

## 회장암 풍화과정에서 생성되는 할로이사이트 입자 및 집합체의 형태

### Morphology of Halloysite Particles and Aggregates in the Weathering of Anorthosite

정기영 (Gi Young Jeong)\* · 김영호 (Young Ho Kim)\*\*

\*안동대학교 지질학과

(Department of Geology, Andong National University, Andong 760-749, Korea)

\*\*경상대학교 지질학과

(Department of Geology, Gyeongsang National University, Chinju 660-701, Korea)

**요약** : 산청 고령토의 주요 구성 광물인 할로이사이트 입자 및 집합체의 발달과정을 추적하기 위하여 회장암 초기 풍화물에 대한 주사전자현미경 분석을 실시하였다. 할로이사이트는 풍화 최초 시기에 짧은 관상 또는 구상의 입자로 사장석 표면에 침전되어 구형의 조밀한 집합체를 형성한다. 여러개의 구형 집합체는 성장함에 따라 서로 결합되어 평탄한 집합체를 거쳐 주름상 집합체를 형성한다. 한편 구형 집합체의 짧은 관상 또는 구상 할로이사이트 입자들은 길게 신장되어 긴 관상 할로이사이트의 쉘단상 집합체를 형성한다. 할로이사이트 입자의 형태 변화는 풍화의 진행에 따른 용액의 과포화도 변화에 기인하며 할로이사이트 집합체의 형태변화를 야기시키는 것으로 해석되었다.

**ABSTRACT** : Early weathering products of anorthosite were investigated by using scanning electron microscopy in order to trace the development of halloysite particles and aggregates. Tiny short tubes or spheres precipitate on the plagioclase surface in the initial stage of weathering and form the compact globular aggregates. With continued growth, several globules are coalesced into wrinkled halloysite aggregates, and short tubes or spheres in globules grow into long tubes forming sheaf-like aggregates. Particle shape of halloysite varies with changing supersaturation degree of weathering solution, and determines the morphology of halloysite aggregates.

#### 서 론

할로이사이트는 암석의 풍화 산물에서 흔히 발견되는 점토광물로서 구조나 화학조성이 저결정질의 캐올리나이트와 유사하다. 관상 또는 연층상(vermicular)으로 산출되는 캐올리나이트와 달리 할로이사이트는 긴 관상(Honjo et al., 1954; Chukhrov and Zvyagin, 1969; Kohyama et al., 1978), 구

상(Sudo and Yotsumoto, 1977; Kirkman, 1981), 짧은 관상, 침상, 주름상(Tazaki, 1979), 관상(Kunze and Bradley, 1964; Noro, 1986) 등의 매우 다양한 형태로 산출되는 것으로 알려져 있다. 할로이사이트의 다양한 형태는 그것의 생성 환경과도 관련이 있기 때문에 주목을 받고 있다. 예를 들어 구상의 할로이사이트는 화산회의 풍화로 인하여 생성되는 비정질의 알로페인(allophane)으로부터 생

성되며 긴 관상의 할로이사이트는 장석의 풍화과정에서 용액으로부터 침전되어 생성된다 (Nagasawa and Noro, 1987). 또한 할로이사이트는 캐올리나이트와 비교하여 입자 크기가 일반적으로 매우 작기 때문에 입도 분리 실험에서 흔히 가장 작은 입도에 농집되는 경향이 있다 (정기영과 김수진, 1992). 작은 입자 크기로 인하여 다양한 형태의 집합체를 형성하여 고령토의 주요 구조를 형성한다. 할로이사이트는 경남 산청 지역에 분포하는 풍화잔류 고령토의 주요 점토 광물로서 이전의 연구에 의하면 대체로 두께  $0.1\mu\text{m}$  이하의 판 형태를 갖고 있다 (Jeong, 1991; Sang, 1980). 고령토에 함유된 할로이사이트의 산출상 연구는 분산시킨 입자의 투과전자 현미경 관찰이나 원시료의 주사전자 현미경 관찰로 단편적으로 이루어진 바 있으나 대부분 충분히 고령토화된 시료를 대상으로 연구되었기 때문에 회장암의 초기 풍화물에서 잘 관찰되는 할로이사이트 입자나 집합체들의 형태적 발달과정에 관한 체계적인 연구는 미흡하다. 본 연구에서는 회장암의 초기 풍화물에 대한 주사 전자현미경 연구를 실시하여 할로이사이트 입자 및 집합체의 발달 과정을 조사하여 그 결과를 보고하고자 한다.

### 시료 및 실험방법

산청 지역 회장암 풍화 단면의 야외 기재, 조직 및 광물 조성 변화는 정기영 (1992)에 자세히 소개되어 있다. 연구 시료는 경남 산청군 금서면 화계리의 고령토 광산 채굴장에 노출된 할로이사이트질 풍화 단면의 하부로부터 풍화 초기 단계의 시료를 채취하였다. 채굴장내 회장암은 신선한 암석을 찾기 어려울 정도로 깊게 고령토로 변질되었으나 코어스톤 (core stone) 상태의 초기 풍화된 회장암이 단면 하부에 드물게 노출되어 있다. 채취한 시료의 조직과 구성 광물은 원암과 유사하며 상당히 견고하다. 신선한 암석보다는 망치질에 쉽게 파쇄되어 사장석 입자들로 부스러진다. 지름  $1\text{cm}$  정도로 떼어낸 시료의 파편을 상온 건조한 후 주사전자현미경 (Hitachi S2500 Scanning Electron Microscope)으로 관찰하였다. 조직 관찰과 동

시에 장착된 에너지 분산 X-선 분석기 (Kevex Energy Dispersive X-ray Spectrometer)를 이용하여 정성적으로 광물의 화학조성을 분석하였다.

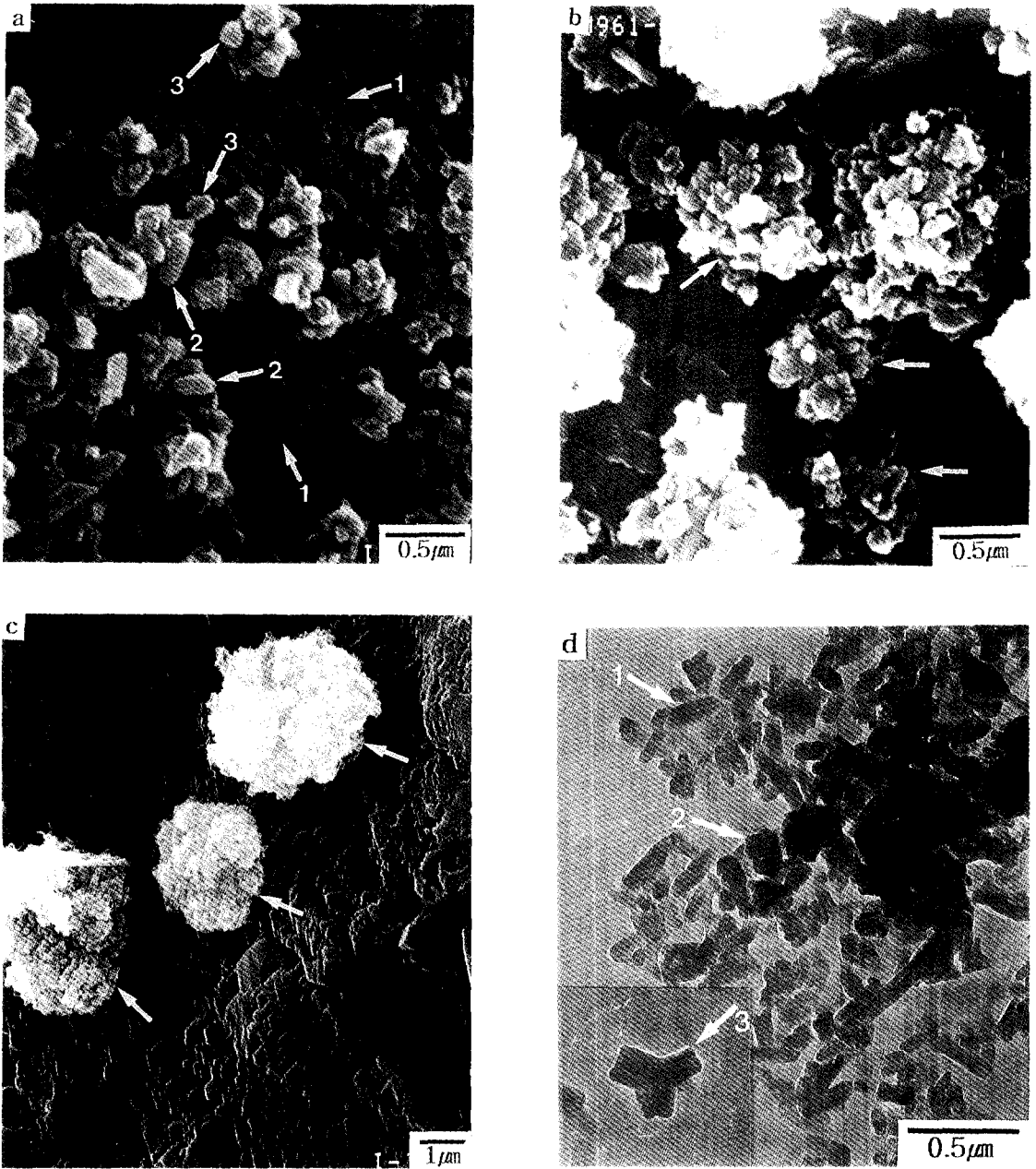
## 결 과

### 구형 집합체

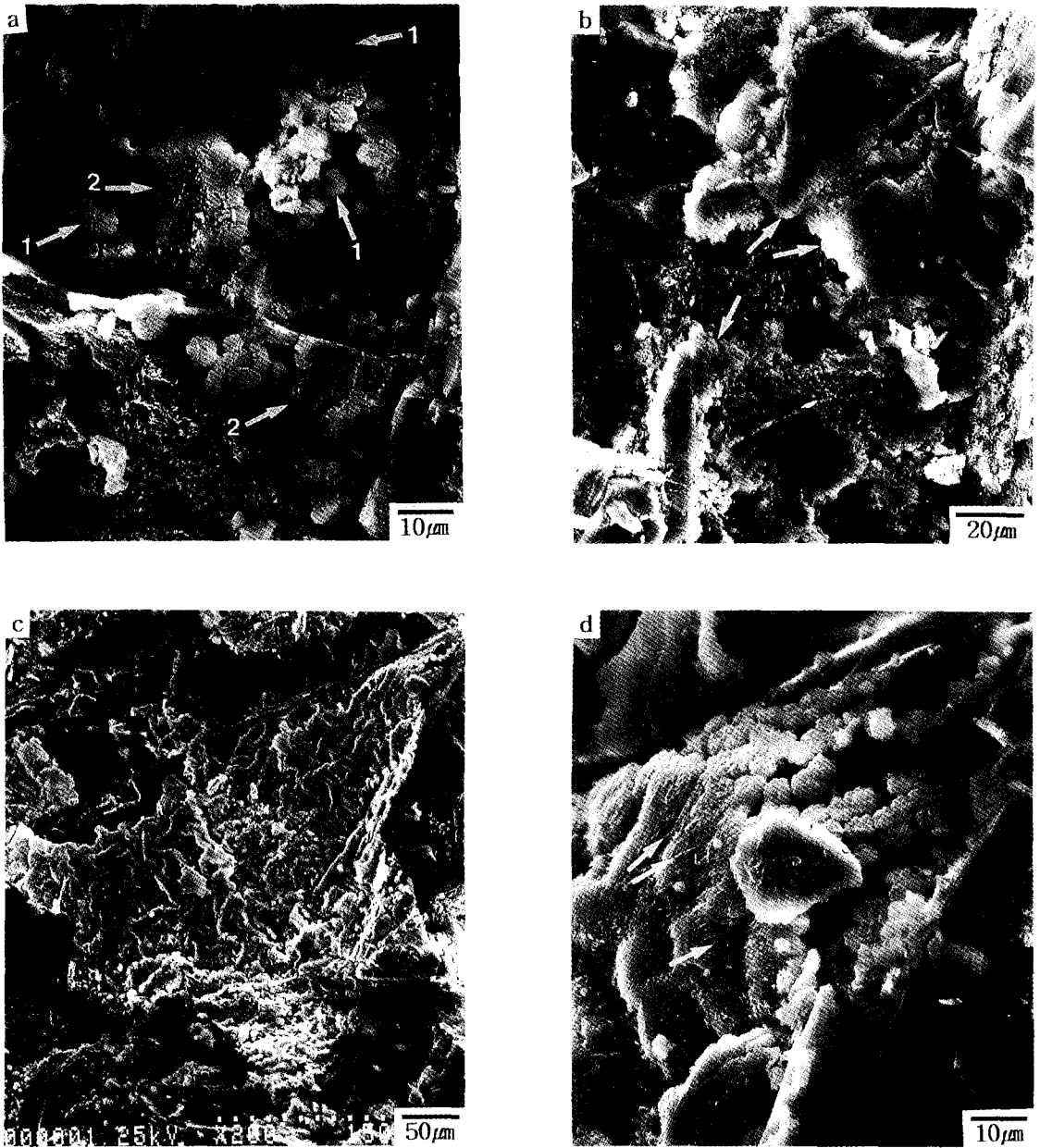
Fig. 1a는 사장석 표면을 피복하고 있는 최초 단계의 할로이사이트 입자들의 형태와 집합상태를 보여준다. 두께  $0.1\sim 0.2\mu\text{m}$  정도인 신장된 타원형 또는 구형 입자들의 집합체들과 그 사이사이에  $0.02\mu\text{m}$  정도인 극미립 할로이사이트 입자들이 사장석 표면에 산점상으로 분포하고 있다. 신장된 타원형 또는 구형 입자들은 단독으로 존재하던 극미립의 입자들이 성장하여 생성된 것이며 입자가 성장함에 따라 기존의 입자 위에 새로운 결정핵들이 형성되면서 새로운 가지들이 생기거나 입자들이 중첩되어 할로이사이트 입자들의 집합체를 형성한다. 이같은 성장이 계속되면 꽃송이 모양의 할로이사이트 집합체들이 형성되며 (Fig. 1b), 결국 Fig. 1c와 같은 짧은 관상 또는 구상 할로이사이트로 구성된 구형 집합체를 형성한다. 구형 집합체의 에너지 분산 X선 분석에 의하면 Al과 Si로만 구성되어 있다. 분산 시료의 투과전자 현미경 관찰에 의하면 비교적 짧은 관상 또는 구상의 입자 형태를 갖고 있으며 몇 개의 가지를 갖는 관상 입자도 관찰된다 (Fig. 1d).

### 주름상 집합체

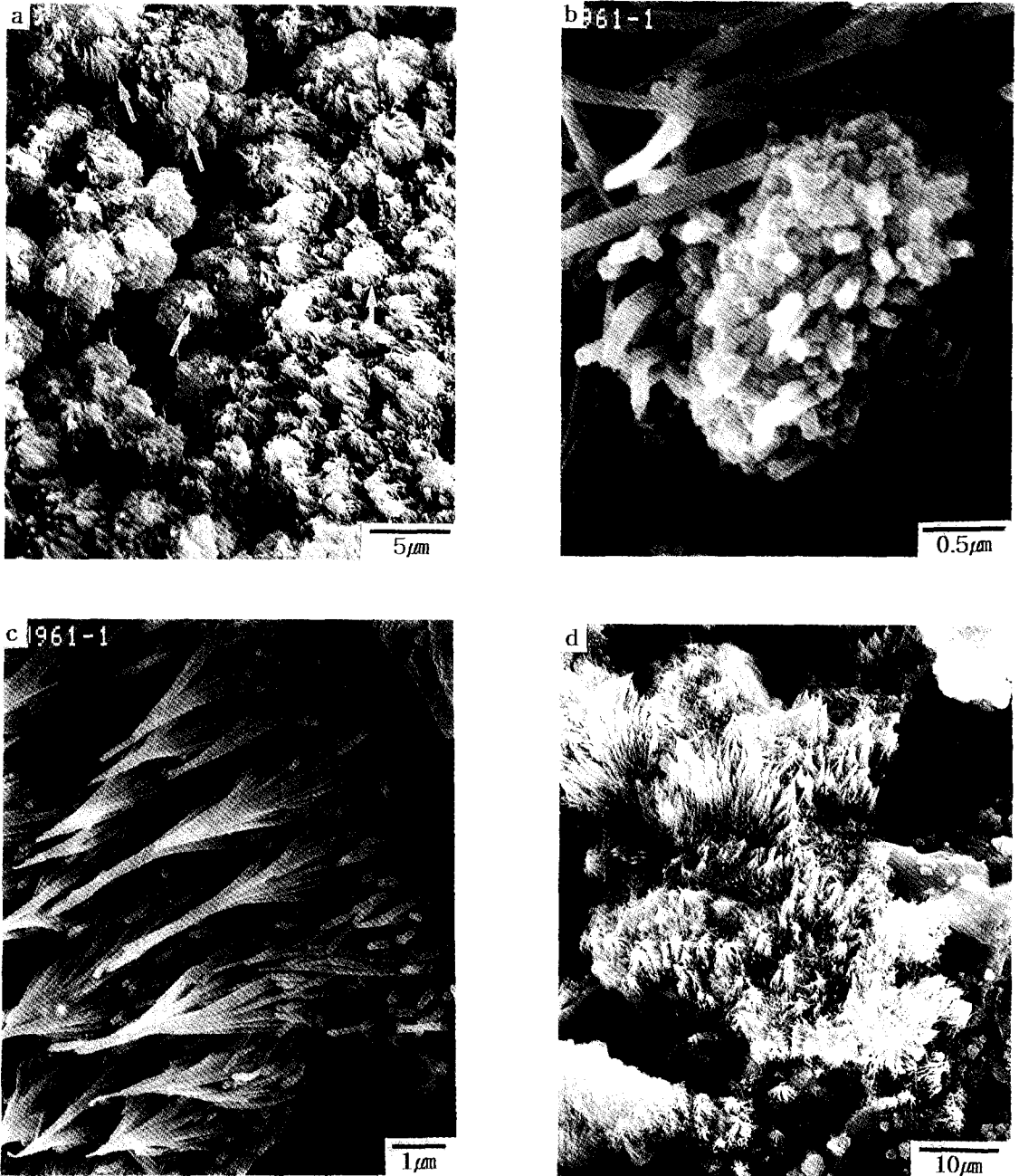
Fig. 2a처럼 구형 집합체가 약  $5\mu\text{m}$  이상 성장하게 되면 서로 결합하여 보다 큰 평탄한 집합체를 형성하기 시작하여 결국 Fig. 2b처럼 사장석 내의 균열 공간을 뺨뺨하게 충전하는 집합체를 형성한다. 이 평탄한 집합체들은 좀더 성장하면 일정한 간격의 능과 골이 생기면서 주름이 잡히게 된다 (Fig. 2c). Fig. 2d에서 구형 집합체들이 결합되어 주름 집합체를 형성하는 과정을 볼 수 있으며 주름상 집합체의 표면에서 긴 관상 할로이사이트들이 성장하고 있음을 관찰할 수 있다.



**Fig. 1.** Electron micrographs of globular halloysite aggregates. (a) Scanning electron micrograph showing primitive halloysite particles (arrow 1) on the plagioclase surface and early aggregates of ellipsoidal (arrow 2) or spherical (arrow 3) halloysite particles. (b) Scanning electron micrograph showing globular aggregates of halloysites (arrows). (c) Scanning electron micrograph showing well-developed globular aggregates of halloysites (arrows). (d) Transmission electron micrograph showing short tubes (arrow 1), spheres (arrow 2), and branching tubes (arrow 3).



**Fig. 2.** Scanning electron micrograph showing the formation of wrinkled halloysite aggregates. (a) Globular aggregates (arrow 1) coalescing into thick planar aggregates (arrow 2). (b) Large thick planar aggregates (arrows). (c) Wrinkled planar aggregates like walnut surface. (d) Enlarged view of lower right part in (c) showing the coalescence of globules into planar aggregate and subsequent wrinkling. Note the long parallel halloysite fibers (arrows) on the wrinkled surfaces.



**Fig. 3.** Scanning electron micrograph showing the formation of sheaf-like halloysite aggregates. (a) Long halloysite tubes (arrows) growing on the globular halloysite aggregates. (b) Long halloysite tubes extending from short tubes or spheres in globular aggregates. (c) Regularly arrayed sheaves composed of long halloysite tubes. (d) Halloysite sheaves on the plagioclase surfaces.

## 짚단상 집합체

구형 집합체가 주름상 집합체로 결합되기 전에 균열이 벌어져 공간이 충분히 확보되면 긴 관상의 할로사이트들이 구형 집합체로부터 자유롭게 성장하는 현상을 관찰할 수 있다 (Fig. 3a). 좀 더 확대한 사진에서는 구형 집합체를 구성하는 짧은 관상 또는 구상 할로사이트 입자들이 한쪽 방향으로 길게 늘어나면서 긴 관상 할로사이트로 성장하는 현상을 볼 수 있다 (Fig. 3b). 0.1  $\mu\text{m}$  정도인 할로사이트 입자의 너비는 긴 관상으로 자라는 과정에서 거의 변화가 없다. 구형 집합체로부터 자라는 할로사이트 관들은 초기에는 독립적으로 성장하다가 약 2 $\mu\text{m}$  이상으로 성장하게 되면 다발로 뭉쳐서 짚단 모양의 집합체를 형성한다 (Fig. 3c, 3d).

## 토의 및 결론

### 할로사이트 입자의 발달과정

회장암 풍화단면에서 생성되는 할로사이트 입자의 형태는 짧은 관상, 구상 → 긴 관상의 순서로 생성된다. 용액에서 정출하는 입자의 형태는 결정격자의 특성과 용액의 과포화도에 민감한 것으로 알려져 있다 (Mullin, 1972). 각 결정면의 표면에너지는 서로 약간씩 다르며 결정은 전체 표면 에너지를 최소화하는 형태로 성장하려는 경향이 있는데 에너지가 큰 면은 더욱 빠른 속도로 자란다. 즉 각면의 성장에 필요한 용액의 과포화도는 각각 다르기 때문에 과포화도가 상대적으로 낮을 경우에는 에너지가 큰 결정면이 선택적으로 빠른 속도로 자라서 대체로 긴 결정 형태를 이루게 되나 (Lewis, 1980), 과포화도가 높은 경우에는 낮은 에너지의 면도 동시에 성장하게 되어 관상 또는 구상의 결정형태를 갖게 된다. 회장암 풍화단면의 할로사이트 형태의 변화는 풍화 용액의 과포화도의 변화를 반영하는 것으로 보인다. 풍화 최초 시기의 회장암은 열극의 간격이 매우 좁아서 풍화용액이 자유롭게 이동할 수 없었을 것이

며 한번 채워진 간극수는 외부 큰 열극의 간극수의 흐름과 상관없이 오랜 정체 상태에 있었을 것이다. 즉 풍화 초기의 매우 좁은 틈에서는 간극수의 이동이 장시간 정체되어 있는 반면에 용해되는 장석으로부터의 이온의 공급은 계속되어 과포화도가 높아지게 되어 짧은 관상 또는 구상의 할로사이트가 생성된다. 그러나 풍화가 진행됨에 따라 사장석의 용해작용에 의하여 좀더 넓어진 틈에서는 비교적 이동이 용이한 간극수가 자주 교환되어 과포화도가 상대적으로 낮아지게 되어 이미 침전된 짧은 관상 또는 구상의 할로사이트들이 긴 관상으로 자라게 된다.

### 할로사이트 집합체의 발달과정

고령토화 초기 시료에서 흔히 발견되는 구형 집합체는 용액 중에 부유하던 할로사이트 입자들이 엉겨붙은 것이 아니라 균열을 통과하는 풍화용액의 Al 및 Si를 소비하며 방사상으로 서서히 성장하여 형성된 것이다. 따라서 구형 집합체를 구성하는 짧은 관상 또는 구상의 할로사이트 입자들은 서로 약간씩 연결되어 있어서 구형 집합체는 상당한 견고성을 갖고 있다. 이와 같은 견고성 때문에 이전의 입도분리 실험에서 할로사이트 집합체들이 초음파 분산 처리를 거친 뒤에도 집합체를 유지하고 있음이 관찰된 바 있다 (정기영, 1992). 최초로 구형 집합체가 생성되는 것은 간극수의 흐름이 비교적 정체되어 있는 풍화 초기의 비좁은 열극에서는 사방으로부터 화학 성분이 균질하게 공급되어 구형으로 성장한 것으로 생각된다. 구형 집합체가 결합되어 큰 집합체를 형성한 뒤에 용액 과포화도의 감소에 따라 집합체 내부의 짧은 관상 또는 구상 입자들이 계속해서 긴 관상 입자로 성장하게 되면 집합체에 주름이 잡히게 된다. 한편 구형 집합체로부터 빈 공간 속으로 길게 자란 관상 할로사이트 입자들은 너비가 0.1 $\mu\text{m}$  정도로 매우 작기 때문에 서로 끌어 당겨 집합체를 이루려는 경향이 있어서 길게 성장하면 짚단상 집합체를 형성한다.

사 사

본 연구는 한국과학재단 핵심전문연구 지원 (KOSEF 951-0404-021-1)과 교육부 기초과학연구소 학술연구조성비 (과제번호 : BSRI-96-5402) 지원에 의하여 수행되었다. 연구비 지원에 감사하는 바이다.

참고 문헌

정기영 (1992) 산청지역 고령토의 광물학적 및 성인적 연구, 서울대학교 박사학위논문.  
정기영, 김수진 (1992) 산청고령토 입도분리 시료들의 광물조성 변화와 그 원인, 한국광물학회지, 5, 22-31.  
Chukhrov, F. V. and Zvyagin, B. B. (1966) Halloysite, a crystallochemically and mineralogically distinct species. Proc. Int. Clay. Conf., Jerusalem 1, 11-25.  
Honjo, G. and Mihama, K. (1954) A study of clay minerals by electron diffraction diagrams due to individual crystallites. Acta Crystallogr. 7, 511-513.  
Kirkman (1981) Morphology and structure of halloysite in New Zealand tephra : Clays Clay Miner. 29, 1-9.  
Kohyama, N., Fukushima, K., and Fukami, A.

(1978) Observation of the hydrated form of tubular halloysite by an electron microscope equipped with an environmental cell : Clays Clay Miner. 26, 25-40.  
Kunze, G. W. and Bradley, W. F. (1964) Occurrence of a tabular halloysite in a Texas soil : Clays Clay Miner. 12, 523-527.  
Lewis, B. (1980) Nucleation and growth theory, in Crystal Growth, B. R. Pamplin ed., Pergamon, Oxford.  
Mullin, J. W. (1972) Crystallization, 2nd ed., Butterworth, London.  
Nagasawa, K. and Noro, H. (1987) Mineralogical properties of halloysites of weathering origin : Chem. Geo. 60, 145-149.  
Noro, H. (1986) Hexagonal platy halloysite in an altered tuff bed, Komaki city, Aichi Prefecture, Central Japan, Clay Miner. 21, 401-415.  
Sudo, T. and Yotsumoto, H. (1977) The formation of halloysite tubes from spherulitic halloysite : Clays Clay Miner. 25, 155-159.  
Tazaki, K. (1979) Micromorphology of halloysite produced by weathering of plagioclase in volcanic ash : Proc. 6th Int. Clay Conf., Oxford, 1978, M. M. Mortland and V. C. Farmer, eds., Elsevier, Amsterdam, 415-422.