminous volcanics from Macusani, SE Peru. *Eos*, **65**, 299.
- KOVALENKO V.I., KUZ'MIN M.I., ANTIPIN V.S., PETROV L.L. (1971). — Quartz-kéatophyres à topaze (ongonites) — une nouvelle variété de roches magmatiques subvolcaniques filonniennes (en russe). *Dokl. Akad. Nauk SSSR*, **199**, pp. 430-433.
- LANGE H., TISCHENDORFF G., PALCHEN W., KLEMM I., OSSENKOPF W. (1972). — Zur petrographie und Geochemie der Granite des Erzgebirges. *Geologie DDR*, **21**, pp. 457-493.
- LESHER C.E. (1986). — Effects of silicate liquid composition on mineral-liquid element partitioning from Soret diffusion studies. *J. Geophys. Res.*, **91**, pp. 6123-6141.
- MANNING D.A.C. (1981). — The effect of fluorine on liquidus phase relationships in the system  $\text{Qz}-\text{Ab}-\text{Or}$  with excess water at 1 kb. *Contrib. Mineral. Petrol.*, **76**, pp. 206-215.
- MANNING D.A.C. (1982). — An experimental study of the effects of fluorine on the crystallization of granitic melts. In A.M. Evans, ed. Metallization associated with acid magmatism. J. Wiley & Sons, pp. 191-203.
- MARTIN-LAUZER F.R., INGRIN J., POIRIER J.P. (1986). — Transmission electron microscopic study of the immiscibility in natural and synthetic rhyolitic glasses. *Earth Planet Sci. Lett.*, **79**, pp. 168-178.
- MONTEL J.M. (1986). — Experimental determination of the solubility of Ce-monazite in  $\text{SiO}_2-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{K}_2\text{O}-\text{Na}_2\text{O}$  melts at 800 °C, 2 kbar, under  $\text{H}_2\text{O}$  saturated conditions. *Geology*, **14**, pp. 659-662.
- MYSEN B.O., RYERSON F.J., VIRGOD D. (1981). — The structural role of phosphorus in silicate melts. *Am. Mineral.*, **66**, pp. 106-117.
- MYSEN B.O., VIRGOD D. (1985). — Structure and properties of fluorine-bearing/aluminosilicate melts : the system  $\text{Na}_2\text{O}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2-\text{F}$  at 1 atm. *Contrib. Mineral. Petrol.*, **91**, pp. 205-220.
- NAGASAWA H. (1970). — Rare earth concentrations in zircons and apatites and their host dacites and granites. *Earth Planet Sci. Lett.*, **9**, pp. 359-364.
- PHILPOTTS A.R. (1982). — Compositions of immiscible liquids in volcanic rocks. *Contrib. Mineral. petrol.*, **80**, pp. 201-218.
- PHILPOTTS A.R. (1984). — Liquid immiscibility in silicate melt inclusions in plagioclase phenocrysts. *Bull. Mineral.*, **104**, pp. 317-324.
- PICHAVANT M., HERRERA J.V., BOULMIER S., BRIQUEL L., JORON J.L., JUTEAU M., MARIN L., MICHAUD A., SHEPPARD S.M.F., TREUIL M., VERNET M. (1987). — The Macusani glasses, SE Peru : evidence of chemical fractionation in peraluminous magmas. In Mysen B.O., ed. Magmatic processes : physicochemical principles, *Geochemical Society Spec. Publ.*, **1**, pp. 359-373.

- RAIMBAULT L., FONTEILLES M., DUTHOU J.L., FOUILLAG A.M. (1987). — Transferts de matière entre magmas intrusifs et encaissant : analyse et modélisation des remplissages fissuraux et des modifications métasomatiques dans le système hydrothermal de Dajishan (Jiangxi, Chine). Rapport inédit, A.T.P. Transferts, 202 p.
- ROEDDER E. (1978). — Silicate liquid immiscibility in magmas and in the system  $K_2O$ - $FeO$ - $Al_2O_3$ - $SiO_2$ : an example of serendipity. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **42**, pp. 1597-1617.
- RYERSON R.J., HESS P.C. (1978). — Implications of liquid-liquid partition coefficients to mineral-liquid partitioning. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **42**, pp. 921-932.
- SCHOTT J. (1983). — Thermal diffusion and magmatic differentiation : a new look at an old problem. *Bull. Mineral.*, **106**, pp. 247-262.
- SHAW D.M. (1970). — Trace element fractionation during anatexis. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **34**, pp. 237-243.
- SHAW D.M. (1978). — Trace element behaviour during anatexis in the presence of a fluid phase. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **42**, pp. 933-943.
- SHAW H.R. (1974). — Diffusion of  $H_2O$  in granitic liquids. I. Experimental data ; II. — Mass transfer in magma chambers. In Geochemical transport and kinetics, A.W. Hofmann, B.J. Giletti, H.S. Yoder, R.A. Yund eds, Carnegie Inst Wash Publ, **634**, pp. 139-170.
- SHEARER C.K., PAPIKE J.C., REDDEN J.A., SIMON S.B., WALKER R.J., LAUL J.L. (1987). — Origin of pegmatitic granite segregations, Willow Creek, Black Hills, South Dakota. *Can. Mineral.*, **25**, pp. 159-171.
- SONNET P., VERKAEREN J., CREVOLA G. (1985). — Scheelite-bearing calc-silicate gneisses in the Provence crystalline basement (Var, France). *Bull. Mineral.*, **108**, pp. 377-390.
- STEMPROK M. (1982). — Tin-fluorine relationships in ore-bearing assemblages. In Metallization associated with acid magmatism, A.M. Evans ed, J. Wiley et Sons, pp. 321-337.
- WALKER D., DELONG S.E. (1982). — Soret separation of MORB magma. *Contrib. Mineral. Petrol.*, **79**, pp. 231-240.
- WATSON E.B. (1976). — Two-liquid partition coefficients : experimental data and geochemical implications. *Contrib. Mineral. Petrol.*, **56**, pp. 119-134.
- WATSON E.B., CAPOBIANCO C.J. (1981). — Phosphorus and the rare earth elements in felsic magmas : an assessment of the role of apatite. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **45**, pp. 2349-2358.
- WATSON E.B., HARRISON T.M. (1983). — Zircon saturation revisited : temperature and composition effects in a variety of crustal magma types. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **64**, pp. 295-304.
- WATSON E.B., HARRISON T.M. (1984). — Accessory minerals and the geochemical evolution of crustal magmatic systems : a summary and prospectus of experimental approaches. *Phys Earth Planet Int.*, **35**, pp. 19-30.
- WATSON E.B., HARRISON T.M., RYERSON F.J. (1985). — Diffusion of Sm, Sr, and Pb in fluorapatite. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **49**, pp. 1813-1823.
- WEBER C., BARBEY P., CUNEFAR M., MARTIN H. (1985). — Trace element behaviour during migmatization. Evidence for a complex melt-residuum-fluid interaction in the St. Malo migmatitic dome (France). *Contrib. Mineral. Petrol.*, **90**, pp. 52-62.