

**X-ray 회절 결과를 이용한 스멕타이트-
일라이트화 작용에 관한 연구**
The study of smectite-illitization by X-ray diffraction

강일모, 문희수

연세대학교 지구시스템과학과 (momo@yonsim.yonsei.ac.kr)

1. 서론

스멕타이트-일라이트화 작용(smectite-illitization)은 독립적인 지온계(geothermometer)로 사용되며, 특히 석유탐사와 퇴적분지 진화에 관련하여 많은 연구가 진행되고 있다. 연구방법은 주로 Méring's principle에 기초한 XRD 분석과 기본입자(fundamental particle)를 측정할 수 있는 TEM 분석이 사용되고 있으며(Moore and Reynolds, 1989; Nadeu et al., 1984), 이 두 방법은 서로 다른 장단점을 가지고 있다. XRD의 경우 시료제작이 비교적 쉽고 통계적 평균값을 얻을 수 있는 장점이 있으나, 입자의 외형과 정확한 배열 상태에 관한 정보를 얻는데 있어서는 제한점을 갖는다. 반면, TEM은 입자의 외형과 배열 상태에 관한 직접적인 정보를 얻을 수 있는 장점이 있으나, 시료제작이 어렵고 통계적 의미를 얻기 위해서는 많은 분석을 필요로 한다. 따라서, 최근에는 입자두께를 이용하여 이 두 방법간의 연관성에 관한 연구가 활발히 진행되고 있다(Środoń et al., 1990; Eberl et al., 1990; Drits et al., 1997). 이에 본 연구는 금성산화산암복합체 내의 화산쇄설물(pyroclast) 기원의 시료를 대상으로 X-ray 회절결과를 이용하여 회절결정두께 및 기본입자개수를 측정하고, 이를 통하여 스멕타이트-일라이트화 작용에 따른 특징을 연구하였다.

2. 연구 및 실험방법

회절결정두께(coherent scattering domain size, CSDs)는 기본적으로 X-ray 회절 피크의 반치폭과 관련 있으며, 이는 Scherrer 식으로 표현된다(Klug and Alexander, 1974; Moor and Reynolds, 1987)

$$T = \frac{K_{sh}\lambda}{\beta \cos \theta_1} \quad \text{식 1}$$

위 식에서 T는 회절결정두께, K_{sh} 는 Scherrer 상수, λ 는 X-ray의 파장, β 는 00l 피크의 반치폭, $\cos \theta_1$ 은 00l 피크의 위치이다. 따라서, 00l 피크의 위치와 반치폭을 측정하면, 회절결정두께를 측정 할 수가 있으며, 만약 00l 방향으로 결손(defect)이 없다면, 실제 결정의 c축 방향에 대한 두께를 얻을 수 있다. 그러나 실제 측정에서는 K_{sh} 가 결정의 입도분포에 크게 영향을 받기 때문에 적절한 값을 선택하는 것이 중요하며, 이때 계산된 T도 평균회절결정두께(T_{mean})를 의미하게 된다. 본 연구에서는 Drits 등(1997)이 제시한 로그정규분포(lognormal distribution)에 따른 K_{sh} -다이아그램을 이용하여 K_{sh} 값을 구하였으며, 이러한 로그정규분포는 화산쇄설물(pyroclasts) 기원의 I/S 혼합층 광물에 적합한 입도분포로 알려져 있다(Eberl et al., 1990; Drits et al., 1997).

평균회절결정을 구성하고 있는 평균층개수(mean layer number)는 위에서 구한 평균회절결정두께를 이용하여 계산할 수 있다(Drits et al., 1997).

$$T_n = \frac{100 T_{mean} + (d_s - d_l) \% S_{XRD}}{100 d_l + (d_s - d_l) \% S_{XRD}} \quad \text{식 2}$$

위 식에서 T_n 은 평균층개수, T_{mean} 은 위에서 구한 평균회절결정두께, d_l 와 d_s 는 일라이트와 스멕타이트의 저면간격(basal spacing), $\%S_{XRD}$ 는 X-ray 회절로부터 얻은 스멕타이트의 함량을 나타낸다. 본 연구에서는 $\%S_{XRD}$ 를 구하기 위해서 Środoń 다이어그램(Środoń, 1980; Środoń, 1984)과 Ir(intensity ratio)을 이용한 정량 방법(Środoń and Elsass, 1994)을 이용하였다.

마지막으로 평균회절결정 내에 평균기본입자개수(mean fundamental particle number)는 식 3를 이용하여 계산할 수 있다(Drits et al., 1997).

$$N = \frac{100 T_n}{[(T_n - 1) \% S_{XRD} + 100]} \quad \text{식 3}$$

위 식에서 N 은 평균기본입자개수이고, T_n 은 식 2에서 구한 평균층개수를 나타낸다.

본 연구는 퇴적법과 원심분리를 이용하여 시료를 조립점토(0.2-2 μ m)와 세립점토(<0.2 μ m)로 나누어 측정하였다. 정방위시료는 시료 30mg을 필터여과법(filter transfer method)으로 제작하였으며, 이때 NaCl과 KCl, MgCl₂ 1N 용액을 점토필름에 투과시켜 층간양이온교환을 실시하였다(Moore and Reynolds, 1989). 에틸렌글리콜 처리는 증기법을 이용하여 60 $^{\circ}$ C에서 72시간 반응시켰으며, 열처리 300 $^{\circ}$ C 오븐에서 1시간 가열하였다. XRD 분석은 CuK α 타겟을 사용하여, 40kV/30mA와 0.02 $^{\circ}$ /1sec 단계별주사방법(step-scanning)으로 측정하였다.

3. 결과

금성산화산암복합체에서 채취한 시료의 스멕타이트층함량(smectite layer percent, %S)을 측정한 결과, 시료별로 100%S의 순수한 스멕타이트, 25%S를 함유한 R1 I/S 혼합층 광물, 2-3%S를 함유한 일라이트, 0%S의 순수한 일라이트로 나타났으며, 이는 금성산화산암복합체 내에서 다양한 일라이트화 작용이 있었음을 지시한다.

순수한 스멕타이트의 경우 세립점토와 조립점토에서 평균회절결정두께는 5.4nm와 6.2nm로, 평균층개수는 3.6개와 4.1개로 측정되었으며, 평균기본입자개수는 1개로 구성되어 있다. 반면 순수한 일라이트는 평균회절결정두께가 8.6nm와 11.5nm로 측정되었으며, 평균층개수와 기본입자개수는 8.6개와 11.5개로 동일한 값을 갖는다. 그 외의 시료는 이 두 시료의 중간값을 갖는다.

Fig. 1은 측정한 평균층개수와 평균기본입자개수를 도식한 그림이다. 평균층개수의 경우 층이 4개에서 12개로 증가하는 진화선(evolution line)과 3개에서 6개로 증가하는 진화선 내에 측정값이 분포하고 있으며, 평균기본입자개수는 스멕타이트층 함량이 감소할수록 급격하게 증가하는 경향을 보인다. 또한 2-25%S 구간에서 평균층개수는 거의 변화가 없는 반면, 평균기본입자개수는 증가하는 특징을 보인다.

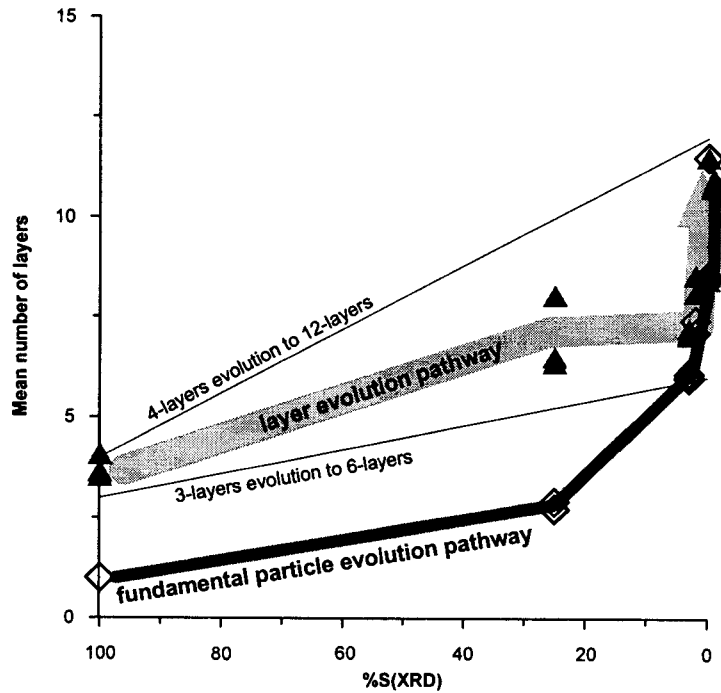


Fig. 1. Evolution diagram of layer and fundamental particle. Solid triangle is mean number of layers and open diamond is mean number of fundamental particles.

4. 결론 및 토의

본 연구결과를 통하여 금성산화산암복합체에서 산출되는 스멕타이트와 I/S 혼합층 광물 및 일라이트의 결정크기는 제한된 범위 내에 분포하고 있음을 알 수 있고, 순수한 스멕타이트가 평균 3-4개 층으로 구성되어 있는 것을 고려하면, 일라이트화 작용에 의해 생성된 일라이트 결정크기는 모물질(precursor)인 스멕타이트의 크기에 의해 제한됨을 지시한다. 따라서 이러한 특징은 금성산화산암복합체의 일라이트화 작용에 수반된 결정성장 방법으로 Ostwald ripening 메카니즘의 가능성을 시사한다(Altaner et al., 1997).

또한 2-25%S 구간에서 평균층개수의 증가는 없고, 평균기본입자개수가 증가하는 현상은 고체상전이(solid-state transformation)에 의해 점이적으로 스멕타이트층에서 일라이트층으로 전이하였음을 의미하며, 이러한 전이과정이 주로 벤토나이트 환경에서 관찰된다는 기존 연구 결과와 잘 일치한다(Inoue et al., 1990; Altaner et al., 1997).

결론적으로 본 연구는 X-ray 회절결과를 이용하여 결정두께를 측정하고, 이를 통한 지질학적 해석의 가능성을 제시한다.

5. 참고문헌

- Altaner S.P. and Ylagan R.F. (1997) Comparison of structural models of mixed-layer illite/smectite and reaction mechanisms of smectite illitization. *Clays and Clay Minerals*, 45, 517-533.
- Drits V.A., Środoń J., and Eberl D.D. (1997) XRD measurement of mean crystallite

- thickness of illite and illite/smectite: Reappraisal of the Kubler index and the Scherrer equation. *Clays and Clay Minerals*, **45**, 3, 461-475.
- Eberl D.D., Środoń J., Kralik M, Taylor BE, and Peterman Z.E. (1990) Ostwald ripening of clays and metamorphic minerals. *Science*, **248**, 474-477.
- Inoue A., Watanabe T., Koyhama N., and Brusewitz A.M. (1990) Characterization of illitization of smectite in bentonite beds at Kinnekulle, Sweden. *Clays and Clay Minerals*, **38**, 241-249.
- Klug H.P and Alexander L.E. (1974) *X-ray diffraction procedures*. J. Wiley & Sons, New York.
- Moore D.M. and Reynolds R.C. (1989) *X-ray diffraction and the identification and analysis of clay minerals*. Oxford University Press, Oxford and New York.
- Nadeu P.H., Wilson M.J., McHardy W.J., and Tait J.M. (1984) Interstratified clays as fundamental particles. *Science*, **225**, 923-925.
- Środoń J. (1980) Precise identification of illite/smectite interstratification by X-ray powder diffraction. *Clays & Clay Minerals*, **28**, 401-411.
- Środoń J. and Eberl, D.D. (1984) Illite: in *Micas: Reviews in mineralogy*, S.W. Bailey, ed., *Mineral. Soc. Amer.* **13**, 495-539.
- Środoń J. and Elsass F. (1994) Effect of the shape of fundamental particles on XRD characteristics of illitic minerals. *Eur. J. Mineral*, **6**, 113-122.
- Środoń J., Andreoli C., Elsass F., and Robert M. (1990) Direct high-resolution transmission electron microscopic measurement of expandibility of mixed-layer illite/smectite in bentonite rock. *Clays and Clay Minerals*, **38**, 373-379.