

흑운모의 풍화작용에 의한 1:1 점토광물의 형성 메커니즘

Formation Mechanisms of 1:1 Clay Minerals by Biotite Weathering in a Granitic Gneiss

이석훈 (Seok-Hoon Lee)¹ · 김수진 (Soo Jin Kim)²

¹한국기초과학지원연구원 중앙분석기기부

(Division of Analysis & Measurement, Korea Basic Science Institute, Daejeon 305-600, Korea,
E-mail: shlee@kbsi.re.kr)

²서울대학교 지구환경과학부

(Department of Geological Science, Seoul National University, Seoul 151-742, Korea)

요약: 화강암질 편마암의 풍화단면에서 흑운모-질석-캐올리나이트로의 변질과정을 보여주었으나, 지표층으로 가면서 질석 중간 상이 거의 인지되지 않고 흑운모-캐올리나이트 변질과정을 나타낸다. 흑운모의 풍화작용에 의해 생성된 1:1 규산염 층상광물은 캐올리나이트와 할로이사이트이며, 다른 메커니즘에 의해 형성되어 각기 다른 풍화조직을 보여준다. 캐올리나이트화작용은 입자의 가장자리로부터 내부로 진행되었다. 변질과정에서 10 Å의 흑운모 다층과 7 Å의 캐올리나이트 다층이 교호하고 있고, 두 상의 c-축이 일치한다. 변질된 캐올리나이트의 가상은 흑운모 입자의 외곽선에 기준하여 부피의 변화 없이 일정하고, 많은 공극이 벽개면을 따라 발달해 있어 관상의 캐올리나이트는 흑운모와의 1:1의 엽층 대 엽층 교대작용에 의해 형성된 것으로 보인다. 할로이사이트화작용은 흑운모의 엽편들은 보다 얇게 분리되어 벽개면에 수직방향으로 휘어져 렌즈상의 공극을 형성하고, 할로이사이트는 그 가장자리에서 외곽 방향으로 부체모양으로 발달하여 할로이사이트의 가상은 흑운모 입자의 현저한 부피 증가를 초래했다. 관상의 할로이사이트는 사장석의 용해작용에 의한 외부용액으로부터 Si와 Al을 공급받아 흑운모의 표면에 침전되어 성장되었다. 이렇게 형성된 할로이사이트는 비정상적으로 높은 Fe(~11%)를 함유하고 있다.

주요어 : 캐올리나이트, 할로이사이트, 교대작용, 공극, 침전작용

ABSTRACT : Weathering of biotite shows a biotite-vermiculite-kaolinite sequence at the early stage, but presents biotite-kaolinite sequence without a significant intermediate phase (vermiculite) at the late stage from the weathering profile of the granitic gneiss. Secondary 1:1 phyllosilicates are kaolinite and halloysite which show different weathering textures originated by a different formation mechanism. Kaolinitization began from the edges of biotite and propagated toward the interior of grain along a multilayered front. 10 Å layers of biotite are interleaving with 7 Å layers of kaolinite and c-axis of two phases is consistent. Kaolinite pseudomorph of biotite is isovolumetric, compared to the biotite boundary and includes many band-like porosities parallel to the cleavage. Platy kaolinite formed by 1:1 layer for layer replacement of biotite. Halloysitization proceeded outward from the grain edges which were foliated as fine flakes and bent at the right angle for cleavage. Halloysites were extensively fanning out and greatly increased the volume of grain. This indicated that halloysite tubes were formed by epitaxial overgrowth on the surface of biotite

with import of Si and Al from the external solution by dissolution of plagioclase. These halloysites have abnormally high Fe content (~11%).

Key words : kaolinite, halloysite, topotaxial replacement, porosity, epitaxial overgrowth

서 언

흑운모의 풍화작용은 이팔면체 운모에 비해 쉽게 일어나며, 그 풍화과정 및 풍화산물이 주변환경에 따라 복잡하고 다양하다(Wilson, 1970; Gilks and Sudhiprakarn, 1979a, 1979b; Harris *et al.*, 1985a; Banfield and Eggleton, 1988; Churchman and Gilks, 1989; Jeong, 1998). 현재 까지 알려진 흑운모의 일반적인 변질 순서는 흑운모-흑운모/질석흔합층-질석-캐올리나이트이다. 그러나 풍화환경이 산성이고 배수가 양호한 조건 하에서 흑운모 기원의 삼팔면체 질석은 불안정한 중간산물로(Kittrick, 1973) 형성 직후 캐올리나이트로 변질되거나, 흑운모에서 바로 캐올리나이트로 변질되어 토양에서 캐올리나이트가 우세한 이차광물로 남아있으며, 질석은 검출되지 않거나 미량만 존재한다(Novikoff *et al.*, 1972; Eswaran and Heng, 1976; Stoch and Sikaora, 1976; Eswaran and Bin, 1978; Harris *et al.* 1985b; Rebertus *et al.*, 1986).

따라서 흑운모로부터 캐올린 광물의 형성 메커니즘에 많은 관심을 두고 연구되어 왔으며, 그 결과 캐올리나이트의 생성 과정을 대부분 용액으로부터 공급된 원소의 침전작용으로 인한 성장 메커니즘(epitaxial replacement)으로 설명하고(Gilkes and Sudhiprakarn, 1979b; Banfield and Eggleton, 1988; Jeong, 1998), 그 증거로 흑운모의 개별 입자에 대한 캐올리나이트의 가상의 부피증가를 들고 있다. 또 하나의 캐올리나이트 생성 메커니즘은 삼팔면체의 흑운모에 대한 직접 교대작용에 의해 이팔면체 충상광물이 형성되는 변질작용(tpoptaxial replacement)이다(Gilkes and Sudhiprakarn, 1979b; Harris *et al.*, 1985a, 1985b; Rebertus *et al.*, 1986; Banfield and Eggleton, 1988, Dong, *et al.*, 1998). 이러한 두 가지 메커니즘에 의해 형성된 이차광물은 대부분 캐올리나이트이며, 할로이사이트는 아주 드물게 보고되었다(Samotoin *et al.*, 1987). 그러나 상기한 연구들에서 형성 메커니즘과 이

팔면체 1:1 규산염 충상광물에 대한 연구가 부족하여 보다 정밀한 상관관계에 대한 연구가 필요하다.

본 연구는 공주군 유구지역에 분포하는 화강암질 편마암의 풍화단면에서 산출되는 풍화산물 중 흑운모 기원의 캐올리나이트와 할로이사이트의 형성 메커니즘을 정확한 광물동정 및 상호관계, 조직관찰과 형성된 점토의 광물에 대한 화학분석을 통해 규명하고자 한다.

연구시료 및 실험방법

연구시료는 충남 공주군 유구면 일대에 분포하는 화강암질 편마암의 절개지에서(이석훈과 김수진, 2000) 풍화도에 따라 일정한 간격으로 채취된 시료를 대상으로 흑운모의 변질과정을 추적하기 위해 현미경 하에서 흑운모 입자 및 그 풍화산물을 선별 분리하였다. 분리된 입자들을 $15\text{ }\mu\text{m}$ 이하로 분쇄하여 유리기판 위에 정방위 시편을 만들어 X-선 회절분석을 실시하였다. X-선 회절분석은 Rigaku사의 RAD-3 모델을 이용하였다. 분석에는 Cu-target/Ni-filter인 X-선 tube를 사용하였으며, 가속전압 및 전류는 40 kV/ 30 mA이고, 슬릿조건은 $1^\circ \sim 0.15\text{ mm}^{-1}$ 로, 주사속도는 $1^\circ/\text{min}$.로 설정 사용하였다.

흑운모와 풍화산물의 조직을 관찰 및 전자현미분석을 위해 시료를 점성이 낮은 에폭시(Caldofix, Struers)로 진공 하에서 충진시켜 2일에 걸쳐 건조시킨 후 절단하였다. 절단한 표면을 220~4000 mesh의 실리콘카바이드(SiC)판을 이용해 각 단계별로 절삭(grinding)한 다음 최종적으로 $1/4\text{ }\mu\text{m}$ 의 다이아몬드 분말을 이용하여 연마작업을 실시하여 연마박편을 제작하였다.

후방산란전자영상 관찰 및 미소부위 정량화학분석은 Cameca사의 SX-51 전자현미분석기를 이용하였다. 사용한 가속전압 및 전류는 15 kV/ 10 nA이며, 비교적 입자가 큰 경우에는 $5\text{ }\mu\text{m}$ 의 빔 크기로 20초간 측정하였으며, 작은 입자는 5

nA의 전류조건에서 초점 빔 크기(약 1 μm)로 역시 20초간 측정하여 분석하였다. 광물 상호간의 관계 및 광물모양은 충분히 견조시킨 시료의 표면을 금으로 코팅하여 일본 AKASI사의 DS-BOC 모델의 주사전자현미경을 사용하여 관찰하였다.

흑운모의 풍화조직을 총상광물의 격자 단위에서 관찰하고자 후방산란전자현미경으로 관찰된 변질 영역을 이온밀링법을 통해 수십 나노미터의 두께로 박막을 만들어 탄소로 코팅하여 투과전자현미경 관찰을 실시하였다. 구조분석은 한국기초과학지원연구원의 에너지여과투과전자현미경(EFTEM: EM912 Omega, Carl Zeiss)

를 이용했다. 사용한 가속전압/전류조건은 100 kV/10 μA 이다.

결과

X-선 회절분석결과

모암과 풍화층에서 분리한 흑운모와 그 변질 산물에 대한 X-선 회절분석결과를 Fig. 1에 도시하였다. 모암의 흑운모는 소량의 녹니석을 포함하고 있으나 비교적 순수한 조성을 보이며, 10.0 \AA 과 3.34 \AA 위치에서 흑운모의 (001) 및 (003) 회절선이 확인된다. 풍화작용이 진행된

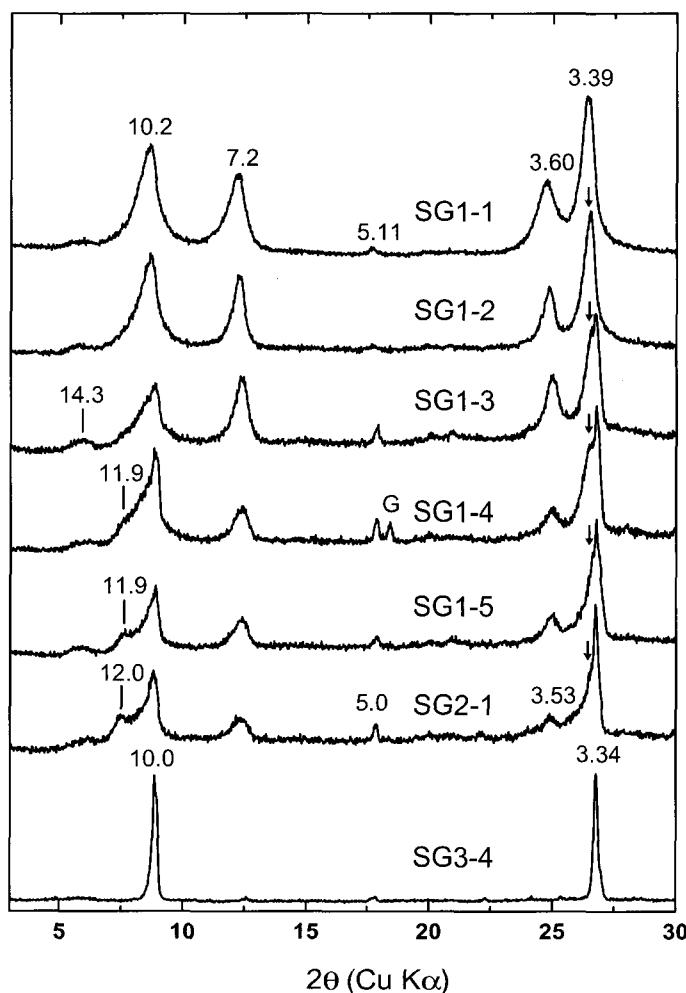


Fig. 1. X-ray diffraction patterns of biotite and its weathered products.

Table 1. EPMA analyses of biotite and kaolin minerals

Bt	Kaolinite				Halloysite							
					Fan type				Infilling type			
SiO ₂	35.96	41.55	43.95	42.74	41.12	42.32	43.85	44.15	45.80	44.15	44.72	42.28
Al ₂ O ₃	18.36	32.72	35.91	35.68	31.67	32.26	34.48	34.12	35.82	33.15	34.96	31.25
Fe ₂ O ₃	20.23	4.10	1.51	1.50	11.05	6.52	5.34	5.97	3.71	7.60	4.21	10.39
TiO ₂	2.53	0.40	0.13	0.12	0.12	0.06	0.04	0.06	0.06	0.05	0.03	0.09
MnO	0.14	0.00	0.00	0.00	0.09	0.06	0.00	0.04	0.01	0.14	0.00	0.06
MgO	8.69	0.93	0.25	0.25	1.09	1.19	0.84	1.38	0.41	0.84	0.69	1.16
CaO	0.00	0.11	0.03	0.07	0.19	0.41	0.14	0.14	0.11	0.12	0.13	0.14
Na ₂ O	0.06	0.04	0.04	0.03	0.01	0.05	0.02	0.05	0.05	0.04	0.03	0.06
K ₂ O	8.60	1.09	0.27	0.27	0.63	0.31	0.26	0.21	0.13	0.15	0.30	0.41
Total	94.56	80.95	82.11	80.65	85.98	83.19	84.97	86.10	86.10	86.25	85.07	85.84

상부층에서 10 Å 피크는 저각 쪽으로 넓어지면서 12.0 Å 피크를 형성하고, 3.34 Å 피크 역시 저각 쪽으로 넓어지면서 3.40 Å 피크(화살표 위치)가 나타난다. 풍화 초기에 현저했던 12 Å 피크는 상부층으로 가면서 감소되고, 10.0 Å 피크의 폭이 넓어진다. 이와 더불어 3.40 Å 위치에서 피크는 보다 뚜렷해진다. 가열실험 및 에틸렌글리콜 흡착실험을 통해 풍화층에서 미약하게 관찰되는 14 Å 피크는 질석(vermiculite)으로, 12 Å 피크는 질석과 흑운모의 혼합층으로 확인된바 있다(이석훈과 김수진, 2000). 최상부 saprolite 층(S2) 및 토양층(S1)에서 12 Å 피크는 완전히 사라졌으며, 폭이 넓은 새로운 10 Å의 점토광물이 형성되어 있다. 이 광물의 (001) 및 (003) 회절선이 각각 10.2 Å과 3.40 Å에 위치하고 있어 흑운모에 비해 층 간격이 약간 증가되었으며, 피크의 반치폭(FWHM, $\Delta 2\theta$)도 0.80~0.82로 모암의 흑운모($\Delta 2\theta = 0.22$)에 비해 크다. 이 광물은 흑운모의 최종 풍화산물중의 하나로, 흑운모에 비해 결정도가 낮은 10 Å의 할로이사이트로 확인되었다.

흑운모의 변질산물에 대한 X-선 회절분석결과에서 확인되는 주요한 점토광물 중의 하나는 캐올리나이트이다. 모암에서 녹니석의 (002)회절선으로 미약하게 관찰되었던 7 Å 피크는 풍화가 진행되면서 피크의 폭이 넓어지고 강도가 계속 증가하는 양상을 보인다. 동시에 3.5 Å 피크의 강도 역시 증가하는 경향을 보인다. 7 Å 피크의 이차광물은 토양층에서 (001) 및 (002)

회절선이 각각 7.2 Å과 3.60 Å 위치에서 관찰된다. 가열실험결과 7 Å의 광물은 고령토광물이며, formamid 처리(Churchman *et al.*, 1984)를 통해 대부분 탈수된 7 Å 할로이사이트이며, 일부 캐올리나이트가 함께 존재하는 것으로 확인되었다(이석훈과 김수진, 2000). 이러한 X-선 회절분석 결과는 흑운모가 풍화되면서 흑운모/질석 혼합층 또는 질석을 생성하다가 질석이 생성된 직후 바로 고령토로 변질되었거나 흑운모에서 바로 고령토광물로 변질되었음을 시사한다.

전자현미경 관찰

전자현미경 관찰에서 화강편마암 중 흑운모의 고령토화작용은 두 가지 양상으로 진행되는 것이 확인되었다. 즉, 흑운모의 가장자리에서 시작되어 벽개면에 평행하게 입자 내부로 진행되는 양상과 흑운모의 가장자리에서 바깥쪽으로 부채모양의 고령토광물이 발달하는 양상이 관찰된다.

풍화조직에서 흑운모의 고령토화작용은 입자의 가장자리로부터 내부로 벽개면을 따라 진행되며, 흑운모 입자의 내부에서는 c-축에 평행한 방향으로 진행되어 흑운모와 고령토광물이 상호 교호(interleaving)하는 양상을 보인다(Fig. 2a, 2b). 이러한 유형의 고령토화작용에서 풍화되지 않은 흑운모의 각 엽편들(flakes)은 벽개면을 따라 약간씩 굴곡이 있긴 하나 연속성을 가

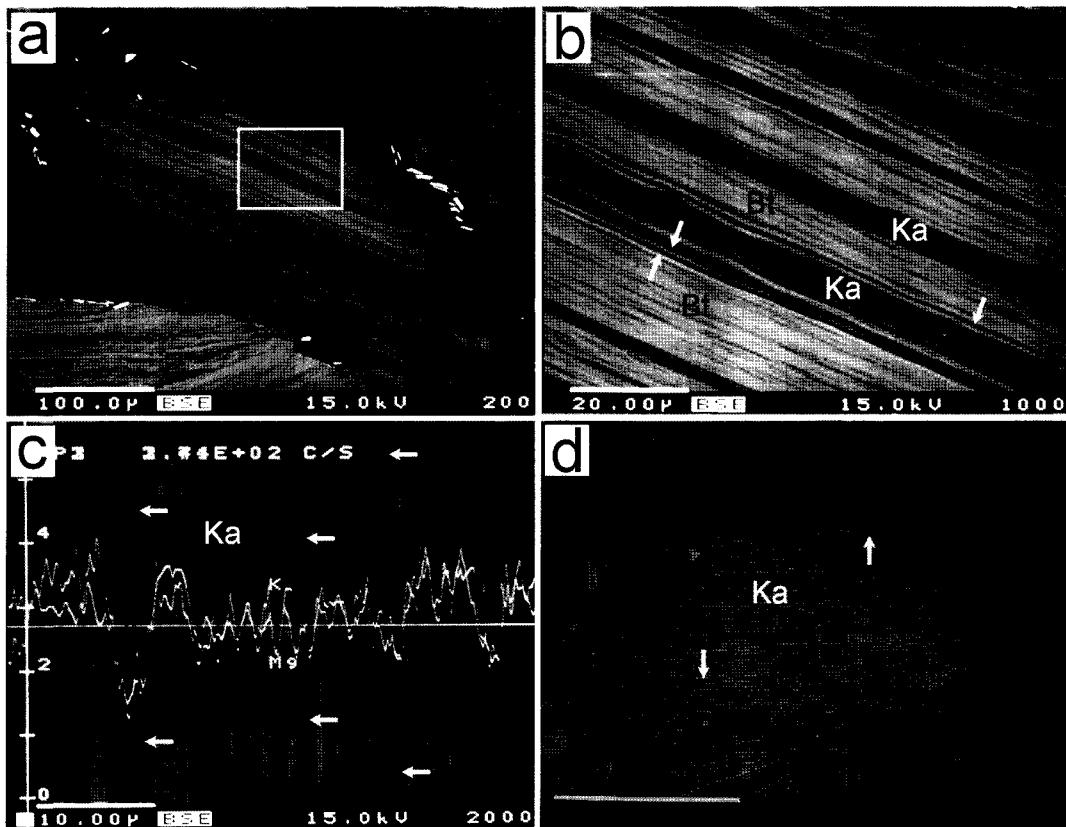


Fig. 2. Back-scattered electron micrographs of biotite weathering textures. (a) Biotite kaolinization from the edge toward interior of grain that extends through the entire grain. (b) Interleaving of biotite (Bt) and kaolinite (Ka) by the replacement. (c) High magnification of the biotite and kaolinite interleaving. Lenticular voids (white arrow) owing to volume decrease. (d) isovolumetric kaolinite pseudomorph of biotite.

지며 배열되어 있고, 가장자리도 비교적 뚜렷한 경계를 보인다. 풍화작용이 진행되면서 흑운모의 엽편들은 c-축에 수직 방향으로 보다 얇은 엽편으로 분리(foliation)되고, 흑운모와 고령토 광물 사이의 경계가 불분명해지며, 벽개면을 따라 빨달한 층상광물의 엽편들은 굴곡이 보다 심해진다. 흑운모와 고령토 광물의 엽편들 사이에 렌즈 모양의 공간들이 보이며, 벽개면을 따라 입자 전체에 걸친 공극이 빨달하고 있다 (Fig. 2c). 이러한 변질 과정에서 흑운모의 가장자리가 부채모양으로 넓어지는 현상은 관찰되지 않는다. 고령토 광물로 완전히 변질된 개별 입자는 외곽선을 기준으로 부피상의 변화가 거의 없이 일정하며, 벽개면에 평행하게 폭이 일정한 상태로 신장되어 있는 다량의 공동(void)

을 포함하고 있다(Fig. 2d). 흑운모로부터 변질된 캐올리나이트의 가상이 등부피로 존재하는 것은 Stoch and Sikora (1976)에 의해 보고된 바 있다. 이러한 풍화작용에서 생성되는 고령토 광물은 판상의 캐올리나이트가 베미큘라 조직(vermicular texture)의 집합체를 이루며 발달해 있다(Fig. 3). 캐올리나이트의 가장자리에는 판상의 할로이사이트가 성장하고 있다.

캐올리나이트 영역에 대한 전자현미분석 (EPMA) 결과 팔면체에 존재하던 Fe, Mg 및 Ti 이 K와 함께 용탈되고 Al이 부화되었다(Table 1). 분석 총합이 80% 정도로 일반적인 캐올리나이트의 분석치에 비해 낮다. 이는 분석이 개별 입자에 대한 분석이 아니라 캐올리나이트화한 영역(직경 1 μm)에 대한 분석으로 분석 범

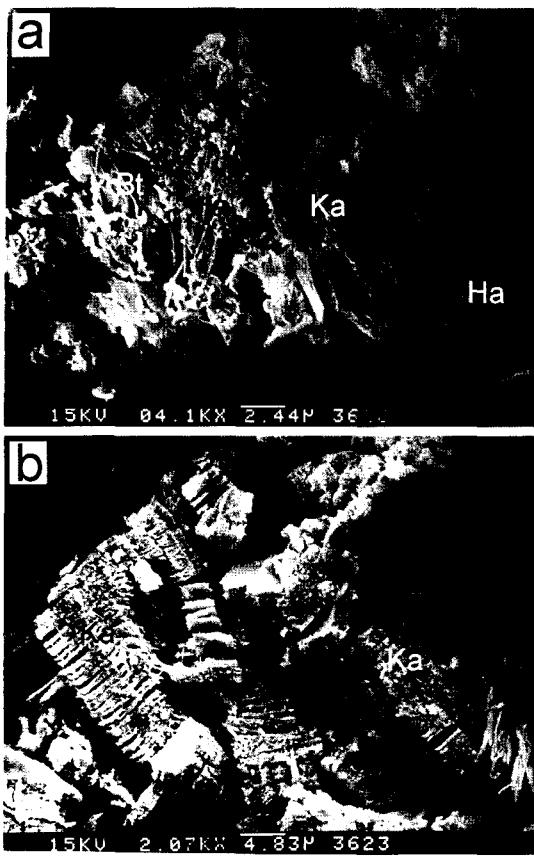


Fig. 3. Scanning electron micrographs of kaolinite. (a) Kaolinite book structure contacted with biotite and halloysite tube growing on the surface of kaolinite flakes. (b) Kaolinite aggregate showing a typical book structure.

위 내에 존재하는 다수의 공극에 기인한다.

캐올리나이트화작용이 진행되고 있는 영역에 대한 투과전자현미경 관찰에서 다층의 흑운모 격자(10 \AA)와 캐올리나이트 격자(7 \AA)가 c-축 방향으로 교호하면서 배열되어 있고, 두 상 사이의 경계가 비교적 명확하며, 렌즈상의 공극이 관찰된다(Fig. 4a). 전자빔 회절 사진에서 흑운모와 캐올리나이트의 회절선이 동일 축(c-축) 상에서 관찰된다(Fig. 4b). 이러한 양상은 흑운모가 캐올리나이트에 의해 교대되고 있음을 시사하고 있다.

흑운모의 또 다른 고령토화작용은 흑운모의 가장자리에서 바깥쪽으로 부채모양(fan shape)의 고령토광물이 성장하는 양상이다. 흑운모 입자의 내부에서는 뚜렷한 변질 현상이 관찰되지

않지만 가장자리의 엽편들이 벽개면을 따라 보다 얇은 엽편으로 쪼개지고, 분리된 엽편들의 가장자리에서 외곽 쪽 방향으로 고령토광물이 집적되어 부채모양을 하고 있다(Fig. 5a). 상대적으로 부피가 늘어나 가장자리의 엽편들은 c-축 방향으로 휘어져 있으며, 그 사이에 렌즈상의 공극이 발달하여 엽편들을 분리하고 있다. 지표면으로 가면서 흑운모의 각 엽편들은 보다 얇은 엽편으로 다시 쪼개지는 박리현상이 점진적으로 증가하고, 미세한 입자의 변질산물들이 입자의 표면을 회복하거나 엽편들 사이에 고령토광물이 집적되어 입자의 외곽선을 기준으로 부피가 현저하게 증가하였다(Fig. 5b). 즉, 흑운모 엽편의 폭에 대비해 집적되어 있는 고령토광물 영역의 폭은 최대 6배까지 증가해 있다. 또한 고령토광물의 영역은 매우 다공질이다. 이러한 경우의 캐올린화작용은 더 이상 내부로 발달하지 않고 계속 가장자리에서 외곽으로 성장하면서 보다 넓은 영역을 점유하게 된다.

토양층에서는 흑운모의 엽편들이 심하게 휘어져 있으며 이로 인해 렌즈상의 공극들이 발달하고, 심하게 변형된 가상이 나타나고, 넓게 벌어진 엽편들 사이에 미세한 입자의 이차광물이 집적되어 있다(Fig. 5c). 완전히 고령토화한 가상에선 c-축에 수평하게 양쪽 가장자리가 부채모양으로 넓어져 있고, 이로 인해 내부에는 렌즈상의 큰 공동이 발달해 있다(Fig. 5d). 이러한 양상의 고령토 광물에 대한 주사전자현미경 사진은 흑운모 엽편의 가장자리에 흑운모의 c-축에 수직인 방향으로 길이가 $1 \mu\text{m}$ 이내인 관상의 할로이사이트가 성장하고 있으며(Fig. 6a), 표면에서도 역시 관상의 할로이사이트가 형성되고 있다. 성장한 할로이사이트는 길이가 $10 \mu\text{m}$ 에 이르며, 흑운모의 가장자리에서 c-축에 수직방향으로 발달해 있다(Fig. 6b).

부채모양의 할로이사이트 집합체와 흑운모의 엽편 사이 공동에 집적되어 있는 할로이사이트에 대한 전자현미분석결과는 매우 높은 함량의 Fe($\sim 11\%$)와 Mg($\sim 1.1\%$)를 포함하고 있어 할로이사이트 형성의 기원 원소들이 일차적으로 흑운모에서 유래되었음을 강하게 시사하며, 할로이사이트의 성장에 따른 부피의 증가는 주변의 장석이 용해된 용액에서 기원됨을 시사한다.

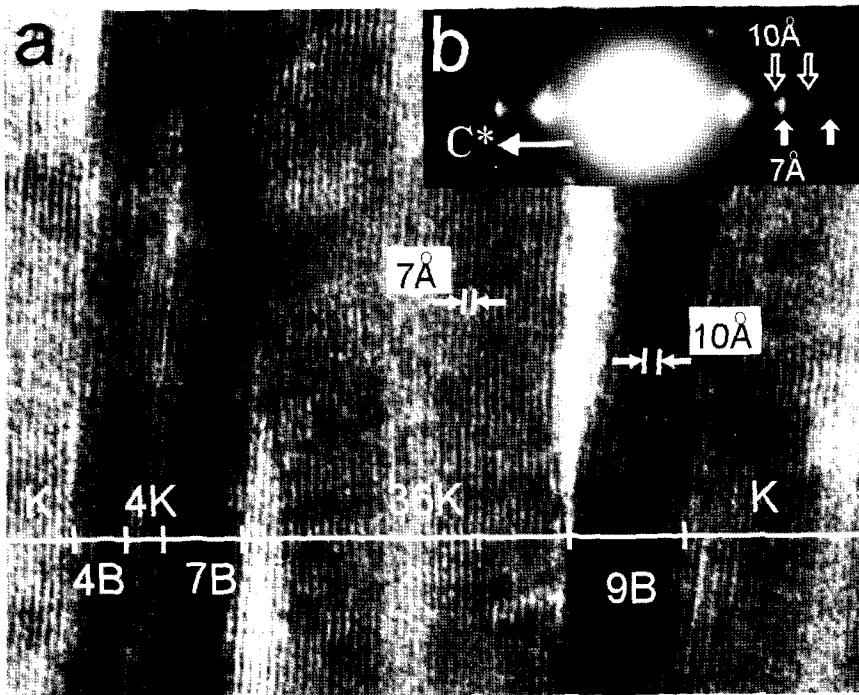


Fig. 4. Transmission electron micrographs of biotite and kaolinite interleaving. (a) Lattice fringe images showing packets of 7 Å kaolinite sheets parallel to biotite layers. (b) selected area electron diffraction pattern showing a consistent orientation relation between 7 Å and 10 Å phases.

도의

캐올리나이트의 형성 메커니즘

화강암질 편마암에서 흑운모의 풍화작용에 의해 변질산물로 생성된 캐올리나이트는 풍화 초기에 흑운모에서 질석으로, 질석에서 캐올리나이트로의 일반적인 변질과정을 거쳤던 것으로 보이나(Wilson, 1966; Banfield and Eggleton, 1988; Lee, 1999), 지표층에 가까워지면서 산성환경 하의 급격한 풍화작용에 의해 흑운모에서 바로 캐올리나이트로 변질되었다. 흑운모 영역과 변질된 캐올리나이트 영역의 경계가 (001) 벽개면에 평행이며, 입자 전체를 통해 거의 연속적이다. 이러한 경계면의 방향은 캐올리나이트화작용이 흑운모 입자의 가장자리로부터 내부로 진행되었음을 시사한다. 산화물 피복이 흑운모의 (001) 표면에서 침전작용을 저지시킬 수 있지만 입자 전체를 통해서 일어날 수 없다(Harris et al., 1985b). 따라서 캐올리나이트화작

용이 가장자리에서 내부로 진행되는 과정을 침전작용에 의한 결과(epitaxy)로 설명하기 곤란하다. 캐올리나이트가 흑운모의 c-축에 거의 수직인 방향으로 발달해 있는 현상과 캐올리나이트/흑운모의 선명한 경계면 또한 침전에 의한 성장으로 해석하기 어렵다.

흑운모와 캐올리나이트, 캐올리나이트와 캐올리나이트의 엽편 사이에는 많은 공극이 발달해 있으며, 캐올리나이트화한 영역에선 입자 전체로 연장되어 있는 공동이 발달한다. 완전히 캐올리나이트화한 가상에서도 부피의 변화가 없으며, 벽개면 방향으로 신장된 공동이 발달해 있다. 이러한 가상의 일정한 부피, 공극과 캐올리나이트화작용 사이의 관계는 캐올리나이트가 흑운모와 1:1의 엽층 대 엽층(layer for layer) 치환작용(topotaxy)에 의해 형성되었음을 보여준다. 공극이 외부 입자 부피에 영향을 주지 않기 때문에 흑운모에 대한 캐올리나이트의 1:1 부피비율 치환이 일어날 필요는 없다(Harris et al., 1985a). 10 Å 흑운모가 7 Å의 캐올리나이트에

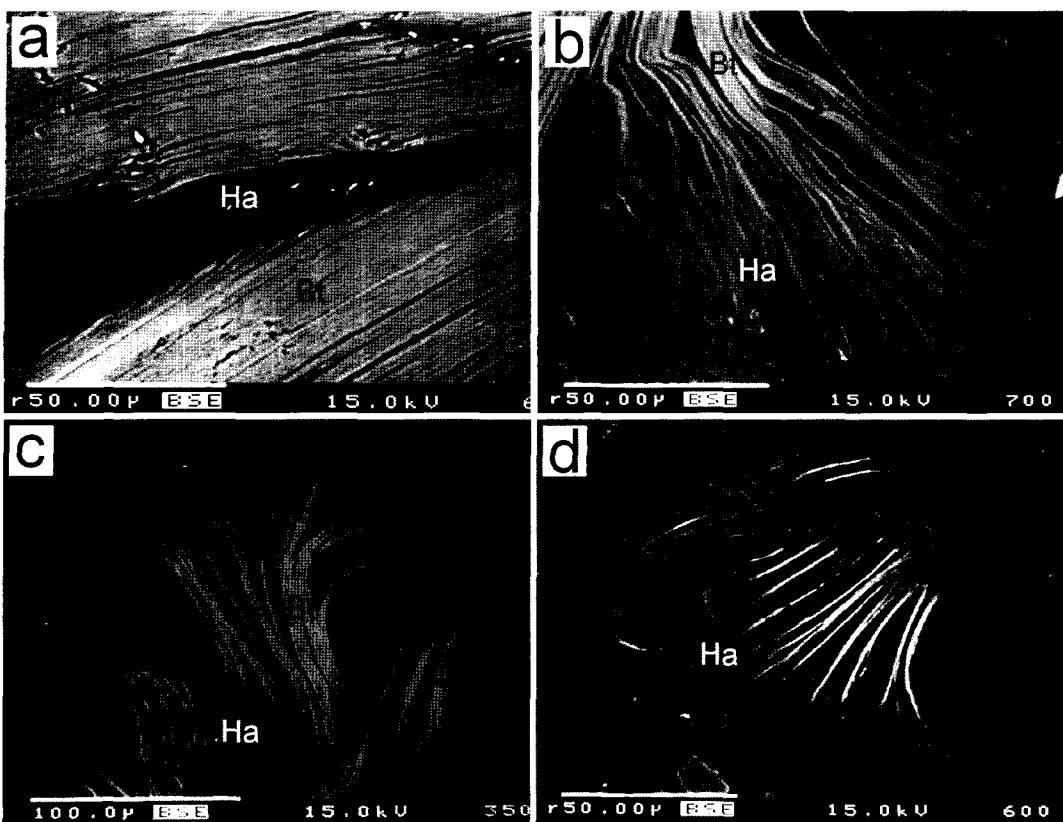


Fig. 5. Back-scattered electron micrographs showing fan-shaped halloysite aggregates. (a) Halloysite fanning-out parallel to c-axis of biotite which foliate to fine flakes by halloysite volume increase. (b) extensively expanded halloysite aggregates. (c) highly deformed interior flakes of biotite and large lenticular voids. Fan-shaped halloysite aggregate at the edges and infilling halloysite aggregate between flakes. (d) halloysite pseudomorphs of biotite showing highly increased volume and large lenticular voids.

의해 1:1 치환이 이루어지는 캐올리나이트화 과정에서 공극이 약 30% 발생해야 함으로, 캐올리나이트와 흑운모 사이의 부피관계가 설명될 수 있다. 흑운모와 캐올리나이트의 결정축이 평행한 경향을 보이는 것 역시 두 상 사이에 교대작용이 있었음을 지시한다(Gilks and Sudhiprakarn, 1979b).

고령토화작용 동안 흑운모 입자들은 캐올리나이트가 우세한 입자로 전이된다. 이러한 2:1 삼팔면체 광물이 이팔면체 광물로의 1:1 전이는 변질되고 있는 흑운모에 수화된 Al이 충간에 침투함으로써 캐올리나이트가 만들어진다 (Rebertus *et al.*, 1986). 캐올리나이트로의 전이에 추가적으로 필요한 Al은 사장석이 용해된 용액

으로부터 유입되었으며, 고령토화작용이 흑운모 입자의 가장자리로부터 내부로 그리고 캐올리나이트가 c-축에 수직방향으로 발달하게 한 요인이된다. Al은 일반적인 풍화환경에서 이동성이 가장 낮은 원소로 알려져 있으나 마이크론 크기의 미세한 거리에선 거동성이 있음이 제시된 바 있다(Velbel, 1989).

할로이사이트의 형성 메커니즘

흑운모의 가장자리에서 외곽으로 발달한 할로이사이트는 부채모양을 하고 있으며, 현저하게 부피가 증가되어 있다. 흑운모와의 1:1 교대작용으로는 이러한 부피 증가가 일어날 수 없

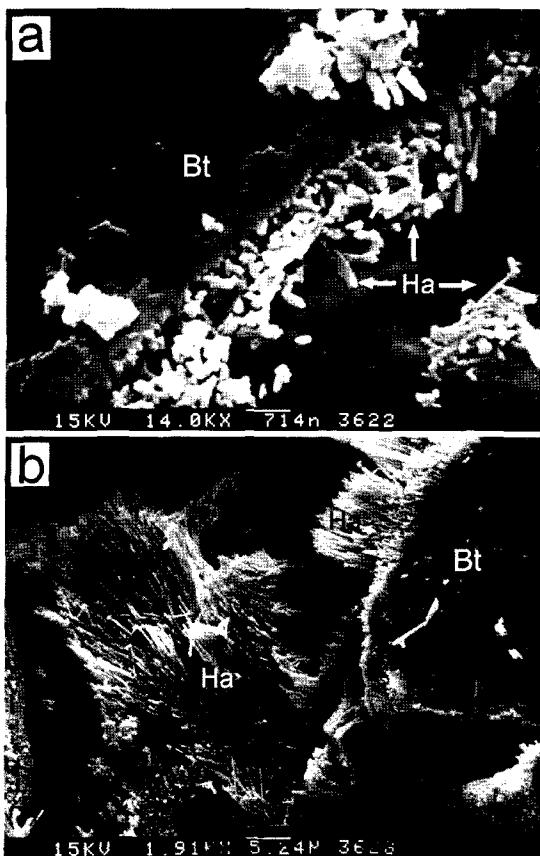


Fig. 6. Scanning electron micrographs of halloysite.
(a) Small and long tubes of halloysite growing epitaxially along flake front on the biotite surface.
(b) Bundle of halloysite long tubes at the right angle direction of biotite c-axis.

으며, 광물들의 용해작용에 의한 원소들이 흑운모 입자의 표면에 침전되어 성장하는(epitaxial overgrowth) 치환변질작용이 일어나는 동안 외곽으로의 강한 팽창에 의해 부피증가가 초래되었다. 풍화중인 흑운모의 표면은 엽편들의 분리에 의해 미세한 벽개면의 공간을 만들어 할로이사이트의 성장을 위한 좋은 틀을 제공한다(Jeong, 1998). 주변에서 공급된 원소들에 의해 흑운모 엽편의 가장자리로부터 할로이사이트가 성장하면서 부피가 증가하게되어 흑운모의 엽편들이 보다 얇은 엽편으로 분리되어야하고, 보다 넓은 공간을 확보하기 위해 엽편들이 벽개면에 수직방향으로 휘어진다. 또한 흑운모 입자의 내부 엽편들은 심하게 변형되어 렌즈모양

의 공간이 많이 생겨나며, 이 공간을 통해 물이 유입되어 흑운모를 용해시켜 보다 빨리 할로이사이트화작용이 진행되었다.

흑운모의 풍화작용에 의한 캐올리나이트의 형성을 원소의 침전 메커니즘으로 설명한 문현들이 종종 확인된다(Gilkes and Sudhiprakarn, 1979b; Banfield and Eggleton, 1988; Jeong, 1998). 부피증가를 초래한 할로이사이트의 형성은 외부로부터의 원소유입을 필요로 하는데 화강암질 편마암에는 다량의 사장석을 함유하고 있으며, Ca의 비율이 높은 사장석으로 흑운모보다 먼저 풍화작용을 받아 용해되어(Lee, 1999) 두꺼운 할로이사이트 집합체를 형성할 수 있는 Si 및 Al의 공급원이 된다.

결 론

흑운모의 풍화작용에 의한 1:1 점토광물의 형성은 두 가지 메커니즘에 의해 진행되었다.

첫째, 관상 캐올리나이트의 형성은 흑운모와의 1:1의 엽층 대 엽층 교대작용에 기인한다. 캐올리나이트화작용의 특징은 입자의 가장자리로부터 내부로 진행되었으며, 변질과정에서 10 Å의 흑운모 다층과 7 Å의 캐올리나이트 다층이 교호하고 있고, 두 상의 c-축이 일치한다. 변질된 캐올리나이트의 가상은 흑운모 입자의 외곽선에 따른 부피의 변화 없이 일정하고, 많은 공극이 벽개면을 따라 발달해 있다.

둘째, 관상 할로이사이트는 사장석이 용해된 용액으로부터 흑운모의 가장자리에 침전작용에 의해 성장되었다. 변질과정에서 흑운모의 엽편들은 보다 얇게 분리되어 벽개면에 수직방향으로 휘어지며, 할로이사이트는 흑운모의 가장자리에서 외곽 방향으로 부채모양으로 발달한다. 할로이사이트의 가상은 현저한 부피 증가를 초래했으며, 흑운모의 용해작용과 함께 주변에 있는 사장석의 용해작용에 의해 Si 와 Al이 공급되었다.

사 사

이 논문을 심사하여 부족한 점을 지적하고 교열해 주신 전북대학교의 이정후 교수님과 충북대학교 안중호 교수님께 감사를 드린다. 연구에 필요한 일부 시료를 제공해 준 강원대학교 부설 산업광물은행과

노진환 교수님께 감사를 드린다.

참 고 문 헌

- 이석훈, 김수진 (2000) 유구지역 화강암질 편마암의 풍화작용에 의한 광물 조성의 변화, 한국광물학회지, 13, 121-137.
- Banfield, J.F. and Eggleton, R. (1988) Transmission electron microscope study of biotite weathering, *Clay and Clay Minerals*, 36, 47-60.
- Churchman, G.J., Whitton, J.S., and Claridge, F.G.C., (1984) Intercalation method using formamide for differentiating halloysite from kaolinite. *Clays and Clay Minerals*, 32, 241- 248.
- Churchman, C.J. and Gilks, R.J. (1989) Recognition of intermediates in the possible transformation of halloysite to kaolinite in weathering profiles, *Clay Minerals*, 24, 579-590.
- Dong, H., Peacor, D.R., and Murphy, S.F. (1998) TEM study of progressive alteration of igneous biotite to kaolinite throughout a weathered soil profile. *Geochim. Cosmochim.*, 62, 1881-1888.
- Eswaran, H. and Bin, W.C. (1978) A study of a deep weathering profile on granite in peninsular Malaysia. II: Mineralogy of the clay, silt, and sand fractions, *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 4, 149-153.
- Eswaran, H. and Heng, Y.Y. (1976) The weathering of biotite in a profile on gneiss in Malaysia, *Geoderma*, 16, 9-20.
- Gilkes, R.J. and Sudhiprakarn, A. (1979a) Biotite alteration in deeply weathered granite. I. Morphological, mineralogical, and chemical porperties, *Clay and Clay Minerals*. 27, 349-360.
- Gilkes, R.J. and Sudhiprakarn, A. (1979b) Biotite alteration in deeply weathered granite. II. The oriented growth of secondary minerals, *Clay and Clay Minerals*. 27, 349-360.
- Harris, W.G., Zelazny, L.W., Baker, J.C., and Martens, D.C. (1985a) Biotite Kaolinization in Virgina Piedmont Soils: I. Extent, profile Trends, and Grain Morphological Effects, *Soil Sci. Soc. Am. J.* 49, 1290-1297.
- Harris, W.G., Zelazny, L.W., Baker, J.C., and Martens, D. C. (1985b) Biotite Kaolinization in Virginia Piedmont Soils: II. Zonation in Single Grains, *Soil Sci. Soc. Am. J.* 49, 1297-1302.
- Jeong, G.Y. (1998) Vermicular kaolinite epitactic on primary phyllosilicates in the weathering profiles of anorthosites. *Clays Clay Miner.*, 46, 509-520.
- Lee, S.H. (1999) Electron microscopic study on the weathering of the granitic gneiss in the Yoogoo area, Korea. PhD thesis in Seoul National University, 200p.
- Kittrick, J.A. (1973) Mica-derived vermiculites as unstable intermediate. *Clays Clay Miner.*, 21, 479-488.
- Novikoff, A., Tsawlossou, G., Gac, J.Y., Bourgeat, F., and Tardy, Y. (1972) Weathering of biotites in temperate, tropical and equatorial countries, *Sci. Geol. Bull.*, 25, 287-306.
- Rebertus, R.A., Weed, S.B., and Buol, S.W. (1986) Transformation of biotite to kaolinite during saprolite-soil weathering, *Soil Sci. Soc. Am. J.* 50, 810-819.
- Samotoin, N.D., Norikov, V.M., and Magazina, L.O. (1987) Paragenesis of secondary clays in a bauxite-bearing granite weathering zone. *Inter. Geol. Rev.* V. H. Winston & Sons, 1215-1227.
- Stoch, L. and Sikora, W. (1976) Transformation of micas in the process of kaolinization of granite and gneisses. *Clays Clay Miner.*, 24, 156-162.
- Velbel M.A. (1989) Weathering of hornblende to ferruginous products by a dissolution-precipitation mechanism: Petrography and stoichiometry. *Clay and Clay Minerals*, 37, 515-524.
- Wilson, M.J. (1966) The weathering of biotite in some Aberdeenshire soils, *Mineral Mag.*, 35, 1080-1093.
- Wilson, M.J. (1970) A study of weathering in soil derived from a biotite- hornblende rock. *Clay Mineral* 8, 291-303.

2002년 8월 30일 원고접수, 2002년 9월 13일 게재승인.