

## 밀양 납석광상의 모암변질작용과 생성환경

이강원\* · 문희수\* · 송윤구\* · 김인준\*

### Wall Rock Alteration and Genetic Environment of the Milyang Pyrophyllite Deposit

Kangwon Lee\*, Hi-Soo Moon\*, Yungoo Song\* and In Joon Kim\*

**ABSTRACT:** Milyang pyrophyllite deposit which was formed by hydrothermal alteration occurs in Late Cretaceous andesitic tuff in the Milyang area, Gyeongsangnamdo. The wall rock alteration and genesis of the Milyang pyrophyllite deposit were studied.

The ore minerals are composed dominantly of pyrophyllite accompanied by small amounts of quartz, kaolinite, pyrite, dumortierite and diaspore. The alteration halo of this deposit can be divided into three zones on the basis of mineral assemblage; pyrophyllite, sericite and chlorite zone. The common mineral assemblages of each alteration zone are as follows: (1) pyrophyllite zone; pyrophyllite-quartz-kaolinite-pyrite-dumortierite-diaspore, (2) sericite zone; sericite-quartz-pyrite-kaolinite, and (3) chlorite zone; chlorite-plagioclase-quartz.

Major element chemistry shows that characteristic depletion in MgO, CaO, and Na<sub>2</sub>O and relative increase in FeO from less altered chlorite zone to extensively altered pyrophyllite zone corresponding to variation in mineral assemblages. The paragenesis of ore minerals, oxygen isotope data, chlorite and illite geothermometry suggest that ore deposit was formed at about 250~330°C. Both hydrogen and silica activities are high in pyrophyllite zone. Potassium activity increases in sericite zone while hydrogen activity becomes low in chlorite zone. The pyrophyllite zone was formed relatively higher temperature than those of sericite and chlorite zones. The ore fluid was considered to be magmatic water in origin derived from the residual granitic magma which interacted with meteoric water.

## 서 언

우리나라의 납석광상은 경상누층군 중 화산암류가 넓게 분포하는 경상남북도 지역의 밀양, 김해, 월성, 청송 등지와 전남 서남부의 해남, 진도, 완도, 다도지역에 밀집되어 있다. 이곳에 분포하고 있는 납석광상들은 대체로 유문암질 내지 안산암질 응회암 또는 화산암류를 모암으로 하여 형성되어 있다.

경상남도 밀양지역에는 백악기 말 (64~75 Ma) 수 회에 걸친 화산활동에 의해 (Min et al., 1982) 분출된 화산암류가 넓게 분포하고 있으며, 이들과 인접하여 후기에 관입한 화강암류 (68~75.5 Ma)가 분포하고 있다 (Lee, 1980; Jin et al., 1981).

밀양지역의 납석광상들에 대한 연구로는 광물 및 광상학적 연구 (상기남, 1986, 1992; 김종환, 고상모, 1990), 지구화학적 특성에 관한 연구 (정영욱, 전효택, 1989; 오

대균 외, 1992; 오대균, 1993, 전효택 외, 1991) 등이 있다. 밀양지역의 납석광상들은 열수변질작용에 의하여 형성된 것으로 화산암류인 안산암 및 유문암과 화산성 퇴적암류인 응회암에 배태되어 있다. 또한 이러한 납석광상을 형성시킨 열수변질작용은 화강암류의 관입과 관련된 것으로 보고되어 있다 (상기남, 1986, 1992; 오대균, 1993). 밀양 납석광상과 관련된 연구는 주로 지구화학적인 특성에 관한 것이었다.

본 연구에서는 밀양 납석광상에서 산출되는 광물의 생성관계와 변질양상을 밝히고, 지화학적 연구 결과를 종합하여 광상의 성인을 고찰하였다.

## 지질개요

밀양지역은 후기 백악기 화산암류가 넓게 분포되어 있다. 장기홍 (1977)에 의해 경상분지는 하부로부터 신동층군, 하양층군, 유천층군으로 나뉘었으며 밀양지역은 백악기 말에 분출된 유천층군의 화산암류와 후기 화강암류로 분

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

포되어 있다. 유천층군의 화산암류는 하부의 주사산 안산암질암류와 이를 정합적으로 피복하는 상부의 운문사 유문암질암류로 구분된다 (김상욱, 1982; 김상욱 외, 1991). 주사산 안산암질암류는 비현정질 안산암, 밀양 안산암, 정각산층, 범도리 안산암으로 구성되고, 운문사 유문암질암류는 석영 안산암, 유문암질 용결응회암, 유문암 등으로 구성된다 (김규봉, 황상구, 1988; 홍승호, 최범영, 1988). 유천층군을 관입한 화강암류들은 화강섬록암에서 흑운모 화강암에 이르는 분화상을 보이며 밀양광상 동쪽에 광범위하게 분포하고 있다. 이 화강암류는 I-type, Calc-alkaline 계열 (김상욱, 1982; 홍영국, 1985)이고, 이들의 관입연대는 이윤종과 Ueda (1976)의 흑운모를 이용한 K-Ar 연령이 72 Ma이고, Jin and Choo (1980)의 Rb-Sr 연령은 75.5 Ma로 보고되어 있다.

본 연구 대상인 밀양 남석광상의 주변지질로는 주사산 안산암질암류가 분포하는데, 홍승호와 최범영 (1988)이 기재한 본 광상 주변의 비현정질 안산암은 밀양 안산암과 비교해 볼 때 부분적으로 사장석 반정이 결핍되어 나타날 뿐이고 전체적으로 밀양 안산암과의 뚜렷한 경계가 보이지

않으므로 이들을 하나의 층으로 분류하여 밀양 안산암이라 하였다. 밀양 남석광상을 포함한 본 조사지역 서편은 비현정질 안산암 보다는 안산암질 응회암류가 주된 분포를 보이고 있기 때문에 이를 하나의 층으로 분류하여 안산암질 응회암으로 하였고, 집피암 역시 밀양 안산암을 피복하며 놓여 있어 따로 분류하였다. 이상의 야외관찰을 바탕으로한 본 광상 주변의 지질을 Fig. 1에 도시하였다.

밀양광상 주변에 분포하는 암류만을 살펴보면 안산암질 응회암은 밀양 남석광상의 서측 지역에 대상으로 크게 분포하고 있으며 밀양 안산암에 의해 정합적으로 피복된다. 본 층은 밀양광상을 배태하며 주향과 경사는 N10°~30°W, 20°~30°NE로, 분포지역 북측보다는 밀양광상 쪽으로 오면서 주향이 좀더 서측으로 돌아가고 경사는 거의 일정하다. 일반적으로 심한 변질을 받아 암갈색~담갈색을 띠며 나타난다. 본 층의 비교적 신선한 노두 (A2와 C100)에 대한 주원소분석 결과, SiO<sub>2</sub>와 Na<sub>2</sub>O+K<sub>2</sub>O는 평균값으로 각각 60.26, 5.52 wt.%로서 (Table 2), 이는 Le Bas et al. (1986)의 화산암 분류에서 안산암의 화학조성을 나타낸다. 하부에서 응회암질 사암과 래필리 응회암이 호

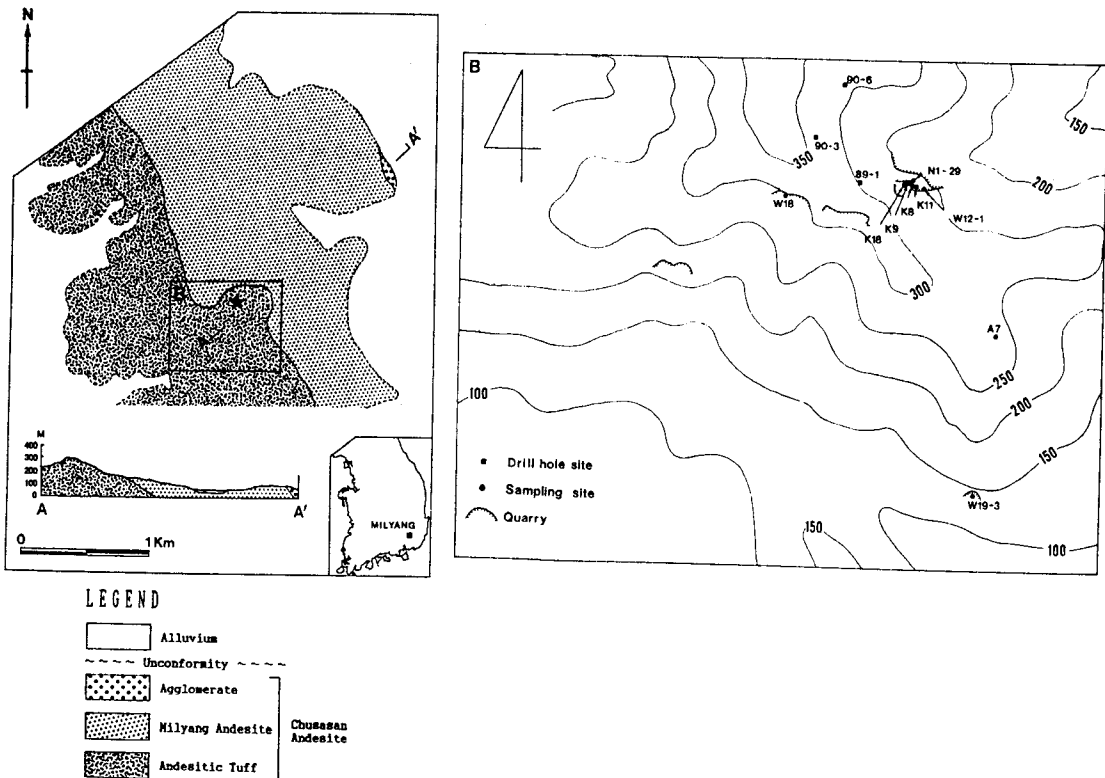


Fig. 1. Geological map of the Milyang pyrophyllite deposit showing sampling sites.

Table 1. Mineral assemblages in each altered zone from the Milyang mine.

Zone	Sample No.	Predominant mineral	Other Minerals
Chlorite	C301	Pl	Qz, Chl, Epi, Horn
	C303	Pl	Qz, Chl, Epi
	C309	Pl	Qz, Chl, Seri, Epi, Tou
	C311	Pl	Qz, Chl, Seri, Epi, Tou
	C312	Pl	Qz, Chl, Epi
	C313	Pl	Qz, Chl, Seri, Epi, Tou
	C314	Qz	Chl, Tou
	C100	Qz	Chl, Seri
	C115	Qz	Chl, Prp, Seri, Pyr
	C116	Qz	Kao, Chl, Seri, Pyr
	C122	Chl	Prp, Qz, Pyr, Tou
	C123	Qz	Chl, Seri
	Serilite	C327	Prp
C330		Seri	Prp, Seri, Pyr
C102		Prp	Seri, Qz, Kao, Chl
C113		Prp	Seri, Pyr, Kao
C114		Seri	Prp, Kao, Qz, Chl
Pyrophyllite	C316	Prp	Kao, Pyr, Tou
	C324	Prp	Qz, Pyt
	C325	Prp	Qz, Pyr, Kao
	C103	Prp	Kao
	C105	Prp	Kao
	C106	Qz	Prp
	C107	Prp	Kao, Qz, Pyr
	C109	Prp	Kao, Pyr
	C119	Prp	Du, Kao
	* Nodule M17	Dia	Kao, Pyr
	* Nodule M21	Dia	Kao, Pyr

Abbreviation: Pl; plagioclase, Qz; quartz, Chl; chlorite, Epi; epidote, Horn; hornblende, Seri; sericite, Tou; tourmaline, Pyr; pyrite, Kao; kaolinite, Prp; pyrophyllite, Du; dumortierite, and Dia; diaspore.

층을 이루며 나타나나, 일반적으로 래펠리 응회암이 대부분을 차지하고 있고, 안산암 수매가 1~2 m 두께를 갖고 이에 협재되어 나타난다. 서남측 하부에서 나타나는 회질 응회암은 암회색 내지 담갈색을 띠며 소규모로 나타나고 층리의 발달이 불량하다.

밀양 안산암은 광상 동측에 분포하는데, 안산암질 응회암과 정합적 관계로 평행하게 대상으로 나타난다. 본 층은 야외에서 녹색, 녹회색 또는 자주색을 띠며, 주상절리를 보이기도 한다. 동측부에서 부분적으로 사장석 반정을 갖지 않거나 사장석 반정의 양이 적게 나타나기도 하고 국부적으로 다량의 각력을 포함하는데, 이러한 각력들 역시 반정질 안산암인 밀양 안산암이다. 대부분의 반정은 사장석이고 이들 사장석은 변질을 받아 부분적으로 견운모화 되거나 녹염석화 되어 있다. 소량으로 산출되는 각

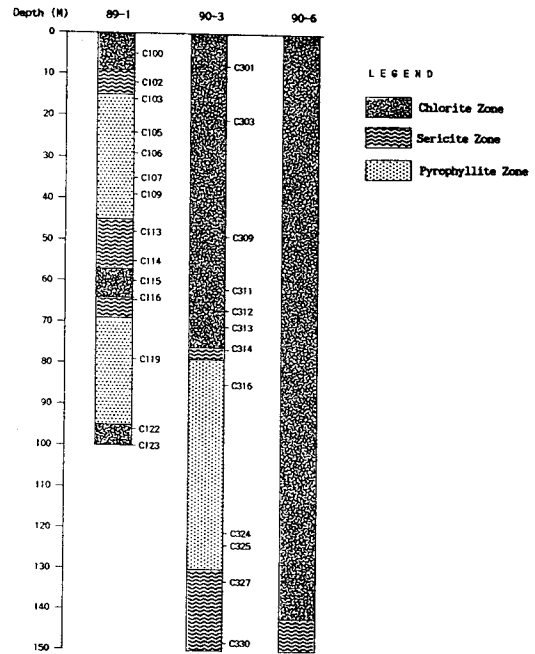


Fig. 2. Schematic columnar sections of drill holes (89-1, 90-3 and 90-6) showing sampling horizons.

섬석, 휘석과 흑운모 등은 거의 녹니석화 되거나 녹염석화 되어 가상을 보이며, 철산화물이 벽개나 반정돌레를 코팅하여 나타난다. 그 밖의 소량의 인회석과 스피넬 등이 나타난다. 석기는 미세한 장식반정, 유리질, 녹니석 및 철산화물 등의 비현정질 물질로 구성된다.

### 시료 및 연구방법

본 연구는 밀양 납석 광상을 주대상으로하여 광체 노두와 광체 주변지역의 변질대에서 20개의 시료를 채취하였고 (Fig. 2), 다이아스포어의 산출상태, 광물 공생관계 및 생성기구를 고찰하기 위해 다이아스포어 단괴와 이들 단괴를 포함하는 시료 29개를 채취하였다. 또한 주향방향과의 연장선상에 있는 3개의 시추코어 (89-1, 90-3, 90-6)에서 광물조성에 따른 수직적 변질양상과 성인해석을 위해 26개의 시료를 채취하였다 (Fig. 3). 광체노두 및 광상 하부 점토채굴적에서 채취한 시료와 인근 광상에서 채취한 시료 중 산소 및 수소 동위원소분석을 위해 납석, 카올리나이트와 석영을, 그리고 황 동위원소분석을 위해 황철석을 채취하였다.

채취된 시료들에 대해서는 현미경 관찰을 위해 박편을 만들었고, X-선 회절분석과 화학분석을 위해 실온 (25°C)

에서 건조시킨 후, 200 mesh 이하의 분말로 만들었다. 또한 7개의 시료에 대해서는 200 mesh 이하의 분말시료를 초음파 분쇄기를 이용하여 10초간 3회씩 분산시킨 후, Stoke의 법칙에 의해 2  $\mu$ m 이하의 정제시료를 만들어 산소 및 수소 동위원소분석 및 화학분석에 이용하였다.

황 동위원소분석을 위해 황철석의 경우 시료에서 직접 수선 분리하거나 중액을 사용하여 분리한 후, 분리된 황철석의 표면에 붙은 불순물은 초음파 분쇄기를 이용하여 제거하였으며, 실제 현미경 하에서 불순물 제거가 확인된 광물만을 분석에 이용하였다.

X-선 회절분석은 MAC Science사의 회절분석기를 사용하였다. 가속전압 및 전류는 40 Kv/20 mA의 조건으로 Cu target, Ni filter와 흑연-모노크로메터를 사용하여 분석하였다. 광석광물과 수반광물들의 화학조성과 조성변화를 알아보기 위해 JEOL사 JCSA-733 model의 EPMA를 사용하였다. 분석조건은 가속전압 15 Kv, 전류  $1.5 \times 10^{-8}$  A, beam 직경 10  $\mu$ m, 측정시간은 120초이다. 자연산 광물을 표준물질로 사용하였는데 각 원소에 사용된 광물은 Si 및 Ca는 휘석, Ti는 금홍석, Al와 Fe는 알만딘, Mg는 감람석, Mn은 장미휘석, Na는 알바이트, K는 새니딘이고, Bence and Albee (1968)의 방법에 의해 보정하였다.

화학분석은 영국의 런던대학교에 의뢰하여 ICP 법으로 전암시료 32개와 정제시료 3개, 다이아스포어 단괴 2개에 대해 주원소 및 미량원소를 분석하였고, 전암시료 11개, 정제시료 1개, 다이아스포어 단괴 1개에 대해서 REE를 분석하였다.

중국 광상지질연구소에 의뢰하여 산소 및 수소, 황 동위원소분석을 실시하였다. 밀양광상의 2개의 석영시료에 대해서는 산소에 대해, 1개의 납석과 3개의 카올리나이트 시료에 대해서는 산소 및 수소에 대해, 그리고 1개의 황철석에 대해서는 황 동위원소분석을 실시하였다. 그리고 인근 송진, 무연, 대전광상의 석영, 견운모, 카올리나이트, 납석, 황철석, 명반석시료 13개에 대하여 산소 및 수소, 황 동위원소분석을 실시하였다.

### 광상의 산출상태 및 광물조성

본 연구대상인 밀양 납석광상은 밀양지역에 분포하는 납석광상들 중 대표적인 납석광상으로 주로 안산암질 응회암이 열수변질을 받아 형성되었으며, 현재 납석만을 개발하고 있다. 납석광체는 응회암의 층리를 따라 불규칙한 형태로 배태되어 있고, 맥폭은 10~30 m 내외, 연장은 200 m 정도 확인되며, 월 1,000톤 정도의 납석을 생산하고 있다.

노천채굴 중인 광체는 안산암질 응회암의 주향방향과 동일한 방향으로 형성되어 있는데, 단층면을 따라 광화작용이 잘 진행된 고품위의 광체는 연하늘색 내지 담녹색으로 이미 항내채굴로 채진된 상태이다. 동일층준에 평행하게 발달한 납석광체는 담회색, 담황색 또는 담녹색을 띠며 발달한다. 일부 광체구간에서는 납석화 작용 결과, 래필리나 래필리 내의 반정들이 가상으로만 남은 채 거의 납석으로 치환되어 나타난다. 열수이동에 따른 용탈작용에 의해 다공질 양상이 나타나고, 열수작용에 의해 형성된 일부 황철석들이 방향성을 보이며 농집되어 있음이 관찰되기도 한다.

열수의 통로로 생각되는 구조선을 따라 다이아스포어 단괴가 밀집되어 분포한다. 다이아스포어 단괴의 크기는 작은 것은 1 cm에서 큰 것은 15 cm에 이른다. 다이아스포어 단괴는 일반적으로 타원형으로 생겼으며, 절단면은 간혹 다이아스포어나 불투명광물, 비형정질 물질 등으로 이루어진 크고 작은 동심원상의 조직을 보인다. 다이아스포어의 입자 크기는 일반적으로 0.5 mm 내외이다. 구조선을 따라 일정한 층준에 청색, 담청색 또는 보라색의 듀머티라이트가 수반된다.

납석광체 탐광을 위하여 굴진된 89-1, 90-3, 90-6 시추공으로부터 확인된 산출상은 다음과 같다. 각 시추공의 위치는 Fig. 1에, 이들의 주상도는 Fig. 2에 도시하였다.

89-1 시추공에서는 15~45 m 구간과 70~95 m 구간에서 납석광체가 확인된다. 상부의 밀양 안산암은 심한 변질을 받아 탈색되어 담회색의 색깔을 띠고, 하위의 광체로 점이적으로 이화된다. 유백색 내지 담갈색 또는 담녹색의 색깔을 띠는 광체구간은 변질정도가 심해 원암의 조직을 보기가 어렵다. 일반적으로 카올리나이트와 미립의 석영 집합체가 수반되고 황철석은 산점상 또는 미세 열극을 따라 농집되어 분포한다. 광체의 하부구간은 현미경하에서 암편들이 잔존하여 그 모습을 유지하고 있거나 가상으로 남아 주로 납석으로 치환된 것을 관찰할 수 있으며, 견운모가 증가된다. 57~64 m 구간은 연두색~담녹색을 띠는데 녹니석의 농집에 기인한다. 녹니석은 석영 세맥에 수반되어 부채꼴의 자형으로 잘 성장하여 나타난다. 69 m까지 다시 견운모의 양이 많아진다. 59~70 m 구간에서도 2~4 mm 정도의 암편들이 잔류구조를 보인다. 이 구간의 하부 납석광체 (70~95 m)에는 상부의 광체보다 황철석의 양이 많아진다.

90-3 시추공은 80 m에서 130 m까지가 광체구간이다. 67 m까지 밀양 안산암이 나타나고 86 m까지는 래필리 응회암이 존재하며 그 이하로 회절 응회암이 광체구간을 이루고 141~148 m까지는 다시 래필리 응회암이 나타난다

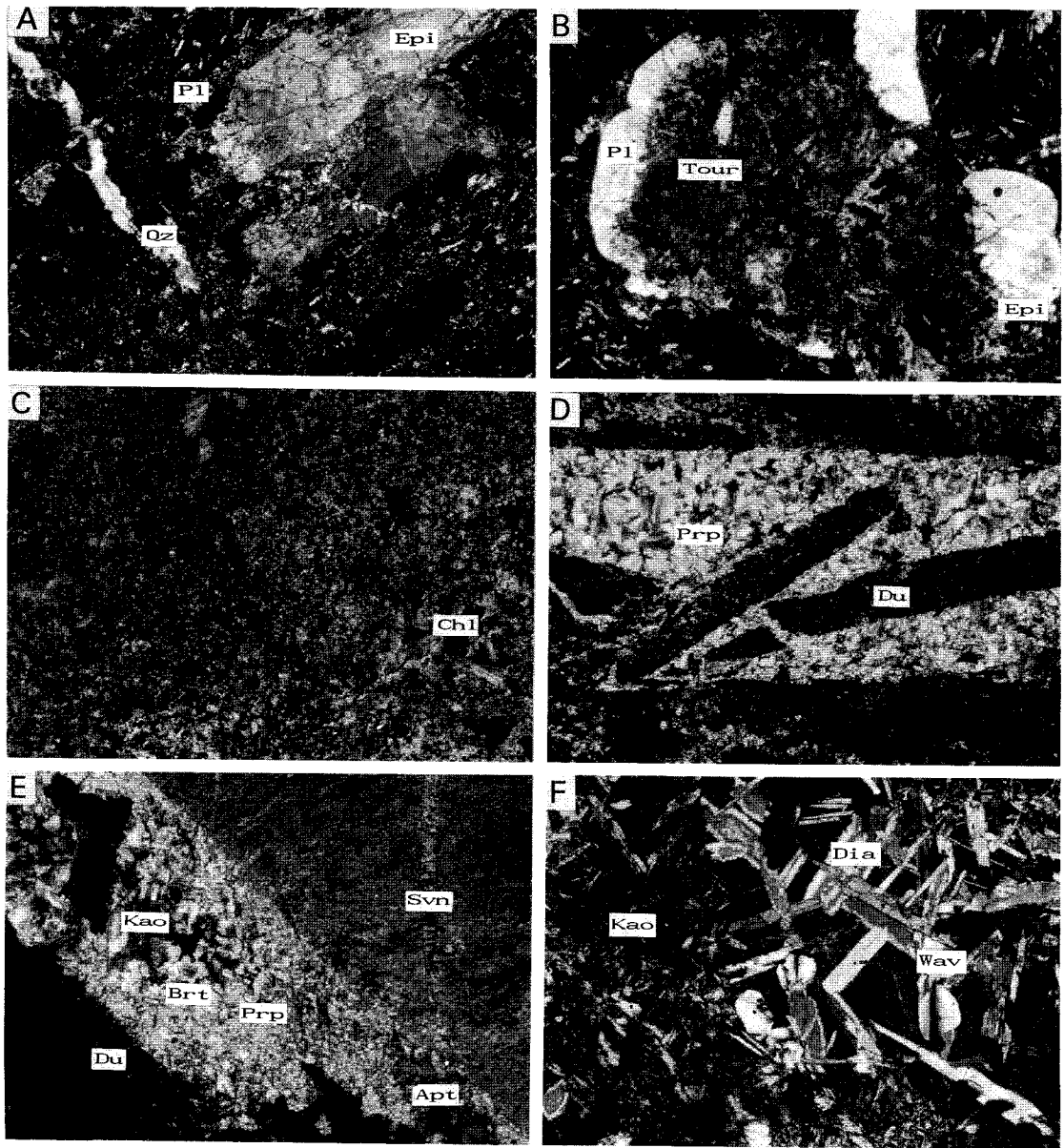


Fig. 3. Photomicrographs of altered samples from the Milyang deposit. A; epidotes, replacing plagioclase near micro quartz vein, B; plagioclase replaced by tourmalines and epidotes, C; authigenic chlorites growing as radial form, and disseminated pyrites in chlorites zone, D; aggregates of fine-grained dumortierite developed in coarse-grained pyrophyllite, E; apatite, vanbergite, dumortierite, and barite developed in massive pyrophyllite, and F; wavelites appears as radial form and growth diaspores and kaolinite matrix. Abbreviation: Pl; plagioclase, Epi; epidote, Qz; quartz, Tour; tourmaline, Chl; chlorite, Prp; pyrophyllite, Du; dumortierite, Kao; kaolinite, Svn; vanbergite, Apt; apatite, Brt; barite, Dia; diaspore, and Wav; wavelite.

(Fig. 2). 시추코어 상부에 위치하는 밀양 안산암은 변질 정도에 따라 녹색에서 담녹색을 띠고 최하위에서는 담회색을 나타낸다. 일반적으로 녹염석화, 녹니석화 되어 연녹색을 띤다. 녹염석은 주로 사장석 반정 위에 이차적으로

잘 성장해 있거나 특히, 석영 세맥 주위에 있는 장석 반정을 치환하여 크게 성장하여 있다 (Fig. 3, A). 소량의 각섬석이나 휘석은 녹니석이나 녹염석으로 치환되어 녹니석, 녹염석화되어 있다. 사장석 반정들의 대부분은 부

분적으로 건운모화되어 있으며, 석기는 대부분 녹니석화되거나 일부는 녹염석화 되어 있다. 이러한 경향은 하부로 갈수록 (48 m 이하) 뚜렷해지고, 부채꼴의 자형으로 잘 성장된 녹니석이 나타난다 (Fig. 3, C). 또한 녹니석은 녹염석과 함께 집합체로 나타나고, 장석 내에 전기석 또는 건운모와 함께 나타난다. 전기석은 석영 세맥을 따라 침상으로 또는 방사상으로 나타난다. 70~80 m 구간에서 전기석은 크게 성장하여 (1~1.5 mm) 사장석 반정을 치환하여 집합체나 엽편상으로 관찰된다 (Fig. 3, B).

밀양 안산암 내에 나타나는 사장석 반정들은 일반적으로 andesine, oligoclase, albite로 나타난다. 석영 세맥 주위에 위치하여 열수에 영향을 받은 장석들은 깊이에 상관없이 대부분 albite 조성을 보인다.

80 m 이하 광체구간에는 주로 납석이 주구성광물이고 카올리나이트, 석영, 황철석은 부구성광물로 존재한다. 카올리나이트는 납석광체 구간에서 대체로 납석과 함께 공존하고 건운모가 나오는 곳에서는 카올리나이트의 양이 상대적으로 낮다. 불규칙한 형태의 듀머티어라이트가 농집되어 산출되기도 하는데, 이들은 일반적으로 방사상으로 크게 자라있거나 작은 미립의 집합체로서 나타난다. 거정질의 엽편상, 방사상, rosette type의 납석은 미립의 집합체로 존재하는 기존의 납석이나 듀머티어라이트를 맥상으로 절단하며 나타난다 (Fig. 3, D). 또한 카올리나이트 주변부로 납석이 잘 성장한 것이 관찰된다.

스반버자이트 (svanbergite 또는 harttite), 중정석, 인회석은 광체 내에 납석맥을 따라 소량으로 나타난다 (Fig. 3, E). 납석을 치환하며 스반버자이트가 성장하는 것이 확인되며, 중정석과 인회석 역시 자형으로 성장되어 나타난다.

90-6 시추공에서는 150 m까지 굴진되었으나 광체가 발달되지 않으며 50 m까지 밀양 안산암이 나타나고 그 하부로는 래필리 응회암이 나타난다.

## 변질대

채취한 시료들에 대한 육안관찰, 현미경 관찰 및 X-선 회절분석 결과 (Table 1)를 근거로 하여 열수작용에 의해 형성된 변질대를 그 변질정도와 광물조합을 중심으로 하여 구분하였다. 밀양광상에서 나타나는 변질대는 광체를 중심으로하여 납석대, 건운모대, 녹니석대로 크게 나뉘어진다 (Fig. 4).

납석대는 납석-카올리나이트-석영-황철석-다리아스포어-듀머티어라이트 광물조합을 갖고, 건운모대는 건운모-납석-석영-황철석의 광물조합을, 녹니석대는 녹니석-장

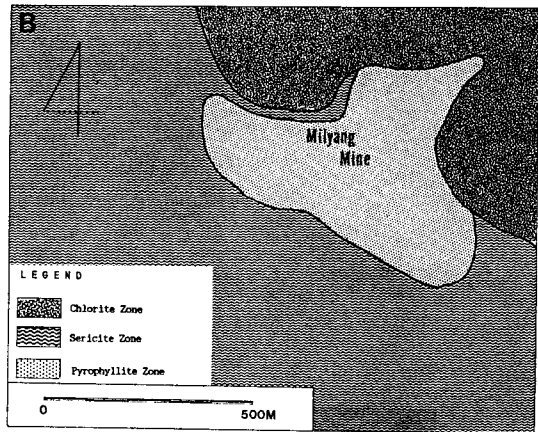


Fig. 4. Alteration zoning map of the adjacent area of the Milyang pyrophyllite deposit.

석-석영-녹염석 등의 광물조합을 갖는다.

## 납석대

본 대는 열수에 의한 변질작용이 가장 활발히 일어난 중심지역으로, 래필리 응회암과 회질 응회암이 납석대를 형성하고 있으며 간혹 래필리 응회암의 조직이 잔존하여 나타나지만 심한 변질작용에 의해 원래의 모습은 알아보기 어렵다. 하지만 현미경하에서 장석반정을 세립질 또는 거정질의 납석이 치환해 있는 모습을 확인할 수 있으며, 기질부는 거의 납석에 의해 교대되어 나타난다.

납석대에 해당하는 구간은 유백색, 담회색, 담녹색, 담황색을, 그리고 듀머티어라이트에 의해 청색, 담청색, 보라색을 띤다. 주로 납석으로 이루어져 있으며 부구성광물로는 카올리나이트, 석영, 황철석, 다리아스포어, 듀머티어라이트 등이 수반되고 소량의 전기석이 산출되고, 이제까지 국내의 다른 광상에서 보고되지 않은 스반버자이트와 웨이블라이트가 나타난다. 일부 시료에서는 납석과의 관계가 명확하게 나타나는 바, 납석이 스반버자이트로 진행되는 것이 관찰된다. 웨이블라이트는 일반적으로 동심원상이나 부채꼴의 집합체로 나타나고, 다리아스포어로부터 성장하고 있음이 관찰된다.

납석대는 열수의 주된 통로로 생각되어지는데 특히 단층면을 따라 다리아스포어 단괴와 듀머티어라이트가 집중적으로 분포한다. 또한 황철석은 납석광체에 산점상으로 존재하거나, 단층선이나 파쇄대를 중심으로 2차적으로 침전되어 나타난다.

납석대 내에는 다리아스포어 단괴가 제한된 범위에 집중적으로 분포하는데 다리아스포어는 일반적으로 단괴

내부에 분포한다. 다이아스포어는 미립의 카올리나이트 기질 위에 크게 성장하여 나타나는데 (Fig. 3, F), 카올리나이트가 납석화 되어 있는 것으로 볼 때 다이아스포어가 다시 납석으로 진행된 것으로 생각된다. 만약 납석에서 다이아스포어로 진행되었다면, 잉여 실리카 (excess silica)가 다이아스포어 단괴 내에 조금이라도 존재하여야 하는데, 다이아스포어가 존재하는 단괴 내에 석영은 거의 존재하지 않는 것으로 볼 때 다이아스포어가 납석화 된 것을 유추할 수 있다. 듀머티어라이트도 간혹 세맥상으로 농집되어 나타나지만 다이아스포어 단괴와 마찬가지로 특정 층위를 중심으로 하여 제한된 범위를 갖고 산출된다.

**견운모대**

견운모대는 광체의 외곽부에 분포되어 있으며, 납석대와 마찬가지로 래필리 응회암과 회질 응회암이 대부분을 차지하고, 일부 견운모대는 밀양 안산암에서도 형성되어 있다. 본 대에서 나타나는 암석은 담회색, 유백색, 담갈색 및 갈색을 띤다.

시추코어에서 확인된 광체구간의 상·하위에 놓이는 견운모대는 납석이 포함되어 있지만, 주구성광물은 견운모로서 그 밖에 석영, 황철석 등이 수반되어 나타난다.

현미경하에서 압편대에 존재하는 장석 가상의 내부는 거의 세립질의 견운모로 치환되어 나타난다. 또한 황철석 둘레로 견운모가 성장하여 분포하며, 기질부도 세립질의 견운모로 교대되어 있으며 세립질의 석영 집합체가 산포되어 있다. 황철석은 납석대에서 보다는 적게 나타나는데 산점상으로 분포한다.

**녹니석대**

녹니석대는 주로 밀양안산암에 분포하고 일부는 89-1 시추코어에서 처럼 광체구간 사이에 존재하는데 그 일부는 자생의 녹니석이 농집되어 나타나기 때문이다. 이들은 녹색, 담녹색, 녹회색, 자색 및 담회색을 띤다. 녹니석대는 견운모대 바깥쪽인 변질대 최외각부에 위치하는데 광체 동남쪽에서는 납석대와 경계를 이루기도 한다. 녹니석대는 주로 사장석, 석영, 녹니석, 녹염석으로 이루어져 있고 소량의 전기석, 견운모, 방해석 등이 포함된다. 사장석의 중심부는 견운모화 되어 있거나 녹염석이 변질산물로 존재하고 견운모대와 접촉하는 경계부나 미세 석영맥 주변부에서 알바이트화 되어 나타난다.

시추코어 90-3과 90-6의 시료를 현미경 하에서 관찰해보면 녹니석대의 상부에서 하부로 내려갈수록 녹니석과

전기석이 많이 나타나고, 또한 자형으로 크게 성장하여 있다. 녹니석, 전기석, 녹염석 등은 특히 석영 세맥 등 상대적으로 열수 공급이 있었던 부분에서 분포빈도가 높고 입자가 상대적으로 커진다.

**변질암의 지화학**

**주원소**

화학분석 결과는 Table 2와 같다. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 함량은 변질대 가운데 견운모대나 납석대를 제외하고는 14.6~19.7 wt.%의 범위로 비교적 일정하게 나타난다. Al은 일반적으로 주원소 가운데 변성, 숙성작용 및 풍화작용에 안정한 비유동성 원소이므로, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>가 심한 유동성을 보이지 않는다고 가정하여, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>에 대한 각 성분들의 상대적인 함량에 따른 각 원소들의 거동을 알아보기 위해 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 대 다른 주원소의 변화를 도시하였다 (Fig. 5).

SiO<sub>2</sub>와 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>의 함량비를 살펴보면 녹니석대와 견운모대 및 납석대의 열수변질의 변질대별 변화는 뚜렷하게 구분되지 않는다. SiO<sub>2</sub>함량은 녹니석대, 견운모대가 50.0~67.2 wt.%로 비슷하게 나타나고 납석대는 44.6~85.6 wt.%의 범위로 폭넓게 분포한다. 2 m 이하로 입도분리된 시료 (이하 정제시료)는 SiO<sub>2</sub>가 60.7~64.9 wt.%로 비교적 일정하게 나타난다. 납석대의 일부시료(C107)의 SiO<sub>2</sub>함량이 높게 나타나는 것은 점토광물에 비해 미립의 석영이 많이 포함되어 있기 때문이고, 상대적으로 SiO<sub>2</sub>함량이 낮은 W 12-1, C316은 듀머티어라이트, 카올리나이트의 영향에 의한 것이다.

Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, MnO, MgO, CaO, Na<sub>2</sub>O는 녹니석대, 견운모대 및 납석대로 광화작용이 진행되면서 뚜렷하게 그 함량이 감소하는 양상을 나타낸다 (Fig. 5, B~E). Fe는 녹니석대에서 녹니석, 녹염석, 황철석, 전기석, 철산화물 등에 포함되고 견운모대 및 납석대에서는 황철석에 의해서 고정된다 (Fig. 5, B). 녹니석대에서 Mg는 녹니석, 전기석 등에 함유되고 Ca는 녹염석, 사장석과 소량의 방해석에, Na는 사장석에 포함되어 있다.

K<sub>2</sub>O의 함량은 녹니석대와 견운모대가 0.47~4.09 wt.%로 비슷하게 나타나고 납석대는 0.00~0.43 wt.%로 낮게 나타난다. 이는 녹니석대에서 장석의 견운모화에 기인한 것이며 견운모대에서는 견운모에 K가 고정되어 있기 때문이다. TiO<sub>2</sub>와 P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>는 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>에 대해 별다른 상관관계를 보이지 않는다. 작열감량의 함량은 녹니석대에 비해 견운모대와 납석대가 높은데, 이는 열수변질작용이 진행됨에 따라 변질대별로 (OH)<sup>-</sup>를 갖는 견운모, 카올린, 납석 등

Table 2. The concentrations of major (wt.%) and trace elements (ppm) in the altered rocks of Milyang pyrophyllite deposit.

Sample	JA-2					JA-3													Chlorite Zone									
	M	S	M	S	S	C100	C115	C116	C122	C123	C301	C303	C309	C311-I	C312	C313	C314	A2	C300									
SiO <sub>2</sub>	55.68	56.18	61.62	62.26	63.89	62.96	51.61	62.51	64.31	61.54	62.20	64.84	61.66	60.98	54.26	51.83	56.62	67.88										
TiO <sub>2</sub>	0.67	0.67	0.70	0.68	0.73	0.78	0.90	1.12	1.031	0.70	0.731	0.69	0.781	0.76	0.75	0.66	0.89	0.43										
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	15.78	15.32	16.38	15.57	16.48	14.76	14.62	18.13	16.86	16.24	16.46	15.60	17.64	17.05	17.37	16.50	16.16	15.79										
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> *	6.46	6.13	6.86	6.59	5.69	9.99	14.96	8.11	10.31	5.81	5.51	6.65	4.61	5.46	12.79	16.25	6.34	3.49										
MnO	0.12	0.11	0.11	0.11	0.07	0.13	0.03	0.07	0.10	0.10	0.07	0.07	0.08	0.10	0.15	0.21	0.10	0.07										
MgO	7.89	7.68	3.95	3.65	1.65	2.34	1.05	1.10	1.65	1.93	2.01	1.08	0.89	2.34	1.97	2.06	3.58	0.96										
CaO	6.23	6.48	6.25	6.28	1.42	0.75	0.97	1.25	1.13	5.54	3.51	2.27	4.74	6.91	4.42	5.84	6.31	1.80										
Na <sub>2</sub> O	3.18	3.08	3.40	3.17	2.24	0.26	0.22	0.57	0.49	3.27	4.17	4.12	3.09	3.72	3.78	3.01	3.19	4.84										
K <sub>2</sub> O	1.83	1.78	1.50	1.43	3.45	0.82	1.27	2.38	1.71	2.91	2.73	2.62	3.22	0.47	1.08	0.17	2.16	4.09										
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.19	0.15	0.17	0.11	0.20	0.29	0.52	0.44	0.38	0.21	0.21	0.20	0.22	0.25	0.23	0.23	0.27	0.12										
Ig.Loss	2.51	2.47	1.54	0.31	4.14	8.75	12.46	4.92	4.04	4.03	4.03	3.80	4.79	3.54	4.73	4.52	5.13	3.40										
Total	100.54	100.05	102.48	100.15	99.96	101.83	98.61	100.60	102.01	102.28	101.63	101.94	101.72	101.58	101.53	101.28	100.75	102.87										
Ba	309	317	329	318	502	1126	801	1325	113	882	689	832	1039	839	156	421	1008	583										
Co	29	30	21	21	17	15	12	49	7	5	14	17	12	11	17	25	13	25										
Cr	368	465	67	67.5	71	109	54	47	123	7	47	49	56	82	64	56	54	123										
Cu	32	28.6	45	45.3	17	44	67	146	6	9	25	36	8	9	4	52	29	43										
Li	31	29	16	14	69	49	34	5	74	25	47	80	46	39	69	80	54	42										
Nb	8	10	4	3	8	9	7	8	4	8	7	7	6	8	8	8	8	6										
Ni	140	142	36	36	44	65	34	78	18	5	22	26	26	22	30	80	37	132										
Sc	20	19	21	15	13	24	16	18	19	10	14	15	13	14	14	11	18	24										
Sr	249	252	296	294	253	1152	725	511	910	355	762	627	393	487	737	654	1393	1356										
V	125	130	169	172	94	210	157	170	251	31	119	122	94	117	111	145	165	211										
Y	19	18	24	22	18	25	23	14	32	34	18	18	20	19	19	20	17	17										
Zn	62	63	69	68	45	104	234	13	24	62	57	50	28	31	47	54	32	248										
Zr	143	119	115	123	211	260	281	289	186	284	206	189	217	224	210	245	271	175										

M; Measured sample and S; Standard sample. \*Fe as total Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.



Table 2. Continued.

Sample No.	Sericite Zone										Pyrophyllite Zone									
	C102	C113	C114	C327	C330	W18	C103	C105	C106	C107	C119	C316	C324	C325	A7	W12-1				
SiO <sub>2</sub>	66.28	60.61	57.46	50.05	56.831	67.211	69.88	60.68	56.11	85.63	68.84	44.641	64.76	65.901	55.85	51.27				
TiO <sub>2</sub>	0.861	1.10	1.22	1.55	0.99	1.11	1.36	0.61	0.75	0.97	0.93	1.28	1.23	1.06	1.13	0.02				
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	18.74	22.82	20.79	32.90	18.59	20.40	16.96	26.88	30.80	8.43	18.99	33.92	23.46	14.21	26.94	38.57				
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> *	5.65	6.60	8.09	2.22	6.44	3.25	4.04	1.89	0.59	0.33	3.37	7.31	3.31	9.83	5.64	0.37				
MnO	0.02	0.01	0.02	0.00	0.05	0.03	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00				
MgO	0.54	0.26	0.70	0.15	1.21	0.29	0.06	0.02	0.02	0.01	0.03	0.11	0.05	0.04	0.08	0.03				
CaO	0.28	0.38	0.86	0.55	2.83	0.26	0.08	0.03	0.06	0.06	0.21	0.30	0.31	0.47	0.12	0.01				
Na <sub>2</sub> O	0.28	0.29	0.54	0.55	0.51	0.40	0.08	0.11	0.26	0.03	0.08	0.49	0.13	0.07	0.61	0.10				
K <sub>2</sub> O	1.26	1.31	2.78	2.99	2.44	1.76	0.00	0.01	0.23	0.01	0.04	0.43	0.371	0.01	0.19	0.02				
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.16	0.18	0.31	0.25	0.33	0.32	0.36	0.29	0.53	0.29	0.14	0.14	0.15	0.24	0.39	0.04				
Ig.Loss	4.71	7.69	9.30	10.38	10.96	6.33	5.86	6.83	8.74	2.71	8.11	12.48	8.16	9.77	10.47	9.20				
Total	98.78	101.25	102.07	101.59	101.18	101.36	98.68	97.35	98.09	98.47	100.74	101.11	101.93	101.60	101.42	99.63				
Ba	530	958	1022	31	1441	570	1080	79	961	4648	752	71	481	144	550	27				
Co	5	21	5	5	12	20	6	5	1	1	71	25	2	1	181	5				
Cr	74	145	126	103	168	57	49	81	84	42	106	63	117	180	39	46				
Cu	10	46	19	30	12	7	41	11	3	31	68	10	4	7	40	6				
Li	23	21	28	6	164	77	9	19	46	2	34	81	713	12	42	42				
Nb	9	8	8	6	11	6	14	5	6	6	7	8	13	6	8	1				
Ni	35	74	27	15	29	21	13	18	5	5	140	49	9	8	30	16				
Sc	12	35	39	18	26	29	11	9	13	7	18	13	19	38	15	6				
Sr	1100	892	876	127	2702	425	2221	3079	6041	2728	671	804	988	351	855	3860				
V	134	245	269	357	207	248	241	174	202	178	172	132	217	293	151	109				
Y	25	39	48	10	27	26	10	3	6	4	20	21	13	32	21	1				
Zn	81	23	26	11	11	119	11	8	8	6	138	75	16	12	76	9				
Zr	344	254	179	216	242	146	478	189	96	256	173	204	379	202	187	39				

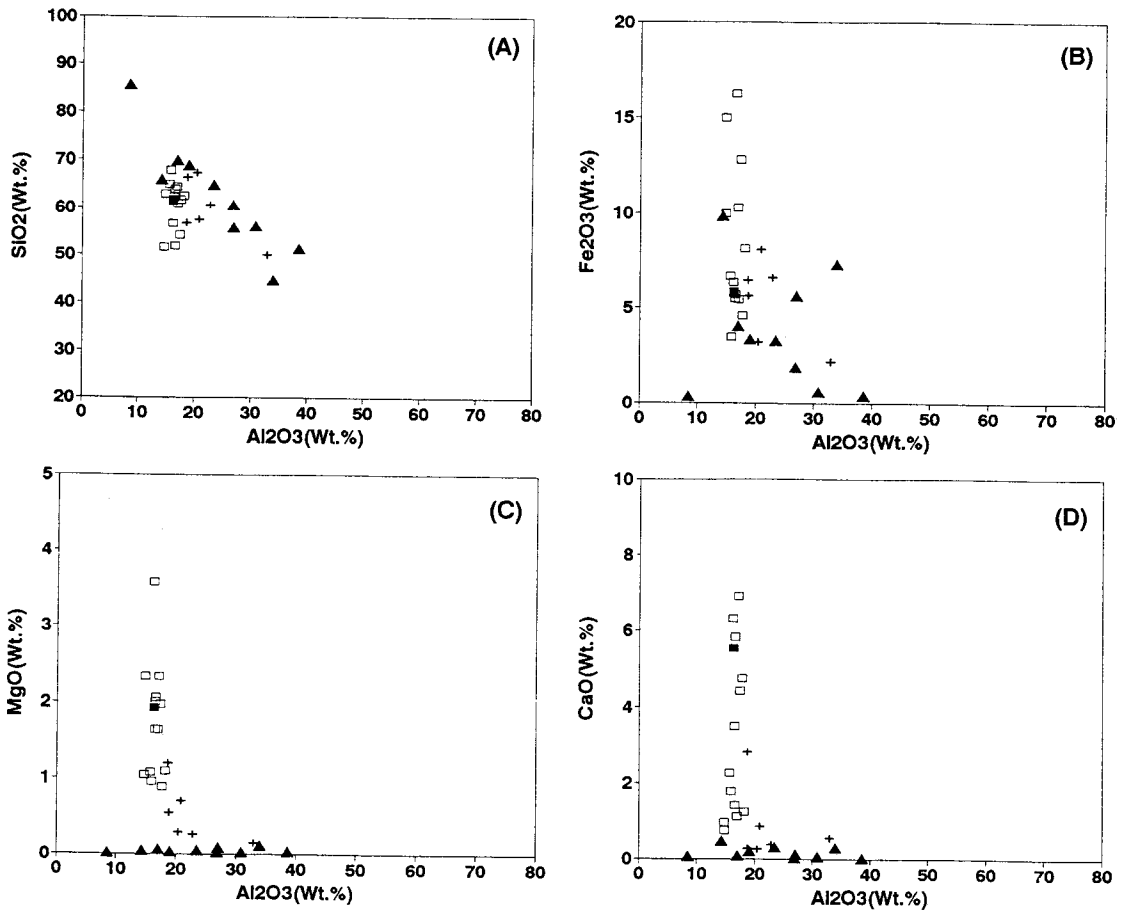


Fig. 5. Oxides vs.  $Al_2O_3$  variation diagrams of altered rocks in the Milyang pyrophyllite deposit. Open rectangle; chlorite zone, cross; sericite zone, solid triangle; pyrophyllite zone, and solid rectangle; less altered rock(C301).

함수광물의 생성이 증가한 결과이다.

그런데 분석된 결과 그 자료 자체만으로는 각 변질대에서 일어난 변질작용을 체계적으로 설명하기 어렵다. 따라서 비교적 안정한 주원소인  $Al_2O_3$ 의 함량이 변질작용을 받기 이전의 모암의 함량과 같다는 가정하에, 가장 변질을 덜 받은 C301시료의  $Al_2O_3$  함량을 기준으로 재계산한 후 각 변질대별 평균값으로, 각 변질대에서 나타나는 각 성분들의 함량의 증감 현상을 고찰(변질작용 이전과 이후의 부피변화를 고려하지 않음) 하였다 (Fig. 6). Fig. 6은 녹니석대로부터 건운모대, 납석대로 진행함에 따른 주원소 함량의 변화를 간결하게 보여준다. 납석대로 가면서  $Fe_2O_3$ ,  $MgO$ ,  $CaO$ ,  $Na_2O$ ,  $K_2O$ ,  $MnO$  등의 주원소 함량이 감소함은 이미 앞에서 언급한 대로 각 변질대의 광물조성을 반영한다.  $SiO_2$  성분은 건운모대와 납석대에서 약간 감소하다가 다이아스포어 단피에서는 큰 폭으로 감소하는데,

이는 건운모대에서의 건운모, 납석대에서의 납석 그리고 다이아스포어 단피에서의 다이아스포어의  $SiO_2$  함량이 변질대에 영향을 미치지 때문이다 (다이아스포어 단피의 분석자료는 인용하지 않았음). 그런데 녹니석대로부터 납석대로 변질작용이 심해짐에 따라  $(OH)^-$ 를 갖는 점토광물의 증가로 작열 감량은 증가하여야 하지만 납석대, 다이아스포어 단피에서 낮아진다. 이는 매우 중요한 시사를 하는 것으로서 변질작용시  $Al_2O_3$  함량의 변화가 있음을 즉,  $Al_2O_3$ 가 유동적이었음을 나타낸다 (다이아스포어 분석자료는 인용하지 않았음).

유동성 원소들 ( $CaO$ ,  $Na_2O$ ,  $FeO$  및  $MgO$ )의 변화 경향은  $FeO-(CaO+Na_2O)-MgO$  도표 (Fig. 7)에 도시하였다. 이 결과 약변질대의 암석으로부터 변질 정도가 증가되는, 즉 녹니석대-건운모대-납석대로 가면서  $FeO/MgO$ 비는 변화가 미약한데 반하여  $(CaO+Na_2O)$ 의 양은 급격한 감소

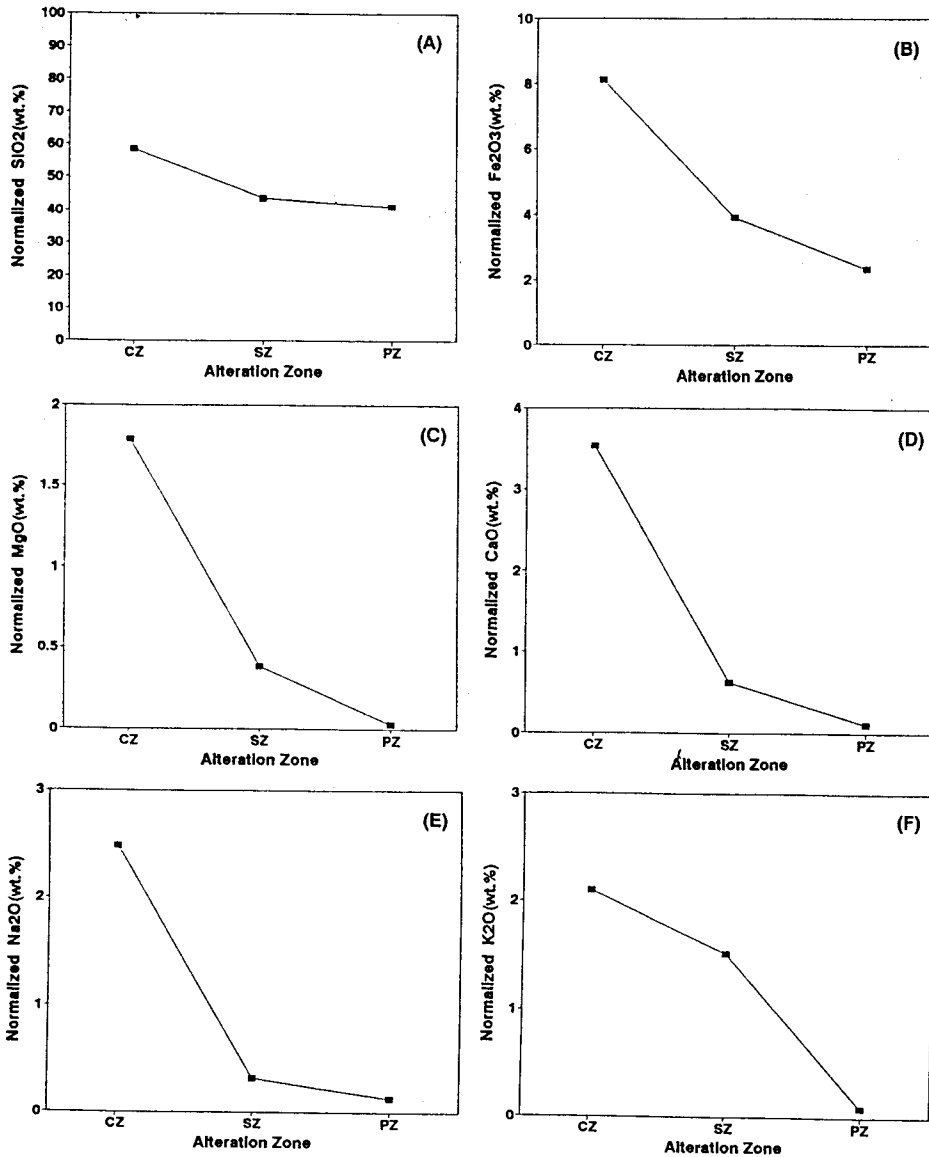


Fig. 6. Variation diagrams for oxides in alteration zones. The oxides have been recalculated by assuming Al have remained constant in altered rocks.

경향을 보이고 있다. 또한 상대적으로 알카리 원소들의 급격한 용탈의 결과 FeO의 상대적인 농집을 반영한 결과이다.

**미량원소**

미량원소를 분석한 결과는 Table 2의 하단에 수록하였다. Ba, Cr, Sr, V, Zr은 7~6041 ppm까지 다소 넓은 범

위의 높은 함량을 갖고, Co, Cu, Li, Zn은 약간의 변동은 있으나 250 ppm 미만의 다소 적은 함량을 보이며 Nb, Sc, Y은 40 ppm 이하의 함량을 나타낸다 (Fig. 8).

Co, Cr, Sc, V는 Mg나 Fe 같은 주원소 성분을 치환하기 쉽다. 특히 Sc과 V는 total Fe와 관련성을 가지는데 (Evan and Landergren, 1974), 본 지역의 변질대 시료를 대상으로 해도 일부 그러한 변화 경향을 보인다. Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, MgO에 대한 Co, Sc는 다소 분산되어 나타나는데 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 함량이

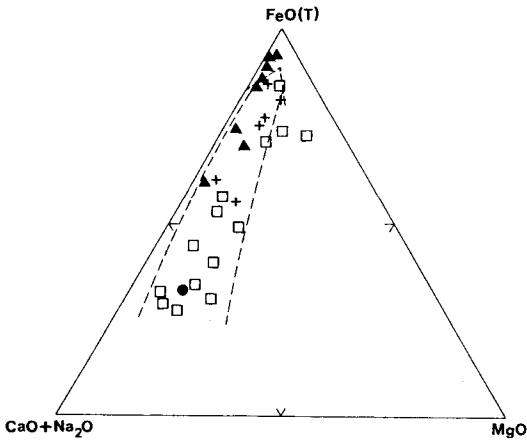


Fig. 7. FeO(total)-(CaO+Na<sub>2</sub>O)-MgO diagram of less altered and altered rocks from the Milyang pyrophyllite deposit. Symbols are the same as those in Fig. 5.

증가함에 따라 Co는 희미하게나마 녹니석대와 견운모대가 납석대보다 증가하는 경향을 보인다 (Fig. 9, A). Sc는 납석대보다 견운모대에서 높게 나타나고 녹니석대는 납석대에서보다 약간 높은 값을 보이는데, Sc, Co는 적철석이나 녹니석, 전기석과 관련되어 어느정도 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>와 MgO의 함량에 상응하는 관계를 나타낸다. Sr, Li, Rb, Co 그리고 Pb는 사장석과 관련되어 나타난다 (Heier, 1962). 특히 Sr은 사장석의 Ca와 치환관계를 갖는데 녹니석대에 나타나는 사장석은 거의 알바이트화 되어 Ca와 직접적인 관련성을 나타내지 않고 Na<sub>2</sub>O함량이 증가함에 따라 약간의 상관관계를 가진다 (Fig. 9, B). Sr은 납석대에서 녹니석대보다 넓은 범위에 놓이는데 이 가운데 함량이 높은 C 105, C106 시료에서는 산점상으로 또는 납석세맥 주위를 따라 화강암 잔류 열수 용액에 남아있던 Sr을 다량 함유하는 스반버자이트가 침전되어있어 이들의 영향을 지시한다 (Fig. 9, B).

Ba는 일반적으로 K와 유사하게 움직이는데, 평균적으로 납석대보다는 견운모대에 높게 나타나고, 녹니석대에서는 약간 감소한다. 납석대와 견운모대에서 크게 분산되는 것은 현미경하에서 중정석이 소량 관찰되어 Ba 함량에 영향을 미친것으로 생각된다 (Fig. 9, C).

Li은 운모류와 각섬석등의 Fe-Mg 자리에 주로 분포하는데 (Horstman, 1957), Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>와 MgO함량이 증가하면서 Li함량이 납석대, 견운모대에서 분산되어 나타나나 대체로 녹니석대로 가면서 증가함을 보인다. 이는 주로 운모류와 녹니석에 의한 영향으로 생각된다. 또한 Li은 사장석과도 관련되므로 Na<sub>2</sub>O함량에 따라 다소 증가하는 양상을 띤다.

Ni도 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 함량이 증가함에 따라 다소 분산되는 경향은

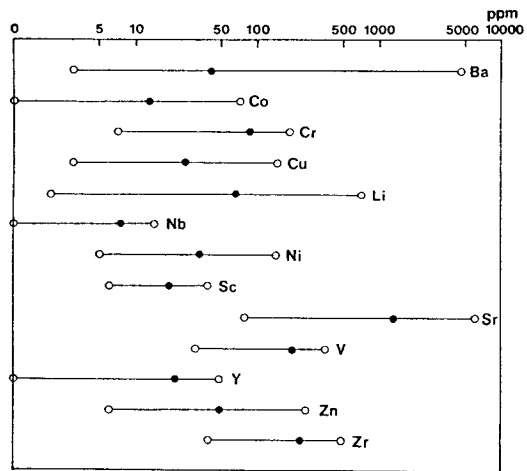


Fig. 8. Concentration range and average value of trace elements from pyrophyllite and associated rocks. Solid circle is average value. Left and right open circle represent minimum and maximum value, respectively.

있지만 녹니석에 연관되어 녹니석대에서 평균적으로 증가하여 나타난다 (Fig. 9, D). Hermann et al. (1974) 에 의하면 Nb, Y, Zr과 Ti 등은 비유동성균의 원소들로 이차적 변질이나 변성작용시 잘 움직이지 않는 것으로 알려져 있는데, 각 변질대에서 거의 유사한 함량을 나타낸다. Valsov (1966)에 의하면 Nb는 주로 Ti을 치환하는데 이들의 관계는 납석대에서 다소 분산되어 나타나며 대체로 TiO<sub>2</sub>함량이 증가함에 따라 Nb 또한 증가함을 보여준다.

### 희토류원소

각 변질대별로 대표적인 7개의 시료와 정제시료, 다이아스포어단괴 각 1개의 시료를 선택하여 REE를 분석하였고, 이를 Nakamura (1974)의 평균 chondrite값을 이용하여 normalization시킨 값을 Table 3에 나타내었다.

비교적 신선한 녹니석대의 시료는 Fig. 10에서 보여주시듯이 대륙 연변부에서 생성된 조산대 안산암류의 분포양상을 보여주고 있다. 견운모대 시료는 다소 부화되어 나타나고, 납석대와 다이아스포어단괴의 시료는 light REE가 다소 낮게 나타난다. 변질대별로 살펴보면 total REE는 녹니석대에서는 124~154 ppm의 범위를 갖고 견운모대에서는 199, 211 ppm으로 약간 증가하며 납석대에서는 56, 114 ppm으로 낮게 나타나는데, 다이아스포어단괴에서는 15.3 ppm으로 극히 낮게 나타난다. Eu/Eu\*비는 녹니석대 시료 뿐만 아니라 다른 시료들도 0.17~0.31의 범위에 놓이는 것으로 보아, 아주 미약한 Eu의 부이상대 (negative

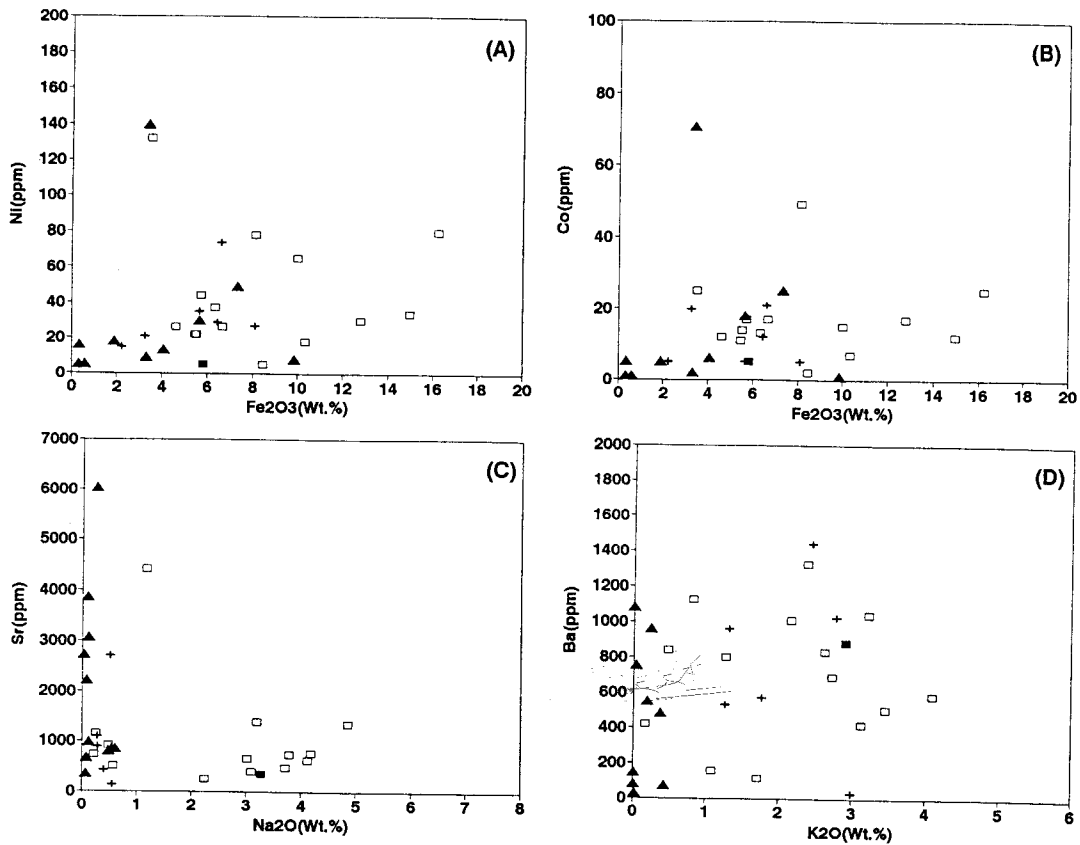


Fig. 9. Variation diagrams of trace elements of altered rocks. Symbols are the same as those in Fig. 5.

Eu anomalies)를 나타낸다. 이는 김상욱 외 (1991), 오대균 (1993) 등에 의한 밀양지역의 안산암질암에 대한 REE 분포와 일치한다.  $(La/Lu)_m$  값은 녹니석대의 10.8~17.1에서 견운모대의 8.7, 15.6으로 약간 감소하고 납석대에서 1.7, 32.5로 분산되어 나타난다.

Heavy REE의 총합량을 보면 견운모대보다 납석대가 낮은 함량을 가지는데 이는 열수활동이 활발했던 납석대에서 HREE가 열수용액에 남아있도록 complex를 만들 수 있는  $Cl^-$ ,  $F^-$  등의 음이온들이 화산성유리질이 탈유리화되면서 방출되어 그 농도가 증가되었기 때문이라고 생각된다(Noble et al., 1976). 또한 산출되는 광물조성을 근거로 광상형성에 기여한 열수는 다량의 잔류 화강암질 마그마 용액을 포함하고 있었기 때문에 HREE를 열수용액에 부화시킬 수 있는 음이온들이 많았을 것이므로 이러한 조건을 형성시키기에 충분하다고 여겨진다.

녹니석대의 시료를 살펴보면 주구성광물 가운데 REE를 함유할 수 있는 순서는 사장석, 흑운모이고(Condie and Lo, 1971) 대부분의 REE는 스피넬, 인회석, 저어콘 등과

같은 accessory mineral에 포함되며, 이들 광물들은 light REE를 농집하는 경향을 나타낸다. 본 대의 시료들은 사장석을 많이 함유하고 있지만 이들의 영향은 미미하고 주로 스피넬이나 인회석에 의한 영향을 반영한다.

견운모대에서는 인회석이 관찰되어 이들이 REE pattern과 크게 관련된 것으로 생각된다. 납석대 시료에서는 이러한 REE concentrator가 관찰되지 않아 전체적으로 각 변질대별로 나타나는 REE들의 분포양상과 일치하고 있다. 그런데, 견운모대와 납석대는 주로 납석, 카올린, 견운모와 같은 점토광물이 주구성광물이므로 이들을 고려하지 않을 수 없다. Roaldset (1975)은 화성암 내의 총상규산염광물들에는 REE가 농집되지 않지만, 풍화작용에 의해서 화성암의 구성광물이 점토광물로 변질되어, REE들이 점토광물의 표면에 흡착되고 이들 source가 가지고 있는 REE를 그대로 간직하거나 평균함량을 나타낸다고 하였다. 만약 견운모, 카올리나이트와 납석이 표면에 REE를 흡착시키는 능력이 비슷하다고 한다면, 층간에 양이온을 함유할 수 있는 견운모가 그렇지 않은 카올리

Table 3. Concentrations (ppm) of REE in the altered rocks of Milyang pyrophyllite deposit.

Sample No.	Chlorite Zone					Sericite Zone			Pyrophyllite Zone		
	C100	C301	C313	A2	Average	C327	W18	Average	C324	A7	Average
La	25.90	29.00	32.80	28.90	29.15	41.40	40.70	41.05	8.30	18.20	13.25
Ce	54.04	58.12	68.65	61.14	60.49	86.29	85.88	86.09	17.03	44.50	30.77
Pr	5.84	6.35	7.19	6.81	6.55	9.64	9.42	9.53	1.91	6.59	4.25
Nd	22.60	24.50	28.80	29.10	26.25	41.10	39.10	40.10	8.60	29.30	18.95
Sm	4.05	4.34	5.07	5.33	4.70	8.21	6.93	7.57	2.04	6.40	4.22
Eu	0.94	1.06	1.28	1.35	1.16	2.30	1.37	1.84	0.67	1.58	1.13
Gd	3.25	3.50	3.98	4.40	3.78	7.60	5.82	6.71	3.79	3.83	3.81
Dy	2.90	3.01	3.23	3.70	3.21	6.43	4.60	5.52	5.53	1.80	3.67
Ho	0.52	0.51	0.55	0.64	0.56	1.12	0.79	0.96	1.01	0.28	0.65
Er	1.59	1.48	1.49	1.80	1.59	3.20	2.12	2.66	3.19	0.62	1.91
Yb	1.51	1.31	1.22	1.56	1.40	2.98	1.71	2.35	2.95	0.40	1.68
Lu	0.25	0.21	0.20	0.26	0.23	0.49	0.27	0.38	0.50	0.06	0.28
Total	123.39	133.39	154.46	144.99	39.058	210.76	198.71	04.735	55.52	113.56	84.54
† C.N.											
La	78.5	87.9	99.4	87.6	88.35	125.5	123.3	124.40	25.2	55.2	40.20
Ce	62.5	67.2	79.4	70.7	69.95	99.8	99.3	99.55	19.7	51.4	35.55
Pr	47.9	52.1	58.9	55.8	53.68	79	77.3	78.15	15.6	54	34.80
Nd	35.9	38.9	45.7	46.2	41.68	65.2	62.1	63.65	13.7	46.5	30.10
Sm	20.6	21.4	25	26.3	23.33	40.4	34.1	37.25	10	31.5	20.75
Eu	12.2	13.8	16.6	17.5	15.03	29.9	17.8	23.85	8.7	20.5	14.60
Gd	11.8	12.7	14.5	16	13.75	27.6	21.2	24.40	13.8	13.9	13.85
Dy	8.5	8.8	9.4	10.8	9.38	18.8	13.5	16.15	16.2	5.3	10.75
Ho	6.8	6.7	7.2	8.4	7.28	14.7	10.4	12.55	13.3	3.7	8.50
Er	7.1	6.6	6.6	8	7.08	14.2	9.4	11.80	14.2	2.7	8.45
Yb	6.9	6	5.5	7.1	6.38	13.5	7.8	10.65	13.4	1.8	7.60
Lu	7.3	6.1	5.8	7.6	6.70	14.4	7.9	11.15	14.7	1.7	8.20
<sup>1</sup> Eu/Eu*	0.26	0.27	0.28	0.28	0.27	0.29	0.21	0.25	0.23	0.31	0.27
(La/Lu) <sub>cn</sub>	10.75	14.41	17.14	11.53	13.19	8.72	15.61	11.16	1.71	32.47	4.90
(La/Sm) <sub>cn</sub>	3.81	4.11	3.98	3.33	3.79	3.11	3.62	3.34	2.52	1.75	1.94
(Gd/Lu) <sub>cn</sub>	1.62	2.08	2.50	2.11	2.05	1.92	2.68	2.19	0.94	8.18	1.69
<sup>2</sup> Tot(Ce)	113.37	123.37	143.79	132.63	128.29	188.94	183.40	186.17	38.55	106.57	72.56
<sup>3</sup> Tot(Y)	10.02	10.02	10.67	12.36	10.77	21.82	15.31	18.57	16.97	6.99	11.98

† Normalized values by Nakamura (1974). 1; Eu\* value obtained at Eu position by interpolation between Sm and Gd. 2; Sum of light REE (La to Eu). 3; Sum of heavy REE (Gd to Lu).

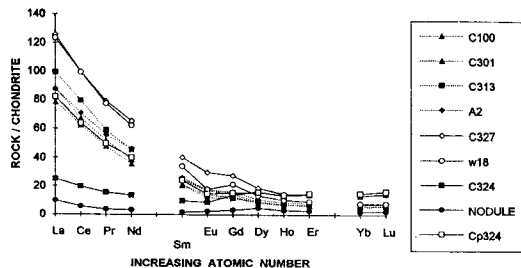


Fig. 10. Chondrite-normalized REE pattern of altered rocks. C100, C301, C313, and A2; chlorite zone, C327 and W18; sericite zone, and C324; pyrophyllite zone.

나이트나 납석보다 REE를 고정시키기에 용이할 것이다.

따라서 납석대보다는 건운모대가 더 부화된 REE를 갖는 것으로 생각할 수 있으나 그 영향은 아주 작다고 생각된다.

안정동위원소 조성

본 연구에서는 밀양광상의 석영, 카올리나이트, 납석과 황철석을 채취하여 산소 및 수소, 황 안정동위원소 분석을 실시하였다 (Table 4). 또한 밀양광상 주변의 승진, 매전, 무연광상들에서도 시료를 채취하여 분석하였다.

밀양광상의 황철석에 대한 황 동위원소 조성값 ( $\delta^34S_{pyrite}$ )은 1.7‰로서 전효택 외 (1991)에 의해 발표된 -3.7 ~ -0.6‰과 안산암질암의 -2.4 ~ -0.9‰보다는 높게 나타

Table 4. Stable isotope values of quartz, kaolinite, pyrophyllite, pyrite, and sericite from the studied area.

Mine	Mineral	SMOW		H <sub>2</sub> O		CDT	T(°C) ΔQz-H <sub>2</sub> O ΔKa-H <sub>2</sub> O	T(°C) ΔQz-Se	T(°C) ΔAlu-Pyr
		δ <sup>18</sup> O (‰)	δD (‰)	δ <sup>18</sup> O <sub>f</sub> (‰)	δD <sub>f</sub> (‰)	δ <sup>34</sup> S (‰)			
<b>Milyang</b>									
K9	Quartz	6.7		-0.7			300		
K18	Quartz	6.4		-1.0			315		
K11	Kaolinite	10.1		7.4			110		
W19-3	Kaolinite	19.1		16.4			25		
W2-1	Kaolinite	17.9	-69	15.2	-54		/35		
K8	Pyrophyllite	4.8	-47						
K11	Pyrite					1.7			
<b>Sungin</b>									
K3	Quartz	7.8		-0.4			275	285	
K1	Sericite	4.2	-69	0.5	-54		270	285	
K4	Pyrite					-0.2			
<b>Muyoun</b>									
K28	Quartz	7.1		-0.3			295		
W8-1	Kaolinite	17.7	-66	15.0	-51		35		
W3	Pyrophyllite	9.7	-75						
K28a	Alunite					16.6			410
K32	Pyrite					3.1			410
<b>Maejeon</b>									
K23-1	Quartz	6.0		-1.4			325		
K19	Pyrophyllite	9.2	-69						
K22	Pyrite					-0.2			
<b>Abuk</b>									
K25	Sericite	7.7	-70	4.0	-55		150		
K27	Pyrite					-14.5			

Abbreviation: Qz; quartz, Ka; kaolinite, Se; sericite, Alu; alunite, and Pyr; pyrite.

난다. 시료수가 1개 뿐이라는 문제점이 있으나 전효택 외 (1991)의 값에 그리 크게 벗어나는 값은 아니기 때문에 해석상의 큰 오차는 생각되지 않는다. 송진, 무연, 매전 등의 인근 광상들도 -0.2~3.1‰의 값을 나타내어, 전효택 외 (1991)에 발표된 밀양, 송진값과 거의 일치하는 값을 나타낸다. 황 동위원소 조성들이 0‰을 중심으로 좁은 범위에 분산되어 나타나는 것과 유사한 광물조합으로 보아 열수변질 당시에 비슷한 온도 및 수소이온농도를 가진 열수에 의해 형성된 것으로 추정된다. 이들 밀양광상과 인근 광상들에서 나타나는 황 동위원소 조성비를 볼 때 이는 기존의 연구와 마찬가지로 황철석의 기원이 화성기 원임을 말해준다.

밀양광상의 석영시료인 K9, K18은 납석, 카올리나이트와 공존하는 것으로서, vuggy silica가 산출되지 않는 이유로 해서, 점토광물들을 제거한 후 정제 분리하였다. 이들의 산소동위원소 조성비 δ<sup>18</sup>O<sub>SMOW</sub>는 각각 6.7, 6.4‰로써 제한된 범위의 값을 갖는다. 이 값을 Matsushisa et al.

(1979)에 의한 석영-물 분별요소를 이용하여 당시의 생성 온도를 추정하여 보았다. Lee (1991)에 의하면 백악기의 경상분지 남부의 순환수의 δ<sup>18</sup>O의 값은 -8~-9‰인데 이 값과 마그마수의 값인 +5.5~+10‰과의 중간값으로 H<sub>2</sub>O의 δ<sup>18</sup>O를 0으로 가정하여 온도를 계산하면, 당시의 생성온도는 300, 315°C 정도로 나타난다. 카올리나이트의 경우, K11은 광체에서 황철석과 함께 맥상 내에 pods형태로 존재하는 것으로서 이를 Kullar and Anderson (1978)에 의한 카올리나이트-물 분별방정식을 이용하여 생성 온도를 계산한 결과, 110°C 내외로 구해진다. 이것은 납석과 공존하지 않는 후기에 맥상으로 침전된 것으로 생각되며, 광상형성 온도를 대표하지는 않는다. W2-1, W19-3 시료는 광상하부의 점토 채굴지에서 채취한 시료로서 W2-1 시료는 δ<sup>18</sup>O값과 δD값이 각각 17.0, -69‰인데, 당시의 물로 환산한 값을 도시하면, hypogene과 supergene 카올리나이트 경계부근에 표시되는 바 이는 광상 형성 후, 지표수의 영향하에 형성된 것으로 생각된다.

납석의 경우, 산소동위원소 조성비  $\delta^{18}\text{O}$ 는 4.7‰로써 전효택 외 (1991)에 의한 천불산, 두명, 다도 납석의 0.23~3.46%보다는 높은 값을 갖고, 해남 지역의 노화납석 4.60~5.35%과는 일치하며, 변성기원의 송석납석 6.70~8.13% 보다는 낮은 값을 보인다. 한편 승진광산에서는 vuggy silica와 견운모의 산소동위원소 조성비가 각각 7.8, 4.2‰로써 이들을 쌍으로 하여 계산하면 290°C 내외의 생성온도를 갖는다. 승진광산의 경우, 정영욱과 전효택 (1989)에 의해 제시된 광물조성을 보면 밀양광산과 비슷한 광물조성을 보이며, 위의 동위원소 지질온도계에 의한 광상형성온도와 공존하는 광물조합을 비교해 보면 서로 유사한 생성온도를 갖는 것으로 생각된다.

## 성 인

### 변질대의 형성과정

납석, 카올리나이트, 견운모 그리고 석영 등의 광물조합은 현저한 양이온 용탈을 나타내는 광물조합으로서 advanced argillic association으로 일컬어진다 (Hemely and Jones, 1964). 본 연구에서는 안산암질암 내에 나타나는 변질대별 광물조성, 지화학적 결과, 안정동위원소의 특징을 이용하여, 본 광상이 열수작용에 의해 형성되었음을 규명하고, 이상의 결과로부터 가능한 생성환경을 유추하였다.

밀양광산은 vein type의 광상에서 흔히 나타나는 뚜렷한 변질대는 보이지 않는다. 여러 단층 및 파쇄대가 광체 기반을 조성하고, 이와 동시 혹은 후기에 수 회의 변질작용이 있었음이 야외관찰 및 현미경 관찰을 통해 확인된다. 본 연구 지역에서는 녹니석대, 견운모대, 납석대로 크게 구분된다. 견운모대 내에는 일부 카올리나이트가 우세한 부분이 있지만 야외에서 관찰한 것과 동위원소분석에 의해서 이들은 광상 형성에 생성된 카올리나이트가 아니라 광상 형성 이후에 단층 주변부를 따라 후기에 형성된 것으로 사료된다.

본 역의 변질대는 산출되는 광물조합의 특징, 즉 녹니석대에서는 사장석-석영-녹니석-녹염석-전기석 등이 특징적으로 나타나고, 견운모대에서는 견운모-석영-황철석 그리고 납석대에서는 납석-카올리나이트-황철석-다야스포어-듀머터라이트의 광물공생관계를 보인다. 이러한 변질대는 각각 Hemley and Jones (1964)의 propylitic associations, intermediate associations, advanced associations에 해당한다.

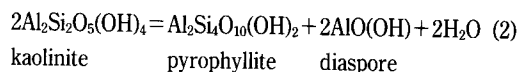
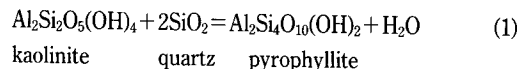
견운모대는 전형적인 argillic-sericitic assemblage에 해당하고, 녹니석대는 전형적인 propylitic alteration의 광물

조합을 갖는다. 이는 상대적으로 약한 hydrolysis 또는 base cation의 용탈을 말하며 일반적으로 base cation의 첨가는 거의 없었을 것이다. 녹니석대에서 가장 뚜렷한 변화는  $\text{H}_2\text{O}$  첨가에 의한 새로운 함수광물 (hydrated phase), 특히 녹니석의 형성을 들 수 있으며 양이온의 교환반응을 생각할 수 있다. 흔히  $\text{CO}_2$ 의 유입으로 탄산염광물을 형성한다고 하지만 본 녹니석대에서는 상대적으로 미약하게 나타난다.

견운모대에서는 앞에서 언급한 주원소 성분의 변화에서 처럼 Ca, Na, Mg는 소진되고 Al은 K와 마찬가지로 일정하나 일부는 상대적으로 증가 또는 감소한다. 이러한 경향은 광물조합에서 알 수 있듯이 사장석, 녹염석, 방해석 등에 포함된 Ca, 그리고 알바이트 등의 Na, 녹니석 등의 Mg가 제거되고 이와 거의 같은 양의 H가 첨가되었기 때문이다. 또한 K는 견운모대에 고정되어 녹니석대와 큰 변화를 보이지 않는다. 사장석이 견운모화 할 때 필요한 K는 녹니석대에 존재하는 광물조합상 불충분하여 다른 곳에서 유입되었을 것이다. 이러한 potassium metasomatism은 사실상 녹니석대를 형성시키는 변질작용시 이미 일어났을 가능성이 있다. 납석대에서는 강한 hydrolysis alteration에 의해 이미 전술한 광물조합을 갖게된다. 이러한 hydrolytic 작용은 상대적으로 비유동적인  $\text{K}^+$ 나  $\text{Al}^{3+}$ 를 용탈시키게 되는데  $\text{Al}^{3+}$ 은 본 광상에서 심한 변화를 나타낸다. 이러한 작용은 흔히 secondary quartz나 silica cap 등을 수반하나 본 광상에서는 나타나지 않고, 이러한 잉여 실리카는 많은 양이 납석을 형성하는데 쓰여진 것으로 생각된다.

### 변질작용의 심도와 온도

본 연구에서 광상형성의 중심부인 납석대는 납석[ $\text{Al}_2\text{Si}_4\text{O}_{10}(\text{OH})_2$ ], 카올리나이트[ $\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4$ ], 석영[ $\text{SiO}_2$ ], 다야스포어[ $\text{AlO}(\text{OH})$ ]의 광물공생관계를 보이는데 이들의 관계는 다음과 같다.



Kim (1991)에 의해 작성된 P-T 평형상태 곡선은 Gibbs 자유 에너지 방정식과 Helgeson et al. (1979)에 의해 제시된 광물과 물의 열역학적 자료를 사용하여 계산한 P-T 평형상태 곡선은 Fig. 11과 같다. 본 광상에 해당하는



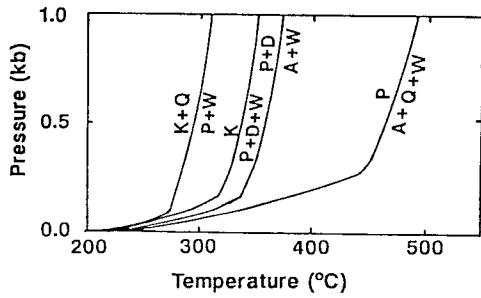


Fig. 11. Pressure-temperature relation of some dehydration equilibria and the stable mineral assemblages of the Milyang pyrophyllite deposit. Abbreviation: A; andalusite, K; Kaolinite, P; pyrophyllite, D; diaspore, C; corundum, Q; quartz, Ky; kyanite, S; sillimanite, and W; water.

광물조합에 (반응식 (1)과 (2)) 의한 광상형성온도 추정은 압력에 따라 차이가 생기기 때문에 압력, 즉 변질작용이 일어난 심도는 중요하다.

밀양지역과 매우 유사한 지질조건을 갖고 있는 해남지역 광상들의 광물조성이나 안정동위원소 연구결과에 의하면 이들의 변질작용이 매우 낮은 심도에서 일어났음이 보고 되어 있다 (문희수, 송윤구, 1992). 또한 조동룡 (1993)에 의한 각섬석 지압계의 결과는 경상분지의 불국사 화강암의 생성심도는 0.0~2.1 Kbar이며 밀양 인근지역의 화강암은 이 지질압력계로 추정할 수 없는 범위의 낮은 심도를 갖는다. 물론 각섬석의 total Al값으로 계산한 이 값은 2 Kbar 이상의 자료로부터 유도된 식으로 계산된 결과로 정량적 의미로는 문제가 된다. 하지만 이 값은 2 Kbar 이하의 심도를 지시하고, 해남지역의 광상과 유사한 광물조성을 보이므로 그리 깊은 심도는 아니었음을 시사한다.

밀양광상의 경우, 해남광상과 가장 유사한 광물조합을 갖고 있으나, 다이아스포어나 납석 등이 일부 크게 성장한 것으로 볼 때, 해남지역보다는 상대적으로 깊은 심도로 여겨져 대략 0.3~0.5 Kbar로 가정하였다. 따라서 Kim (1991)에 의한 카올리나이트-납석 형성온도는 0.3 Kbar일 때 330°C 내외이고 카올리나이트-납석-석영은 290°C 내외이다. 이 값은 Hemley et al. (1980)에서 압력을 0.3 Kbar로 계산했을 때의 값과 약 30°C 정도의 차이가 난다. 따라서 밀양광상의 형성온도는 300°C 내외임을 알 수 있다.

녹니석과 견운모에 대해 EPMA분석한 결과를 Cathelineau (1988)가 제시한 방정식에 의해 계산해 보았다. 녹니석의 경우, 방정식  $T(^{\circ}C) = -61.92 + 321.98 [Al(IV)]$ 에 의해 161~364°C 범위에 해당하며 평균 생성온도는 308°C를 나타낸다. 하지만 Cathelineau에 의한 녹니석과 일

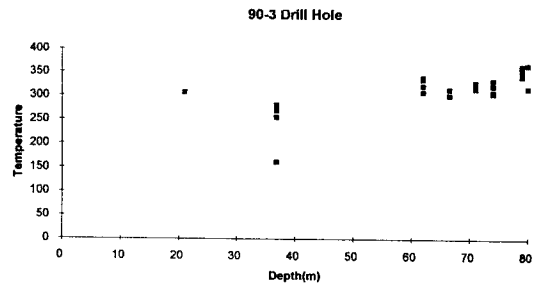
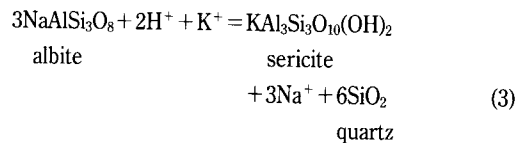


Fig. 12. Temperature-depth diagram of the chlorites for  $T(^{\circ}C) = -61.92 + 321.98.Al(IV)$  (after Cathelineau, 1988).

라이트 지질온도계는 녹니석과 일라이트에 대한 실측자료를 선형관계로 나타낸 것으로, 열역학적 근거가 결여되어 있고 치환관계도 명확하지 않아 문제점을 내포하고 있다. 이를 Fig. 12와 같이 90-3 시추코어에 대해 심도별 온도를 도시해 본 결과, 심도가 깊어질수록 온도가 증가한다. 또한 일라이트의 분석결과, Fixed-K의 양이 0.59~0.93로 Cathelineau가 제시한 지질온도 다이어그램에서 200~290°C의 범위를 갖는다. 이와같이 녹니석과 일라이트 지질온도계로 알아본 광상생성온도는 광물조합에 의한 평형관계, 산소 동위원소에 의한 광상생성온도와 비교적 잘 일치되는 경향을 보이며 납석이 일라이트보다 높은 온도에서 형성되었음을 나타낸다.

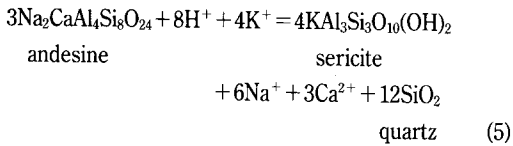
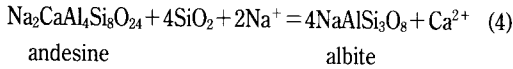
### 열수의 성질 및 기원

온도, 압력 이외에 열수용액의 화학 조성은 변질작용을 지배하는 중요한 역할을 한다. 열수의 성질은 변질대에서 나타나는 광물조합을 근거로 유추될 수 있다. 석영은 각 변질대에서 모두 존재하며, 납석이나 카올리나이트가 우세한 납석대에서는 녹니석대나 견운모대보다 수소이온의 활동도가 강한 산성 용액에 의해 변질작용이 일어났음을 알 수 있다. 밀양광상의 경우 중심부분의 납석대에서 바깥쪽으로 견운모대, 녹니석대로 변질대가 나누어지며, 이들의 광물조합을 근거로 납석형성의 변질과정을 다음과 같이 나타낼 수 있다.

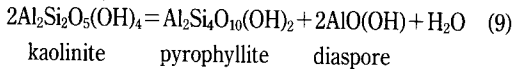
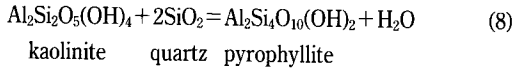
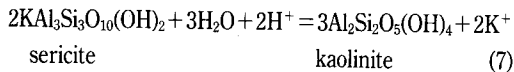
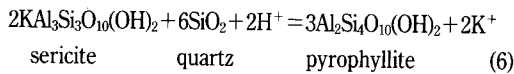


먼저 녹니석대에서 견운모대로의 변질과정에서 녹니석대에는 K-장석이 거의 없으므로 포타슘이 K-장석의 decomposition에 의해 견운모대로 직접 유입되었다고 생각하기

는 힘들다. 따라서 견운모를 형성시키는데 필요한 K<sup>+</sup>는 석기에 포함되어 있었거나 다른 곳에서 유입된 것으로 생각된다. 녹니석대에서는 사장석의 알바이트화 되거나 견운모화 작용이 일어나는데



의 반응식으로 나타낼 수 있다. 이 외에도 녹니석대에서 견운모대로 변질되는 과정에서 일부 카올리나이트가 생성되는 반응과정을 생각할 수 있다. 견운모대로부터 납석대로의 변질과정에서 다음과 같은 평형식이 성립한다.



(8), (9)식을 제외하고, 카올리나이트와 납석은 같은  $\alpha_{\text{K}^+}/\alpha_{\text{H}^+}$ 와  $\alpha_{\text{Na}^+}/\alpha_{\text{H}^+}$  영역에 도시되므로, (3)식에서 (7)식의 관계를 이용하여 K<sub>2</sub>O-Na<sub>2</sub>O-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O-HCl계에서 용액과 암석과의 반응을 나타내는 모델을 설정하였다 (Fig. 13). 활동도 비에 따른 광물의 안정관계는 Robie and Waldbaum (1968), Helgeson (1969), Ellis and Macfadden (1972)의 열역학 자료로부터 계산하였다. 용액은 납석과 석영으로 포화되어 있어 이들과 평형을 이루는 용액과 암석의 반응에 의해 용액의 성분 변화와 이동경로를 알 수 있다 (Rose and Burt, 1979). 납석은  $\alpha_{\text{K}^+}/\alpha_{\text{H}^+}$ 와  $\alpha_{\text{Na}^+}/\alpha_{\text{H}^+}$ 가 낮은 환경하에서 안정하다. 암석 내에는 K-장석보다는 알바이트가 우세하므로 이동경로는 적어도 기울기가 1 이상일 것이다. 그런데 K<sup>+</sup>가 다른 경로로 유입된다고 가정하여, 즉 암석 내에서 K-장석이 아닌 기질에 고정되어 있던 K<sup>+</sup>가 용액과 반응하는 것으로 가정하여 AB의 경로를 갖는다고 하면, 용액이 견운모의 경계에 도달할 때, 두가지의 이동경로를 생각할 수 있다. 하나는 AB경로를 따라 형성된 납석이 계 내에 남아서 반응하게

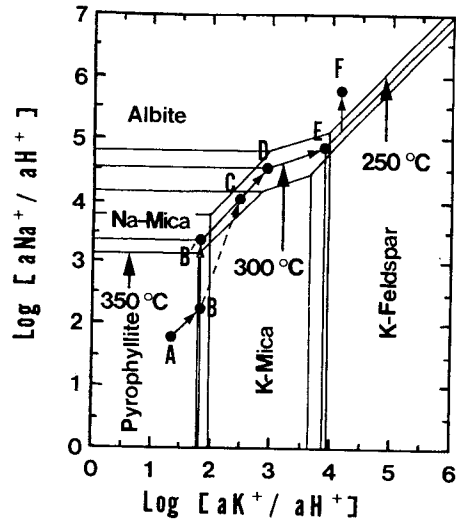


Fig. 13. Calculated mineral stability relation as a function of log[a(Na+)/a(H<sup>+</sup>)] vs. log [a(K<sup>+</sup>)/a(H<sup>+</sup>)] in the system of K<sub>2</sub>O-Na<sub>2</sub>O-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O-HCl in the Milyang pyrophyllite deposit.

되면 용액의 조성은 견운모, 납석의 경계를 따라 B'로 진행하게 된다. 암석 내의 모든 K는 납석이 견운모로 변화시키는데 사용되어 성분이 B'에 이르게 되면 납석은 모두 소모되고 이후에 D, E, F의 경로로 이동하게 되어 용액은 F의 알바이트와 평형을 이루게 된다. 다른 하나는 용액이 납석영역을 떠나 암석과 반응하면서 견운모를 형성시키고 견운모 영역으로 들어가 ABCDEF의 경로를 갖는 것이다.

결론적으로 중심부의 납석대는 낮은 K<sup>+</sup>, Na<sup>+</sup> 활동도 하에서 형성되었으며 중심부에서 외곽쪽으로 갈수록 수소이온의 활동도가 떨어지고 포타슘의 활동도가 높아져 견운모대가 형성되고, 수소이온의 활동도가 더 낮아지면서 녹니석대가 형성되었을 것으로 생각할 수 있다.

본 광상에서는 명반석이 수반되지 않아 명반석을 포함하는 옥매산이나 성산광상의 열수보다는 상대적으로 황이온 농도가 낮았을 것으로 생각된다. 하지만 소량으로 산출되는 스반버자이트나 중정석이 관찰되므로, 미약하나마 황산염광물이 수반되지 않는 구시나 해남광상보다는 상대적으로 황이온 농도가 높았다고 생각된다.

일반적으로 열수가 상승하여 올라오는 동안 상당한 양의 지표수가 첨가되는데, 지표수의 첨가는 열수 내의 pH와 f<sub>O2</sub>를 증가시키며 f<sub>S2</sub>를 감소시킨다. 다이아스포어를 포함하지 않는 납석대의 경우, Hemley et al (1980)가 제시한 광물조성에 의한 생성온도는 0.3 Kbar일 때 250±10°C 정도인데, 250°C에서 Stoffregen (1985)이 제시한 값에

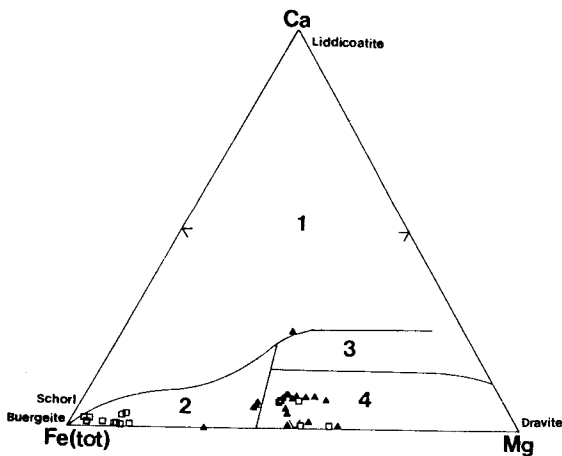


Fig. 14. Ca-Fe(tot)-Mg diagram (mol.%) for tourmaline from the Milyang area (after Henry, 1985). 1; Li-rich granitoids pegmatite and aplite, 2; Li-poor ranitoids and associated pegmatite and aplite, 3; Ca-rich metapelites and calc-silicate rocks, and 4; Ca-poor metapelite and quartz-tourmaline rocks. Symbols are the same as those in Fig. 5.

의하면 명반석은 pH가 3 내외이고, 카올리나이트는 pH가 4 내외이며, 견운모는 pH가 5 내외이므로 납석은 카올리나이트와 비슷하거나 더 강한 hydrolysis 작용에 의해 강한 산성을 띠게 되어 pH는 4 이내,  $-\log f_{O_2}$ 는 31~32 정도에 해당된다.

본 연구지역인 밀양광산에는 전기석이 각 변질대에서 모두 관찰되는데 이들 전기석의 화학성분 Ca-Fe(tot)-Mg 다이어그램상 ((Henry and Guidotti, 1985)에 도시 하였다. 본 지역의 전기석은 Fig. 14에서 처럼 대체적으로 녹니석 대보다 납석대에서 Mg가 감소하고 Fe가 증가하는 경향을 보인다. 또한 납석대의 전기석은 Li-rich granitoid나 이와 관련된 페그마타이트 그리고 aplite 영역에 놓이며 이는 전기석이 화강암질암의 페그마타이트 기원의 열수를 따라 올라와 성장한 것으로 생각된다. 녹니석대의 전기석은 대부분이 Ca-poor metapelite이나 quartz-tourmaline rocks 의 영역에 도시되는데, 석영 세맥에 수반되거나 장석내에서 전기석이 일부 용리된 석영과 공존, 성장하면서 이들의 영향을 받아 나타난 결과로 해석된다.  $Al_{150}Fe(tot)_{50}Al_{50}Mg_{50}$  다이어그램에 도시한 결과도 이와 일치된다. 이러한 전기석의 화학조성상의 특징에 의해 광상을 형성시킨 열수의 기원이 화강암질암류의 기원된 마그마 용액임을 시사한다.

그리고 전기석과 함께 마그마 후기 산물로서 granite pegmatite에서 산출되는 인회석과 이와 유사한 기원을 갖는 스반버자이트, 웨이블라이트가 광체에 해당하는 납

석대에 수반되어 나타난다. 따라서  $F^{-}$ ,  $Cl^{-}$ ,  $B^{3+}$ ,  $PO_4^{3-}$  등을 함유하며 광상생성에 관여한 열수의 기원이 화성기 원임을 뒷받침한다. 또한 황화광물인 황철석의 황 동위원소 분석결과, 전효택 외 (1991)의 자료와 함께 황의 기원이 화성기원임을 알 수 있어, 이를 종합해 볼 때 열수의 기원은 화성기원 혹은 마그마수가 우세한 열수임을 시사한다.

### 변질작용 규제요인

일반적으로 광상형성시 작용하는 규제요인인 화학적 성질과 구조적 성질에 의해 변질대와 이에 수반되는 광물조합, 그리고 그 규모 등이 달라지게 된다.

화학적 규제요인은 온도와 압력, 안산암질 모암과 반응하는 열수의 화학적 성질 등으로 이들에 의해 공생하는 광물의 차이가 나고, 변질광물조합에 의해 녹니석대, 견운모대, 납석대가 형성되었다. 이러한 변질대는 일순간에 형성된 것이 아니고 여러번의 변질작용이 반복되어 그 작용이 중첩되므로 흔히 vein type에서 나타나는 뚜렷한 변질대는 나타나지 않는다. 이는 변질작용 당시마다 광상형성에 작용한 열수의 물리화학적 성질이 똑같을 수 없기 때문이다. 납석대를 살펴보다도 기존의 납석이나 듀머티어라이트를 맥상으로 뚫고 침전된 납석이 관찰되며 이들의 결정크기 또한 다양하다. 또한 듀머티어라이트, 전기석, 웨이블라이트들의 세맥이 존재하는 것, 제한된 범위에 다이아스포어 단괴가 존재하며 이들이 일부만 납석화된 것을 보아도 변질작용의 반복을 의미한다. 이러한 변질작용을 주도하는 열수의 화학적 성질은 앞에서 언급했다.

한편 화학적 규제요인과 함께 구조적 요인은 중요한 역할을 했을 것으로 본다. 본 역에는 많은 단층들이 존재하며, 단층선이나 파쇄대를 중심으로 납석대가 형성되어 있다. 이러한 구조선들은 광체기반을 조성하여 변질작용을 용이하게 했을 뿐만 아니라 열수의 통로로서 기여했다. 맥상광체처럼 명확한 것은 아니지만 단층선을 중심으로 변질도가 높은 납석대가 발달하고 멀어질 수록 견운모대나 녹니석대로 변하는 경향을 볼 수 있다. 납석대내에 특히, 다이아스포어 단괴는 단층선 주위에 분포하는데, 이는 고온의 열수가 상대적으로 빠른 속도로 상승한 결과로 단층선 주위에만 단괴의 분포가 한정되는 것으로 여겨지며, 이러한 빠른 속도의 이동은 비교적 지표에 가까운 환경 혹은 비교적 열극이 잘 발달된 파쇄대를 수반한 단층면에 해당하는 점은 해남지역의 연구 결과 (문희수, 송운구, 1991)와 매우 유사하다.

## 결 론

밀양 납석광상은 백악기 안산암질 응회암이 산성 열수 용액에 의해 변질작용을 받아 형성되었다. 주구성광물은 납석이고, 이에 수반되어 석영, 황철석, 카올리나이트, 다이아스포어, 듀머티어라이트 등이 산출된다. 밀양 납석광상은 특징적인 광물조합으로 납석대, 견운모대, 녹니석대로 분류된다. 납석대는 납석을 비롯하여 석영, 카올리나이트, 황철석, 다이아스포어, 듀머티어라이트 등의 광물 공생 관계를 보이며, 견운모대는 견운모, 석영, 황철석, 카올리나이트, 그리고 일부 납석이 포함되고, 녹니석대는 녹니석, 사장석, 석영, 녹염석, 전기석의 광물조합을 나타낸다.

모든 변질대에서 전기석이 수반되는데, 전기석은 주로 granitoid pegmatite 또는 aplite의 기원을 나타내며, 납석대에 듀머티어라이트, 스반버자이트, 웨이블라이트, 인회석이 수반되어 광상을 형성시킨 열수용액에 B, F, Cl, PO<sub>4</sub> 등이 다량 포함되어 있음을 알 수 있고, 따라서 광상형성기구에 인근 화강암류가 관련되어 있음을 시사한다. 황철석의 황 동위원소분석 결과, 그 조성이 화성기원에 해당하며, 광체 내에 전기석, 인회석 등이 공존, 산출되므로 열수용액의 기원이 잔류 마그마 용액임을 알 수 있다.

변질암의 화학분석 결과, 각 변질대 별로 주원소 SiO<sub>2</sub>, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, MnO, MgO, CaO, Na<sub>2</sub>O와 K<sub>2</sub>O는 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 함량에 대해 열수변질작용을 거치면서 상당한 유동성을 보여준다. 이러한 주원소의 변화는 미량원소와 마찬가지로 각 변질대의 광물조성과 관련된다.

이들의 생성환경중 온도는 변질작용 당시의 압력을 0.3~0.5 Kbar라고 가정할 때, 공생하는 광물간의 평형상태, 산소 동위원소분석, 녹니석과 일라이트 지질온도계에 의해 알아본 광상형성 온도는 250~330°C이다. 열수의 화학적인 조건은 수소와 규산의 활동도가 높은 환경하에서 납석이 형성되고, K<sup>+</sup> 이온의 활동도가 커지면 견운모를 H<sup>+</sup> 이온의 활동도가 감소하면서 녹니석을 형성하였다. 밀양납석광상에서의 각 변질광물별로 평형조건을 보면 카올리나이트는 pH가 4 내외, 견운모는 pH가 5 내외에서, 그리고 납석은 카올리나이트와 비슷하거나 더 강한 hydrolysis 작용에 의해 강한 산성을 띠게 되어 pH는 4 이내, -log f<sub>O<sub>2</sub></sub>는 31~32 정도에 해당된다.

## 사 사

본 연구를 위하여 연구비를 지원해 준 과학재단과 전라광물자원연구소에 감사사를 드린다.

## 참고문헌

- 김구봉, 황상구 (1988) 밀양도폭 지질보고서. 한국동력자원연구소.
- 김상욱 (1982) 북부유천지역에 분포하는 후기 백악기 화산암류의 암석학적 연구. 서울대학교 박사학위논문, 133p.
- 김상욱, 이재영, 김영기, 고인서 (1991) 남부 유천 소분지에 분포하는 백악기 화산암류의 암석학적 특징. 지질학회지, 27권, p. 24-39.
- 김중환, 고상모 (1989) 밀양-양산지역 납석광상의 광화작용에 관한 연구. 과학기술처 KR-89-(B)-21, 44p.
- 문희수, 송윤구 (1992) 전남 해남지역 납석, 명반석 및 도석광상의 분포, 광물조성 및 형성기구. 광산지질, 25권, p. 41-50.
- 상기남 (1986) 한반도 남부지역 고령토-납석광상 생성기구. 광산지질, 19권, p. 43-52.
- 상기남 (1992) 영남지역 고령토-납석 광상의 성인 연구. 광산지질, 25권, p.101-114.
- 오대균 (1993) 밀양 및 해남지역 일부 고알루미나광상과 화산암질 모암의 지구화학적 연구. 서울대학교 박사학위논문, 125p.
- 오대균, 전효택, 민경원 (1992) 경남 밀양지역 납석광상과 안산암질 모암의 지구화학적 연구. 광산지질, 25권, p. 27-39.
- 이윤중, Ueda (1976) 한국 경상남도 언양도폭 및 북서부 울산도폭 지역산 화강암질암의 K-Ar연대. 광산지질, 9권, p. 127-134.
- 장기홍 (1977) 경상분지 상부 중생계의 층서퇴적 및 지구조. 지질학회지, 13권, p. 76-90.
- 전효택, 정영욱, 김인준 (1991) 경남 및 전남 일부 납석광상의 산소-황 동위원소 조성과 광상성인. 광산지질, 24권, p. 97-105.
- 정영욱, 전효택 (1989) 경남 양산 및 밀양지역 납석광상의 지구화학적 연구. 광산지질, 22권, p. 341-354.
- 조동룡 (1992) 남한에 분포하는 현생 화강암류의 기원에 대한 광물 및 암석화학적 연구. 연세대학교 박사학위논문.
- 홍승호, 최범영 (1988) 유천도폭 지질보고서. 한국동력자원연구소.
- 홍영국 (1985) 한국 동남부에 분포하는 백악기 언양 및 유천 화강암의 지화학적 연구, 지질학회지, 21권, p. 90-108.
- Bence, A.E. and Albee, A.L. (1968) Empirical correction factors for the electron microanalysis of silicates and oxides. J. Geology, v. 76, p. 382-403.
- Bowers, T.S., Jackson, K.J. and Helgeson, H.C. (1984) Equilibrium activity diagrams of coexistence minerals and aqueous solutions at pressures and temperatures to 5 kb and 600 °C. Springer-Verlag, New York.
- Cathelineau, M (1988) Cation site occupancy in chlorites and illites as function of temperature. Clay Minerals, v. 23, p. 471-485.
- Condie, K.C. and Lo, H.H. (1971) Trace element geochemistry of the Louis Lake batholith of early Precambrian age, Wyoming. Geochim. Cosmochim. Acta, v. 35, p. 1099-1119.
- Ellis, A.J. and Mccfaden, I.M. (1972) Partial molar volume of ions in hydrothermal solutions. Geochim. Cosmochim. Acta, v. 36, p. 413-426.
- Evan, H.T. and Landergrén, S. (1974) Vanadium. p. 23A-1-23M. in: Handbook of geochemistry., II2 (K.H. Wedepohl et al., ed.), Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg.

- Heier, K.S. (1962) Trace elements in feldspars, a review. *Norsk Geol. Tidsskr.*, v. 42, p. 415-455.
- Helgeson, H. (1969) Thermodynamics of hydrothermal system at elevated temperature and pressure. *Am. Jour. Sci.*, v. 267, p. 729-804.
- Helgeson, H., Delany, J.M., Nesbitt, H.W. and Bird, D.K. (1979) Summary and critique of the thermodynamic properties of rock forming minerals. *Am. Jour. Sci.*, p. 278-A.
- Hemley, J.J., Montoya, J.W., Marinenko, J.W. and Luce, R.W. (1980) Equilibria in the system  $Al_2O_3$ - $SiO_2$ - $H_2O$  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.
- Hermann, A.G., Potts, M.J. and Kanake, D. (1974) Geochemistry of rare earth elements in spilites from the oceanic and continental crust. *Contr. Min. Petrol.*, v. 44, p. 1-6.
- Horstman, E.L. (1957) The distribution of Lithium, Rubidium and Cadmium in igneous and sedimentary rocks. *Geochim. Cosmochim. Acta*, v. 12, p. 1-28.
- Jin, M.S. and Choo, S.H. (1980) Rb-Sr agedetermination of the Yoocheon granitic rocks(abstract). Workshop on age dating, Seoul, SE Asia regional network of geosciences, UNESCO.
- Jin, M.S., Kim, S.Y. and Lee, J.S. (1981) Granitic magmatism and associated mineralization in the Gyeongsang basin, Korea. *Mining Geol.*, v. 31, p. 245-260.
- Kim, I.J. (1991) Geochemistry of Hydrothermal alteration and clay deposits in the haenam area, southwestern Korea. D.S. Thesis, The University of Tokyo.
- Kulla, J.B. and Anderson, T.F. (1978) Wxperimental oxygen isotope fraction between kaolinite and water. *U.S. Geol. Surv. Open-file Rep.*, 78-701, p. 234-235.
- Le Bas, M.J., Le Maitre, R.W., Streckeisen, A. and Zannetin, B. (1986) A chemical classification of volcanic rocks based on the total alkali-silica diagram. *J. Petrol.*, v. 27, p. 745-750.
- Lee, J.I. (1991) Petrology, mineralogy and isotopic study of the shallow depth implaced granitic rocks, southern part of the Kyoungsang Basin, Korea; Origin of micrographic granite. D.S. Thesis, University of Tokyo, 197p.
- Lee, Y.J. (1980) Granitic rocks from the southern Gyeongsang basin, southern Korea. *Jour. Japanese Assoc. Mineral. Petrol. Econ. Geol.*, v. 75, p. 105-116.
- Matsuhisa, Y., Goldsmith, J.R. and Clayton, R.N. (1979) Oxygen isotopic fractionation in the system quartz-albite-anorthite-water. *Geochim. Cosmochim. Acta*, v. 43, p. 1131-1140.
- Min, K.D., Kim, O.J., Lee, D.S. and Choo, S.H. (1982) Applicability of plate tectonics to the post Late Cretaceous igneous activities and mineralization in southern part of South Korea(D). *Jour. Kor. Inst. Min. Geol.*, v. 15, p. 123-154.
- Nakamura, N. (1974) Determination of REE, Ba, Fe, Mg, Na and K in carbonaceous and ordinary chondrites. *Geochim. Cosmochim. Acta*, v. 38, p. 757-775.
- Noble, D.C., Korringa, M.K., Church, S.E., Bowman, H.R., Sliber, M.L. and Heropoulos, C.E. (1976) Elemental and isotopic geochemistry of non-hydrated quartz latite glasses from Eureka Valley Tuff, east central California. *Geol. Soc. Am. Bull.*, v. 87, p. 754-762.
- Roadset, E. (1975) Rare earth element distributions in some Precambrian rocks and their phyllosilicates. Numedal, Norway. *Geochim. Cosmochim. Acta*, v. 39, p. 455-469.
- Robie, R.A. and Waldbaum, D.R. (1968) Thermodynamic properties of minerals and related substances at 298.15°C and atmorsphere pressure and at high temperature. *U.S. Geol. Surv. Bull.*, v. 1259, p. 1-256.
- Rose, A.W. and Burt, D.M. (1979) Hydrothermal alteration. In Barnes, H.L., ed., *Geochemistry of hydrothermal ore deposits*, New York, Wiley Intersci., p. 173-235.
- Sofftregen, R.E. (1985) Genesis of acid-sulfate alteration Au-Cu-Ag mineralization at Summitville, Collorado. Ph.D. Thesis, Univ. California (Berkeley), 204p.
- Valsov, K.A. (1966) *Geochemistry of Rare Earth Elements*. I.P.S.T. Jerusalem.

