

# 海南岛新生代玄武质熔岩源区中再循环物质及其 年龄的限定: 来自 Hf-Sr-Nd-Pb 同位素的制约

梅盛旺<sup>1,2</sup>, 任钟元<sup>1\*</sup>

(1.中国科学院 广州地球化学研究所, 同位素地球化学国家重点实验室, 广东 广州 510640; 2.中国科学院 大学, 北京 100049)

**摘要:** 再循环洋壳和沉积物在壳-幔循环过程中扮演着重要的角色。前人研究指出板片俯冲与海南地幔柱形成关系密切, 然而地幔柱源区中是否存在再循环沉积物仍然不得而知。本文将首次报导海南岛新生代玄武质熔岩的 Hf 同位素, 并将新的 Sr-Nd-Pb 同位素与前人数据相结合, 限定再循环物质的组成及其年龄。与同位素地幔趋势相比, 给定  $\epsilon_{Nd}$  时, 海南岛玄武质熔岩的  $\epsilon_{Hf}$  值更低; 而且  $Eu/Eu^* > 1$ 、 $Sr/Sr^* > 1$ , 与  $Al_2O_3$ 、 $MgO$  都不存在相关性, 说明 Eu 和 Sr 的正异常是继承了源区的特征, 指示源区中存在再循环洋壳物质的参与。海南岛玄武质熔岩的 Ce/Pb 与  $\epsilon_{Nd}$ 、 $\epsilon_{Hf}$  呈正相关关系, Nd/Pb 与  $^{87}Sr/^{86}Sr$  呈负相关关系, 它们都指向了沉积物端元。根据  $\epsilon_{Hf}-\epsilon_{Nd}$  模型和 Pb 同位素演化模型, 推断源区中再循环洋壳和沉积物相对年轻, 其年龄应小于 1.0 Ga。这些再循环洋壳和沉积物将进入深部地幔, 并与地幔中的橄榄岩反应形成二阶段辉石岩, 随着海南地幔柱不断上升而发生熔融, 最终熔体喷发至地表形成海南岛玄武质熔岩。

**关键词:** 新生代玄武质熔岩; 再循环洋壳; 再循环沉积物; 海南岛

**中图分类号:** P595; P597 **文献标志码:** A **文章编号:** 1001-1552(2019)05-1036-016

## 0 引言

俯冲板片和沉积物被认为是地幔柱源区物质重要的组成部分(Hofmann and White, 1982), 是许多洋岛玄武岩的源区组成(White and Hofmann, 1982; Weaver, 1991; Chauvel et al., 1992; Ren et al., 2005, 2006, 2009; Prytulak and Elliott, 2007; Jackson et al., 2007; Jackson and Dasgupta, 2008; Chauvel et al., 2008; Willbold and Stracke, 2010), 其再循环过程是理解壳-幔物质化学演化过程的关键。在整个地球历史时期中, 地幔中总质量的 8%~10%是来自俯冲消减作用的再循环洋壳(Stracke et al., 2003), 因此再循环洋壳对地幔-地壳之间的地球化学演化具有重要

作用。

在雷琼地区、南海和印支半岛等地广泛发育新生代板内玄武岩, 具有与 OIB 相似的同位素和地球化学特征, 而且近些年的地球物理和地球化学研究也表明海南岛附近存在地幔柱(Huang and Zhao, 2006; Montelli et al., 2006; 胡久常等, 2007; Lei et al., 2009; Wang et al., 2012, 2013; Yan et al., 2014; Xia et al., 2016), 因此许多学者认为该区玄武岩成因与地幔柱有关(鄢全树等, 2008; Zou and Fan, 2010; Wang et al., 2012, 2013; Yan et al., 2014; Xia et al., 2016)。海南岛四周环绕着众多俯冲带, 再循环物质通过俯冲消减作用进入地幔, 必将会对地幔柱源区造成重

收稿日期: 2017-01-07; 改回日期: 2018-06-04; 网络出版日期: 2019-06-26

项目资助: 国家自然科学基金面上项目(41672057)和中国科学院战略性先导科技专项(B类)(XDB18000000)联合资助。

第一作者简介: 梅盛旺(1992-), 男, 硕士研究生, 岩石学专业。Email: shengwangmei@163.com

通信作者: 任钟元(1962-), 男, 研究员, 从事岩石学和地球化学方向研究。Email: zyren@gig.ac.cn

要的影响(Wang et al., 2012, 2013; Liu et al., 2015), 因而 Wang et al. (2013)进一步指出板片俯冲与海南地幔柱形成存在重要的动力学联系。实际上, 在俯冲消减过程中, 洋壳通常会携带沉积物一同进入地球深部 (Hawkesworth et al., 1979; White and Hofmann, 1982; Weaver, 1991; Chauvel et al., 1992; Rehkemper and Hofmann, 1997; Stracke et al., 2003; Willbold and Stracke, 2006; Jackson et al., 2007; Chauvel et al., 2008; Rapp et al., 2008; Porter and White, 2009), 这是上地壳物质进入地幔的重要途径 (Willbold and Stracke, 2010)。沉积物的加入在一定程度上也会影响地幔源区的性质, 如地幔中仅仅只有再循环洋壳的加入时, 随时间演化往往会形成具高放射性 Pb 同位素特征的 HIMU 组分(Hofmann and White, 1982; Weaver, 1991; Chauvel et al., 1992; Hofmann, 1997; Kogiso et al., 1997; Stracke et al., 2003; Willbold and Stracke, 2006, 2010; Chan et al., 2009), 而存在一定量沉积物的加入则可能会形成同位素特征与 HIMU 差异较大的富集型地幔(EM1 或 EM2)(Hofmann and White, 1982; Weaver, 1991; Chauvel et al., 1992; Jackson et al., 2007; Prytulak and Elliott, 2007; Chauvel et al., 2008; Jackson and Dasgupta, 2008; Willbold and Stracke, 2010)。前人虽然提出了再循环洋壳在海南岛地幔柱源区中扮演着重要角色, 但是并没有对地幔柱源区中是否存在再

循环沉积物进行判定。因此, 本文将对源区再循环物质的组成进行限定。

海南岛新生代板内玄武岩是东南亚地区“弥散状”大火成岩省的中心部位, 代表着东南亚新生代火山活动的缩影, 因此海南岛玄武岩的研究将对深入理解“弥散状”大火成岩省源区的物质属性和成因机制起着关键作用。本文在前人研究基础上, 首次报导海南岛新生代玄武质熔岩的 Hf 同位素数据, 新的 Hf-Sr-Nd-Pb 同位素与微量元素特征表明海南岛玄武质熔岩地幔源区中除了再循环洋壳外, 还存在少量的再循环沉积物, Nd-Hf 同位素和 Pb 同位素模型进一步制约了海南岛玄武质熔岩源区中的再循环物质的组成, 并且限定再循环物质的年龄。

## 1 研究区地质背景及岩相学特征

海南岛处于欧亚板块的东南缘, 是欧亚板块、印度板块和菲律宾板块碰撞的三联点前缘, 为东南亚“弥散大火成岩省”的中心地区。该区新生代泛流玄武岩最大厚度可达~1000 m, 喷发面积可达 4000 km<sup>2</sup> (黄振国等, 1993; 樊祺诚等, 2004), 是中国东南部玄武岩出露面积最大的地区(图 1)(刘建强和任钟元, 2013)。新生代玄武岩主要分布在王五-文教 EW 向

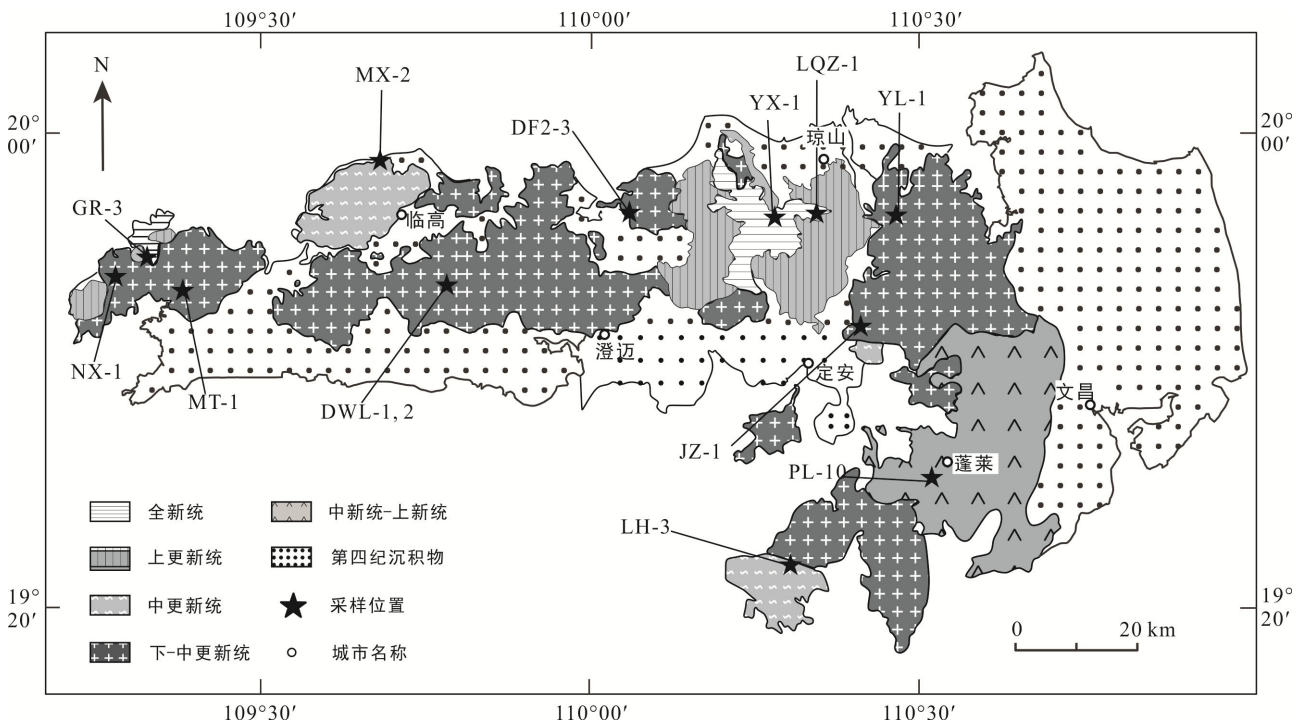
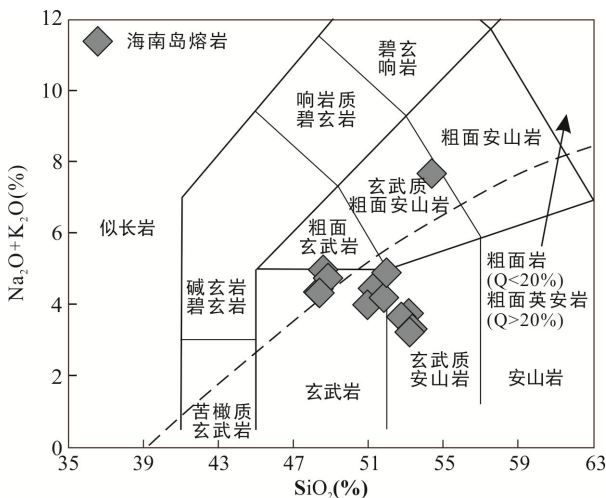


图 1 海南岛新生代玄武岩分布及采样位置图(据刘建强和任钟元, 2013)

Fig.1 Map showing the distribution of the Cenozoic basalts in Hainan province and sampling locations

断裂以北, 断裂以南地区则是断块隆起区。该区火山作用始于渐新世, 中新世和上新世逐渐加强, 至更新世达到喷发的顶峰, 于全新世时结束。火山喷发形式可见裂隙式喷发, 主要岩性为标准矿物为石英和橄榄石的拉斑玄武岩; 亦有中心式喷发, 主要岩性为碱性橄榄玄武岩和碧玄武岩, 可见尖晶石二辉橄榄岩和方辉橄榄岩捕掇体(Wang et al., 2012)。依据地层接触关系、火山岩风化程度、年代学以及地貌学特征, 将海南岛新生代玄武岩划分为五个火山喷发期(图 1): 中-上新统的石马村组和石门沟组(23~1.806 Ma), 下更新统晚期-中更新统早期多文组下段(2.11~0.77 Ma), 中更新统晚期多文组上段(0.67~0.21 Ma), 上更新统道堂组(0.126 Ma~11.8 ka)以及全新统石山组(<11.8 ka)(黄振国等, 1993; 樊祺诚等, 2004; 龙文国等, 2006a, 2006b; Wang et al., 2012)。

本次研究的 13 个新生代熔岩样品均采集自海南岛北部地区(图 1)。依据 TAS 图解(图 2), 13 个样品为玄武岩、玄武安山岩和玄武质粗面安山岩(详见 Liu et al., 2015)。岩石新鲜, 无明显蚀变和脉体, 整体呈灰黑色, 块状构造, 偶见气孔构造, 斑状结构。斑晶为①橄榄石, 多呈半自形-自形粒状结构, 粒径多为 0.2~0.5 mm, 少量橄榄石发生轻微伊丁石化蚀变; ②辉石, 呈半自形-它形粒状结构, 粒径为 0.5~1.0 mm 之间; ③斜长石, 斑晶自形程度较好, 为自形-半自形结构, 呈长条状, 含量较少(<5%)。基质为间粒结构, 由斜长石、橄榄石、辉石、磁铁矿和火山玻璃等组成。



主量元素数据来自 Liu et al. (2015)。

图 2 海南岛熔岩的 $(\text{Na}_2\text{O}+\text{K}_2\text{O})-\text{SiO}_2$ 图解

Fig.2  $(\text{Na}_2\text{O}+\text{K}_2\text{O})$  vs.  $\text{SiO}_2$  diagram for the Hainan lavas

## 2 分析方法

本次研究主要对海南岛 13 件岩石样品进行 Hf-Sr-Nd-Pb 同位素分析。

(1) 样品准备工作。首先利用切样机将岩石样品切成约 1 cm 厚的片状块体, 再选取其中新鲜的部分, 利用碎样机碎成几毫米大小的碎块, 并挑取碎块中新鲜的样品。将挑选好的样品置于超声波清洗槽中进行清洗: 用 Milli-Q 水超声 3 遍, 每次 20 分钟; 将洗好的岩石碎块置于加热板上烘干, 用德国 Retch 振动盘式粉碎仪 RS200 的铬钢钵研磨成约 200 目大小的粉末。

(2) 溶样和化学分离。样品前处理工作在中国科学院广州地球化学研究所同位素地球化学国家重点实验室的超净化学实验室完成。将全岩粉末置于 Teflon 杯中, 采用  $\text{HF}+\text{HNO}_3$  混合酸溶, 摇匀后置于加热板上 120 °C 条件下保温 7 天。处理好的溶液依次进行 Pb、Sr、Nd 和 Hf 同位素化学分离。

(3) MC-ICPMS 测试。全岩同位素 Sr-Nd-Pb-Hf 测试在中国科学院广州地球化学研究所同位素地球化学国家重点实验室的多接收等离子体质谱仪 (MC-ICPMS) 上完成。Sr 同位素分析采用国际标样 NBS987 进行监控, 实验精度优于 0.004%; Nd 同位素采用国际标样 Jndi-1 进行监控, 实验精度优于 0.001%; Pb 同位素分析采用国际标样 NBS981 进行监控,  $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ 、 $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  和  $^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  的实验精度分别优于 0.2%、0.2% 和 0.4%; Hf 同位素分析采用国际标样 JMC14374 进行监控, 实验精度优于 0.001%。实验过程中, 为监测仪器的运行状态, 每测定 6 个样品就测定一次国际标样。

## 3 分析结果

海南岛熔岩全岩 Hf-Sr-Nd-Pb 同位素数据见表 1。结果显示, 样品具有中等亏损的  $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$  (0.512785~0.512963,  $\epsilon_{\text{Nd}}=2.87\sim6.33$ ) 和  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  (0.703134~0.704292), 平均值分别为 0.51279 ( $\pm 0.00005$ , 1SE) 和 0.7037 ( $\pm 0.0005$ , 1SE)。  $^{176}\text{Hf}/^{177}\text{Hf}$  变化于 0.282945~0.283075 之间, 平均值为 0.2830 ( $\pm 0.00004$ , 1SE)。  $\epsilon_{\text{Hf}}$  的变化范围为 6.10~10.70,  $\Delta\epsilon_{\text{Hf}}$  介于 0.21 与 -3.25 之间,  $\epsilon_{\text{Hf}}$  总体上要低于地幔趋势线 (mantle array), 出现了轻微的解耦。  $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ 、 $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  和  $^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  的变化范围分别为 18.345162~18.799284、

表 1 海南岛新生代玄武质熔岩 Sr-Nd-Pb-Hf 同位素组成  
Table 1 Sr-Nd-Pb-Hf isotopic compositions of basaltic lavas from Hainan Island

样号	GR-3	DWL-2	YX-1	BP-2	LH-3	JZ-2	PL-10	DF2-3	LQZ-1	MT-1	MX-2	DWL-1	NX-1
<sup>87</sup> Sr/ <sup>86</sup> Sr	0.703134	0.703381	0.704037	0.704057	0.704210	0.704076	0.703875	0.704292	0.704164	0.703143	0.703469	0.703188	0.703180
SE	0.000007	0.000007	0.000009	0.000010	0.000010	0.000009	0.000009	0.000007	0.000009	0.000009	0.000008	0.000007	0.000008
<sup>143</sup> Nd/ <sup>144</sup> Nd	0.512949	0.512963	0.512867	0.512884	0.512838	0.512844	0.512866	0.512837	0.512785	0.512922	0.512890	0.512929	0.512937
ε <sub>Nd</sub>	6.07	6.33	4.47	4.80	3.90	4.02	4.44	3.88	2.87	5.55	4.91	5.67	5.83
SE	0.000005	0.000004	0.000004	0.000005	0.000005	0.000005	0.000005	0.000005	0.000005	0.000005	0.000005	0.000005	0.000004
<sup>206</sup> Pb/ <sup>204</sup> Pb	18.404742	18.600205	18.651083	18.610599	18.665891	18.765105	18.587607	18.759283	18.702556	18.381572	18.684801	18.799284	18.345162
SE	0.000468	0.000539	0.000502	0.000439	0.000398	0.000451	0.000555	0.000638	0.000483	0.000487	0.000512	0.000578	0.000414
<sup>207</sup> Pb/ <sup>204</sup> Pb	15.454509	15.548552	15.617551	15.613051	15.606962	15.598214	15.538804	15.623101	15.639230	15.491373	15.576957	15.563264	15.475282
SE	0.000483	0.000498	0.000451	0.000406	0.000343	0.000453	0.000502	0.000513	0.000466	0.000421	0.000462	0.000481	0.000396
<sup>208</sup> Pb/ <sup>204</sup> Pb	38.362883	38.708784	38.950565	38.819876	38.802174	38.869620	38.698697	38.928149	38.954238	38.420081	38.791984	38.786936	38.344554
SE	0.001606	0.001599	0.001254	0.001246	0.001062	0.001374	0.001539	0.001614	0.001435	0.001357	0.001202	0.001528	0.001001
<sup>176</sup> Hf/ <sup>177</sup> Hf	0.283012	0.283075	0.283017	0.283020	0.282996	0.282966	0.282993	0.283014	0.282945	0.283027	0.282967	0.282983	0.283043
ε <sub>Hf</sub>	8.48	10.70	8.66	8.77	7.90	6.87	7.81	8.56	6.10	9.01	6.90	7.48	9.57
SE	0.000003	0.000003	0.000004	0.000004	0.000005	0.000004	0.000004	0.000005	0.000004	0.000004	0.000004	0.000003	0.000004
Δε <sub>Hf</sub>	-2.79	-0.92	-0.47	-0.81	-0.47	-1.67	-1.29	0.21	-0.90	-1.56	-2.81	-3.25	-1.38
Δ7/4Pb	-3.16	4.13	10.48	10.47	9.26	7.31	3.29	9.86	12.09	0.78	6.05	3.44	-0.43
Δ8/4Pb	48.45	59.41	72.89	69.27	60.81	55.56	59.93	62.12	71.58	56.98	57.51	43.16	53.83
SiO <sub>2</sub> (%)	54.44	48.62	48.36	48.88	51.29	51.00	48.43	53.21	52.81	51.88	53.41	53.26	52.02
MgO(%)	5.61	7.86	11.28	9.66	7.58	7.89	12.62	7.04	7.02	7.32	6.00	6.13	6.84
Ce/Pb	21.1	29.6	17.2	18.5	12.1	18.0	19.0	12.8	11.1	25.6	16.1	17.6	26.1
Nd/Pb	9.41	15.9	8.38	9.24	6.25	9.30	8.73	7.33	6.04	13.0	10.0	10.6	13.0

SE 表示标准误差。ε<sub>Nd</sub>=[(<sup>143</sup>Nd/<sup>144</sup>Nd)<sub>sample</sub>/<sup>(143</sup>Nd/<sup>144</sup>Nd)<sub>CHUR</sub>-1]×10000, (<sup>143</sup>Nd/<sup>144</sup>Nd)<sub>CHUR</sub>=0.512638(Jacobsen and Wasserburg, 1980); ε<sub>Hf</sub>=[(<sup>176</sup>Hf/<sup>177</sup>Hf)<sub>sample</sub>/<sup>(176</sup>Hf/<sup>177</sup>Hf)<sub>CHUR</sub>-1]×10000, (<sup>176</sup>Hf/<sup>177</sup>Hf)<sub>CHUR</sub>=0.282772 (Blichert-Toft and Albarède, 1998); Δε<sub>Hf</sub> 表示与地幔趋势 ε<sub>Hf</sub>=1.33×ε<sub>Nd</sub>+3.19(Kempton et al., 2002)之间的垂直偏移值。Δ7/4Pb 和 Δ8/4Pb 分别表示样品的 <sup>207</sup>Pb/<sup>204</sup>Pb 和 <sup>208</sup>Pb/<sup>204</sup>Pb 垂直偏离北半球 Pb 参考线 (NHRL) 的程度, Δ7/4Pb=100×[(<sup>207</sup>Pb/<sup>204</sup>Pb)<sub>sample</sub>-(<sup>207</sup>Pb/<sup>204</sup>Pb)<sub>NHRL</sub>], Δ8/4Pb=100×[(<sup>208</sup>Pb/<sup>204</sup>Pb)<sub>sample</sub>-(<sup>208</sup>Pb/<sup>204</sup>Pb)<sub>NHRL</sub>], 其中 (<sup>207</sup>Pb/<sup>204</sup>Pb)<sub>NHRL</sub>=0.1084×(<sup>206</sup>Pb/<sup>204</sup>Pb)<sub>sample</sub>+13.491, (<sup>208</sup>Pb/<sup>204</sup>Pb)<sub>NHRL</sub>=1.209×(<sup>206</sup>Pb/<sup>204</sup>Pb)<sub>sample</sub>+15.627(Hart, 1984)。相对应的主量和微量元素数据来自 Liu et al. (2015)。

15.454509~15.639230 和 38.344554~38.954238, 平均值分别为 18.6121(±0.1489, 1SE)、15.5651(±0.0603, 1SE)和 38.7225(±0.2121, 1SE)。Pb 同位素组成要高于 NHRL(Hart, 1984), Δ7/4Pb 和 Δ8/4Pb 分别为 -3.16~12.09 和 43.16~72.89, 平均值分别为 5.66 和 59.35, 与 Hart (1984)提出的 Dupal Pb 异常相符合 (Δ7/4Pb>3, Δ8/4Pb>10)。

## 4 讨论

### 4.1 地壳混染作用

与大洋玄武岩不同, 大陆玄武岩在上升喷发至地表过程中, 需要通过厚的陆壳, 而在这个过程中可能会有陆壳物质的混入。而陆壳的同化混染作用会对研究源区的特征造成阻碍, 因此, 首先讨论陆壳混染作用对海南岛玄武岩的影响。

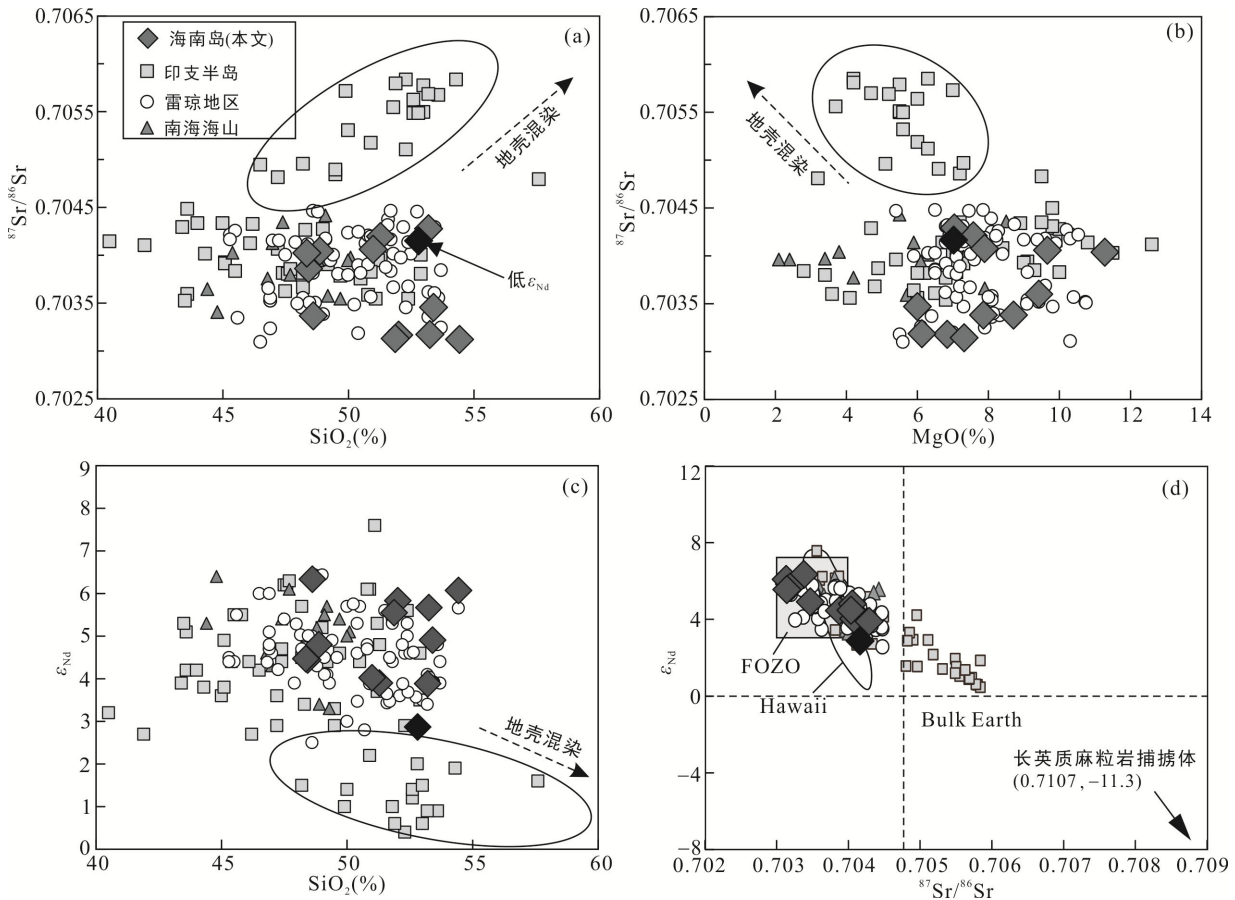
前人的研究表明海南岛新生代玄武质熔岩的地壳混染作用不明显, 主要的证据包括:

(1) 海南岛、雷州半岛、南海海山玄武质熔岩的

<sup>87</sup>Sr/<sup>86</sup>Sr、ε<sub>Nd</sub> 和 MgO、SiO<sub>2</sub> 不相关, 说明陆壳混染作用非常微弱(图 3a、b、c)。而印支半岛部分玄武岩的 <sup>87</sup>Sr/<sup>86</sup>Sr(>0.7045)相对较高, ε<sub>Nd</sub>(<3)相对较低, 并且 <sup>87</sup>Sr/<sup>86</sup>Sr 与 SiO<sub>2</sub> 呈正相关性、与 MgO 呈负相关性, ε<sub>Nd</sub> 与 SiO<sub>2</sub> 呈负相关性, 说明这些样品受到了陆壳的混染(图 3a、b、c)。Wang et al. (2013)也指出海南岛玄武岩中少部分具低 Nd 同位素(ε<sub>Nd</sub><3)的样品受到地壳混染的影响。因此, 下文讨论中会排除这一部分受陆壳混染影响的数据。

(2) Sr-Nd 同位素组成上, 与华南沿海地区下地壳长英质麻粒岩捕虏体高 <sup>87</sup>Sr/<sup>86</sup>Sr(0.7107)和低 ε<sub>Nd</sub>(-11.3)值(Huang et al., 2013)不同, 海南岛熔岩与 Hawaii 玄武岩的同位素特征落在相近的区域, 排除陆壳同化混染作用的影响(图 3d)。

(3) 海南岛熔岩样品中 Nb/U 值(平均值 37.12) (Liu et al., 2015)接近大洋玄武岩 MORB 和 OIB (37~57), 与 ε<sub>Nd</sub> 不相关, 且偏离陆壳, 说明陆壳同化混染作用弱(Wang et al., 2013)。



数据来源: 雷琼数据(Tu et al., 1991; Flower et al., 1992; 韩江伟等, 2009; Zou and Fan, 2010; Wang et al., 2012, 2013); 印支半岛数据(Hoang et al., 1996; Zhou and Mukasa, 1997); 南海数据(Tu et al., 1992; 鄢全树等, 2008); 华南沿海地区下地壳长英质麻粒岩数据(Huang et al., 2013); Hawaii 数据(Blichert-Toft et al., 2003; Wanless, 2006; Marske et al., 2007; Yamasaki et al., 2009; Weis et al., 2011); OIB 数据(Hofmann et al., 1986); 大陆地壳数据(Rudnick and Gao, 2003); FOZO 数据(Hauri et al., 1994)。本文中海南岛玄武质熔岩相应的主量和微量元素数据(Liu et al., 2015)。

图 3 海南岛新生代玄武岩  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  vs.  $\text{SiO}_2$  (a),  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  vs.  $\text{MgO}$  (b),  $\epsilon_{\text{Nd}}$  vs.  $\text{SiO}_2$  (c) 及  $\epsilon_{\text{Nd}}$  vs.  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  (d) 图解  
Fig.3 Variation diagrams of  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  vs.  $\text{SiO}_2$  (a),  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  vs.  $\text{MgO}$  (b),  $\epsilon_{\text{Nd}}$  vs.  $\text{SiO}_2$  (c) and  $\epsilon_{\text{Nd}}$  vs.  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  (d) for Cenozoic lavas in Hainan Island

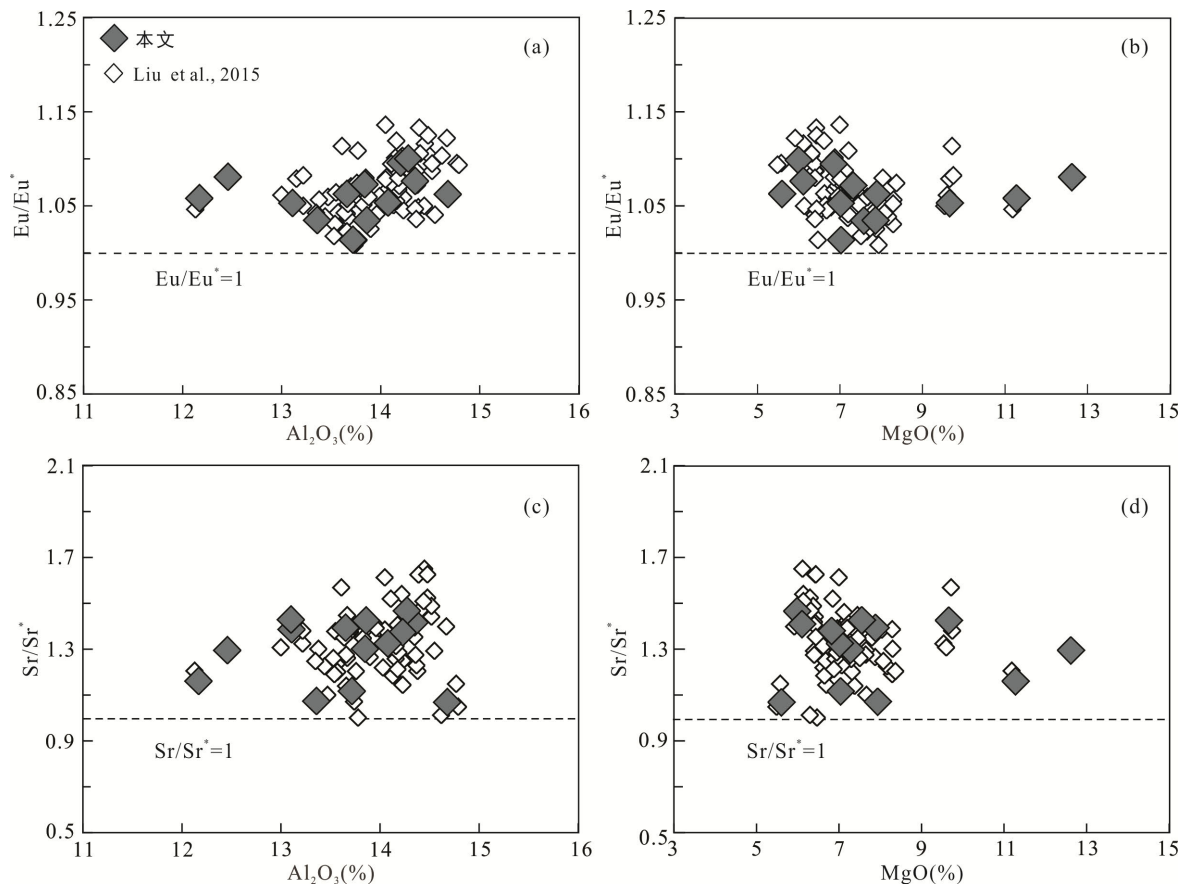
(4) Zou and Fan (2010)指出海南岛熔岩表现出强烈的  $^{230}\text{Th}$  过剩, 暗示岩浆在上升直至喷出地表过程中并未受到陆壳物质(地壳岩石  $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}=1.0$ )的影响。

现有的地球化学数据和地质证据业已证明陆壳的同化混染作用对海南岛新生代玄武质熔岩的元素和同位素组成影响非常微弱。因此, 对结晶分异或部分熔融作用不敏感的微量元素比值(例如  $\text{Ce}/\text{Pb}$ 、 $\text{Nd}/\text{Pb}$ )和同位素之间、同位素和同位素之间的变化关系更有可能反映的是不同组分之间的混合或/和源区本身所具有的性质。

#### 4.2 再循环洋壳物质的贡献

研究表明地幔柱中广泛存在着再循环物质(White and Hofmann, 1982; Lassiter and Hauri, 1998;

Blichert-Toft et al., 1999; Huang and Frey, 2005; Sobolev et al., 2000; Ren et al., 2005, 2006, 2009, 2017; Jackson et al., 2007)。海南岛玄武质熔岩主-微量元素也表现出来自再循环的下部洋壳组分(辉长岩)的特征。海南岛玄武质熔岩的  $\text{Sr}/\text{Sr}^*$  和  $\text{Eu}/\text{Eu}^*$  都大于 1, 具明显的正异常特征。 $\text{Sr}/\text{Sr}^*$ 、 $\text{Eu}/\text{Eu}^*$  与  $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{MgO}$  无相关关系(图 4), 说明斜长石在岩浆喷发过程中并没有发生明显的分异作用。结合岩相学观察结果, 大部分玄武质熔岩样品中几乎没有出现斜长石斑晶, 或者部分样品中斜长石斑晶含量很低(约 5%), 因此斜长石的堆晶作用并不是导致 Sr 和 Eu 正异常的起因(Ren et al., 2005, 2006; Liu et al., 2015)。海南岛玄武质熔岩的 Sr 和 Eu 的正异常应是继承了“富斜长石的辉长岩”特征, 而形成这种地



海南岛新生代玄武质熔岩  $Eu/Eu^* > 1$ 、 $Sr/Sr^* > 1$ ，并且  $Eu/Eu^*$ 、 $Sr/Sr^*$  与  $Al_2O_3$ 、 $MgO$  不存在相关性，说明斜长石的分离结晶过程不是导致  $Eu$  和  $Sr$  正异常的原因。 $Eu/Eu^* = Eu_N / (Sm_N \times Gd_N)^{0.5}$ ； $Sr/Sr^* = 2 \times Sr_N / (Pr_N + Nd_N)$ 。本文中海南岛玄武质熔岩相应的主量和微量元素数据来自 Liu et al. (2015)。

图 4 海南岛新生代玄武质熔岩的  $Eu/Eu^*$ 、 $Sr/Sr^*$  与  $Al_2O_3$ 、 $MgO$  之间的关系图解

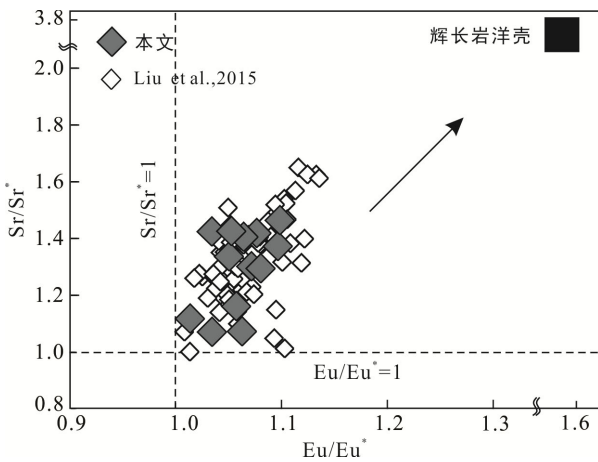
Fig.4 Variation diagrams of  $Eu/Eu^*$ 、 $Sr/Sr^*$  against  $Al_2O_3$ 、 $MgO$  for Cenozoic basaltic lavas in Hainan Island

球化学特征的原因很多：岩浆在上升过程中与大洋岩石圈中富斜长石的堆积辉长岩反应(Danyushevsky et al., 2004; Gurenko and Sobolev, 2006; Saal et al., 2007)，或者岩浆在上升过程中同化混染了来自陆壳的片麻岩成分(Rudnick and Gao, 2003)，或者源区中存在再循环富斜长石的堆积辉长岩的成分(Hofmann and Jochum, 1996; Chauvel and Hémond, 2000; Sobolev et al., 2000)。但是，海南岛玄武质熔岩是大陆板内玄武岩，不可能穿过大洋岩石圈，而且如上文所述，陆壳的同化混染作用对海南岛玄武质熔岩的元素和同位素组成的影响几乎是可以忽略的。因此， $Sr/Sr^*$ 和  $Eu/Eu^*$ 呈现出的良好的正相关关系(图 5)，反映的是源区中存在再循环洋壳辉长岩部分。由于在俯冲带中，洋壳发生高压变质作用转换成榴辉岩，如果这个过程是在一个封闭体系中发生的，那么榴辉岩便可以保留原始斜长石堆积岩所具有  $Sr$ 、 $Eu$  等富集特征(Frey et al., 2016)，这意味着再循

环辉长岩进入地幔源区产生的熔体能够形成具有  $Sr$ 、 $Eu$  正异常特征。

海南岛玄武质熔岩的  $Nd$ - $Hf$  同位素与地幔趋势线出现轻微解耦， $\Delta \epsilon_{Hf}$  介于  $-3.25 \sim 0.21$  之间，总体上略低于地幔趋势，说明源区很可能存在洋壳物质。Blichert-Toft and Albarède (1998)提出地幔中存在一个“隐藏的”具有相对低  $^{176}Hf/^{177}Hf$  值的储库，以满足硅酸盐地球对  $Nd$ - $Hf$  同位素的制约，这个储库即“消减洋壳”。这个储库在给定  $Nd$  同位素时，存在更多的非放射性成因的  $Hf$  同位素特征(Blichert-Toft and Albarède, 1998)。HIMU 通常被认为是洋壳俯冲消减进入深部地幔后的演化产物(Hofmann and White, 1982; Weaver, 1991; Chauvel et al., 1992; Hofmann, 1997; Kogiso et al., 1997; Stracke et al., 2003; Willbold and Stracke, 2006; Chan et al., 2009; Willbold and Stracke, 2010)。只有受 HIMU 影响的 OIB 玄武岩才会出现低  $^{176}Hf/^{177}Hf$  特征，即对给定的  $^{143}Nd/^{144}Nd$ ，其  $^{176}Hf/^{177}Hf$  低于地幔趋势线

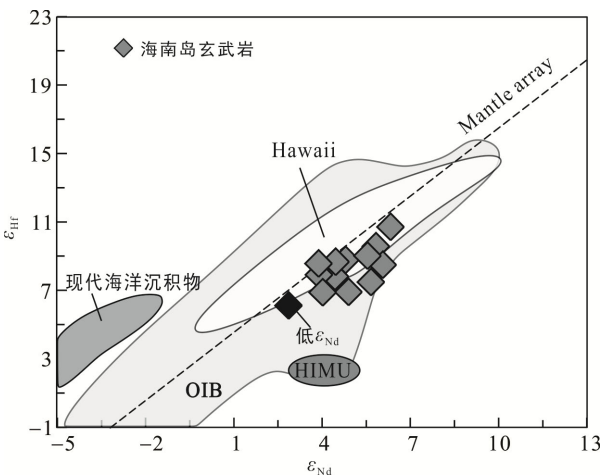
(Chauvel et al., 1992; Salters and White, 1998; Hanyu et al., 2011; Nebel et al., 2013)。与 HIMU-OIB 相似,海南岛玄武质熔岩的  $\epsilon_{\text{Hf}}$  也具有低于地幔趋势线的特征(图 6), 进一步说明海南岛玄武质熔岩源区中可能存在着再循环洋壳。然而, 海南岛玄武质熔岩的  $^{176}\text{Hf}/^{177}\text{Hf}$  明显要高于 HIMU(图 6), 暗示单独的再循环洋壳演化不能够形成海南岛玄武质熔岩的  $\epsilon_{\text{Nd}}-\epsilon_{\text{Hf}}$  趋势, 源区中应存在比洋壳具有更高  $^{176}\text{Hf}/^{177}\text{Hf}$  成分的加入(下文讨论)。



海南岛新生代玄武质熔岩  $\text{Eu}/\text{Eu}^*$  与  $\text{Sr}/\text{Sr}^*$  存在良好的正相关关系, 指示源区存在辉长岩洋壳组分。大洋辉长岩(下洋壳)数据引自 Pietruszka et al. (2013)。

图 5 海南岛新生代玄武质熔岩的  $\text{Sr}/\text{Sr}^*$  与  $\text{Eu}/\text{Eu}^*$  之间的相关关系图

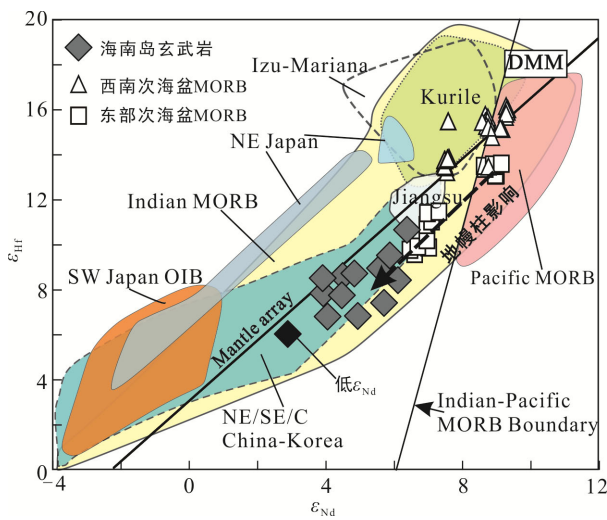
Fig.5  $\text{Eu}/\text{Eu}^*$  vs.  $\text{Sr}/\text{Sr}^*$  plot for Cenozoic basaltic basalts in Hainan Island



Mantle array:  $\epsilon_{\text{Hf}}=1.33 \times \epsilon_{\text{Nd}}+3.19$ (Kempton et al., 2002), 数据来源: 现代海洋沉积物数据(Vervoort et al., 1999), OIB 数据(Nowell et al., 1998), Hawaii 玄武岩数据(Blichert-Toft et al., 1999; Weis et al., 2011)。

图 6 海南岛新生代玄武质熔岩  $\epsilon_{\text{Nd}}-\epsilon_{\text{Hf}}$  同位素相关关系图  
Fig.6  $\epsilon_{\text{Nd}}-\epsilon_{\text{Hf}}$  plot for Cenozoic basaltic lavas in Hainan Island

Nd-Hf 同位素可以有效地区分太平洋和印度洋地幔域(Pearce et al., 1999; Kempton et al., 2002; Nebel et al., 2007; Salters et al., 2013; Miyazaki et al., 2015)。MORB 的 Hf-Nd 同位素是解耦的(Chauvel et al., 2008), 在给定的 Nd 同位素时, 印度洋 MORB 比太平洋 MORB 具有更高的 Hf 同位素比值, 两者之间存在明显的界线(Pearce et al., 1999; Kempton et al., 2002; Salters et al., 2013; Miyazaki et al., 2015)。与千岛群岛、日本海、伊豆-马里亚纳海沟新生代岛弧玄武岩以及新生代欧亚东部中国-韩国大陆玄武岩相似, 海南岛玄武质熔岩的  $\epsilon_{\text{Nd}}-\epsilon_{\text{Hf}}$  同位素组成与印度洋 MORB 区域重叠(图 7)。Straub et al. (2009) 注意到目前笠原海沟俯冲进入地幔的洋壳是太平洋洋壳, 而岛弧输出的岩浆却呈现出印度洋特征。基于千岛群岛岛弧岩浆的 Pb 同位素研究, 进一步指出老的消减板片具有印度洋洋壳组分。南海 MORB 和印度洋 MORB 具有相似的 Dupal 异常特征, 都是“富集的”(Zhang et al., 2018)。Zhang et al. (2018)指出南海 MORB 的 Dupal 特征是原位的地质过程, 是再循环的地壳物质加入和海南地幔柱影响的结果。我们选取 Zhang et al. (2018)报导的受海南地幔柱影响小的南海西南次海盆 MORB、受海南地幔柱影响大的东部次海盆 MORB 数据与海南岛玄武质熔岩 Nd-Hf 同位素数据进行对比, 发现南海 MORB 具有亏损的特征, 相较于海南岛玄武质熔岩具有更高的  $\epsilon_{\text{Nd}}$  和  $\epsilon_{\text{Hf}}$  值。受海南地幔柱影响小的南海西南次海盆 MORB 整体上落在地幔趋势线上, 而东部次海盆 MORB 受到海南地幔柱影响较大, 具有与海南岛玄武质熔岩混合的趋势。Nd-Hf 同位素之间的关系反映了受海南地幔柱影响小的南海上地幔的 Nd-Hf 同位素之间呈现耦合关系, 而受到海南地幔柱影响较大的 MORB 则表现出低于地幔趋势线的特征(图 7), 这意味着南海地幔域可能并不是造成海南玄武质熔岩 Nd-Hf 同位素轻微解耦的原因。而且, 南海 MORB 并非和印度洋 MORB 具有完全一致的 Nd-Hf 同位素组成, 其中一部分数据落在了太平洋 MORB 一侧, 说明在一定程度上, 南海 MORB 的 Nd 和 Hf 同位素组成上与印度洋 MORB 存在一定差别。而海南岛玄武质熔岩的 Nd-Hf 同位素组成与印度洋 MORB 组成则相对一致(图 7)。基于上述分析, 我们更倾向于将海南岛玄武质熔岩的 Nd-Hf 同位素特征归结于再循环印度洋洋壳造成的。



数据来源: 印度洋和太平洋 MORB 数据(Meyzen et al., 2007); 南海 MORB 数据(Zhang et al., 2018); 新生代的 Izu-Mariana, SW Japan, NE Japan, Kurile 岛弧熔岩以及中-韩地区大陆玄武岩数据(GEOROC, 2013: <http://georoc.mpch-mainz.gwdg.de/georoc/>); EM1, EM2, HIMU, DMM 数据(Zindler and Hart, 1986), FOZO 数据(Hauri et al., 1994); 底图据 Miyazaki et al. (2015)。

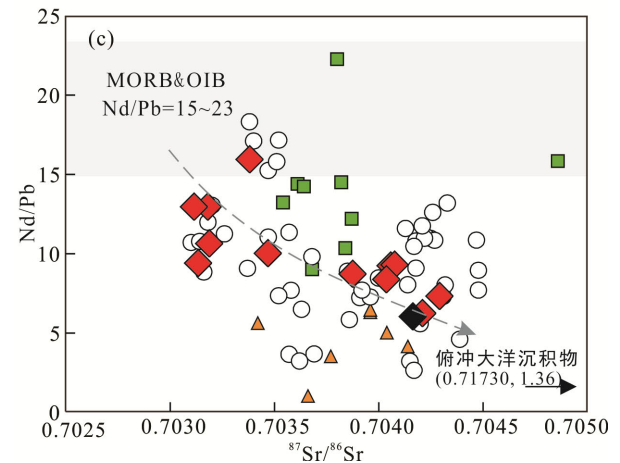
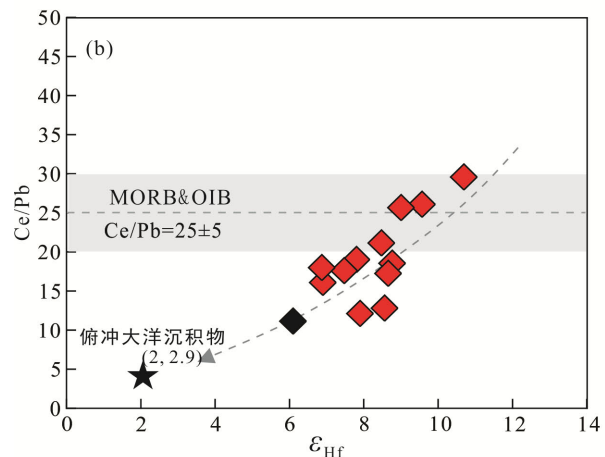
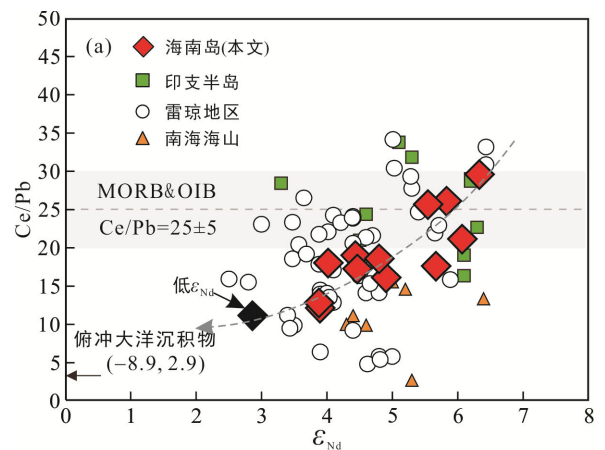
图 7 印度洋和太平洋 MORB 及欧亚板块边缘新生代玄武岩的  $\epsilon_{Nd}$ - $\epsilon_{Hf}$  同位素组成

Fig.7  $\epsilon_{Nd}$ - $\epsilon_{Hf}$  diagram of the Indian Ocean, Pacific MORB and the Cenozoic basalts in the Eurasian plate

### 4.3 再循环沉积物的贡献

洋壳发生俯冲消减作用时, 通常会携带沉积物一起进入地幔。再循环洋壳和地幔橄榄岩混合不能满足 MORB 和 OIB 的 Nd-Hf 同位素组成特征, 要求额外的沉积物组分加入(Chauvel et al., 2008)。Nd-Hf 同位素体系表明, 少于 10%~15%的消减沉积物和洋壳混合形成的同位素组成与地幔趋势线相同或略低于地幔趋势线; 而大量的(大于 10%~15%)高 Lu/Hf 值的沉积物与洋壳混合形成高于地幔趋势线的特征(Stracke et al., 2003)。

合理结合微量元素和同位素参数能够有效地指示源区特征。同位素变化是一个仅取决于源区中富集和亏损组分贡献的参数, 而微量元素的变化除了受到源区物质控制之外还受到部分熔融和分离结晶过程中分馏作用的影响, 因此能否准确反映源区特征取决于元素的绝对相容性和相对相容性(Stracke, 2012)。Pb 和 Ce、Nd 的分配系数相似, 相对相容性相近, 它们在部分熔融或者结晶分异的过程中几乎不发生分馏, 因此这些元素的比值能够反映源区的特征(Hofmann et al., 1986; Hofmann, 1997)。在图 8 中, 海南岛玄武质熔岩的 Ce/Pb 与  $\epsilon_{Nd}$ 、 $\epsilon_{Hf}$  呈现正相关



数据来源: MORB 和 OIB 数据(Hofmann et al., 1986); 俯冲大洋沉积物数据(Plank and Langmuir, 1998); 雷琼地区、印支半岛、南海海山数据来源同上。Ce/Pb 与  $\epsilon_{Nd}$ 、 $\epsilon_{Hf}$  之间具有良好的正相关关系。

图 8 海南岛新生代玄武质熔岩的 Ce/Pb vs.  $\epsilon_{Nd}$ 、 $\epsilon_{Hf}$  以及 Nd/Pb vs.  $^{87}Sr/^{86}Sr$  之间的相关关系图

Fig.8 Ce/Pb vs.  $\epsilon_{Nd}$ ,  $\epsilon_{Hf}$  and Nd/Pb vs.  $^{87}Sr/^{86}Sr$  plots for Cenozoic basaltic lavas in Hainan Island

性, 向低 Ce/Pb 和低  $\epsilon_{Nd}$ 、 $\epsilon_{Hf}$  变化(图 8a、b); Nd/Pb 和  $^{87}Sr/^{86}Sr$  呈现负相关性, 向低 Nd/Pb 和高  $^{87}Sr/^{86}Sr$  变化(图 8c), 并且均指向俯冲大洋沉积物端元。东南



亚其他地区的新生代玄武岩  $Ce/Pb$ - $\epsilon_{Nd}$  和  $Nd/Pb$ - $^{87}Sr/^{86}Sr$  关系图解中也表现出宽泛的相关关系(图 8)。这些变化反映源区物质的特征,而不是陆壳混染或部分熔融、结晶分离的影响,主要基于:①Pb 和 Ce、Nd 的分配系数相似,具有相近的相对相容性,部分熔融和结晶分离不会造成它们发生大比例地分离;②如果海南岛玄武质熔岩的  $Ce/Pb$ 、 $Nd/Pb$  的变化受到了地壳混染的影响,那么  $Ce/Pb$ 、 $Nd/Pb$  值应与  $MgO$  呈正相关关系,且与  $SiO_2$  呈负相关关系,然而本次研究未观察到  $Ce/Pb$ 、 $Nd/Pb$  与  $MgO$ 、 $SiO_2$  存在明显的相关关系(图 9),因此陆壳物质混染不是造成海南岛玄武岩低  $Ce/Pb$  和  $Nd/Pb$  的原因;③南海盆地的海山玄武岩也具有低  $Ce/Pb$ 、 $Nd/Pb$  值(图 8),而海盆中的岩浆在上升过程中几乎不会受到地壳物质混染的影响。即使排除低  $\epsilon_{Nd}(<3)$  的数据,海南岛玄武质熔岩仍然存在着这种向低的  $Ce/Pb$ 、 $Nd/Pb$  方

向演化的特征,因此这些  $Ce/Pb$ 、 $Nd/Pb$  的变化特征不能归结于地壳混染的影响,更有可能是反映源区物质固有的特征。低  $Ce/Pb$ 、 $Nd/Pb$  值继承了地壳的特征,最可能的方式就是板块俯冲消减过程中,沉积物随着板块一起进入地幔(Rehkamper and Hofmann, 1997)。

#### 4.4 源区中再循环洋壳和沉积物的年龄

Liu et al. (2015)指出海南岛玄武质熔岩源区母岩为再循环洋壳(榴辉岩)和地幔橄榄岩混合形成的二阶段辉石岩。基于此,我们将榴辉岩和橄榄岩以 1:1 的化学计量比进行模拟形成辉石岩(Sobolev et al., 2005)。模拟的结果发现 50%的再循环洋壳(46.5%铁镁质洋壳+3.5%沉积物)和 50%的地幔橄榄岩组成的源区发生 6%的部分熔融能够产生与平均海南岛玄武质熔岩相似的微量元素配分模式,如 Ba 的正异常、无 Nb-Ta 的负异常和重稀土元素亏损等特征(图 10)。

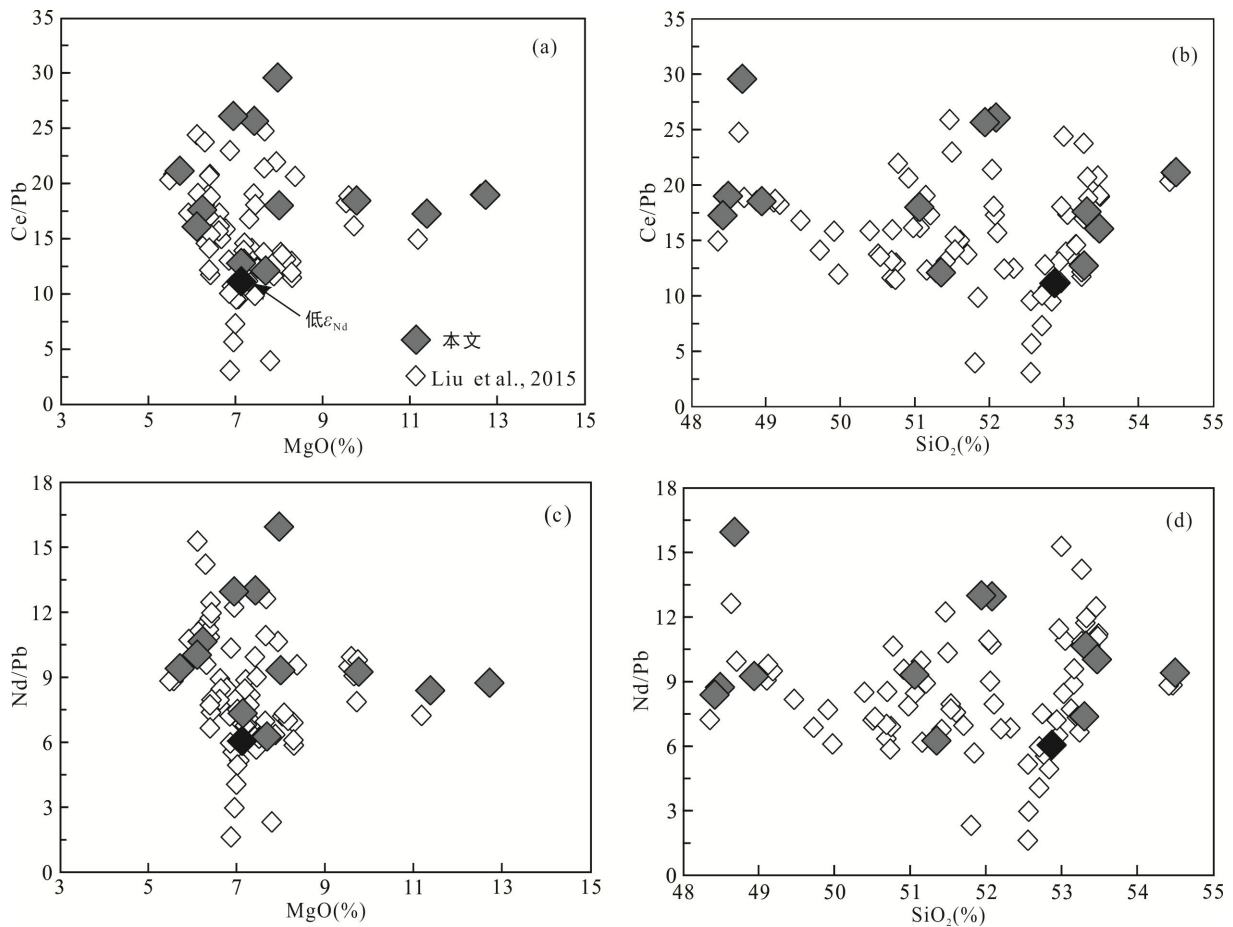
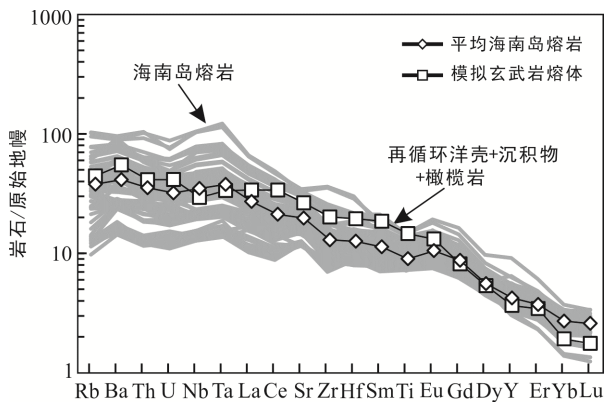


图 9 海南岛新生代玄武质熔岩的  $Ce/Pb$ 、 $Nd/Pb$  与  $MgO$ 、 $SiO_2$  之间的关系图解  
Fig.9 Plots of  $Ce/Pb$ ,  $Nd/Pb$  against  $MgO$ ,  $SiO_2$  for Cenozoic basaltic lavas in Hainan Island

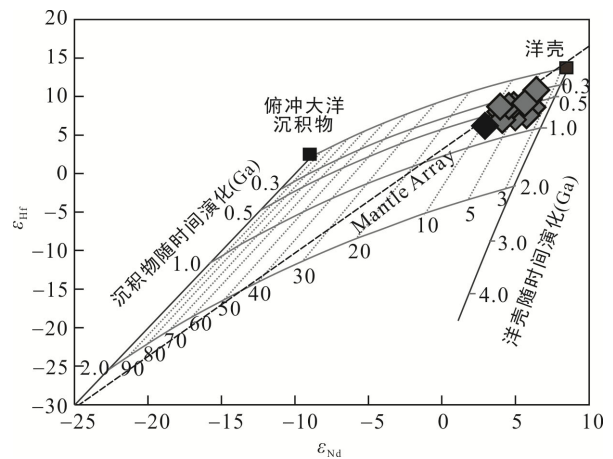


微量元素的计算模型参照 Stracke et al. (2003), 假设再循环洋壳、沉积物和橄榄岩之间的混合是均一的, 并且辉石岩熔融过程为批式熔融。海南岛玄武质熔岩微量元素数据来自 Liu et al. (2015)。原始地幔值引自 McDonough and Sun (1995)。

图 10 海南岛玄武质熔岩原始地幔标准化微量元素配分模式图  
Fig.10 Primitive mantle-normalized trace element patterns for Hainan lavas

Wang et al. (2013)提出海南地幔柱源区中存在着 0.5~0.2 Ga 年轻的再循环物质, 并对再循环洋壳的年龄做了详尽的讨论。本文尝试基于新的 Nd-Hf 同位素数据结合 Pb 同位素数据共同制约海南地幔柱中再循环的洋壳和沉积物年龄。Chauvel et al. (2008)指出再循环洋壳和俯冲大洋沉积物在形成 OIB-MORB 的 Nd-Hf 同位素趋势过程中起着重要作用。海南岛玄武质熔岩 Nd-Hf 同位素演化趋势线的斜率与地幔趋势线相近, 但比洋壳演化线的斜率要更平缓(图 11), 这要求再循环洋壳中有更低  $\epsilon_{Nd}$ 、更高  $\epsilon_{Hf}$  的再循环俯冲大洋沉积物加入。根据 Chauvel et al. (2008)的模型, 为计算地质历史时期中洋壳和俯冲大洋沉积物的 Nd-Hf 同位素组成, 假设现在的洋壳、俯冲大洋沉积物和 4.55 Ga 前地球的 Nd-Hf 同位素比值之间存在线性关系。模型的结果表明, 年龄为约 1.0~0.3 Ga 的再循环俯冲大洋沉积物和再循环洋壳混合能够产生海南岛玄武质熔岩的 Hf-Nd 同位素趋势(图 11)。

Pb 同位素体系对再循环大洋物质的  $\mu(^{238}\text{U}/^{204}\text{Pb})$ 、 $\Omega(^{232}\text{Th}/^{204}\text{Pb})$ 和再循环年龄的变化是敏感(Delavault et al., 2015)。熔岩中的 Pb 同位素变化主要受到再循环物质影响, 因此基于前人的 Pb 同位素演化模型(Eisele et al., 2002; Stracke et al., 2003; Delavault et al., 2015), 利用二阶段 Pb 演化模型制约再循环洋壳的年龄, 而再循环沉积物则需要通过三阶段 Pb 演化模型进行制约。我们使用的模型是基于 Eisele et al.



数据来源: 俯冲大洋沉积物数据(Plank and Langmuir, 1998; Chauvel et al., 2008), 洋壳数据(Chauvel et al., 2008),  $\epsilon_{Nd}$ - $\epsilon_{Hf}$  演化模型据(Chauvel et al., 2008; Li et al., 2016)。

图 11 海南岛新生代玄武质熔岩的  $\epsilon_{Nd}$ - $\epsilon_{Hf}$  同位素变化关系图解  
Fig.11  $\epsilon_{Nd}$ - $\epsilon_{Hf}$  diagram for Cenozoic basaltic lavas in Hainan Island

(2002)、Stracke et al. (2003)和 Delavault et al. (2015)的演化模型, 相关参数主要参考 Stracke et al. (2003)和 Delavault et al. (2015), 并对部分参数进行了修改。Pb 同位素演化的第一阶段对应着地球形成  $t_1$ (4.55 Ga)到陆壳形成  $t_2$ (3.7 Ga)(Stacey and Kramers, 1975), 代表着地幔源区物质的演化; 第二阶段  $t_2$ (3.7 Ga)到洋壳和沉积物的形成并消减进入地幔开始再循环  $t_3$ , 根据 Nd-Hf 同位素演化模型将  $t_3$  的年龄设置为 1.0 Ga 进行演化, 这一阶段代表的是地壳的演化历史; 第三阶段  $t_3$ (1.0 Ga)到  $t_{\text{present}}$ (0 Ga), 代表着再循环物质在地幔中的演化过程(图 11)。

Pb 同位素的演化模型表明 1.0 Ga 再循环年龄洋壳和沉积物的混合基本符合海南岛玄武质熔岩以及东南亚地区熔岩的 Pb 同位素的变化(图 12), 结合 Chauvel et al. (2008)的 Nd-Hf 模型得出再循环年龄约 1.0~0.3 Ga, 认为海南岛玄武质熔岩源区中再循环物质相对年轻, 其年龄不应大于 1.0 Ga。此外, 海南岛玄武质熔岩地幔源区中可能存在孤立的地球早期形成的古老(4.5~4.4 Ga)下地幔组分(Wang et al., 2013), 同位素组成上表现为 FOZO 地幔端元(图 3d)。这种来自下地幔的古老组分以橄榄岩形式存在, 并和相对年轻的(约 1.0~0.3 Ga)再循环的洋壳和沉积物(榴辉岩)反应形成二阶段辉石岩, 随着辉石岩部分熔融程度的降低, 形成了海南岛拉斑玄武岩和碱性玄武岩两个系列岩石(Liu et al., 2015)。

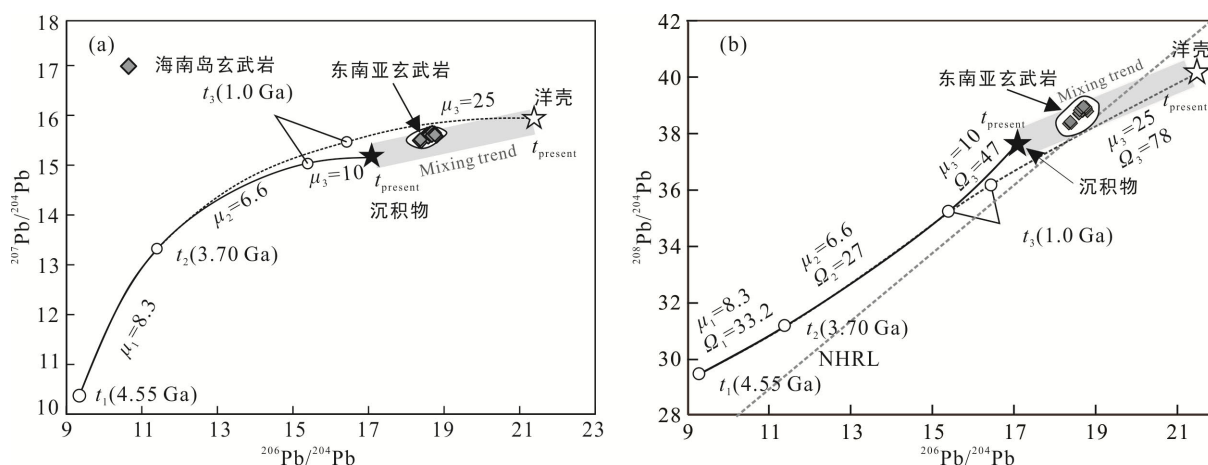


图 12 海南岛新生代玄武质熔岩的  $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  vs.  $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  (a) 及  $^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  vs.  $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  (b) 同位素演化图解  
Fig.12 Evolution diagrams of  $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  vs.  $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  (a) and  $^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  vs.  $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  (b) for Cenozoic basaltic lavas in Hainan Island

图 12 海南岛新生代玄武质熔岩的  $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  vs.  $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  (a) 及  $^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  vs.  $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  (b) 同位素演化图解  
Fig.12 Evolution diagrams of  $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  vs.  $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  (a) and  $^{208}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  vs.  $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  (b) for Cenozoic basaltic lavas in Hainan Island

## 5 结 论

本文的研究结果表明海南岛新生代玄武质熔岩地幔源区中存在着再循环洋壳和少量的沉积物。海南岛玄武质熔岩的  $\varepsilon_{\text{Hf}}$  同位素与地幔趋势出现轻微解耦, 低于地幔趋势(mantle array),  $\text{Eu}/\text{Eu}^*$  与  $\text{Sr}/\text{Sr}^*$  都大于 1, 且具有良好正相关关系, 说明源区中存在再循环洋壳物质。海南岛玄武质熔岩的  $\text{Ce}/\text{Pb}$  与  $\varepsilon_{\text{Nd}}$ 、 $\varepsilon_{\text{Hf}}$  呈正相关关系,  $\text{Nd}/\text{Pb}$  与  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  呈负相关关系, 指示源区存在再循环沉积物。通过  $\varepsilon_{\text{Hf}}-\varepsilon_{\text{Nd}}$  模型和 Pb 同位素的演化模型, 认为源区中再循环洋壳和沉积物相对年轻, 其年龄应小于 1.0 Ga。这些再循环物质变质成为榴辉岩进入深部地幔, 甚至到达核幔边界, 与地幔橄榄岩发生反应形成二阶段辉石岩, 随着海南地幔柱的不断上升而发生熔融, 它们是海南岛玄武质熔岩的重要贡献物质。

致谢: 室内样品分析测试过程中, 得到中国科学院广州地球化学研究所张乐、李欣和曾文三位工程师的帮助, 论文得到自然资源部第二海洋研究所刘佳研究员和匿名审稿人的认真审阅并提出了宝贵的意见, 在此一并表示感谢。

### 参考文献(References):

樊祺诚, 孙谦, 李霓, 隋建立. 2004. 琼北火山活动分期与全新世岩浆演化. 岩石学报, 20(3): 533-544.

韩江伟, 熊小林, 朱照宇. 2009. 雷琼地区晚新生代玄武岩地球化学: EM2成分来源及大陆岩石圈地幔的贡献. 岩石学报, 25(12): 108-120.

胡久常, 白登海, 王薇华, 林镇, 向小娟, 王立风. 2007. 琼州 7.5 级地震区深部电性异常及地震活动性研究. 地震学报, 29(3): 258-264.

黄振国, 蔡福祥, 韩中元, 陈俊鸿, 宗永强, 林晓东. 1993. 雷琼第四纪火山. 北京: 科学出版社: 1-7.

刘建强, 任钟元. 2013. 玄武岩源区母岩的多样性和识别特征: 以海南岛玄武岩为例. 大地构造与成矿学, 37(3): 471-488.

龙文国, 林义华, 石春, 周进波, 吕嫦艳. 2006a. 海南岛北部更新世道堂组的重新厘定. 地质通报, 25(4): 469-474.

龙文国, 林义华, 朱耀河, 石春, 周进波, 吕嫦艳. 2006b. 海南岛北部第四纪早中更新世多文组的建立. 地质通报, 25(3): 408-414.

鄢全树, 石学法, 王昆山, 卜文瑞, 肖龙. 2008. 南海新生代碱性玄武岩主量、微量元素及 Sr-Nd-Pb 同位素研究. 中国科学, 38(1): 56-71.

Blichert-Toft J and Albarède F. 1998. The Lu-Hf isotope geochemistry of chondrites and the evolution of the mantle-crust system. *Earth and Planetary Science Letters*, 148(1): 243-258.

Blichert-Toft J, Frey F A and Albarède F. 1999. Hf isotope evidence for pelagic sediments in the source of Hawaiian basalts. *Science*, 285(5429): 879.

Blichert-Toft J, Weis D, Maerschalk C, Agranier A and

- Albarède F. 2003. Hawaiian hot spot dynamics as inferred from the Hf and Pb isotope evolution of Mauna Kea volcano. *Geochemistry Geophysics Geosystems*, 4(2), doi: 10.1029/2002GC000340
- Chan L H, Lassiter J C, Hauri E H, Hart S R and Blusztajn J. 2009. Lithium isotope systematics of lavas from the Cook-Austral Islands: Constraints on the origin of HIMU mantle. *Earth and Planetary Science Letters*, 277(3–4): 433–442.
- Chauvel C and Hémond C. 2000. Melting of a complete section of recycled oceanic crust: Trace element and Pb isotopic evidence from Iceland. *Geochemistry Geophysics Geosystems*, (2): 1–21, doi: 10.1029/1999GC000002
- Chauvel C, Hofmann A W and Vidal P. 1992. HIMU-EM: The French Polynesian connection. *Earth and Planetary Science Letters*, 110: 99–119.
- Chauvel C, Lewin E, Carpentier M, Arndt N T and Marini J C. 2008. Role of recycled oceanic basalt and sediment in generating the Hf-Nd mantle array. *Nature Geoscience*, 1(1): 64–67.
- Danyushevsky L V, Leslie R A J, Crawford A J and Durance P. 2004. Melt inclusions in primitive olivine phenocrysts: The role of localized reaction processes in the origin of anomalous compositions. *Journal of Petrology*, 45(12): 2531–2553.
- Delavault H, Chauvel C, Sobolev A and Batanova V. 2015. Combined petrological, geochemical and isotopic modeling of a plume source: Example of Gambier Island, Pitcairn chain. *Earth and Planetary Science Letters*, 426: 23–35.
- Eisele J, Sharma M, Galer S J G, Blichert-Toft J, Devey C W and Hofmann A W. 2002. The role of sediment recycling in EM-1 inferred from Os, Pb, Hf, Nd, Sr isotope and trace element systematics of the Pitcairn hotspot. *Earth and Planetary Science Letters*, 196(3–4): 197–212.
- Flower M F J, Zhang M, Chen C Y, Tu K and Xie G. 1992. Magmatism in the South China Basin: 2. Post-spreading Quaternary basalts from Hainan Island, south China. *Chemical Geology*, 97(1–2): 65–87.
- Frey F A, Huang S C, Xu G P and Jochum K P. 2016. The geochemical components that distinguish Loa-and Kea-trend Hawaiian shield lavas. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 185: 160–181.
- Gurenko A A and Sobolev A V. 2006. Crust-primitive magma interaction beneath neovolcanic rift zone of Iceland recorded in gabbro xenoliths from Midfell, SW Iceland. *Contributions to Mineralogy and Petrology*, 151(5): 495–520.
- Hanyu T, Tatsumi Y, Senda R, Miyazaki T, Chang Q, Hirahara Y, Takahashi T, Kawabata H, Suzuki K, Kimura J-I and Nakai S I. 2011. Geochemical characteristics and origin of the HIMU reservoir: A possible mantle plume source in the lower mantle. *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, 12(2), doi: 10.1029/2010GC003252
- Hart S R. 1984. A large-scale isotope anomaly in the Southern Hemisphere mantle. *Nature*, 309: 753–757.
- Hauri E H, Whitehead J A and Hart S R. 1994. Fluid dynamic and geochemical aspects of entrainment in mantle plumes. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 99(B12): 24275–24300.
- Hawkesworth C J, Norry M J, Roddick J C and Vollmer R. 1979.  $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$  and  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  ratios from the Azores and their significance in LIL-element enriched mantle. *Nature*, 280(5717): 28–31.
- Hoang N, Flower M F J and Carlson R W. 1996. Major, trace element, and isotopic compositions of Vietnamese basalts: Interaction of hydrous EM1-rich asthenosphere with thinned Eurasian lithosphere. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 60(22): 4329–4351.
- Hofmann A W. 1997. Mantle geochemistry: The message from oceanic volcanism. *Nature*, 385(6613): 219–229.
- Hofmann A W and Jochum K P. 1996. Source characteristics derived from very incompatible trace elements in Mauna Loa and Mauna Kea basalts, Hawaii Scientific Drilling Project. *Journal of Geophysical Research-Solid Earth*, 101(B5): 11831–11839.
- Hofmann A W, Jochum K P, Seufert M and White W M. 1986. Nb and Pb in oceanic basalts: New constraints on mantle evolution. *Earth and Planetary Science Letters*, 79: 33–45.
- Hofmann A W and White W M. 1982. Mantle plumes from ancient oceanic-crust. *Earth and Planetary Science Letters*, 57(2): 421–436.
- Huang J L and Zhao D P. 2006. High-resolution mantle tomography of China and surrounding regions. *Journal of Geophysical Research*, 111, doi: 10.1029/2005JB004066
- Huang S C and Frey F A. 2005. Recycled oceanic crust in the Hawaiian Plume: Evidence from temporal geochemical variations within the Koolau Shield. *Contributions to Mineralogy and Petrology*, 149(5): 556–575.
- Huang X L, Niu Y, Xu Y G, Ma J L, Qiu H N and Zhong J W. 2013. Geochronology and geochemistry of Cenozoic

- basalts from eastern Guangdong, SE China: Constraints on the lithosphere evolution beneath the northern margin of the South China Sea. *Contributions to Mineralogy and Petrology*, 165(3): 437–455.
- Jackson M G and Dasgupta R. 2008. Compositions of HIMU, EM1, and EM2 from global trends between radiogenic isotopes and major elements in ocean island basalts. *Earth and Planetary Science Letters*, 276(1): 175–186.
- Jackson M G, Hart S R, Koppers A A, Staudigel H, Konter J, Blusztajn J, Kurz M and Russell J A. 2007. The return of subducted continental crust in Samoan lavas. *Nature*, 448(7154): 684–687.
- Jacobsen S B and Wasserburg G J. 1980. Sm-Nd isotopic evolution of chondrites. *Earth and Planetary Science Letters*, 50(1): 139–155.
- Kempton P D, Pearce J A, Barry T L, Fitton J G, Langmuir C and Christie D M. 2002. Sr-Nd-Pb-Hf isotope results from ODP Leg 187: Evidence for mantle dynamics of the Australian-Antarctic Discordance and origin of the Indian MORB source. *Geochemistry Geophysics Geosystems*, 3, doi: 10.1029/2010GC003252
- Kogiso T, Tatsumi Y, Shimoda G and Barszczus H G. 1997. High  $\mu$  (HIMU) ocean island basalts in southern Polynesia: New evidence for whole mantle scale recycling of subducted oceanic crust. *Journal of Geophysical Research Solid Earth*, 102(B4): 8085–8103.
- Lassiter J C and Hauri E H. 1998. Osmium-isotope variations in Hawaiian lavas: Evidence for recycled oceanic lithosphere in the Hawaiian plume. *Earth and Planetary Science Letters*, 164(3–4): 483–496.
- Lei J S, Zhao D P, Steinberger B, Wu B, Shen F L and Li Z X. 2009. New seismic constraints on the upper mantle structure of the Hainan plume. *Physics of the Earth and Planetary Interiors*, 173(1–2): 33–50.
- Li H Y, Xu Y G, Ryan J G, Huang X L, Ren Z Y, Guo H and Ning Z G. 2016. Olivine and melt inclusion chemical constraints on the source of intracontinental basalts from the eastern North China Craton: Discrimination of contributions from the subducted Pacific slab. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 178: 1–19.
- Liu J Q, Ren Z Y, Nichols A R L, Song M S, Qian S P, Zhang Y and Zhao P P. 2015. Petrogenesis of Late Cenozoic basalts from North Hainan Island: Constraints from melt inclusions and their host olivines. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 152: 89–121.
- Marske J P, Pietruszka A J, Weis D, Garcia M O and Rhodes J M. 2007. Rapid passage of a small-scale mantle heterogeneity through the melting regions of Kilauea and Mauna Loa Volcanoes. *Earth and Planetary Science Letters*, 259(1): 34–50.
- McDonough W F and Sun S S. 1995. The composition of the Earth. *Chemical Geology*, 120(3–4): 223–253.
- Meyzen C M, Blicherttoft J, Ludden J N, Humler E, Mével C and Albarède F. 2007. Isotopic portrayal of the Earth's upper mantle flow field. *Nature*, 447(7148): 1069.
- Miyazaki T, Kimura J I, Senda R, Vaglarov B S, Chang Q, Takahashi T, Hirahara Y, Hauff F, Hayasaka Y and Sano S. 2015. Missing western half of the Pacific Plate: Geochemical nature of the Izanagi-Pacific Ridge interaction with a stationary boundary between the Indian and Pacific mantles. *Geochemistry Geophysics Geosystems*, 16(9): 3309–3332.
- Montelli R, Nolet G, Dahlen F A and Masters G. 2006. A catalogue of deep mantle plumes: New results from finite-frequency tomography. *Geochemistry Geophysics Geosystems*, 7, doi: 10.1029/2006GC001248
- Nebel O, Arculus R J, van Westrenen W, Woodhead J D, Jenner F E, Nebel-Jacobsen Y J, Wille M and Eggins S M. 2013. Coupled Hf-Nd-Pb isotope co-variations of HIMU oceanic island basalts from Mangaia, Cook-Austral islands, suggest an Archean source component in the mantle transition zone. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 112: 87–101.
- Nebel O, Münker C, Nebel-Jacobsen Y J, Kleine T, Mezger K and Mortimer N. 2007. Hf-Nd-Pb isotope evidence from Permian arc rocks for the long-term presence of the Indian-Pacific mantle boundary in the SW Pacific. *Earth and Planetary Science Letters*, 254(3–4): 377–392.
- Nowell G M, Kempton P D, Noble S R, Fitton J G, Saunders A D, Mahoney J J and Taylor R N. 1998. High precision Hf isotope measurements of MORB and OIB by thermal ionisation mass spectrometry: Insights into the depleted mantle. *Chemical Geology*, 149(3–4): 211–233.
- Pearce J A, Kempton P D, Nowell G M and Noble S R. 1999. Hf-Nd Element and Isotope Perspective on the Nature and Provenance of Mantle and Subduction Components in Western Pacific Arc-Basin Systems. *Journal of Petrology*, 40(11): 1579–1611.
- Pietruszka A J, Norman M D, Garcia M O, Marske J P and Burns D H. 2013. Chemical heterogeneity in the Hawaiian mantle plume from the alteration and dehydration of

- recycled oceanic crust. *Earth and Planetary Science Letters*, 361: 298–309.
- Plank T and Langmuir C H. 1998. The chemical composition of subducting sediment and its consequences for the crust and mantle. *Chemical Geology*, 145(3): 325–394.
- Porter K A and White W M. 2009. Deep mantle subduction flux. *Geochemistry Geophysics Geosystems*, 10(12), doi: 10.1029/2009GC002656
- Prytulak J and Elliott T. 2007. TiO<sub>2</sub> enrichment in ocean island basalts. *Earth and Planetary Science Letters*, 263(3–4): 388–403.
- Rapp R P, Irifune T, Shimizu N, Nishiyama N, Norman M D and Inoue T. 2008. Subduction recycling of continental sediments and the origin of geochemically enriched reservoirs in the deep mantle. *Earth and Planetary Science Letters*, 271(1): 14–23.
- Rehkamper M and Hofmann A W. 1997. Recycled ocean crust and sediment in Indian Ocean MORB. *Earth and Planetary Science Letters*, 147(1): 93–106.
- Ren Z Y, Hanyu T, Miyazaki T, Chang Q, Kawabata H, Takahashi T, Hirahara Y, Nichols A R L and Tatsumi Y. 2009. Geochemical differences of the Hawaiian shield lavas: Implications for melting process in the Heterogeneous Hawaiian Plume. *Journal of Petrology*, 50(8): 1553–1573.
- Ren Z Y, Ingle S, Takahashi E, Hirano N and Hirata T. 2005. The chemical structure of the Hawaiian mantle plume. *Nature*, 436: 837–840.
- Ren Z Y, Shibata T, Yoshikawa M, Johnson K T M and Takahashi E. 2006. Isotope compositions of submarine Hana Ridge Lavas, Haleakala Volcano, Hawaii: Implications for source compositions, melting process and the structure of the Hawaiian Plume. *Journal of Petrology*, 47(2): 255–275.
- Ren Z Y, Wu Y D, Zhang L, Nichols A R L, Hong L B, Zhang Y H, Zhang Y, Liu J Q and Xu Y G. 2017. Primary magmas and mantle sources of Emeishan basalts constrained from major element, trace element and Pb isotope compositions of olivine-hosted melt inclusions. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 208: 63–85.
- Rudnick R L and Gao S. 2003. Composition of the continental crust // Carlson R W. Treatise on Geochemistry 3, The mantle and core. New York: Elsevier: 1–70.
- Saal A E, Kurz M D, Hart S R, Blusztajn J S, Blichert-Toft J, Liang Y and Geist D J. 2007. The role of lithospheric gabbros on the composition of Galapagos lavas. *Earth and Planetary Science Letters*, 257(3): 391–406.
- Salters V J M, Mallick S, Hart S R, Langmuir C E and Stracke A. 2013. Domains of depleted mantle: New evidence from hafnium and neodymium isotopes. *Geochemistry Geophysics Geosystems*, 12(10), doi: 10.1029/2011GC003874
- Salters V J M and White W M. 1998. Hf isotope constraints on mantle evolution. *Chemical Geology*, 145(3): 447–460.
- Sobolev A V, Hofmann A W and Nikogosian I K. 2000. Recycled oceanic crust observed in plagioclase within the source of Mauna Loa Lavas. *Nature*, 404(6781): 986.
- Sobolev A V, Hofmann A W, Sobolev S V and Nikogosian I K. 2005. An olivine-free mantle source of Hawaiian shield basalts. *Nature*, 434(7033): 590.
- Stacey J S and Kramers J D. 1975. Approximation of terrestrial lead isotope evolution by a two-stage model. *Earth and Planetary Science Letters*, 26(2): 207–221.
- Stracke A. 2012. Earth's heterogeneous mantle: A product of convection-driven interaction between crust and mantle. *Chemical Geology*, 330–331: 274–299.
- Stracke A, Bizimis M and Salters V J M. 2003. Recycling oceanic crust: Quantitative constraints. *Geochemistry Geophysics Geosystems*, 4(3), doi: 10.1029/2001GC000223
- Straub S M, Goldstein S L, Class C and Schmidt A. 2009. Mid-ocean-ridge basalt of Indian type in the northwest Pacific Ocean basin. *Nature Geoscience*, 2(4): 286–289.
- Tu K, Flower M F J, Carlson R W, Xie G H, Chen C Y and Zhang M. 1992. Magmatism in the South China Basin: 1. Isotopic and trace-element evidence for an endogenous Dupal mantle component. *Chemical Geology*, 97: 47–63.
- Tu K, Flower M F J, Carlson R W, Zhang M and Xie G H. 1991. Sr, Nd, and Pb isotopic compositions of Hainan basalts (south China): Implications for a subcontinental lithosphere Dupal source. *Geology*, 19(6): 567–569.
- Vervoort J D, Patchett P J, Blichert-Toft J and Albarède F. 1999. Relationships between Lu-Hf and Sm-Nd isotopic systems in the global sedimentary system. *Earth and Planetary Science Letters*, 168(1): 79–99.
- Wang X C, Li Z X, Li X H, Li J, Liu Y, Long W G, Zhou J B and Wang F. 2012. Temperature, pressure, and composition of the mantle source region of Late Cenozoic basalts in Hainan Island, SE Asia: A consequence of a young thermal mantle plume close to subduction zones?

- Journal of Petrology*, 53(1): 177–233.
- Wang X C, Li Z X, Li X H, Li J, Xu Y G and Li X H. 2013. Identification of an ancient mantle reservoir and young recycled materials in the source region of a young mantle plume: Implications for potential linkages between plume and plate tectonics. *Earth and Planetary Science Letters*, 377–378: 248–259.
- Wanless V D, Garcia M O, Trusdell F A, Rhodes J M, Norman M D, Weis D, Fornari D J, Kurz M D and Guillou H. 2006. Submarine radial vents on Mauna Loa Volcano, Hawaii. *Geochemistry Geophysics Geosystems*, 7(5), doi: 10.1029/2005GC001086
- Weaver B L. 1991. The origin of ocean island basalt end-member compositions: Trace element and isotopic constraints. *Earth and Planetary Science Letters*, 104(2–4): 381–397.
- Weis D, Garcia M O, Rhodes J M, Jellinek M and Scoates J S. 2011. Role of the deep mantle in generating the compositional asymmetry of the Hawaiian mantle plume. *Nature Geoscience*, 4(12): 831–838.
- White W M and Hofmann A W. 1982. Sr and Nd isotope geochemistry of oceanic basalts and mantle evolution. *Nature*, 296: 821–825.
- Willbold M and Stracke A. 2006. Trace element composition of mantle end-members: Implications for recycling of oceanic and upper and lower continental crust. *Geochemistry Geophysics Geosystems*, 7(4), doi: 10.1029/2005GC001005
- Willbold M and Stracke A. 2010. Formation of enriched mantle components by recycling of upper and lower continental crust. *Chemical Geology*, 276(3–4): 188–197.
- Xia S H, Zhao D P, Sun J L and Huang H B. 2016. Teleseismic imaging of the mantle beneath southernmost China: New insights into the Hainan plume. *Gondwana Research*, 36: 46–56.
- Yamasaki S, Kani T, Hanan B B and Tagami T. 2009. Isotopic geochemistry of Hualalai shield-stage tholeiitic basalts from submarine North Kona region, Hawaii. *Journal of Volcanology Geothermal Research*, 185(3): 223–230.
- Yan Q S, Shi X F and Castillo P R. 2014. The late Mesozoic-Cenozoic tectonic evolution of the South China Sea: A petrologic perspective. *Journal of Asian Earth Sciences*, 85: 178–201.
- Zhang G L, Luo Q, Zhao J, Jackson M G, Guo L S and Zhong L F. 2018. Geochemical nature of sub-ridge mantle and opening dynamics of the South China Sea. *Earth and Planetary Science Letters*, 489: 145–155.
- Zhou P B and Mukasa S B. 1997. Nd-Sr-Pb isotopic, and major- and trace-element geochemistry of Cenozoic lavas from the Khorat Plateau, Thailand: Sources and petrogenesis. *Chemical Geology*, 137(3): 175–193.
- Zindler A and Hart S. 1986. Chemical geodynamics. *Annual Reviews of Earth and Planetary Science*, 14: 493–571.
- Zou H B and Fan Q C. 2010. U-Th isotopes in Hainan basalts: Implications for sub-asthenospheric origin of EM2 mantle endmember and the dynamics of melting beneath Hainan Island. *Lithos*, 116(1–2): 145–152.

## Features and Age of Recycled Material in Mantle Source of Cenozoic Basaltic Lavas in Hainan Island: Evidence from Hf-Sr-Nd-Pb Isotopic Compositions

MEI Shengwang<sup>1,2</sup> and REN Zhongyuan<sup>1\*</sup>

(1. State Key Laboratory of Isotope Geochemistry, Guangzhou Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guangzhou 510640, Guangdong, China; 2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

**Abstract:** Recycling of oceanic crust and sediments into mantle plays an important role in the chemical evolution of the Earth's crust-mantle system. Previous studies established potential dynamic linkages between the plate subduction and Hainan plume generation, so recycled materials have great effects on mantle source of the Hainan basaltic lavas. However, the existence of recycled sediments in the source is still unknown. In this paper, we report, for the first time, the Hf isotope data of the Cenozoic basaltic lavas in Hainan Island, and combine the new Sr, Nd, and Pb isotope data together with the previous data to constrain the composition and age of the recycled materials. Compared with the Mantle Array,  $\epsilon_{\text{Hf}}$  values of Hainan lavas are lower relative to given  $\epsilon_{\text{Nd}}$ . Moreover, the lavas have the characteristics of  $\text{Eu}/\text{Eu}^* > 1$  and  $\text{Sr}/\text{Sr}^* > 1$ , but neither of them has correlation with  $\text{Al}_2\text{O}_3$  and  $\text{MgO}$ , indicating that the positive anomalies of Eu and Sr are the characteristics of the source. These several lines of evidence suggest that recycled oceanic crust plays a significant role in mantle source. The Ce/Pb ratios of Hainan lavas are positively correlated with  $\epsilon_{\text{Nd}}$  and  $\epsilon_{\text{Hf}}$ , and Nd/Pb ratios are negatively correlated with  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ , pointing to the subducted oceanic sediments end member. According to the evolution model of the  $\epsilon_{\text{Hf}}-\epsilon_{\text{Nd}}$  and Pb isotopes, we conclude that the recycled oceanic crust and sediments in the source region are relatively young, and its age should be less than 1.0 Ga. The high-density eclogite derived from a mixture of recycled oceanic crust and sediments drives the material to sink into the lower mantle and even as deep as the core-mantle boundary, which then reacts with the ambient peridotite and produces the solid pyroxenite in the rising plume. With Hainan plume rising, the pyroxenite bodies melt continually to generate magma for the Hainan basalts.

**Keywords:** Cenozoic basaltic lavas; recycled oceanic crust; recycled sediment; Hainan Island