

밀양 납석광상에서 산출되는 단괴의 광물조성

문희수* · 이강원* · 송윤구*

Mineralogy of Nodules in the Milyang Pyrophyllite Deposit, Gyeongsangnamdo, South Korea

Hi-Soo Moon*, Kangwon Lee* and Yungoo Song*

ABSTRACT: Some nodules occur in the Milyang pyrophyllite deposit which are hydrothermal alteration products by Late Cretaceous andesitic tuff. These nodules are divided into two types on the basis of mineral assemblages; diaspore and pyrophyllite nodules.

The diaspore nodules consist mainly of diaspore, kaolinite, pyrophyllite and pyrite with a small amounts of wavellite and tourmaline. They are light purplish grey in color, ellipsoid in shape and range 1 cm to 15 cm in size. A small or large diffuse band exists in some nodules. The platy coarse-grained diaspore is intergrown with the fine-aggregated kaolinite in the central part of the nodule. It appears that the grain size become fine from center to margin. The pyrophyllite nodules, which have the same shape with diaspore nodules, consist dominantly of pyrophyllite accompanied by small amounts of quartz, kaolinite, svanbergite, wavellite, tourmaline and apatite.

Chemical compositions of alteration zones and nodules show that the wall rock alteration involved mainly the removal of large quantities of silica and alkalis and small quantities of Ca, Mg and Fe. The sharp increase in the Al content of the nodules is the result of residual concentration of alumina by the leaching of the mobile components.

The pyrophyllite nodules were formed in the fluid saturated with quartz as $\mu_{\text{HK}-1}$ and $\mu_{\text{H}_2\text{O}}$ increase. Under this condition, the pyrophyllite-kaolinite-quartz assemblage was stable. Diaspores formed from pyrophyllites in the fluid undersaturated with quartz as $\mu_{\text{H}_2\text{O}}$ increases (decreasing temperature). Under this condition, diaspore-pyrophyllite-kaolinite assemblage become stable. The formation temperature of the nodules on the basis of mineral assemblage is estimated as 275~340°C

서 언

밀양 납석광상은 백악기말 안산암질 응회암 내에 배태되어 있는 밀양지역의 대표적인 납석광상으로서, 특징적으로 다이아스포어가 산출되는데, 본 광상을 형성시킨 열수변질작용은 화강암류 관입과 관련된 것으로 보고되어 있다 (오대균 외, 1992; 이강원 외, 1993).

다이아스포어는 밀양광상 뿐만 아니라 광도, 동래, 천불산, 해남, 노화광상 등 (상기남, 1986; 문희수 외, 1992; 전효택 외, 1991)에서도 납석과 함께 산출된다. 그런데 밀양광상에서는 다이아스포어가 단괴 (nodule)를 구성하는 주구성광물로 산출되며 (이하 이를 다이아스포어 단괴라 함), 광도, 송석광상의 다이아스포어 산출양상과 유사하고 외국에서도 이러한 단괴상의 다이아스포어 산출이 보고

되어 있다 (Papezik and Keats, 1976). 그러나 단괴들 중에는 다이아스포어가 포함되어 있지 않고 주로 납석으로 구성된 단괴들이 분포하기도 한다 (이하 이를 납석 단괴라 함).

국내 납석광상에서 산출되는 단괴들, 즉 다이아스포어 단괴와 납석 단괴에 관한 기존의 연구는 미비하여 다이아스포어 단괴의 존재여부만 밝혀져 있을 뿐 이들에 대한 기재는 되어있지 않다. 따라서 본 연구는 밀양광상에서 산출되는 단괴의 산출상태, 단괴 내의 광물조성 및 조직적 특징을 기재하고 단괴의 성인에 대하여 고찰하고자 한다.

지질개요 및 단괴의 산출상태

경상분지는 하부로부터 신동층군, 하양층군, 유천층군으로 나뉘며 (장기홍, 1977), 밀양지역은 백악기 말에 분출된 유천층군의 화산암류인 하부의 주사산 안산암질암

*연세대학교 지질학과 (Department of Geology, Yonsei University, 134 Shinchon-dong, Seodaemun-gu, Seoul 120-749, Korea)

류와 상부의 운문사 유문암질암류가 분포한다 (김상욱 외, 1991). 주사산 안산암질암류는 비현정질 안산암, 밀양 안산암, 정각산층, 범도리 안산암으로 구성되고 (김규봉, 황상구, 1988; 홍승호, 최범영, 1988), 본 층을 관입한 화강암류들은 화강섬록암에서 흑운모화강암에 이르는 분화상을 보이며 밀양광상 동쪽에 광범위하게 분포하고 있다 (홍영국, 1985).

밀양광상 주변의 홍승호, 최범영 (1988)에 의하여 명명된 비현정질 안산암은 밀양 안산암과 비교해 볼 때 부분적으로 사장석 반정이 결핍되어 나타날 뿐, 전체적으로 밀양 안산암과의 뚜렷한 경계가 보이지 않으므로 이들을 하나의 층으로 분류하여 밀양 안산암이라 하였고, 이는 안산암질 응회암을 피복하고 있다 (이강원 외, 1993). 밀양 납석광상을 포함한 본 조사지역 서편은 비현정질 안산암 보다는 안산암질 응회암류가 주된 분포를 보인다. 집괴암 역시 밀양 안산암을 피복하며 놓여 있어 따로 분류하였다.

밀양 납석광상은 주로 안산암질 응회암을 모암으로 응회암의 층리를 따라 층상 내지 렌즈상으로 배태되어 있다. 본 광산의 주변지역은 안산암질 응회암이 분포하고 있고 노천채굴 중인 광체는 안산암질 응회암의 주향방향과 동일한 방향으로 형성되어 있다. 단층면을 따라 광화작용이 잘 진행된 연하늘색 내지 담녹색의 고품위 광체는 이미 항내채굴로 채진된 상태이다. 층준에 평행하게 발달한 납석광체는 담회색, 담황색 또는 담녹색을 띠며 발달한다. 일부 광체구간에서는 납석화 작용 결과, 래필리나 래필리내의 반정들이 가상으로만 남은 채 거의 납석으로 치환되어 나타나고 열수이동에 따른 용탈작용에 의해 다공질 양상이 나타나기도 한다. 납석광체는 주로 납석으로 구성되어 있고 카올리나이트, 황철석, 미립의 석영, 다이아스포어, 듀머티에라이트 (dumortierite) 등이 나타나며 다이아스포어는 단괴 내에 집중 분포된다.

열수의 통로로 생각되는 단층선을 따라 단괴가 밀집되어 분포하는데 (Fig. 1, A) 이는 다이아스포어 단괴와 납석 단괴로 구성되어 있다. 단괴의 크기는 작은 것은 1cm에서 큰 것은 15cm이나 보통 3~5cm이고, 단괴는 대개 타원형으로 생겼다 (Fig. 1, B).

구조선을 따라 일정한 층준을 중심으로 청색, 담청색 또는 보라색의 듀머티에라이트가 수반되며 그 주변에 세 맥상으로 농집되어 있기도 한다.

시료채취는 다이아스포어의 산출상태, 광물 공생관계 및 생성기구를 고찰하기 위해 단괴가 분포하는 밀양광상의 납석대에서 다이아스포어 단괴와 이들 단괴를 포함하는 시료 29개를 채취하였다.

단괴의 광물조성과 조직적 특징

광물조성 및 종류

밀양광상에 나타나는 단괴는 광물조성을 기준으로 다이아스포어와 석영의 유무에 따라 다이아스포어 단괴와 납석 단괴 2가지 유형으로 나뉘어진다. 즉, 같은 단괴의 모양을 갖추고 있지만 다이아스포어 단괴는 다이아스포어를 포함하고 석영은 포함하지 않으며, 납석 단괴는 석영을 포함하고 다이아스포어를 포함하지 않는다 (Fig. 2). 이들의 자세한 광물조성은 Table 1에 제시하였다.

다이아스포어 단괴는 일반적으로 다이아스포어, 카올리나이트, 납석, 황철석, 웨이블라이트, 전기석 등의 광물조성을 갖는다. 다이아스포어는 단괴의 중심부에서 미립의 카올리나이트 집합체와 함께 자형으로 잘 성장해 있거나 크고 작은 동심원상의 확산띠 (이 띠를 경계로 안쪽에서 다이아스포어 결정이 크게 자형으로 성장해 있고 점이적으로 바깥쪽에서는 다이아스포어 결정의 크기가 작아진다)를 구성하고 있고, 산점상으로 분포하기도 한다. 연변부에서는 납석이 소량 존재하며 카올리나이트, 황철석, 웨이블라이트, 전기석 등은 단괴 내에 고루 분포한다.

그러나 본 역에는 다이아스포어 단괴와 같은 형태를 지니지만 다이아스포어가 존재하지 않는 납석 단괴가 분포하는데, 이 단괴는 주로 납석으로 이루어져 있고, 황철석, 미립의 석영, 카올리나이트, 전기석, 스반버자이트, 웨이블라이트, 인회석 등의 광물조성을 갖는다. 납석 단괴 내에는 간혹 동심원상의 띠가 관찰되며 전기석, 황철석, 스반버자이트, 비현정질 물질 등으로 구성되어 있다.

수반광물 개요

단괴를 구성하는 광물들인 다이아스포어, 카올리나이트, 납석, 전기석, 웨이블라이트, 스반버자이트에 대해 간단히 소개하면 다음과 같다.

다이아스포어 (diaspore)

본 역에 분포하는 다이아스포어의 평균 구조식은 $Al_{0.98}O(OH)$ 로서, Al이 83.5~85.4%의 함량을 갖는다. 화학조성과 구조식은 Table 2와 같다. 아주 소량의 Si, Ti, Fe가 치환될 뿐 이상적인 화학조성과 매우 유사하다. 이들의 X-선 회절분석 결과, 다이아스포어의 전형적인 회절선인 4.71Å (020), 3.99Å (110), 3.21Å (120), 2.56Å (130), 2.32Å (111), 2.13Å (121) 그리고 2.08Å (140)의 회절선이 명확하게 인

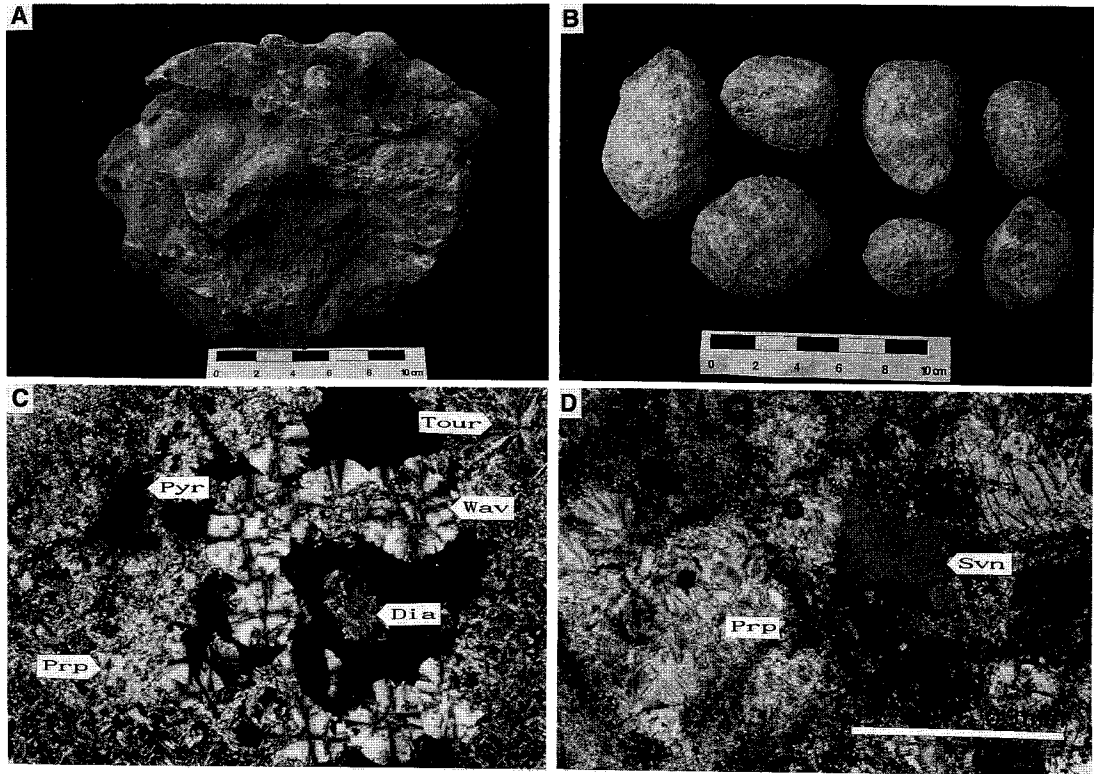


Fig. 1. Photographs of nodule-bearing rock (A) and diaspore nodules (B). Photomicrographs of wavellites (C) and svanbergites (D). Wavellites occur as characteristic radial form. Svanbergites are in contact with pyrophyllites. Abbreviation: Dia; diaspore, Pyr; pyrite, Wav; wavellite, Tour; tourmaline, Prp; pyrophyllite, and Svn; svanbergite.

Table 1. Mineral assemblage of nodules in the milyang pyrophyllite deposit.

Type	Part	Mineral Assemblages	Sample No.
diaspore nodule		diaspore + kaolinite + pyrite + pyrophyllite ± pyrophyllite ± wavellite ± tourmaline	N7, N8, N10, N11, N15, N16, N21, N22
diaspore nodule with diffuse band	Center	diaspore + kaolinite + pyrite ± wavellite ± tourmaline	N6, N17, N23
	Margin	diaspore + kaolinite + pyrite + pyrophyllite ± wavellite ± tourmaline	
pyrophyllite nodule		pyrophyllite + kaolinite + pyrite + quartz + quartz + svanbergite ± tourmaline ± wavellite ± apatite	N4, N5, N12, N13, N25, N29

지된다 (Fig. 2).

밀양광상에서 산출되는 다이아스포어는 주로 Z축으로 신장된 얇고 긴 판상의 {010}면으로 나타나며 화려한 간섭색을 갖는다 (Fig. 3). 다이아스포어는 주로 카올리나이트, 납석과 공생관계를 갖고 있다.

카올리나이트

단괴 내에 분포하는 카올리나이트의 평균 구조식은 $Al_{1.96}Si_2O_5(OH)_4$ 로 이상적인 조성을 보인다 (분석자료 생략). 다이아스포어 단괴에서는 미립의 집합체로 나타나며 자형의 다이아스포어 결정들과 공존한다 (Fig. 3). 납석 단

Table 2. Electron microprobe analyses and structural formulae for diaspores, tourmalines, svanbergites and wavellites.

Sample No.	Diaspore	Tourmaline		Svanbergite		Wavellite		
	*N23(5)	N23(2)		89-1-39(4)	90-3-103(3)	N23(5)		
SiO ₂	0.24	SiO ₂	36.93	SiO ₂	0.00	0.00	SiO	0.17
TiO ₂	0.14	TiO ₂	0.07	Al ₂ O ₃	33.14	33.10	TiO ₂	0.00
Al ₂ O ₃	84.25	Al ₂ O ₃	33.21	FeO	0.01	0.01	Al ₂ O ₃	35.22
**FeO	0.16	FeO	8.69	MnO	0.02	0.00	FeO	0.01
MnO	0.00	MnO	0.06	CaO	0.37	0.35	MnO	0.01
MgO	0.00	MgO	4.04	SrO	21.42	21.26	MgO	0.00
CaO	0.00	CaO	0.05	K ₂ O	0.01	0.02	CaO	0.06
Na ₂ O	0.00	Na ₂ O	1.51	SO ₃	16.23	12.37	Na ₂ O	0.10
K ₂ O	0.00	K ₂ O	0.00	P ₂ O ₅	17.11	20.72	K ₂ O	0.12
							SO ₃	0.05
							P ₂ O ₅	41.77
Total	84.78	85.03		88.31	87.83			77.51
Oxygen	3	24.5		11				9.5
Si	0.013	Si	6.097	Si	0.000	0.000	Si	0.011
Al	1.989	Al	6.000	Al	2.979	3.002	Al	2.615
Ti	0.006	Al(VI)	0.560	Fe	0.000	0.000	Ti	0.000
Fe	0.007	Ti	0.008	Mn	0.002	0.000	Fe	0.001
Mn	0.000	Fe	1.200	Ca	0.030	0.029	Mn	0.001
Mg	0.000	Mn	0.008	Sr	0.948	0.949	Mg	0.000
Ca	0.000	Mg	0.993	K	0.001	0.002	Ca	0.004
Na	0.000	Ca	0.009	S	0.929	0.712	Na	0.012
K	0.000	Na	0.482	P	1.105	1.352	K	0.010
		K	0.000				S	0.002
							P	2.213

*Average composition. Number in parenthesis indicates number of discrete analyses. ** Fe total as FeO.

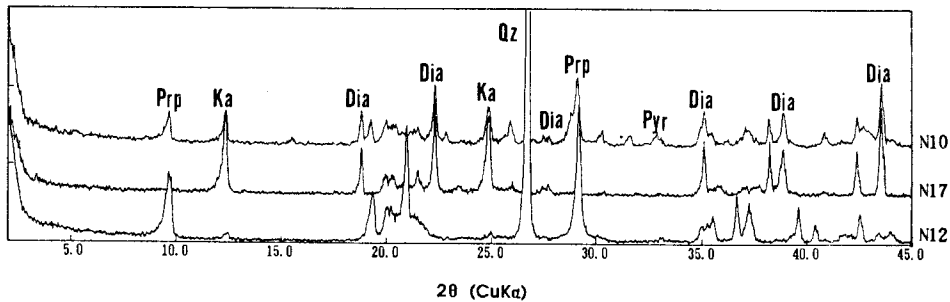


Fig. 2. X-ray diffraction patterns (CuK α radiation) of representative nodules. Sample N10 and N17 are diaspore nodules and N12 is pyrophyllite nodule. Abbreviation: Dia; diaspore, Ka; kaolinite, Prp; pyrophyllite, Qz; quartz, and Pyr; pyrite.

괴에서는 납석, 석영 등과 공존한다.

광물로서 거정질보다는 미립의 결정들로 존재한다.

납석

단괴에서 납석의 평균 구조식은 $Al_{2.02}Si_{3.97}O_{10}(OH)_2$ 로서 이상적인 화학조성과 유사하다 (분석자료 생략). 납석은 다이아스포어 단괴의 바깥쪽에서 다이아스포어, 카올리나이트 등과 공존하며 (Fig. 3, C), 납석 단괴에서는 주구성

전기석

전기석의 일반 구조식은 $XY_3Z_6(BO_3)_3Si_6O_{18}(OH)_4$ 로 단괴에서 산출되는 전기석은 X자리에 Na가 주로 차지하고 있고 Ca가 소량 치환하며 Y자리에는 Fe, Mg, Al(VI), Ti가 차지하는데 이론적인 조성 3에는 못미치고 Z자리는 Al이

Table 3. Chemical composition of nodules and of altered rocks.

Sample No.	Diaspore Nodule			Pyrophyllite Nodule			Altered Rocks		
	N17	N21	Average	N4	N13	Average	CZ(14)*	SZ(6)	PZ(10)
SiO ₂	22.79	12.71	17.75	56.48	56.21	56.35	59.77	59.74	61.51
TiO ₂	1.39	0.39	0.89	0.63	0.21	0.42	0.81	1.14	0.94
Al ₂ O ₃	56.91	66.25	61.58	31.56	32.62	32.09	16.62	22.37	24.30
Fe ₂ O ₃ **	1.40	2.61	2.01	0.61	0.43	0.52	8.30	5.38	3.50
MnO	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.10	0.02	0.00
MgO	0.01	0.05	0.03	0.04	0.01	0.03	1.83	0.53	0.04
CaO	0.02	0.01	0.02	0.01	0.01	0.01	3.62	0.86	0.16
Na ₂ O	0.01	0.02	0.02	1.03	0.54	0.79	2.54	0.43	0.19
K ₂ O	0.00	0.00	0.00	0.04	0.01	0.03	2.15	2.09	0.13
P ₂ O ₅	0.05	0.36	0.21	0.19	0.34	0.27	0.27	0.26	0.28
Ig.Loss	17.64	18.01	17.83	8.96	9.44	9.20	5.33	8.23	8.36
Total	100.22	100.41	100.32	99.55	99.82	99.69	101.35	101.04	99.41

*Average composition, and number in parenthesis indicates number of discrete analyses. **Fe as total Fe₂O₃. Abbreviation: CZ; Chlorite Zone, SZ; Sericite Zone, PZ; Pyrophyllite Zone, PN; Pyrophyllite Nodule, and DN; Diaspore Nodule.

차지하고 있다 (Table 2). 단괴의 전기석은 스크-드라바이트 (schorl-dravite) 계열에 속하며, 전기석에서의 화학 성분 치환에 의한 특성에 따라 나타나는 모양의 특징과 근원암을 분류할 때 Li가 결핍된 화강암질암류이거나 이와 관련된 페그마타이트, 애플라이트 영역에 속한다 (Henry and Guidotti, 1985). 현미경하에서 방사상으로 성장하여 황갈색을 띠고 (Fig. 1, C), 다이아스포어를 끊고 성장하기도 한다.

웨이블라이트 (wavellite)

웨이블라이트는 인산염광물로서 사방정계에 속하는 광물로서 이론적인 구조식은 Al₃(PO₄)₂(OH)_{3.5}H₂O이다. 본역에 나타나는 웨이블라이트의 평균 화학조성 및 구조식은 Table 2에 제시하였다. 이들의 평균 구조식은 Al_{2.64}(PO₄)_{2.21}(OH)_{3.5}H₂O로서, Al은 이론적인 조성 3에 못미치고, (PO₄)³⁻는 이론적인 조성보다 약간 상회한다. 웨이블라이트는 다이아스포어 단괴와 듀머티에라이트가 농집되어 있는 곳에서 산출된다. 이들은 개방 니콜하에서 색깔을 띠지 않으며 복굴절률이 낮고 다색성도 보이지 않는다. 직교 니콜하에서는 유백색, 노란색, 핑크색의 간섭색을 띠며, 침상의 결정들이 부채꼴 또는 둥근 방사상의 집합체로 나타난다 (Fig. 1, C). 웨이블라이트는 듀머티에라이트가 농집되어 있는 곳에서 소량의 세맥을 충전하거나 세맥 주위에 자형의 집합체로 나타나는데, 방사상의 듀머티에라이트가 웨이블라이트맥을 중심으로 크게 성장하는 것이 확인된다. 다이아스포어 단괴에서는 다이아스포어로부터 웨이블라이트가 성장한 모습이 관찰된다 (Fig. 3, A).

스반버자이트 (svanbergite or Hartite)

스반버자이트는 Sr과 Al의 황산염-인산염광물로서, beudantite group에 해당하고 육정계 능면체정족에 속한다. 스반버자이트의 이론적인 화학조성은 SrO 22.44%, Al₂O₃ 33.13%, P₂O₅ 15.38%, SO₃ 17.34%, H₂O 11.71%로 SrAl₃(PO₄)(SO₄)(OH)₆의 구조식을 갖는다. 아직까지 밀양광상에서 보고되지 않은 광물로서, 본 역에 존재하는 스반버자이트의 전자현미분석에 의한 평균 화학조성 및 구조식은 Table 2와 같다. 평균 구조식은 Sr_{0.95}Al_{2.97}(PO₄)_{1.32}(SO₄)_{0.75}(OH)₆으로 Sr은 0.93~1.00의 조성을 갖고, P와 S는 각각 0.86~1.96, 0.20~1.15의 범위를 갖는다. 일부 Ca가 Sr을 치환하여 나타나고 (SO₄)²⁻에 대해 (PO₄)³⁻가 더 우세하다.

스반버자이트는 밀양광상의 납석 광체와 단괴에서 소량 나타난다. 스반버자이트는 납석세맥을 일부 충전하며 나타나기도 하고, 납석맥 주변에서 납석, 인회석, 카올리나이트, 듀머티에라이트, 중정석 등과 함께 자형으로 나타난다. 일부 납석 단괴에서 비현정질물질이나 불투명광물 등과 함께 대상을 이루는 구성광물로 혹은 납석, 웨이블라이트, 전기석 등과 공생관계를 보이며 자형으로 성장하여 있다. 스반버자이트는 개방 니콜하에서 색깔을 띠지 않으며, 직교 니콜하에서 핑크색, 황갈색, 자주색의 간섭색을 띤다. 또한 {0001} 벽개면이 잘 발달하여 있다. 스반버자이트는 Fig. 1의 D에서와 같이 납석과 자형으로 겹쳐져 잘 나타나는데, 경계부에서 거정질 엽편상의 납석이 스반버자이트에 의해 {010}벽개에 평행하거나 {100}에 수직인 방향으로 잘려있고 스반버자이트는 매끄러운 경

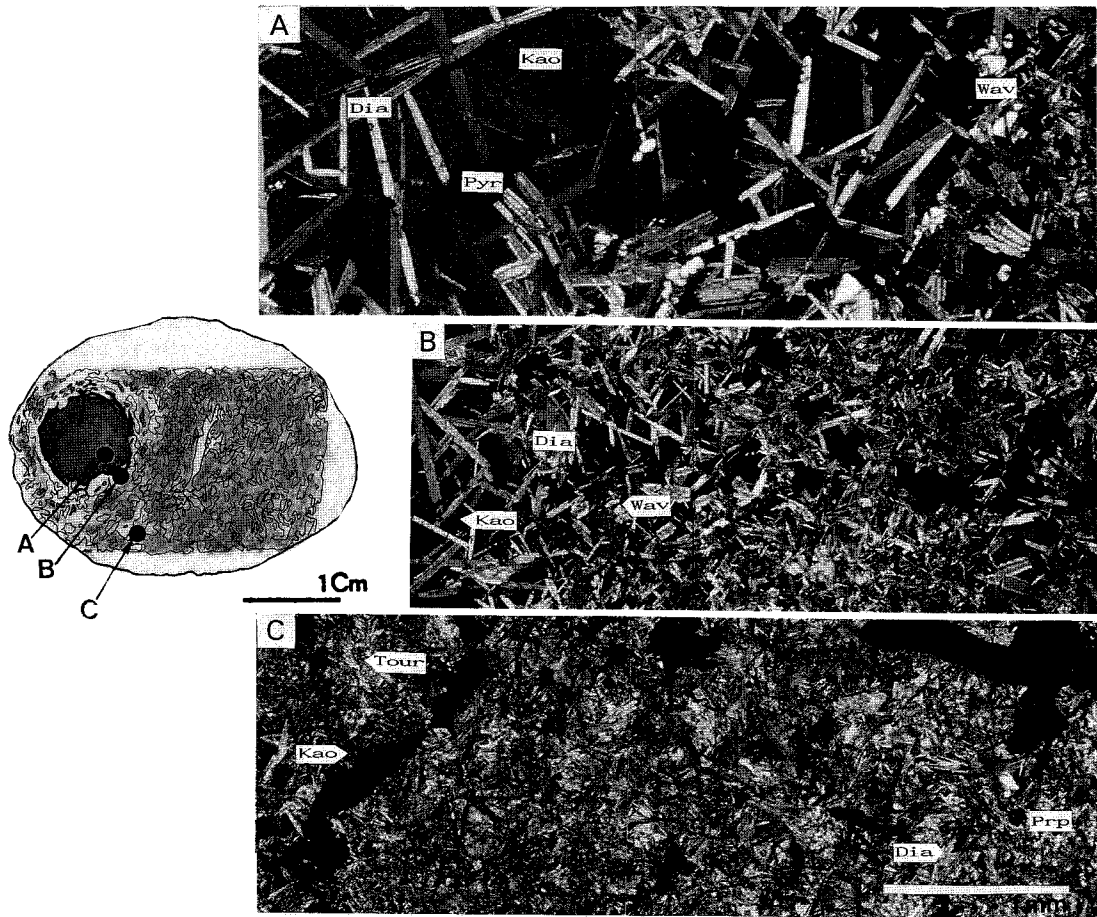


Fig. 3. Sketch of polished section of diaspore nodule N6 and photomicrographs of the marked portion as shown in the left side. A; The central part of diaspore nodule. The coarse-grained platy diaspore is developed within the fine-grained kaolinite aggregates with wavellite and pyrite which are secondary minerals. B; Diffused band appears as a black massive halo consisting of disseminated medium-size grained diaspores. C; The marginal part of diaspore nodule shows fine-grained diaspore, kaolinite, pyrophyllite, tourmaline and pyrite. Abbreviation: Dia; diaspore, Kao; kaolinite, Pyr; pyrite, Wav; wavellite, Tour; tourmaline, and Prp; pyrophyllite.

계면을 갖는다. 이들의 관계로 볼 때 기존의 납석으로부터 스반버자이트가 성장하고 있음이 확인된다.

다리아스포어 단괴의 조직적 특징

밀양광산의 다리아스포어 단괴에는 일반적으로 다리아스포어가 자형으로 신장 배열하여 있고 기질부에는 카올리나이트, 납석, 전기석 등이 분포한다. 다리아스포어 단괴 가운데에는 간혹 특징적으로 동심원상의 확산띠가 크게 발달해 있다 (Fig. 3). 대표적인 단괴 시료 (N6) 의 단면도는 Fig. 3과 같으며, 이 그림의 A부분은 동심원 대상형태의 안쪽 중심부에 해당한다. 이 부분은 거의 다리아스포어,

카올리나이트로 구성되어 있고 소량의 황철석, 웨이블라이트, 전기석이 관찰된다. 중앙에는 미립의 카올리나이트의 집합체가 존재하며 이와 더불어 다리아스포어가 긴 판상으로 크게 성장하며 서로 교차하여 신장 배열하고 있다. 다리아스포어의 입자크기는 1 mm 내외로 확산띠를 기준으로 하여 외곽부로 가면서 결정들은 작아진다. 또한 다리아스포어 결정은 웨이블라이트가 성장하면서 절단되어 있고, 전기석으로 성장하기도 하며, 황철석에 의해서도 끊겨 나타난다.

Fig. 3의 B는 확산띠의 바깥쪽 가장자리로서, 확산띠를 구성하는 다리아스포어가 집합체를 이루며 분포한다. 다리아스포어의 결정크기는 0.2~0.3 mm로 중심부보다 작

아지나 다이아스포어의 입자들의 빈도수는 증가하며 카올리나이트의 빈도수는 적어진다. 광물조성을 살펴보면 다이아스포어가 주구성광물이고 카올리나이트, 황철석, 전기석 등이 소량 존재한다.

단괴의 가장자리로 가면서 다이아스포어는 입자크기가 크게 작아질 뿐만 아니라 빈도수도 낮아지고, 기질부는 카올리나이트와 납석으로 구성되는데 단괴의 외곽쪽으로 가면서 카올리나이트보다 납석이 주류를 이룬다 (Fig. 3, C). 또한 전기석과 웨이블라이트가 소량 분포한다.

전기석이나 웨이블라이트는 단괴 내에 고루 분포하는데 이러한 광물들은 현미경하에서 다이아스포어를 끊고 성장하는 것이 확인되므로 다이아스포어가 형성된 이후에 형성된 것으로 생각된다.

화학조성

밀양광상에서 채취한 다이아스포어 단괴 시료 (N17, N 21) 와 납석 단괴 시료 (N4, N13) 의 화학분석 결과는 Table 3과 같다. 이들 단괴시료와 본 광상의 각 변질대 사이에 대표적인 주원소 평균함량의 변화를 알아보기 위하여 이를 도시하였다 (Fig. 4). Al_2O_3 의 함량은 다이아스포어 단괴와 납석 단괴가 각각 56.9, 66.3 wt.%와 31.56, 32.62 wt.%로서 이들 단괴가 분포하는 납석대의 평균 Al_2O_3 함량인 24.30 wt.% (이강원 외, 1993) 보다 상당히 높은 함량을 갖는다. 그리고 작열감량 (ignition loss)의 함량도 각각 17.6, 18.0 wt.%와 8.96, 9.44 wt.%로서 납석대나 다른 변질대에 비해 높은 값을 갖는다. 다이아스포어 단괴의 조성은 주구성광물인 다이아스포어의 Al_2O_3 85%, H_2O 15% 함량에 의해 이들 성분이 큰 영향을 받은 것으로 해석되고, 납석 단괴의 경우는 대부분 납석으로 구성되어 다이아스포어 단괴에 비해 Al_2O_3 , 작열감량의 함량이 낮지만 납석광체에 비해서는 전체적으로 높은 Al_2O_3 , 작열감량을 보인다. 또한 SiO_2 함량은 다이아스포어 단괴에서 12.7, 22.8 wt.%로 변화폭이 크나 납석광체에 비하여 매우 낮게 나타나며, 납석 단괴에서는 56.48, 56.27 wt.%로 납석광체보다 약간 낮은 값을 갖는다. 다이아스포어 단괴에서 이와같이 SiO_2 값이 낮은 이유는 다이아스포어에는 SiO_2 가 거의 함유되어 있지 않을 뿐만 아니라 단괴 내에 석영이 존재하지 않고 규산염광물이 소량 존재하기 때문이다. 단괴에서 Fe_2O_3 , MgO , CaO , Na_2O , K_2O 등의 주원소 함량도 녹니석대, 견운모대, 그리고 납석대 시료 보다 낮은 값을 보인다.

이미 이강원 외 (1993)는 녹니석대, 견운모대, 납석대에서의 주원소 함량에 있어 Fe_2O_3 , MgO , CaO , Na_2O , K_2O ,

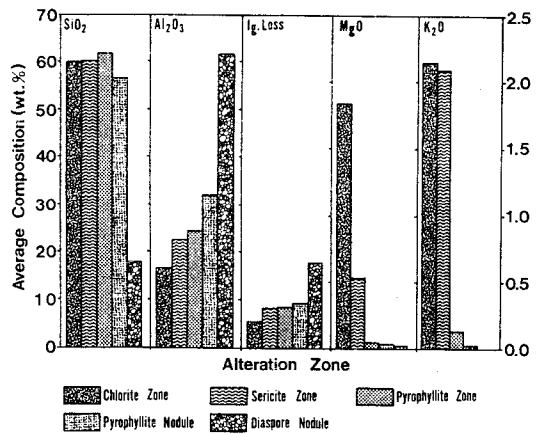


Fig. 4. Variations of average composition of alteration zone and nodules in the Milyang pyrophyllite deposit. SiO_2 , Al_2O_3 , and Ig.Loss is subjected to scales in left side and MgO , K_2O in right side, respectively.

MnO 등의 함량이 감소한다는 사실을 보고한 바 있다. 다이아스포어 단괴는 약한 변질을 받은 암류와 비교해 볼 때 모암의 변질작용시 주로 실리카와 알칼리 그리고 Mg , Ca , Fe 등이 심하게 용탈되었음을 나타낸다. 그리고 다이아스포어 단괴에서 Al 함량이 크게 증가함은 Al 보다 유동성이 더 큰 원소들이 용탈되어 알루미늄이 잔류 농집된 결과로 해석할 수 있다. 외부에서 Al 이 공급되지는 않았다고 생각되지만 변질작용 과정에서 조금이나마 Al 의 이동이 있었을 것이다. 열수가 공급되는 환경하에서 주원소 성분들이 용탈, 제거되는 반응은 공극이나 파쇄대와 같은 통로로 순환하는 유체에 의해 기존의 광물 결정구조가 완전히 또는 부분적으로 파괴되고 이온들이 차별적인 이동을 하게 되어 덜 유동적인 성분들로부터 새로운 광물들이 결정화되는 작용을 수반한다. 이러한 과정에서 Al 이 용액 내로 유입될 가능성을 배제할 수 없고, 따라서 Al 이 풍부한 용액은 국부적으로 다이아스포어 단괴를 생성시키는데 큰 영향을 미쳤을 것으로 생각된다.

단괴의 성인고찰

밀양광상은 녹니석대, 견운모대, 납석대로 구분되며 따라서 본 광상의 납석화작용은 장석의 견운모화작용에 의해 견운모가 형성되고 이 견운모가 납석화되는 변질과정을 거치게 된다 (이강원 외, 1993). $K_2O-SiO_2-Al_2O_3-H_2O$ 계에서 광물들의 상대적인 안정영역은 K^+ 가 광물로부터 용액 내로 빠져나가고 H^+ 가 광물 내로 들어가는 가수분해 반응에 의해 결정된다 (Hemley and Jones, 1964). 이러한

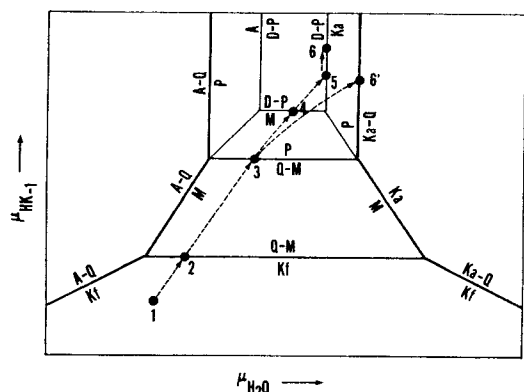


Fig. 5. Schematic isobaric, isothermal μ_{HK-1} - μ_{H_2O} diagram illustrating mineral equilibria in the system $K_2O-SiO_2-Al_2O_3-H_2O$, modified from Burt (1976). Heavy lines indicate mineral stabilities in equilibrium with quartz. Light lines define mineral stabilities for which the activity of SiO_2 is less than unity. Dotted lines represent paths through various stages in the evolution of the hydrothermal fluid, corresponding to mineral assemblages observed in the Milyang pyrophyllite deposit. Abbreviation: A; Andalusite, D; Diaspore, Ka;Kaolinite, M; Muscovite, P; Prophyllite, and Q; Quartz.

$H^+ - K^+$ 이온교환을 수반하는 상평형관계는 $K_2O-SiO_2-Al_2O_3-H_2O$ 계에서 교환자 (exchange operator), HK_{-1} 로 표현이 가능한데, 이러한 관계는 Fig. 5와 같이 압력과 온도가 일정한 $\mu_{HK-1}-\mu_{H_2O}$ 다이어그램으로 도식화된다 (Burt, 1976). Fig. 5는 반응하는 모든 광물의 화학조성이 단종이며 밀양광상에 존재하는 정장석으로부터 반응이 시작된다는 가정이 필요하다. 온도가 올라가면 탈수화되기 때문에 온도가 증가하는 반응은 μ_{H_2O} 가 감소하는 반응과 대응되고, 변질작용이 진행됨에 따라 더욱 산성조건하에서 평형을 이루는 것은, 즉 $\alpha_H + \alpha_K$ 비가 더욱 높아지는 것은 μ_{HK-1} 이 증가함에 대응되기 때문이다.

Bryndzia (1988)의 다이아스포어, 납석 형성 모델을 기초로 하여 밀양광상의 다이아스포어 형성과정을 고찰하였다. 다이아스포어 형성과정을 살펴보면, Fig. 5에서 1의 정장석으로부터 μ_{HK-1} 가 증가하면서 2에서 반응식(1)에 의해 견운모가 형성된 후, μ_{HK-1} 와 μ_{H_2O} 가 계속 증가하면 용액의 성분은 2와 3의 경로를 따라 변하게 된다. 3에서 견운모는 석영과 반응하여 다음과 같은 반응식 (2)에 따라 납석을 형성한다.

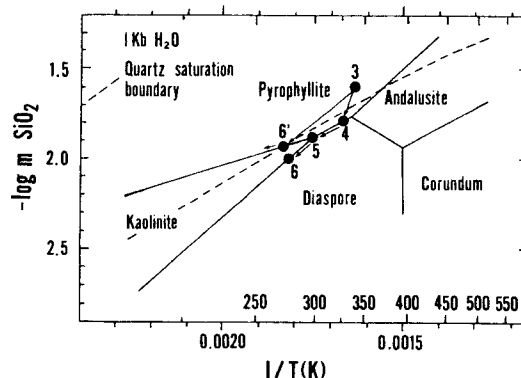
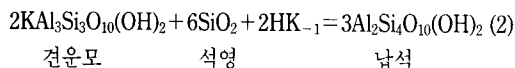
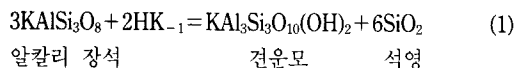
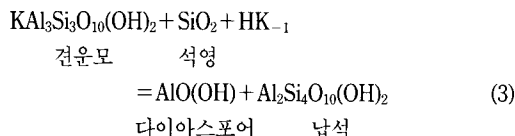


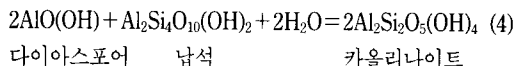
Fig. 6. Stability relationships in the system $Al_2O_3-SiO_2-H_2O$ at 1 kb H_2O , modified from Hemley et al. (1980). Points (3) to (6) or (6') correspond qualitatively with points (3) through (6) or (6') in Fig. 5 and represent various stages in the evolution of the hydrothermal fluid.

Fig. 5에서 굵은 실선은 석영과 평형상태에 있는 광물이 안정함을 가리키고, 가는 실선은 실리카의 활동도가 1보다 낮을 때 광물이 안정함을 나타낸다. 용액의 성분이 3에서 6까지의 반응경로를 따라 변하는 동안 만약 석영으로 포화되어 있다면 그것은 납석이 안정한 영역 내에 있게 된다. 4에서 용액은 다이아스포어 안정영역을 교차하게 되는데 반응식(3)에서처럼 용액이 석영으로 포화되어 있다면 다이아스포어는 준안정하게 형성될 수 있다.



그러나 용액 내에 SiO_2 가 불포화되어 있는 경우, 다이아스포어는 안정하게 형성된다. 이것은 Fig. 6에서처럼 $SiO_2-Al_2O_3-H_2O$ 계에서도 광물들의 안정관계가 설명된다. Fig. 6에 표기된 광화용액의 경로순서는 Fig. 5와 같다. Fig. 6에서 석영포화경계선 약간 아래에서만 납석과 다이아스포어가 모두 형성된다. 따라서 석영이 포화된 납석 안정영역에서는 다이아스포어 단괴에서 관찰되는 자형의 거정질 다이아스포어가 형성되기 어렵다. 또한 다이아스포어 단괴 내에서 견운모나 석영이 산출되지 않으므로 이는 Fig. 5의 상관계와 일치한다.

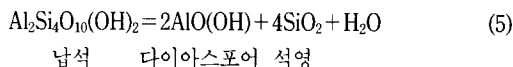
변질작용의 마지막 과정은 Fig. 5, 6에서 광화용액의 온도가 낮아지면서 용액의 성분이 경로 5와 6을 따라 변하여 이루어지는데, 반응식(4)에 의해 5에서 다이아스포어와 납석이 반응하여 카올리나이트가 형성된다.



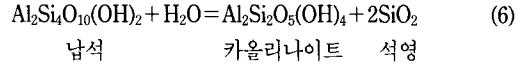
이러한 납석-다이아스포어-카올리나이트의 광물조합은 다이아스포어 단괴에서 관찰된다. 한편 다이아스포어 단괴의 중앙부에는 다이아스포어-카올리나이트의 광물조합을 보이는데 이는 단괴 내에 다이아스포어와 반응하는 납석의 양이 적어 납석이 카올리나이트로 치환된 것으로 생각된다.

그런데 밀양광상에는 다이아스포어 단괴와 납석 단괴가 함께 산출되어 다이아스포어의 형성과 이 두 단괴의 형성을 비교해 볼 필요가 있다. 앞에서 살펴본 바와 같이 다이아스포어 단괴는 석영이 포화된 납석 안정영역에서 다이아스포어가 형성되기 어렵기 때문에 석영이 불포화된 환경에서 형성되었고 납석 단괴는 석영이 포화된 환경에서 견운모와 석영을 치환하며 형성된다. 따라서 같은 시기에 국부적으로 화학적 조건의 차이에 의해 다이아스포어와 납석 단괴가 함께 형성되었을 가능성이 있다. 하지만 두 단괴가 동시에 형성된 것으로 해석하기에는 좁은 공간 내에 상반된 환경이 공존해야 하므로 이를 충족시키기는 어렵다. 즉, 동시에 이 두 단괴가 형성되지는 않았을 것이다.

따라서 이 두 단괴의 형성은 선후관계를 가지고 있어 다이아스포어 단괴에서 납석 단괴로 진행되거나 납석 단괴에서 다이아스포어 단괴로 진행되었을 것이다. 전자의 경우, 납석 단괴에는 카올리나이트와 미립의 석영이 존재하는데 이는 Fig. 5와 6에서 광화용액의 온도가 낮아지면서 경로 5와 6을 따라 다이아스포어와 납석이 반응하여 카올리나이트를 형성한 후, 석영이 포화된 환경에서 석영이 형성된 것으로 해석할 수도 있다. 그러나 다이아스포어 단괴에는 이러한 반응을 일으키기에 충분한 납석이 존재하지 않는다. 또한 다이아스포어 단괴에서 관찰되는 다이아스포어가 단괴 주변의 납석과 반응하여 카올리나이트를 형성한다면 납석 단괴에서도 상당한 양의 카올리나이트가 형성되어야 하지만 실제로 납석 단괴에서 관찰되는 카올리나이트의 양은 현미경하에서 그리고 Fig. 2의 N12 단괴에서처럼 적은 양이 확인될 뿐이다. 그리고 납석 단괴 내에서 다이아스포어가 확인되지 않아 다이아스포어 단괴가 납석 단괴로 진행된 것으로 해석하기에는 문제점이 있다. 한편 후자의 경우에서는 납석 단괴가 반응식(5)와 같이 석영이 불포화된 광화용액에 의해 납석에서 실리카가 용탈되어 다이아스포어를 형성하는 것이 가능하다. 단괴가 분포하는 직상부에 소규모의 은미정질석영이 집합체를 이루고 있어 이를 뒷받침한다.



납석 단괴에서 관찰되는 광물조합을 살펴보면, 납석 단괴의 형성은 Fig. 6에서 보여지는 경로 3→6'로 직접 광화용액의 성분이 바뀌어 카올리나이트가 다음과 같은 반응식(6)을 따라 형성되면서 카올리나이트-석영-납석은 6에서 안정한 광물조합을 이룬다.



따라서 밀양광상에서 산출되는 단괴들이 동일조건하에서 동시에 형성된 것이 아니라 납석 단괴가 다이아스포어 단괴로 진행되었으며 납석 단괴는 다이아스포어 단괴와 다른 경로를 거쳐 형성되었음을 시사한다. 그런데 이러한 광물의 형성이 단괴의 성장과 직접적인 관련을 갖는 증거가 미약하므로 이에 대해서는 앞으로 좀더 자세한 연구가 필요하다.

한편 앞에서 서술한 바와 같이 단괴 내의 전기석과 밀양광상에 분포하는 전기석으로부터 유추한 근원암이 Li이 결핍된 화강암질암류이거나 이와 관련된 페그마타이트, 애플라이트로서 (이강원 외, 1993), 단괴의 형성은 이러한 기원의 열수와 밀접한 관계를 갖는 것으로 추정된다. 단괴 내에는 전기석 뿐만 아니라 인회석, 웨이블라이트 등도 산출되어 이를 뒷받침한다.

토의 및 결론

이와같은 밀양광상의 단괴의 성인은 Bryndzia (1988)가 캐나다의 Foxtrap광상에 적용한 모델을 기초로 한 것이다. Foxtrap광상은 변질을 받지않은 유문암으로부터 견운모-석영대, 납석대가 나타나며 납석광체에 다이아스포어 단괴가 존재하고 변질산물로서 주로 납석, 석영, 견운모와 소량의 카올리나이트가 산출된다 (Papezik and Keats, 1976). 이는 밀양광상과 유사한 변질상상과 광물조성을 보여 앞에서 서술한 단괴의 형성과정이 잘 부합된다.

단괴와 납석광체 내에 전기석, 인회석, 웨이블라이트 등과 같은 산성지시광물 (acid-indicator)이 존재하므로 밀양광상을 형성시킨 광화유체는 인접지역 화강암체의 잔류 마그마 용액에 의해 영향을 받았음을 시사한다. 이러한 광화유체는 인근의 화강암류가 관입하는 동안 또는 그 직후 유입되어 안산암질 응회암을 열수변질시킨 것으로 생각된다 (이강원 외, 1993). 이러한 열수는 HCl, KCl과 같은 성분이 부화되어 있었고 (Eugster, 1985), 냉각되는 동안 이 성분들이 해리되면서 (Hemley et al., 1980; Eugster, 1985) 열수의 $\alpha_{\text{H}^+}/\alpha_{\text{K}^+}$ 비, 즉 $\mu_{\text{HK}-1}$ 이 증가하게 되어 강한 열수변질작용을 일으키게 된 것이다.

밀양광상에서 산출되는 단괴는 납석광체 내에 단층선을 따라 분포한다. 초기에 $\mu_{\text{HK-1}}$ 이 증가하면서 정상적으로부터 견운모가 형성되었고 이와 함께 $\mu_{\text{H}_2\text{O}}$ 의 증가에 의해 납석은 견운모로부터 변질되어 납석이 형성될 당시 단괴가 형성된 것으로 생각된다. 이후 납석 단괴는 Fig. 5와 6에서 온도가 점점 낮아지면서 경로 3→6'로 광화용액의 성분이 바뀌어 납석-카올리나이트-석영의 광물조합을 이루었다. 다이아스포어 단괴는 확산띠를 중심으로 외곽부에서는 다이아스포어-납석-카올리나이트, 안쪽으로는 다이아스포어-카올리나이트의 광물조합을 갖는다. 다이아스포어 단괴는 납석이 형성된 후 납석 단괴가 석영이 불포화된 광화용액에 의해 Fig. 5와 6에서 4에서 5를 거치는 동안 다이아스포어-납석-카올리나이트의 광물조합을 이루고 온도가 더 낮아지면서 6에서 다이아스포어-카올리나이트 광물조합을 이룬다. 주변지역 화강암류가 천부관입이므로 이로부터 추정된 압력이 <1 kb라고할 때, 단괴 구성광물의 상평형관계로 유추한 생성온도는 약 275~340°C 범위에 해당된다.

사 사

본 연구는 과학재단의 연구비 지원에 의하여 "경상분지내 요업원료 광물의 광물학적 특성 및 생성연구"의 일환으로 수행되었으며, 부분적으로 연구비를 지원해준 전라광물자원 연구센터에 감사를 드린다.

참고문헌

김규봉, 황상구 (1988) 밀양도폭 지질보고서. 한국동력자원연구소.
 김상욱, 이재영, 김영기, 고인석 (1991) 남부 유천 소분지에 분포하는 백악기 화산암류의 암석학적 특징. 지질학회지, 27

권, p. 24-39.
 문희수, 정승우, 송윤구, 박영석 (1991) 전남 해남지역 해남납석광상의 변질작용 및 생성환경. 광산지질, 24권, p.83-96.
 상기남 (1986) 한반도 남부지역 고령토-납석광상 생성기구. 광산지질, 19권, p. 43-52.
 오대균, 전효택, 민경원 (1992) 경남 밀양지역 납석광산과 안산암질 모암의 지구화학적 연구. 광산지질, 25권, p. 27-39.
 이강원, 문희수, 송윤구, 김인준 (1993) 밀양 납석광상의 모암 변질작용과 생성환경. 광산지질, 26권, p. 289-309.
 장기홍 (1977) 경상분지 상부 중생계의 층서퇴적 및 지구조. 지질학회지, 13권, p. 76-90.
 홍승호, 최범영 (1988) 유천도폭 지질보고서. 한국동력자원연구소.
 홍영국 (1985) 한국 동남부에 분포하는 백악기 안양 및 유천 화강암의 지화학적 연구. 지질학회지, 21권, p. 90-108.
 Burt, D. M. (1976) Hydrolysis equilibria in the system $\text{K}_2\text{O}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2-\text{H}_2\text{O}-\text{Cl}_2\text{O}$: Comments on topology. Econ. Geol., v. 71, p. 665-671.
 Bryndzia, L. T. (1988) The origin of diaspore and pyrophyllite in the Foxtrap pyrophyllite deposit, Avalon peninsula, Newfoundland: A reinterpretation. Econ. Geol., v. 83, p. 450-453.
 Eugater, H. P. (1985) Granites and hydrothermal ore deposits: A geochemical framework. Minralog. Mag., v. 49, p. 7-23.
 Hemley, J. and Jones, W. R. (1964) Chemical aspects of hydrothermal alteration with emphasis on hydrogen metasomatism. Econ. Geol., v. 59, p. 538-569.
 Hemley, J. J., Montoya, J. W., Marinenko, J. W. and Luce, R. W. (1980) Equilibria in the system $\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2-\text{H}_2\text{O}$ and some general implication for alteration/mineralization processes. Econ. Geol., v. 75, p. 210-228.
 Henry, D. J. and Guidotti, C. V. (1985) Tourmaline as a petrogenetic indicator mineral: An example from the staurolite-grade metapelites of NW Maine. Am. Mineral., v. 70, p. 1-15.
 Papezik, V. S. and Keats, H. F. (1976) Diaspore in a pyrophyllite deposit on the avalon peninsula, Newfoundland. Can. Miner., v. 14, p. 442-449.

