

옥천변성대 남서부 지역에서의 Phyllosilicate Intergrowth/Interlayer: EPMA, BSE, TEM 연구

Phyllosilicate Intergrowth/Interlayer in the Southwestern Part of the Okchon Metamorphic Belt: EPMA, BSE and TEM Study

이정후(Jung Hoo Lee) · 이영부(Young Boo Lee)
오창환(Chang Whan Oh) · 김선태(Seon Tae Kim)

전북대학교 지질학과

(Department of Geology, Chonbuk National University, Chonju 560-756, Korea)

요약 : 옥천 변성대 남서부 지역에서 산출되는 변성 니질암에서는 muscovite, biotite 및 chlorite를 주로하는 phyllosilicate가 서로 intergrowth 또는 interlayer를 이루는 것이 편광현미경 관찰, EPMA 분석, Back Scattered Electron (BSE) image 관찰 및 Transmission Electron Microscope (TEM) 관찰을 통하여 확인되었다. 이들 광물들은 편광현미경 관찰에서 흔히 각각의 입자를 식별할 수 없을 정도의 미세 규모로 서로 intergrow되어 있으며 BSE image에서는 0.1 μ m 이하의 아주 작은 크기에서부터 10 μ m 정도 크기까지 다양한 규모의 intergrowth를 형성하고 있음이 관찰되었다. TEM scale에서는 개별 layer 크기(약 10Å)에서부터 수십 개 layer 크기의 interlayering을 보여준다. 이와 같은 intergrowth 또는 interlayering의 결과로 EPMA 분석에서 종종 보기에는 균질(homogeneous)한 입자라 하더라도 두 개 이상의 광물 성분이 섞여 있는 분석값을 나타내며 이러한 nonstoichiometry는 BSE image에서 interlayer(또는 intergrow)된 것으로 관찰되는 부분에서 더욱 두드러진다.

Chlorite zone에서는 chlorite와 muscovite의 interlayering (C/M)이 주로 발견되며 biotite zone과 garnet zone에서는 chlorite와 biotite의 interlayer (C/B)가 주로 관찰된다. 이는 chlorite zone에서는 숙성작용에서 보편적으로 나타나는 C/M으로부터 chlorite가 분리되는 광물반응이 일어나는데 반해서 biotite zone과 garnet zone에서는 chlorite로부터 C/B를 거쳐 biotite를 생성하는 광물반응이 일어나는 것을 의미한다. 이와 같은 현상은 변성작용에서 phyllosilicate의 광물반응이 엄밀한 의미에서는 평형(equilibrium)상태에서 균질한 광물을 생성하기보다는 비평형(disequilibrium)반응으로 일어난다는 것을 의미한다.

ABSTRACT : Muscovite, chlorite and biotite are observed as the common phyllosilicates in the metapelites at the southwestern part of the Okchon Metamorphic Belt. These minerals are studied using polarized light microscopy, EPMA analyses, Back Scattered Electron (BSE) image observation and Transmission Electron Microscopy (TEM), and they are found to be intergrown or interlayered each other. The three minerals can not be distinguished from one another with polarized light microscope due to the very small scale intergrowth. The scale of the intergrowth varies from a fine scale of less than 0.1 μ m to approximately 10 μ m in the BSE images. At the TEM scale, they are interlayered from an individual layer (~10Å) to tens of layers. Our results show that EPMA analysis of an apparently homogeneous grain results in a composition which is a mixture of more than two minerals. Such heterogeneity of phyllosilicates is even more prominent in an analysis of the area where interlayering (or intergrowth) is evidently observed by BSE.

The interlayering of chlorite and muscovite (C/M) is common in the chlorite zone, whereas the interlayering between chlorite and biotite (C/B) is commonly observed in the biotite and the garnet zones. This implies that chlorite is separated from C/M (common in diagenesis) by the mineral reaction in the chlorite zone, and biotite forms from the chlorite through C/B in the biotite and the garnet zones. This also suggests that the mineral reactions in the metamorphism occur, in a strict sense, under disequilibrium state, rather than forming a homogeneous mineral by equilibrium reactions.

서 언

속성작용에 의해 퇴적물(mud)에 들어 있는 smectite와 illite 등의 점토광물은 smectite/illite 혼합층상(S/I), illite/serpentine 혼합층상(I/Sp), chlorite/illite 혼합층상(C/I), chlorite/muscovite 혼합층상(C/M)을 거쳐 muscovite, chlorite 등의 광물로 진화된다 (Lee et al., 1985; Ahn and Peacor, 1986). 이들 혼합층상의 광물들은 속성작용에 비해 높은 온도와 압력에서 생성된 저급 변성암에서 muscovite, chlorite, biotite 등의 phyllosilicate 광물로 전이된다. 이와 같이 속성작용과 변성작용은 연속되는 하나의 광물 진화 과정을 이루며 저온의 속성작용에서는 비평형(disequilibrium)상태의 광물반응에 의해 여러 가지 혼합층상(mixed-layer)의 불균질(heterogeneous)광물이 형성되고 고온의 변성작용에서는 평형(equilibrium)상태의 반응으로부터 균질(homogeneous)한 화학조성을 갖는 광물이 형성되는 것으로 널리 알려져 왔다. 그러나 최근의 Transmission Electron Microscopy (TEM), Scanning Transmission Electron Microscopy (STEM) 및 Electron Probe Microanalysis (EPMA)연구(Lee et al., 1984; Jiang et al., 1990; 이영부, 1993 및 백지혜, 1994)에 의해서는 속성작용에서 나타나는 C/M, M/Py(pyrophyllite) 등의 불균질 광물이 저급 변성암(chlorite zone)에서까지 관찰되는 것으로 밝혀졌다.

육천 변성대의 남서부 지역에서는 남동에서 북서 방향으로 가면서 chlorite zone에서부터 biotite, garnet 및 kyanite zone으로 변성도가 증가한다 (오창환 외, 1995; Fig. 1). 이 지역의 변성 니질암에서 산출되는 muscovite, chlorite 및 biotite는 편광현미경 관찰에서 흔히 intergrowth 형태로 나타나며 (Fig. 2) Back Scattered Electron (BSE) image 관찰(Fig. 3) 및 TEM 관찰(Fig. 4)에 따르

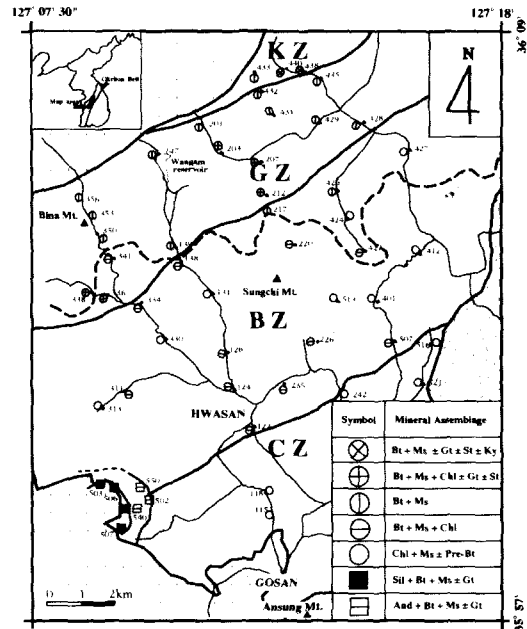


Fig. 1. The metamorphic map of the study area. Symbols on the map indicate the mineral assemblages at the sample location and the numbers represent the sample number. CZ, chlorite zone; BZ, biotite zone and GZ, garnet zone. Bt, biotite; Ms, muscovite; Chl, chlorite; Gt, garnet; St, staurolite; Ky, kyanite; Sil, sillimanite and And, andalusite. Areas marked by crosses and random hatcher marks are Jurassic and Cretaceous granites, respectively.

면 garnet zone의 암석에서도 이들 광물이 서로 interlayer를 이루고 있다—intergrowth와 interlayer는 하나의 입자가 두 개 이상의 광물성분으로 되어 있는 경우를 말하며 여기서 intergrowth는 하나의 광물의 폭이 대략 0.1μm(1000 Å) 이상, interlayer는 대략 수백 Å 이하의 크기로 되어 있는 경우로 구분하였다. 따라서 phyllosilicate의 inter-

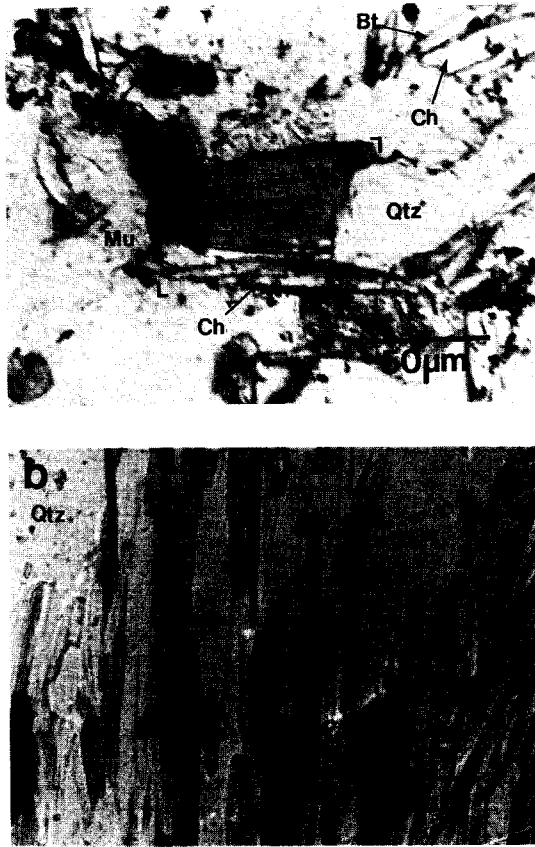


Fig. 2. Photomicrographs of open nicol polarized microscopy. a, Biotite (Bt) shows fine scale chlorite intergrow (arrows) with dark contrast within the grain in abiotite zone metamorphic rock (sample No. 1331); b, Biotite, muscovite (Mu) and chlorite (Ch) are intergrown along the well developed foliation direction in a pelitic schist of the garnet zone. Arrows also indicate fine scale chlorite intergrow within a biotite grain (sample No. 1203). The bracketed areas in both pictures are presented in Figs. 3a and b, respectively. Qtz, quartz.

growth와 interlayer는 저급 변성암에서만 아니라 중급 이상의 변성 니질암에서도 보편적으로 관찰되는 현상으로 생각되며 비평형상태의 광물 반응이 중급 이상의 변성작용(garnet zone)에 까지 존재하는 것으로 보인다. 비평형 광물반응에 의한 phyllosilicate의 interlayer가 특히 저급 변성암(chlorite 및 biotite zone)에서 주로 많이 나타나

는 것은 이들 변성암에서 관찰되는 interlayer가 속성작용의 마지막 단계에서 관찰되는 C/M(김용희, 1992) 및 C/B(chlorite/biotite 혼합층상)와 연관되는 것으로 보인다(백지혜, 1994).

한편 속성작용 및 저급 변성작용에서 생성되는 phyllosilicate의 interlayer 또는 작은 scale intergrowth에 의해 이들 광물의 EPMA 분석값은 흔히 두 개 이상의 phyllosilicate가 혼합된 광물조성으로 나타나며(김용희, 1992; 이영부, 1993; 백지혜, 1994; 박은실, 1994) 정상적인 광물조성(stoichiometry)에서 벗어난다. 일반적으로 phyllosilicate의 화학 분석에서 이러한 분석치는 제외시키게 되며 stoichiometry에 가까운 성분만을 선별하여 사용한다. 옥천대 남서부의 변성 퇴적암에서는 이와 같은 현상이 저급 변성암에서 빈번하게 관찰되며 중급 이상의 변성암에서도 나타난다. 이번 연구에서는 옥천대 남서부의 chlorite zone에서부터 garnet zone까지의 변성 니질암에서 관찰되는 muscovite, chlorite, biotite 및 이들 광물 사이의 intergrowth와 interlayer를 편광현미경 관찰, EPMA 분석, BSE image 관찰 및 TEM 관찰을 통하여 체계적으로 연구함으로써 변성암에서의 비평형 광물반응을 확인하고자 하였다.

연구방법

연구지역(옥천변성대 남서부)에 대한 암석학적 연구와 변성 진화 과정에 대한 연구는 오창환 외(1995)를 바탕으로 하였다. 오창환 외(1995)는 편광현미경 관찰을 위주로하여 3단계의 변성작용(M1-M3; 주 변성작용, M2)을 보고하였으며 변성 정도는 남동부의 chlorite zone에서 북서부의 kyanite zone으로 증가한다고 하였다(Fig. 1). 이 연구에서는 옥천대 변성암 중 저급 변성암에서 나타나는 phyllosilicate(muscovite, chlorite 및 biotite)의 intergrowth 현상을 편광현미경(Fig. 2) 및 BSE image(Fig. 3)를 이용하여 관찰하였으며 이들 phyllosilicate에 대하여 EPMA 분석(Table 1-5)과 TEM 관찰(Fig. 4)을 실시하였다. EPMA 분석과 BSE image 관찰은 고려대학교 지질학과의 JEOL JXA-8600 Superprobe를 이용하였으며 15kV, 60

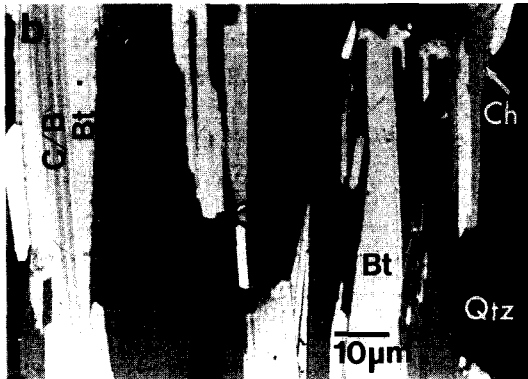
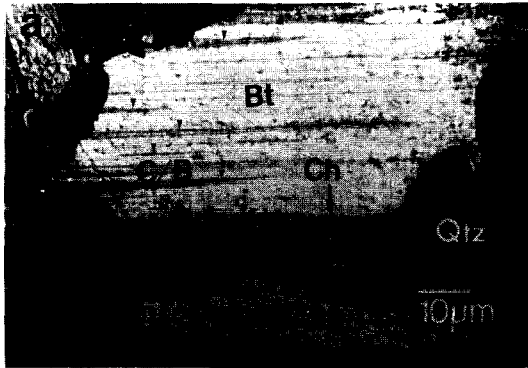


Fig. 3. Back scattered electron (BSE) photomicrographs of the bracketed areas in Figs. 2a and b. Contrasts are somewhat reversed due to the nature of BSE. **a,** Biotite(Bt) shows fine scale intergrowth (or interlayering) with chlorite(C/B) within a grain. Chlorite is characterized by the layers of mid tone contrast indicated as arrows pointing down. Grains of chlorite(Ch) and muscovite(Mu) in the lower center are also intergrown with biotite. C/M (arrows pointing up) is barely visible along the cleavage of chlorite. **b,** Intergrowth of biotite, muscovite and chlorite are well developed parallel to the foliation in various scales. The size of intergrowth is larger than that in **a.** Interlayerd chlorites within the biotite grain (C/B) are also observed in the garnet zone samples. Square dots in both pictures represent the analyzed spots. Qtz, quartz.

μ A filament current, 2.0nA PCD sample current에서 분석을 실시하였다. TEM 관찰은 서울대학교 신소

재 연구소의 Philips CM-20을 이용하여 200kV에서 001 lattice fringe image를 관찰 하였다. EPMA 분석은 BSE image에서 비교적 균질하여 단일광물로 보이는 입자(single phase, Table 1-3)와 두 개 이상의 광물이 intergrow(mixed-phase 또는 mixed-layer)된 것으로 보이는 부분(Table 4 및 5)으로 구분하여 실시되었다.

연구결과

EPMA 분석

CHLORITE : Chlorite에 대한 화학분석에서는 대체로 oxide total이 87wt% 이하이다 (정상적인 chlorite는 87~90wt%, Deer et al., 1962) (Table 1). Octahedral 양이온은 주로 Mg, Fe 및 Al(대략 5:4:3의 비율)로 구성되어 있으며 octahedral 양이온의 합은 11.80~11.90 (trioctahedral chlorite의 경우 12.0) 사이의 값을 보인다. 소량의 interlayer 양이온(Na, K 및 Ca)을 함유하고 (0.1~0.2, 특징적으로 K보다 Na를 더 많이 포함한다) 있어서 paragonite 또는 muscovite와의 interlayering의 가능성을 시사한다. 옥천대 암석이 chlorite zone에서 biotite 및 garnet zone으로 변성도가 증가함에 따라 Mg는 증가(4.76에서 5.14)하며 Fe는 감소(4.20에서 3.82)하여 변성 정도가 증가함에 따른 chlorite 화학성분의 일반적인 변화 추세와 일치한다.

MUSCOVITE : Muscovite의 분석값(Table 2)은 oxide total이 대체로 95wt% 이하로 낮으며 (정상적인 muscovite는 95.0~96.3wt%, Deer et al., 1962) interlayer 양이온의 합이 낮고 (1.5~1.7, stoichiometry의 경우 2.0) octahedral 양이온의 합이 높은 (4.08~4.12, stoichiometry의 경우 4.0) 것으로 보아 muscovite가 chlorite 또는 biotite와 interlayer 되었을 가능성이 있는 것으로 보인다. Muscovite의 분석값 중에서 oxide total이 92wt% 이하인 것과 octahedral 양이온의 합이 4.16보다 높은 것은 interlayer 정도가 심한 것으로 보아 편의상 Table 4에 별도로 제시하였다. 흔히 관찰되는 C/M의 경우에는 oxide total이 정상적인 musco-

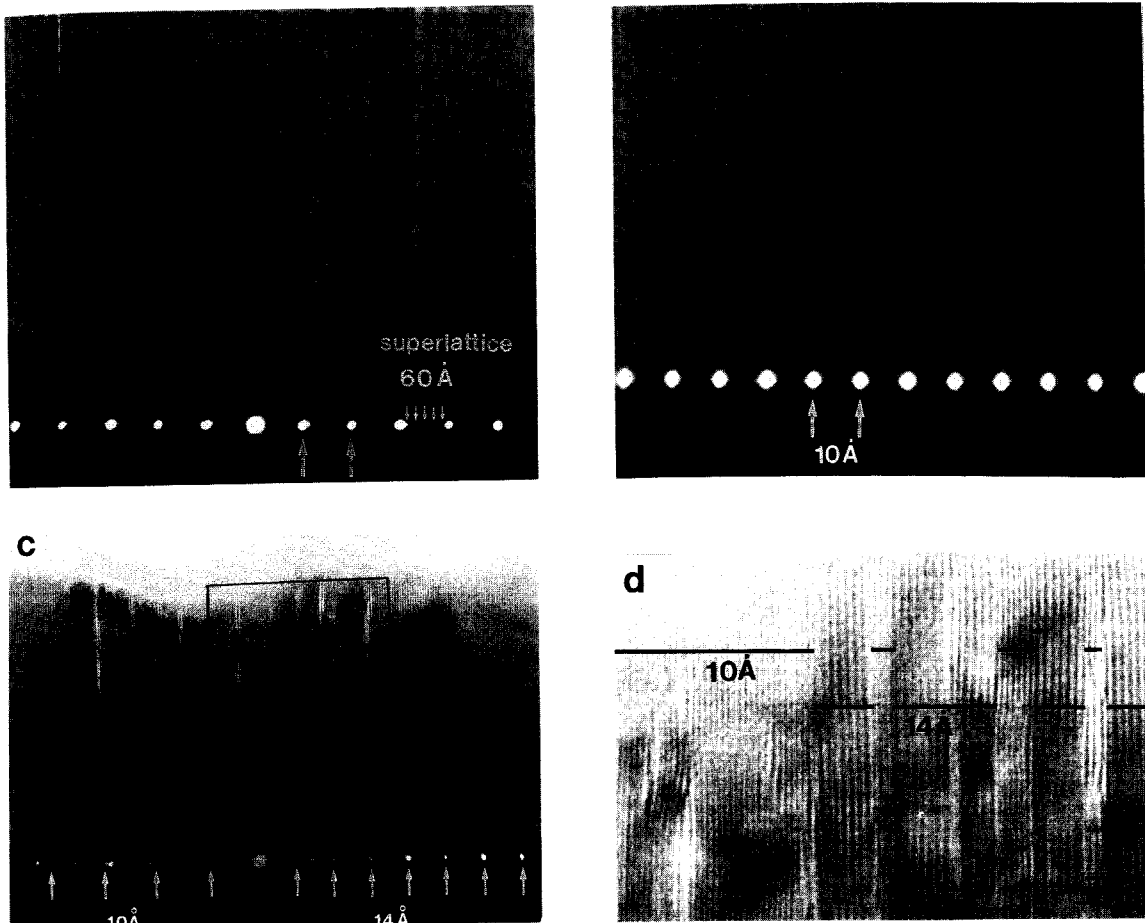


Fig. 4. Transmission electron photomicrographs of phyllosilicates in the chlorite zone (a, sample No. 1501), biotite zone (b, sample No. 1334) and garnet zone (c and d, sample No. 1338). a, 7Å (two to three layers of serpentine) and 14Å (one layer of chlorite) layers are interlayered within 10Å muscovite. Selected area electron diffraction (SAED) pattern shows diffuse 10Å *00l* periodicity with streaking due to the interlayering. Within the streak show diffuse spots of approximately 60Å superperiodicity. However, this superperiodicity is not confirmed in the lattice fringe images. b, Two layers of 14Å chlorite are interlayered within 10Å mica (either biotite or muscovite) and SAED shows streaked 10Å periodicity. c, Chlorite and mica (supposed to be biotite from the evidence in Fig. 3b) are finely interlayered (C/Mi) at a scale of 0.15 μ m within a homogeneous chlorite. SAED pattern shows *00l* reflections with discrete 10Å and 14Å periodicities. d, Enlarged view of the rectangular area in c. 14Å chlorite and 10Å mica are interlayered in various scales (3-7 layers of mica and 6-7 layers of chlorite at least).

vite 경우에 비해 낮아지게 되며 (muscovite와 chlorite의 중간값) interlayer 양이온의 합은 2.0보다 낮고 octahedral 양이온의 합은 4.0보다 높아지며 Mg와 Fe를 다량 함유하게 된다. Muscovite 분석 결과에서는 변성 정도에 따른 성분의 변화는 발견되지 않는다.

BIOTITE : Biotite에 대한 화학분석 결과(Table 3)는 대체로 oxide total이 96wt% 이하의 분석값을 보인다 (정상적인 Bt는 95~97wt%, Deer et al., 1962). Interlayer 양이온과 octahedral 양이온은 모두 stoichiometry(각각 2.0과 6.0)보다 적으며 이러한 결과는 B/C/Py 또는 B/C/M(백지혜, 1994)에

Table 1. EPMA analysis data for chlorite.

Sample #	chlorite zone								biotite zone				
	1501	1501	1501	1249	1249	1249	1249	Ave	1423	1423	1331	1331	1331
Anal. #	21	22	23	12	13	15	16	Ave	40	45	46	47	48
Oxide wt. percent													
SiO ₂	24.79	25.04	24.40	25.40	24.09	24.29	24.87	24.70	25.79	25.51	26.20	24.94	24.30
Al ₂ O ₃	22.37	22.66	22.31	21.36	21.78	21.45	20.94	21.84	21.25	19.68	21.85	23.10	22.84
TiO ₂	0.15	0.00	0.00	0.13	0.00	0.07	0.02	0.05	0.17	0.11	0.23	0.10	0.13
FeO	22.68	22.32	22.98	24.35	24.05	23.63	23.55	23.36	24.47	23.34	22.79	22.97	22.97
MgO	15.32	15.54	14.95	14.78	14.62	14.34	14.50	14.86	15.10	14.88	16.38	15.47	15.02
MnO	0.34	0.36	0.00	0.00	0.24	0.19	0.10	0.18	0.11	0.00	0.23	0.28	0.37
Cr ₂ O ₃	0.15	0.00	0.00	0.00	0.11	0.20	0.00	0.07	0.04	0.11	0.06	0.01	0.00
CaO	0.02	0.14	0.00	0.00	0.13	0.00	0.00	0.04	0.06	0.01	0.00	0.00	0.06
Na ₂ O	0.48	0.31	0.37	0.21	0.26	0.26	0.25	0.31	0.17	0.26	0.16	0.23	0.31
K ₂ O	0.02	0.05	0.05	0.09	0.00	0.06	0.05	0.04	0.00	0.00	0.02	0.01	0.00
Total	86.32	86.42	85.25	86.33	85.27	84.49	84.28	85.48	87.16	83.91	87.92	87.12	85.99

Atomic proportion based on O₂₀(OH)₁₆

Si	5.25	5.28	5.24	5.41	5.22	5.30	5.42	5.30	5.44	5.58	5.42	5.23	5.18
Al	5.59	5.63	5.65	5.36	5.56	5.51	5.38	5.53	5.28	5.07	5.33	5.71	5.75
Ti	0.02	0.00	0.00	0.02	0.00	0.01	0.00	0.01	0.03	0.02	0.04	0.02	0.02
Fe ¹	4.02	3.94	4.13	4.34	4.35	4.31	4.29	4.20	4.32	4.27	3.94	4.03	4.09
Mg	4.84	4.89	4.79	4.70	4.72	4.66	4.71	4.76	4.75	4.85	5.06	4.83	4.77
Mn	0.06	0.06	0.00	0.00	0.04	0.04	0.02	0.03	0.02	0.00	0.04	0.05	0.07
Cr	0.03	0.00	0.03	0.00	0.02	0.03	0.00	0.02	0.01	0.02	0.01	0.00	0.00
Ca	0.01	0.03	0.00	0.00	0.03	0.00	0.00	0.01	0.01	0.00	0.00	0.00	0.01
Na	0.21	0.13	0.15	0.09	0.11	0.11	0.11	0.13	0.07	0.11	0.06	0.09	0.13
K	0.01	0.01	0.01	0.03	0.00	0.02	0.01	0.01	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00
Int. Total ²	0.22	0.17	0.17	0.11	0.14	0.13	0.12	0.15	0.08	0.11	0.07	0.10	0.14
Oct. Total ³	11.81	11.80	11.84	11.83	11.91	11.86	11.83	11.84	11.84	11.80	11.84	11.86	11.88

Sample #	biotite zone				garnet zone								
	1331	1331	1331	Ave	1136	1136	1203	1203	1203	1203	1203	1203	1203
Anal. #	58	59	69	Ave	97	98	105	106	108	109	121	122	Ave
Oxide wt. percent													
SiO ₂	24.13	24.80	24.17	24.98	25.07	25.02	24.39	24.68	24.49	24.94	26.32	24.76	24.96
Al ₂ O ₃	22.77	22.40	23.41	22.16	22.87	22.78	23.09	23.15	23.21	23.16	21.03	23.18	22.81
TiO ₂	0.04	0.13	0.10	0.13	0.14	0.15	0.02	0.00	0.03	0.17	0.00	0.17	0.08
FeO	21.90	23.83	20.93	22.90	22.10	22.74	20.70	20.69	21.61	21.23	22.29	21.62	21.62
MgO	15.33	14.61	16.08	15.36	16.33	16.09	16.16	16.30	16.59	16.42	16.40	16.25	16.32
MnO	0.20	0.00	0.14	0.17	0.19	0.04	0.39	0.31	0.24	0.46	0.24	0.24	0.26
Cr ₂ O ₃	0.06	0.05	0.11	0.06	0.01	0.00	0.00	0.00	0.03	0.03	0.03	0.00	0.01
CaO	0.10	0.05	0.02	0.04	0.04	0.00	0.00	0.02	0.09	0.00	0.05	0.00	0.02
Na ₂ O	0.37	0.29	0.16	0.24	0.16	0.14	0.29	0.31	0.19	0.23	0.29	0.05	0.21
K ₂ O	0.00	0.13	0.06	0.03	0.00	0.09	0.10	0.08	0.08	0.05	0.09	0.05	0.07
Total	84.90	86.28	85.17	86.06	86.92	87.07	85.15	85.54	86.56	86.70	86.74	86.36	86.38

Atomic proportion based on O₂₀(OH)₁₆

Si	5.19	5.28	5.25	5.32	5.24	5.24	5.18	5.11	5.14	5.21	5.52	5.20	5.23
Al	5.76	5.62	5.62	5.52	5.63	5.62	5.79	5.76	5.74	5.70	5.20	5.74	5.65
Ti	0.02	0.02	0.00	0.02	0.02	0.02	0.00	0.04	0.00	0.03	0.00	0.03	0.02
Fe ¹	3.95	4.24	3.98	4.10	3.86	3.98	3.68	3.81	3.79	3.71	3.91	3.80	3.82
Mg	4.91	4.63	4.94	4.84	5.09	5.02	5.12	5.35	5.19	5.11	5.13	5.09	5.14
Mn	0.01	0.00	0.06	0.03	0.03	0.01	0.07	0.06	0.04	0.08	0.04	0.04	0.05
Cr	0.00	0.01	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.01	0.00	0.00	0.00
Ca	0.00	0.01	0.00	0.01	0.01	0.00	0.00	0.02	0.02	0.00	0.01	0.00	0.01
Na	0.10	0.12	0.16	0.11	0.06	0.06	0.12	0.11	0.08	0.10	0.12	0.02	0.08
K	0.01	0.04	0.01	0.01	0.00	0.02	0.03	0.02	0.02	0.01	0.02	0.01	0.02
Int. Total ²	0.12	0.17	0.17	0.12	0.07	0.08	0.15	0.14	0.12	0.11	0.15	0.03	0.11
Oct. Total ³	11.85	11.80	11.85	11.84	11.88	11.89	11.85	12.13	11.91	11.85	11.80	11.89	11.90

1. All Fe is analyzed as Fe²⁺.

2. Total interlayer cation (K+Na+Ca) ; normally zero for chlorite.

3. Total octahedral cation (Fe+Mg+Ti+Mn+Cr+oct. Al) ; 12.0 for stoichiometric chlorite.

Phyllosilicate Intergrowth/Interlayer

Table 2. EPMA analysis data for muscovite (single-phase).

Sample #	chlorite zone						biotite zone							
	1249	1501	1501	1501	1501	Ave	1331	1331	1331	1331	1331	1331	1331	1331
Analysis #	10	25	29	30	31	Ave	53	54	55	61	62	63	64	65
Oxide wt. percent														
SiO ₂	47.87	46.99	47.86	48.15	46.93	47.56	46.17	46.45	46.54	45.88	45.78	45.80	47.18	47.55
Al ₂ O ₃	33.18	33.38	33.50	31.91	34.12	33.22	35.34	35.25	34.52	36.00	35.06	35.46	34.93	34.47
TiO ₂	0.91	0.62	0.42	0.61	0.47	0.61	0.46	0.39	0.48	0.45	0.34	0.34	0.55	0.37
FeO	1.64	1.51	1.14	1.90	1.37	1.51	1.16	0.96	1.15	0.95	1.05	0.60	1.12	0.70
MgO	1.14	0.87	0.82	1.20	0.74	0.95	0.55	0.55	0.88	0.49	0.75	0.40	0.59	0.75
MnO	0.24	0.14	0.03	0.04	0.15	0.12	0.00	0.15	0.00	0.06	0.00	0.28	0.10	0.03
Cr ₂ O ₃	0.00	0.17	0.09	0.00	0.00	0.05	0.00	0.00	0.00	0.06	0.00	0.00	0.07	0.15
CaO	0.00	0.06	0.00	0.00	0.00	0.01	0.05	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.07	0.00
Na ₂ O	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	1.17	0.58	0.45	1.46	0.66	0.59	0.76	0.00
K ₂ O	9.34	8.48	8.96	8.59	9.78	9.03	7.95	8.71	9.05	7.78	8.83	9.19	7.53	9.02
Total	94.32	92.21	92.82	92.39	93.56	93.06	92.86	93.15	93.08	93.11	92.47	92.68	92.90	93.05
Atomic proportion based on O ₂₀ (OH) ₄														
Si	6.38	6.37	6.44	6.52	6.32	6.40	6.21	6.25	6.27	6.15	6.21	6.20	6.31	6.37
Al	5.21	5.33	5.31	5.09	5.41	5.27	5.60	5.58	5.48	5.69	5.60	5.66	5.51	5.44
Ti	0.09	0.06	0.04	0.06	0.05	0.06	0.05	0.04	0.05	0.05	0.04	0.03	0.06	0.04
Fe ¹	0.18	0.17	0.13	0.22	0.15	0.17	0.13	0.11	0.13	0.11	0.12	0.07	0.13	0.08
Mg	0.23	0.18	0.16	0.24	0.15	0.19	0.11	0.11	0.18	0.10	0.15	0.08	0.12	0.15
Mn	0.03	0.02	0.00	0.01	0.02	0.01	0.00	0.02	0.00	0.01	0.00	0.03	0.01	0.00
Cr	0.00	0.02	0.01	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.01	0.02
Ca	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00
Na	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.04	0.15	0.12	0.38	0.17	0.15	0.20	0.00
K	1.59	1.47	1.54	1.48	1.68	1.55	1.14	1.49	1.56	1.33	1.53	1.59	1.29	1.54
Int. Total ²	1.59	1.48	1.54	1.48	1.68	1.55	1.18	1.64	1.67	1.71	1.70	1.74	1.49	1.54
Oct. Total ³	4.12	4.15	4.09	4.13	4.09	4.12	4.10	4.10	4.11	4.10	4.11	4.07	4.13	4.09

Sample #	biotite zone						garnet zone							
	1331	1220	1220	1136	1136	Ave	1207	1207	1207	1203	1203	1203	1203	Ave
Analysis #	67	82	84	101	102	Ave	129	130	131	124	125	127	128	Ave
Oxide wt. percent														
SiO ₂	48.31	47.97	46.81	47.00	46.34	46.75	46.83	47.26	46.41	45.93	46.44	47.51	45.65	46.58
Al ₂ O ₃	35.78	31.23	30.30	35.26	34.39	34.46	34.07	33.16	33.98	34.00	33.66	33.58	33.54	33.71
TiO ₂	0.36	1.50	1.46	0.48	0.59	0.60	0.50	0.70	0.62	0.63	1.00	0.90	0.86	0.74
FeO	0.97	3.16	3.30	0.70	0.88	1.28	0.97	1.39	1.39	1.75	1.56	1.55	1.48	1.44
MgO	0.53	1.21	1.30	0.33	0.37	0.67	0.65	0.86	0.47	0.67	0.65	0.84	0.64	0.68
MnO	0.00	0.08	0.00	0.07	0.00	0.06	0.08	0.00	0.12	0.14	0.05	0.00	0.00	0.06
Cr ₂ O ₃	0.00	0.00	0.00	0.13	0.07	0.04	0.00	0.00	0.13	0.00	0.00	0.02	0.07	0.03
CaO	0.01	0.02	0.06	0.06	0.00	0.02	0.00	0.11	0.06	0.00	0.00	0.00	0.00	0.02
Na ₂ O	0.73	0.00	0.00	0.41	0.00	0.52	0.00	0.00	0.00	0.65	0.00	0.17	0.04	0.12
K ₂ O	7.63	9.43	9.29	7.87	8.66	8.53	9.51	9.06	9.18	8.88	9.68	9.93	9.95	9.48
Total	94.32	94.60	92.52	92.32	92.31	93.03	92.62	92.55	92.37	92.63	93.24	94.49	92.23	92.87
Atomic proportion based on O ₂₀ (OH) ₄														
Si	6.34	6.44	6.43	6.31	6.32	6.29	6.34	6.40	6.31	6.25	6.29	6.34	6.26	6.31
Al	5.54	4.94	4.91	5.58	5.53	5.46	5.44	5.29	5.44	5.45	5.37	5.28	5.42	5.38
Ti	0.04	0.15	0.15	0.05	0.06	0.06	0.05	0.07	0.06	0.06	0.10	0.09	0.09	0.08
Fe	0.11	0.36	0.38	0.08	0.10	0.15	0.11	0.16	0.16	0.20	0.18	0.17	0.17	0.16
Mg	0.10	0.24	0.27	0.07	0.08	0.13	0.13	0.17	0.10	0.14	0.13	0.17	0.13	0.14
Mn	0.00	0.01	0.00	0.01	0.00	0.01	0.01	0.00	0.01	0.02	0.01	0.00	0.00	0.01
Cr	0.00	0.00	0.00	0.01	0.01	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00
Ca	0.00	0.00	0.01	0.01	0.00	0.00	0.00	0.02	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Na	0.19	0.00	0.00	0.11	0.00	0.12	0.00	0.00	0.00	0.17	0.00	0.04	0.01	0.03
K	1.28	1.61	1.63	1.35	1.51	1.45	1.64	1.57	1.59	1.54	1.71	1.69	1.74	1.64
Int. Total ²	1.47	1.62	1.64	1.46	1.51	1.57	1.64	1.58	1.60	1.71	1.71	1.73	1.75	1.67
Oct. Total ³	4.12	4.13	4.14	4.11	4.10	4.11	4.07	4.09	4.09	4.11	4.07	4.06	4.07	4.08

1. All Fe is analyzed as Fe²⁺.
2. Total interlayer cation (K+Na+Ca) ; 2.0 for stoichiometric muscovite.
3. Total octahedral cation (Fe+Mg+Ti+Mn+Cr+oct. Al) ; 4.0 for stoichiometric muscovite.

Table 3. EPMA analysis data for biotite (single-phase).

Sample #	chlorite zone						biotite zone									
	1249	1249	1249	1249	1501	1501	1423	1423	1423	1331	1331	1331	1331	1331		
Analysis #	3	5	8	9	19	24	Ave	39	41	42	49	70	73	74	75	
Oxide wt. percent																
SiO ₂	36.75	36.84	36.08	36.48	36.63	36.71	36.58	36.95	36.72	36.88	37.03	38.48	35.90	36.27	36.52	
Al ₂ O ₃	18.38	18.15	18.34	18.32	17.99	18.43	18.27	18.33	17.79	17.28	18.22	14.89	18.37	18.19	18.97	
TiO ₂	2.11	2.24	2.11	1.89	1.75	1.47	1.93	1.98	1.82	2.10	1.66	1.40	1.33	1.34	1.32	
FeO	18.36	18.85	18.81	17.77	18.20	17.46	18.24	19.21	18.96	18.46	17.72	9.83	17.47	17.58	18.13	
MgO	9.70	9.50	9.27	9.85	10.52	10.95	9.96	10.40	10.55	10.54	11.15	19.37	10.72	11.23	10.21	
MnO	0.05	0.07	0.08	0.09	0.19	0.00	0.08	0.00	0.00	0.05	0.00	0.00	0.28	0.00	0.03	
Cr ₂ O ₃	0.13	0.15	0.02	0.14	0.00	0.00	0.07	0.00	0.00	0.13	0.11	0.14	0.08	0.07	0.03	
CaO	0.12	0.09	0.01	0.00	0.06	0.14	0.07	0.09	0.00	0.00	0.06	0.03	0.03	0.00	0.00	
Na ₂ O	0.15	0.19	0.21	0.12	0.20	0.37	0.21	0.13	0.07	0.15	0.15	0.38	0.31	0.19	0.30	
K ₂ O	9.18	8.84	8.66	9.22	8.02	7.93	8.64	8.55	9.06	9.39	8.52	9.76	9.20	8.95	8.66	
Total	94.94	94.91	93.53	93.88	93.56	93.50	94.05	95.65	95.04	94.97	94.60	94.57	93.69	93.82	94.16	

Atomic proportion based on O ₂₀ (OH) ₄															
Si	5.56	5.58	5.55	5.58	5.59	5.58	5.57	5.55	5.57	5.60	5.58	5.70	5.51	5.54	5.55
Al	3.28	3.24	3.32	3.30	3.24	3.30	3.28	3.24	3.18	3.09	3.24	2.57	3.32	3.27	3.38
Ti	0.24	0.25	0.24	0.22	0.20	0.17	0.22	0.22	0.21	0.24	0.19	0.15	0.15	0.15	0.15
Fe	2.33	2.39	2.42	2.27	2.32	2.22	2.32	2.41	2.41	2.34	2.23	1.21	2.24	2.24	2.30
Mg	2.19	2.15	2.12	2.25	2.39	2.48	2.26	2.33	2.39	2.39	2.51	4.24	2.45	2.56	2.31
Mn	0.01	0.01	0.01	0.01	0.02	0.00	0.01	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.04	0.00	0.00
Cr	0.02	0.02	0.00	0.02	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.02	0.01	0.02	0.01	0.01	0.00
Ca	0.02	0.01	0.00	0.00	0.01	0.03	0.01	0.01	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00
Na	0.05	0.06	0.06	0.03	0.06	0.11	0.06	0.04	0.02	0.04	0.04	0.11	0.09	0.06	0.09
K	1.77	1.83	1.70	1.80	1.56	1.54	1.70	1.64	1.75	1.82	1.64	1.83	1.80	1.74	1.68
Int. Total ²	1.84	1.90	1.76	1.83	1.63	1.68	1.77	1.69	1.77	1.86	1.69	1.94	1.90	1.80	1.77
Oct. Total ³	5.62	5.64	5.67	5.64	5.77	5.75	5.68	5.76	5.75	5.68	5.76	5.88	5.72	5.77	5.70

Sample #	biotite zone				garnet zone											
	1220	1220	1220	Ave	1203	1203	1203	1203	1203	1203	1203	1203	1203	1203		
Analysis #	76	79	90	Ave	110	111	112	113	114	115	116	117	118	120	Ave	
Oxide wt. percent																
SiO ₂	36.77	36.67	38.08	36.93	36.21	36.42	36.65	37.59	36.73	36.63	37.16	36.56	35.43	36.25	36.56	
Al ₂ O ₃	17.19	17.36	18.18	17.71	18.45	18.92	19.15	19.19	19.10	18.55	18.39	19.19	18.70	18.41	18.81	
TiO ₂	2.55	2.26	2.11	1.81	1.53	1.31	1.63	1.73	1.78	1.67	1.71	1.98	1.29	1.30	1.59	
FeO	18.78	19.62	17.80	17.60	17.02	17.22	17.12	16.84	17.04	17.58	16.98	17.12	16.55	16.19	16.97	
MgO	9.55	9.35	9.63	11.15	11.60	11.92	11.85	11.38	11.37	11.36	11.22	11.52	11.09	11.32	11.46	
MnO	0.25	0.00	0.18	0.07	0.11	0.11	0.08	0.00	0.19	0.18	0.19	0.28	0.20	0.15	0.15	
Cr ₂ O ₃	0.11	0.12	0.00	0.07	0.00	0.00	0.00	0.09	0.00	0.10	0.00	0.00	0.13	0.05	0.04	
CaO	0.11	0.18	0.17	0.06	0.00	0.00	0.00	0.05	0.09	0.01	0.00	0.08	0.00	0.00	0.02	
Na ₂ O	0.02	0.17	0.35	0.20	0.38	0.38	0.42	0.28	0.33	0.22	0.19	0.25	0.48	0.40	0.33	
K ₂ O	8.47	8.25	7.65	8.77	9.16	9.18	9.25	9.42	9.22	9.23	9.14	9.21	9.16	8.99	9.20	
Total	94.39	93.98	94.15	94.46	94.47	95.44	96.14	96.58	95.83	95.53	94.97	96.19	93.01	93.06	95.12	

Atomic proportion based on O ₂₀ (OH) ₄															
Si	5.63	5.62	5.73	5.60	5.49	5.46	5.45	5.54	5.48	5.50	5.58	5.44	5.46	5.55	5.49
Al	3.10	3.14	3.22	3.16	3.30	3.34	3.36	3.34	3.36	3.28	3.26	3.36	3.40	3.32	3.33
Ti	0.29	0.26	0.24	0.21	0.18	0.15	0.18	0.19	0.20	0.19	0.19	0.22	0.15	0.15	0.18
Fe ¹	2.41	2.51	2.24	2.23	2.16	2.16	2.13	2.08	2.13	2.21	2.13	2.13	2.13	2.03	2.13
Mg	2.18	2.14	2.16	2.51	2.62	2.67	2.63	2.50	2.53	2.54	2.51	2.55	2.55	2.58	2.57
Mn	0.03	0.00	0.02	0.01	0.01	0.01	0.01	0.00	0.02	0.02	0.02	0.04	0.03	0.02	0.02
Cr	0.01	0.02	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.01	0.00	0.00	0.02	0.01	0.00
Ca	0.02	0.03	0.03	0.01	0.00	0.00	0.00	0.01	0.01	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00
Na	0.01	0.05	0.10	0.06	0.11	0.11	0.12	0.08	0.10	0.06	0.06	0.07	0.14	0.12	0.10
K	1.66	1.61	1.47	1.69	1.77	1.76	1.76	1.77	1.75	1.77	1.75	1.75	1.80	1.76	1.76
Int. Total ²	1.68	1.69	1.60	1.76	1.88	1.87	1.88	1.86	1.86	1.83	1.81	1.83	1.94	1.88	1.86
Oct. Total ³	5.66	5.68	5.61	5.72	5.75	5.79	5.75	5.66	5.71	5.75	5.70	5.74	5.72	5.66	5.72

1. All Fe is analyzed as Fe²⁺.
 2. Total interlayer cation (K+Na+Ca) ; 2.0 for stoichiometric biotite.
 3. Total octahedral cation (Fe+Mg+Ti+Mn+Cr+oct. Al) ; 6.0 for stoichiometric biotite.

Phyllosilicate Intergrowth/Interlayer

Table 4. EPMA analysis data for muscovite (mixed-phase).

Sample #	chlorite zone							biotite zone					
	1249	1249	1249	1501	1501	1501	Ave	1124	1331	1331	1331	1220	1220
Analysis #	1	2	6	26	27	32	Ave	33	52	66	68	81	83
Oxide wt. percent													
SiO ₂	45.77	46.39	46.27	46.07	45.18	46.44	46.02	45.47	45.16	45.38	42.24	46.58	47.31
Al ₂ O ₃	32.63	32.55	31.71	34.03	33.10	33.05	32.85	32.97	34.72	34.32	27.58	29.96	30.85
TiO ₂	0.90	0.49	1.35	0.29	0.41	0.69	0.69	0.24	0.35	0.57	0.64	1.19	1.17
FeO	1.99	2.20	1.37	1.24	1.27	1.45	1.59	1.55	0.78	1.25	8.14	3.26	3.28
MgO	1.08	1.29	1.06	0.83	0.74	0.82	0.97	0.56	0.47	0.41	4.56	1.36	1.31
MnO	0.00	0.00	0.00	0.16	0.00	0.00	0.03	0.00	0.00	0.00	0.12	0.02	0.00
Cr ₂ O ₃	0.00	0.16	0.00	0.08	0.03	0.09	0.06	0.08	0.02	0.00	0.07	0.00	0.16
CaO	0.00	0.05	0.00	0.08	0.00	0.04	0.03	0.00	0.00	0.04	0.08	0.00	0.00
Na ₂ O	0.00	0.00	0.00	0.33	0.39	0.00	0.12	0.00	0.77	0.00	0.00	0.00	0.00
K ₂ O	9.28	9.06	8.92	8.77	9.01	8.62	8.94	10.27	8.39	9.16	5.54	9.01	9.22
Total	91.65	92.17	90.68	91.79	90.15	91.19	91.27	91.15	90.65	91.13	88.97	91.39	93.32
Atomic proportion based on O ₂₀ (OH) ₄													
Si	6.30	6.35	6.40	6.29	6.30	6.37	6.33	6.32	6.22	6.25	6.13	6.47	6.44
Al	5.30	5.25	5.17	5.48	5.44	5.34	5.33	5.40	5.64	5.57	4.72	4.91	4.95
Ti	0.09	0.05	0.14	0.03	0.04	0.07	0.07	0.03	0.04	0.06	0.07	0.12	0.12
Fe ¹	0.23	0.25	0.16	0.14	0.15	0.17	0.18	0.18	0.09	0.14	0.99	0.38	0.37
Mg	0.22	0.26	0.22	0.17	0.16	0.17	0.20	0.12	0.10	0.08	0.99	0.28	0.27
Mn	0.00	0.00	0.00	0.02	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.02	0.00	0.00
Cr	0.00	0.02	0.00	0.00	0.00	0.01	0.01	0.01	0.00	0.00	0.01	0.00	0.02
Ca	0.00	0.01	0.00	0.01	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.01	0.01	0.00	0.00
Na	0.00	0.00	0.00	0.09	0.11	0.00	0.03	0.00	0.20	0.00	0.00	0.00	0.00
K	1.63	1.59	1.57	1.53	1.60	1.51	1.57	1.82	1.47	1.61	1.03	1.60	1.60
Int. Total ²	1.63	1.59	1.57	1.63	1.71	1.51	1.61	1.82	1.68	1.61	1.04	1.60	1.60
Oct. Total ³	4.14	4.17	4.09	4.12	4.09	4.13	4.12	4.05	4.08	4.10	4.92	4.16	4.16

Sample #	biotite zone										garnet zone		
	1220	1220	1220	1220	1220	1220	1136	1136	1136	1136	Ave	1203	1203
Analysis #	85	86	87	92	93	94	99	100	103	104	Ave	123	126
Oxide wt. percent													
SiO ₂	46.55	46.53	46.56	46.75	47.40	47.15	46.11	45.91	46.40	46.37	46.12	46.07	45.62
Al ₂ O ₃	30.09	30.01	30.28	31.17	30.67	30.47	35.42	34.36	34.90	34.68	32.03	34.06	33.90
TiO ₂	1.47	1.26	1.43	1.29	1.65	1.61	0.57	0.53	0.42	0.42	0.93	0.78	0.58
FeO	3.23	3.65	3.68	2.42	3.72	3.62	0.97	0.71	0.91	0.80	2.62	1.44	1.39
MgO	1.38	1.22	1.39	1.24	1.39	1.22	0.43	0.41	0.45	0.32	1.13	0.51	0.41
MnO	0.14	0.08	0.08	0.00	0.00	0.05	0.09	0.00	0.00	0.00	0.04	0.06	0.00
Cr ₂ O ₃	0.00	0.00	0.11	0.00	0.00	0.04	0.00	0.12	0.00	0.00	0.04	0.14	0.14
CaO	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.03	0.00	0.00	0.03	0.00	0.01	0.00	0.00
Na ₂ O	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	1.07	0.61	0.00	0.74	0.20	0.73	0.03
K ₂ O	9.22	9.30	9.22	9.12	9.25	9.10	7.16	7.41	8.81	7.74	8.62	8.68	9.78
Total	92.10	92.06	92.75	91.98	94.09	93.30	91.81	90.06	91.92	91.06	91.73	92.48	91.85
Atomic proportion based on O ₂₀ (OH) ₄													
Si	6.43	6.44	6.40	6.42	6.41	6.43	6.23	6.31	6.29	6.32	6.34	6.53	6.26
Al	4.90	4.90	4.91	5.04	4.89	4.90	5.64	5.57	5.58	5.57	5.19	5.45	5.49
Ti	0.15	0.13	0.15	0.13	0.17	0.17	0.06	0.06	0.04	0.04	0.10	0.08	0.06
Fe ¹	0.37	0.42	0.42	0.28	0.42	0.41	0.11	0.08	0.10	0.09	0.30	0.16	0.16
Mg	0.28	0.25	0.29	0.25	0.28	0.25	0.09	0.09	0.09	0.07	0.24	0.10	0.08
Mn	0.02	0.01	0.01	0.00	0.00	0.01	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00
Cr	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.02	0.02
Ca	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Na	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.28	0.16	0.00	0.20	0.05	0.19	0.01
K	1.63	1.64	1.62	1.60	1.60	1.58	1.23	1.30	1.52	1.35	1.51	1.50	1.71
Int. Total ²	1.63	1.64	1.62	1.60	1.60	1.59	1.52	1.46	1.53	1.54	1.57	1.70	1.72
Oct. Total ³	4.16	4.16	4.18	4.13	4.17	4.16	4.14	4.11	4.11	4.09	4.18	4.35	4.07

1, 2 and 3. Same abbreviations as in Table 2 are used.

Table 5. EPMA analysis data for biotite (mixed-phase).

Sample#	chlorite zone								biotite zone		
	1249	1249	1249	1249	1249	1501	1501		1331	1331	1331
Analysis #	4	7	11	14	17	20	28	Ave	50	51	71
Oxide wt. percent											
SiO ₂	35.47	35.39	35.42	35.83	32.62	36.09	35.35	35.17	38.47	36.86	43.70
Al ₂ O ₃	17.59	18.33	18.04	17.94	16.33	17.64	18.13	17.71	20.55	18.12	18.86
TiO ₂	2.15	1.96	2.12	1.73	2.06	1.60	1.41	1.86	1.64	1.78	1.30
FeO	17.90	19.25	18.24	17.87	18.02	17.99	16.56	17.98	16.31	15.89	18.37
MgO	9.31	9.39	9.29	9.30	8.38	11.14	10.07	9.55	10.03	10.60	11.31
MnO	0.00	0.00	0.18	0.00	0.00	0.06	0.31	0.08	0.00	0.23	0.00
Cr ₂ O ₃	0.15	0.08	0.00	0.00	0.02	0.00	0.00	0.04	0.04	0.00	0.11
CaO	0.00	0.00	0.00	0.00	0.05	0.31	0.06	0.06	0.10	0.00	0.03
Na ₂ O	0.14	0.20	0.17	0.05	0.27	0.21	0.26	0.19	0.27	0.05	0.32
K ₂ O	9.13	8.13	8.78	8.47	8.17	7.34	8.95	8.42	8.49	8.25	6.61
Total	91.84	92.73	92.20	91.19	85.91	92.38	91.98	91.18	95.89	91.75	91.87
Atomic proportion based on O ₂₀ (OH) ₄											
Si	5.56	5.49	5.53	5.62	5.51	5.57	5.56	5.55	5.64	5.67	5.41
Al	3.25	3.35	3.32	3.32	3.25	3.21	3.36	3.29	3.55	3.29	3.44
Ti	0.25	0.25	0.25	0.21	0.26	0.19	0.17	0.22	0.18	0.20	0.15
Fe ¹	2.35	2.50	2.38	2.35	2.54	2.32	2.18	2.37	2.00	2.04	2.38
Mg	2.18	2.17	2.16	2.18	2.11	2.56	2.36	2.24	2.19	2.43	2.61
Mn	0.00	0.00	0.02	0.00	0.00	0.01	0.04	0.01	0.00	0.03	0.00
Cr	0.02	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.01
Ca	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.05	0.01	0.01	0.02	0.00	0.00
Na	0.04	0.06	0.05	0.01	0.09	0.06	0.08	0.06	0.08	0.01	0.10
K	1.83	1.83	1.75	1.70	1.76	1.44	1.79	1.73	1.59	1.62	1.30
Int. Tot. ²	1.87	1.89	1.80	1.71	1.86	1.56	1.88	1.79	1.68	1.63	1.40
Oct. Tot. ³	5.61	5.79	5.66	5.66	5.67	5.84	5.66	5.70	5.56	5.66	6.01

Sample#	biotite zone								garnet zone		
	1331	1220	1220	1220	1220	1220	1220		1203	1203	
Analysis #	72	77	78	80	88	89	91	Ave	119	109	Ave
Oxide wt. percent											
SiO ₂	35.68	36.83	35.67	35.81	34.86	35.16	36.16	36.92	35.90	36.22	36.06
Al ₂ O ₃	17.82	17.38	16.51	19.26	15.58	17.05	17.41	17.85	19.02	18.03	18.52
TiO ₂	1.31	2.29	2.46	1.80	2.26	2.31	2.67	1.98	1.36	1.15	1.25
FeO	17.48	18.62	18.22	17.66	18.47	19.72	18.46	17.92	16.38	15.09	15.74
MgO	10.97	8.86	9.11	8.25	9.13	8.90	9.16	9.63	10.61	11.13	10.87
MnO	0.35	0.02	0.28	0.25	0.03	0.13	0.13	0.14	0.32	0.23	0.27
Cr ₂ O ₃	0.02	0.13	0.00	0.04	0.15	0.08	0.00	0.06	0.00	0.17	0.08
CaO	0.00	0.21	0.10	0.13	0.12	0.10	0.25	0.10	0.00	0.00	0.00
Na ₂ O	0.32	0.33	0.24	0.16	0.12	0.24	0.14	0.22	0.35	0.52	0.44
K ₂ O	8.61	7.41	8.31	6.65	8.62	8.00	7.56	7.85	8.97	8.74	8.86
Total	92.45	92.09	90.90	90.02	89.29	91.70	91.93	91.79	92.92	92.07	92.50
Atomic proportion based on O ₂₀ (OH) ₄											
Si	5.53	5.70	5.65	5.62	5.65	5.55	5.62	5.60	5.51	5.60	5.55
Al	3.26	3.17	3.08	3.56	2.98	3.17	3.19	3.27	3.44	3.28	3.36
Ti	0.15	0.27	0.29	0.21	0.28	0.27	0.31	0.23	0.16	0.13	0.15
Fe ¹	2.27	2.41	2.41	2.32	2.50	2.60	2.40	2.33	2.10	2.06	2.08
Mg	2.54	2.05	2.15	1.93	2.21	2.09	2.12	2.23	2.43	2.56	2.50
Mn	0.03	0.00	0.04	0.03	0.00	0.02	0.02	0.02	0.04	0.03	0.04
Cr	0.00	0.02	0.00	0.01	0.02	0.01	0.00	0.01	0.00	0.02	0.01
Ca	0.00	0.04	0.02	0.02	0.02	0.02	0.04	0.02	0.00	0.00	0.00
Na	0.10	0.10	0.07	0.05	0.04	0.07	0.04	0.06	0.10	0.16	0.13
K	1.70	1.46	1.68	1.33	1.78	1.61	1.50	1.56	1.76	1.72	1.74
Int. Tot. ²	1.80	1.60	1.77	1.40	1.84	1.70	1.58	1.64	1.86	1.88	1.87
Oct. Tot. ³	5.78	5.62	5.62	5.68	5.64	5.72	5.66	5.70	5.68	5.68	5.68

1, 2 and 3. Same abbreviations as in Table 3 are used.

의한 것일 가능성이 있다. Biotite의 분석값에서 oxide total 93wt% 이하인 경우와 octahedral 양이온의 합이 5.60 이하인 경우는 interlayer의 정도가 심한 경우로 보아 편의상 별도로 (Table 5) 취급하였다. 즉 biotite가 chlorite와 섞인 경우에는 oxide total과 interlayer 양이온의 합이 낮아지게 되며 muscovite와 섞이는 경우에는 octahedral 양이온의 합이 적어지고 pyrophyllite와 섞이는 경우에는 octahedral 양이온과 interlayer 양이온의 합이 모두 낮아진다. Biotite는 변성 정도가 증가함에 따라 Mg가 증가(2.26에서 2.57)하며 Fe가 감소(2.32에서 2.13)하여 chlorite와 같은 추세를 보여준다 (Table 3). 작은 크기로 interlayer된 지점(예, Fig. 3b의 C/B지역)에서의 분석값은 특징적으로 interlayer된 두 광물의 중간 화학조성을 잘 나타낸다 (Table 4, 5).

BSE Image 관찰

Back Scattered Electron(BSE) image는 광물을 구성하는 원소의 원자번호에 따라 서로 다른 contrast를 나타내며 biotite, chlorite 및 muscovite는 각각 밝게, 중간정도 및 어두운 상으로 나타나서 서로 식별된다 (Fig. 3). Chlorite zone 암석에서는 주로 C/M이 관찰되며(BSE image), C/M은 biotite zone에서는 감소한 것으로 보인다 (Fig. 3a). Biotite zone 변성암에 있는 biotite는 cleavage 방향을 따라 $0.1\mu\text{m}$ 이하의 chlorite와 interlayer되어 있으며 이러한 현상은 biotite 입자 전체에 걸쳐 고르게 분포되어 있다 (Fig. 3a). 한편 Fig. 3a에서 biotite의 가장자리에는 chlorite가 비교적 두껍고 나란하게 intergrow되어 있으며 그 아래쪽에는 $10\sim 15\mu\text{m}$ 두께의 chlorite가 10° 정도 기울어져서 약 $5\sim 15\mu\text{m}$ 두께의 muscovite와 intergrow되어 있다. 한편 이 chlorite 입자 내에는 muscovite의 interlayer(C/M, cleavage와 나란한 어두운 contrast를 보이는 부분, 아래로 향한 화살 머리)가 일부 관찰된다. Garnet zone 암석에서도 C/B가 관찰되나 biotite zone 암석에 비해서 빈도는 감소하고 폭은 증가하였다 (Fig. 3b). 이것은 garnet zone에서는 biotite zone에서보다 chlorite와 biotite의 분리가 더

진행된 것으로 보인다. Garnet zone에서 chlorite는 균질한 입자로 나타난다 (Fig. 3b).

TEM 관찰

TEM lattice fringe image 관찰에 의해서는 d_{001} 의 크기에 따라서 chlorite(14\AA), muscovite 및 biotite(10\AA) 그리고 serpentine 및 kaolinite(7\AA)를 서로 식별할 수 있으며 이들 001 lattice fringe의 두께는 Selected Area Electron Diffraction(SAED) pattern의 00l 회절선 간격에 의해서 정확히 계산될 수 있다 (Figs. 4a, b 및 c). 다만 muscovite(10.08\AA)와 biotite(10.15\AA)는 거의 같은 약 10\AA 의 d_{001} 값을 가지므로 lattice fringe image 만으로는 구별할 수 없고 STEM 분석에 의해서만 (muscovite는 high Al, low Mg, Fe; biotite는 low Al, high Mg, Fe) 식별할 수 있으나 이번 연구에서는 STEM 분석은 실시하지 않았다. Chlorite zone에서 10\AA mica와 14\AA chlorite는 흔히 random하게 개별 layer 단위로 interlayer되어 나타나며 7\AA serpentine layer도 chlorite layer와 함께 관찰된다 (Fig. 4a). 7\AA serpentine layer는 약 200\AA 두께의 독립된 packet으로 나타나기도 한다. Biotite zone에서는 7\AA serpentine layer는 관찰되지 않고 14\AA chlorite layer가 10\AA mica 내에 개별 layer 단위로 interlayer되어 나타나며 그 빈도가 chlorite zone에 비해 감소한다 (Fig. 4b). Garnet zone에서는 chlorite 입자 내에 10\AA mica(biotite) layer가 수십 내지 수백 \AA 크기로 interlayer되어 나타나며 10\AA 과 14\AA 경계에서는 결정구조의 차이(mica와 chlorite의 결정구조 차이)에 의한 layer의 변형이 관찰된다 (Figs. 4c, d).

토의 및 종합

이질암의 속성작용에서 나타나는 muscovite (또는 illite), serpentine 및 chlorite사이의 interlayering은 chlorite zone이상의 변성작용에 의해서 독립된 muscovite와 chlorite 입자로 분리되는 것으로 생각되었으나 (Lee et al., 1984) 저급 변성암에는 C/M이 상당 부분 개별 layer 단위로 남아 있으며 (Fig. 4a) 7\AA serpentine layer도 관찰된다. C/M은 biotite

zone에서도 관찰되지만 그 양은 감소한다. Table 2와 4에서 muscovite의 interlayer 양이온의 함은 변성도와 함께 증가하고 Table 2에서 muscovite의 octahedral 양이온의 함이 감소하는 것은 이러한 변화를 뒷받침한다. 또한 Fig. 3에서 biotite zone의 muscovite는 chlorite zone에서보다 균질한 입자를 보여준다. Biotite는 변성작용에서의 광물반응에 의해 chlorite 입자 내에서 생성되고 점차 chlorite와 분리되어 (Fig. 4c) 균질한 단일 biotite 결정체를 만드는 것으로 보이며 이러한 과정에서 C/B(Fig. 4c에서의 C/Mi)를 형성한다 (Figs. 3a, b 및 4d). 변성 니질암에 형성된 C/M(chlorite zone)과 C/B(biotite zone과 garnet zone)는 EPMA 분석에서 이들 광물의 분석값이 stoichiometry에서 크게 벗어나는 결과를 초래한다. 이와 같은 연구 결과는 이들 광물이 변성작용에서 평형상태의 반응에 의해 균질한 입자로 생성된다는 과거의 연구와는 상반된다. 즉 phyllosilicate광물은 chlorite zone의 변성작용에서 C/M과 같은 불균질한 mixture 상태를 거쳐서 chlorite와 muscovite의 비교적 균질한 입자(엄밀한 의미에서는 아직도 불균질 하다)로 전이하며 biotite zone에서는 chlorite와 biotite의 mixture 상태(C/B)를 거쳐서 균질한 chlorite와 biotite입자로 분리된다. 이와 같은 현상은 변성작용에서 일어나는 광물반응이 최소한 부분적으로는 비평형상태에서 일어난다는 것을 말해주며 온도와 압력의 증가에 따라 균질한 입자로 점진적으로 변한다는 것을 의미한다.

사 사

이 연구를 위해 실험기기 사용에 협조해 주신 고려대학교 지질학과 최선규 교수와 서울대학교 금속공학과 이후철 교수께 감사드린다. 이 논문은 1993년도 한국학술진흥재단의 공모과제 연구비에 의하여 연구되었으며 부분적으로 전략광물자원연구센터에 의해 지원되었다.

참고 문헌

- 김용희 (1992) 진안분지 세일에서 산출되는 점토 광물에 대한 광물학적 연구. 전북대학교 지구과학과 석사학위 논문, p. 59.
- 박은실 (1994) 진안분지 사암에서의 Phyllosilicate에 대한 광물학적 연구. 전북대학교 지구과학과 석사학위 논문, p. 69.
- 백지혜 (1994) 옥천대 서남단 변성암에서 산출되는 Layer Silicate에 대한 광물학적 연구. 전북대학교 지구과학과 석사학위 논문, p. 72.
- 오창환, 김선태, 이정후 (1995) 옥천변성대 남서부 지역에서의 변성 진화과정. 대한지질학회지, 31, 21-31.
- 이영부 (1993) 직운산층과 만항층의 속성 및 변성작용에 대한 광물학적 연구; EPMA, TEM 연구. 전북대학교 지구과학과 석사학위 논문, p. 59.
- Ahn, J. H. and Peacor, D. R. (1986) Transmission and analytical electron microscopy of the smectite to illite transition. *Clays and Clay Minerals*, 34, 165-179.
- Deer, W.A., Howie, G.A. and Zussman, J. (1962) Introduction to the rock forming minerals; vol. 3, Sheet silicate. New York, John Wiley and Sons Inc, p. 270.
- Jiang, W. T., Essene, E. J. and Peacor, D. R. (1990) Transmission electron microscopic study of coexisting pyrophyllite and muscovite: Direct evidence for the metastability of illite. *Clays and Clay Minerals*, 38, 225-240.
- Lee, J. H., Peacor, D. R., Lewies, D. D. and Wintsch, R. P. (1984) Chlorite-illite/muscovite inter-layered and interstratified crystals; A TEM/STEM study. *Contrib. Min. Petrol.*, 88, 372-385.
- Lee, J. H. Ahn, J. H. and Peacor, D. R. (1985) Textures in layered silicates: Progressive changes through diagenesis and low temperature metamorphism. *Jour. Sed. Petrol.*, 55, 532-540.