

## 慶南 및 全南 一部 蠟石礦床의 酸素-黃 同位元素組成과 礦床成因

全 孝 澤\* · 鄭 永 旭\* · 金 仁 俊\*\*

### Oxygen and Sulfur Isotope Composition, and Genesis of Some Pyrophyllite Deposits Distributed in the Kyeongnam and Cheonnam Provinces

Hyo Taek Chon,\* Young Wook Cheong\* and In Joon Kim\*\*

**ABSTRACT :** Oxygen and sulfur isotope composition of pyrophyllite and pyrite from six pyrophyllite deposits in the Yangsan-Milyang areas (the Cheonbulsan, Dumyong, Dongrae, Youkwang, Sungjin and Milyang mines), and five deposits in the Whasoon-Dado-Haenam areas (the Byuksong, Songseok, Dado, Bugock and Nowha mines) were measured. Pyrophyllite ores both from the Yangsan-Milyang areas and the Dado-Haenam areas are composed mainly of high alumina minerals such as pyrophyllite, sericite and kaolinite. Most of altered rocks show diagnostic characteristics of bleaching effect. Major minerals of the Songseok ore deposit in the Whasoon area are pyrophyllite, and diasporite with minor amounts of kaolinite and quartz. The Byuksong ores from the Whasoon area were composed mainly of andalusite, kaolinite, pyrophyllite and mica with small amounts of chloritoid, quartz and carbonaceous matter. The Byuksong and Songseok ores show metamorphic textures such as porphyroblastic, and pressure solution textures, and have low whiteness values. The  $\delta^{18}\text{O}$  values of pyrophyllite from the Cheonbulsan and Dumyong mines in the Yangsan area, and the Dado and Nowha mines in the Dado-Haenam areas were in the range of 0.23~5.36%. The relatively low  $\delta^{18}\text{O}$  values provide conclusive evidence for hydrothermal activity in these deposits. The  $\delta^{18}\text{O}$  values of pyrophyllite from the Songseok mine in the Whasoon area were measured as 6.70~8.13% and these higher  $\delta^{18}\text{O}$  values suggest that the Songseok ore deposit have been probably subjected to metamorphism.  $\delta^{34}\text{S}_{(\text{pyrite})}$  values from the Cheonbulsan, Dumyong, Youkwang, Dongrae, Sungjin and Milyang deposits in the Yangsan-Milyang areas, and the Dado pyrophyllite deposits in the Dado area range from -5.8 to 2.7%, which means that the pyrite sulfur could be of igneous origin.  $\delta^{34}\text{S}_{(\text{pyrite})}$  from the Nohwa mine in the Haenam area is, however, measured as -12.4%, implying the contamination of sulfur derived from the sedimentary country rocks. All of the studied high alumina deposits in the Yangsan-Milyang areas and the Dado-Haenam areas were hydrothermal in origin, whereas the Byuksong and Songseok ore deposits in the Whasoon area were probably of metamorphic origin.

#### 서 론

납석은 내화물의 원료에 첨가시키면 고온 처리시켰

\*서울대학교 자원공학과 (Department of Mineral and Petroleum Eng., Seoul National University, Seoul 151-742, Korea)

\*\*동경대학 이학부 지질학교실 (Geological Institute, University of Tokyo, Tokyo 113, Japan)

을 경우 내화물의 열적특성을 향상시켜주기 때문에 요업원료자원으로 이용되는 비금속 광물자원으로 (Tauber et al., 1973, 1976; Bowman and Tauber, 1979), 구성광물에 따라서 상업적으로 pyrophyllite질 납석, 견운모질 납석, kaolinite질 납석 등으로 구분되기도 한다. 현재까지 수행된 납석과 관련된 연구결과로서는 납석의 광물구조 및 광물화학적 연구가 여러 학자들에 의해 수행되어 왔고 (Wardle and Brindley, 1972; Eberl, 1979;

Rosenberg, 1974; Rayner and Brown, 1965; Lee and Guggenheim, 1981) 또한 납석광상의 성인에 대해서도 연구가 발표되고 있다 (Fuji and Inoue, 1971; Cornish, 1993; Klein and Criss, 1988).

국내의 납석광상에 대한 광물 및 광상학적 연구는 비교적 많은 학자들에 의해 수행된 바 있으며 (신상은, 1988; 박홍봉 등, 1988; 이동진, 이성록, 1988; 이동진, 1987; 이장섭, 1986; 이해창 등, 1985; 노열, 1989; 김영규, 1989; 이동진 등, 1989) 납석광상의 부존특성 및 형성기구에 대한 개괄적 검토도 있다 (이길수, 1986; 상기남, 1986). 최근들어 납석광상을 포함하는 변질대 내의 지구화학적 원소분포 패턴과 명반석 및 점토광상에 대한 수소, 산소, 황동위원소 조성연구가 발표되고 있다 (정영욱, 전효택, 1989, 1990; 문희수, 1990; 신상은, 박홍봉, 1990).

본 논문에서는 국내 납석광상의 주요 부존지역인 경남 양산지역 (천불산광산, 유광광산, 두명광산 및 동래광산)과 밀양지역 (승진광산 및 밀양광산), 그리고 전남 화순 (벽송, 송석광산) 다도 (다도광산) 및 해남지역 (부곡 및 노화광산) 광산을 대상으로 새로이 측정된 황동위원소 조성비와 기발표된 이들지역 광상의 광물기재, 산소동위원소조성 (정영욱, 전효택, 1989, 1991) 자료들을 인용하여 국내 일부 납석광상의 광상학적 분류를 시도하였다.

## 일반지질

국내 납석광상들은 분포특성이 지역적으로 경상도 및 전라도지역에 주로 분포하며 이들 광상들은 백악기에 해당되는 화산암류에 배태되어 있다.

양산 및 밀양지역 납석광상들이 배태되어 있는 경상분지는 하부로부터 신동층군, 하양동층, 유천층군 및 불국사 화강암류로 구분되며 (장기홍, 1988; 엄상호, 전희영, 1982), 유천층군은 하부의 안산암질암류와 상부의 유문암질암으로 구분되고, 전자는 주사산안산암류로 후자는 운문사 유문암질암으로 불리우며 여러 아층군으로 세분되며 (김규봉, 황상규, 1988) 이들지역의 광상들은 유천층군에 배태되어 있다 (Fig. 1). 화강암류들은 화강섬록암에서 흑운모화강암에 이르는 분화상을 보이며 양산 및 밀양지역에 광범위하게 분포되어 있다.

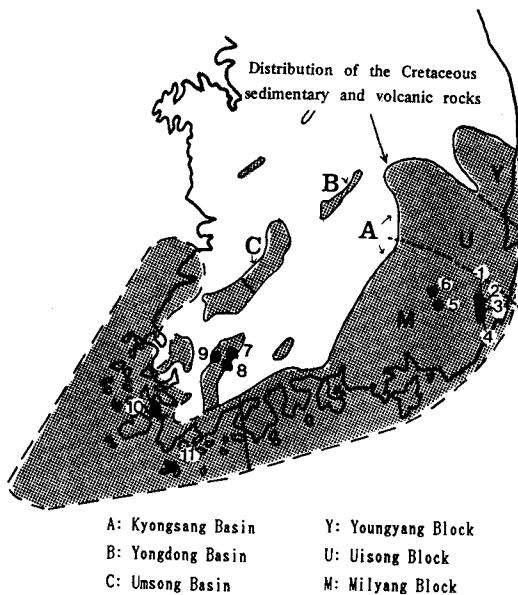


Fig. 1. Location map of the studied mines and distribution of the Cretaceous sedimentary and volcanic rocks(after Lee, 1987). Yangsan-Milyang areas: 1(Cheonbulsan mine), 2(Youkwang mine), 3(Dumyung mine), 4(Dongrae mine), 5(Youkwang mine), 6(Milyang mine). Whasoon-Dado-Haenam areas: 7(Byuksong mine), 8(Songseok mine), 9(Dodo mine), 10(bugock mine), and 11(Nowha mine).

이들 화강암류들은 I type, 칼크-알카리계열로서 (홍영국, 1985) 72Ma (이윤중, Ueda, 1976)에서 75.5Ma (진명식, 주승환, 1980)의 암석연령을 갖고 있는 것으로 알려져 있다. 양산 및 밀양지역에 발달한 지질구조로 밀양단층, 양산단층, 동래단층과 대운산합물체 및 운문산합물체와 이와 관련된 지구조등을 들수 있다.

전남 화순, 다도 및 해남지역은 영동-광주 함몰대의 서남부에 해당되는 지역으로 (Fig. 1) 동측부에 선캄브리아의 화강암질 편마암, 석탄기-폐름기의 퇴적암층, 쥬라기의 화강암류 그리고 백악기의 화산쇄설성 퇴적암류로 구성된 능주층군, 안산암류, 유문암류 및 심성암류로 구성되어 있다. 다도 및 화순지역의 주요 지질구조로 영동-광주 함몰대를 들수 있다. 이 함몰대중 하나인 광주함몰대의 남동부 주변에 벽송, 송석 및 다도광상이 위치하며, 목포함몰대의 남부주변에 부곡광상이,

그리고 노화광상부근에 완도함몰체가 분포한다 (차문성, 윤성효, 1988). 목포함몰대를 중심으로 향한 황산단층이 북서방향으로 발달하고 있다.

한국 남부의 백악기 말 이후의 화성활동과 광화작용에 대한 판구조론적 적용성 연구에 의하면 (민경덕 등, 1988; 김옥준 등 1982), 백악기의 화산활동은 내륙 (대구부근)에서 양산-밀양 및 전남서남부지역을 통과하여 해안쪽 (태평양해구쪽)으로 이동하였고 염기성-중성암류의 분출에 이어 심성암류가 관입하는 화성활동이 일정한 시간간격을 두고 일어났으며, 이들 화성암들은 동일기원의 마그마로부터 유래하였다고 한바있다. 경상남도 일원 및 전남서부지역의 납석 및 점토광상주변의 지질학적 공통점은 광상주변에 화산함몰체 (대운산 함몰체, 광주함몰체, 목포함몰체 및 완도함몰체)가 분포하며 대단층이 주변을 통과하고 백악기 화산암류를 모암으로 하며 주변부에 백악기 화강암류가 분포하고 있다는 점이다.

### 시료채취 및 처리

양산 및 밀양지역의 변질안산암내에 존재하는 천불산광산, 유광광산, 두명광산, 동래광산, 승진광산의 채굴석 및 dump에서 그리고 밀양납석광상의 시추코아의 변질암과 안산암질암에서 황철석 시료가 채취되었다. 또한 전남 다도지역의 다도광산, 그리고 해남지역 노화광산에서 광석내 황철석도 채취되었다. 황철석의 활동위원소 조성분석은 일본동경대학 이학부지질학교실에 설치된 질량분석기 (Finnigan MAT Delta E)에 의하여 측정되었으며  $\text{BaSO}_4$ 의 열분해 및  $\text{SO}_4$  가스포집은 Yanagisawa and Sakai (1983)의 방법으로 수행되었다. 납석, kaolin광물 및 smectite에 대한 산소동위원소조성은 Clayton and Mayeda (1963)가 제시한 bromine pentafluoride ( $\text{BrF}_5$ ) 방법으로 Nuclide 3'-60 mass spectrometer에 의해 미국 Purdue 대학에서 측정되었다.

### 광물조성 및 특성

#### 양산 및 밀양지역

천불산, 유광, 두명, 동래, 승진 및 밀양광상등 양

산 및 밀양지역 납석광상들의 주요한 산출광물로는 석영, 견운모, 납석, kaolinite 및 황철석이며 (Table 1), 광상의 변질특성을 주구성광물의 함량 (Rose and Burt, 1979)에 따라 분류하여 보면 규화작용, 견운모화작용, 납석화작용, 점토화 (intermediate argillic) 작용 및 황화물 부화등으로 요약할 수 있다. 이러한 변질암들은 일부 암회색을 띠는것도 있지만 주로 백색화된 미립질암으로 공극이 다수 발달되어 있으며 공극에 알루미나광물, 자형 및 타형의 황철석이 마치 행인상 조직처럼 충진되어 있고 지방감이 다소 느껴진다. 또한 변질작용의 결과 모암의 흔적이 잔존하는 변질암의 경우 안산암질의 기본 조암광물과 비교할때 석영이 부화되어 있고 화산암의 반정이 변질과정중 기저의 세립질 보다 더 오래남는 경향이 관찰되며 이러한 장석 반정의 흔적내의 견운모 및 납석등은 기저부의 알루미나광물들보다 입자가 큰 엽상정벽을 보인다. diaspore는 3가지 산상 즉, 구형, 아이아스포아크레이 및 산점상으로 산출되는 (상기남, 1986) 밀양광산에서는 구형으로 천불산광산은 산점상으로 분포한다. 이들 광산들중 천불산 및 밀양광산에서 산출되는 dumortierite는 이지역의 변질작용이 봉소가 풍부한 환경에서 일어났음을 지시하는 함붕소광물로 외국의 납석광상의 부구성광물에서도 종종 기재되는 광물이나 (Klein and Criss, 1988) 전남지역의 납석광상에서는 아직까지 보고된바 없다.

#### 화순, 다도 및 해남지역

화순지역의 벽송 및 송석광상은 주로 고알루미나광물로 구성된 반면 다도지역 다도광상 및 해남지역 부곡 및 노화광상은 규질화정도에 따라서 고알루미나광물의 존재비가 다양하다 (Table 1). 즉 벽송광상 (BS)의 주구성광물은 홍주석, kaolinite, 운모 등이며 chloritoid, 납석, 석영, 탄질물이 수반된다. 고알루미나광물로 구성된 광석들은 암회색을 띠며 괴상이다. 송석광상 (SS)은 주로 납석, diaspore로 구성되며 소량의 석영, kaolinite 및 불투명광물 등이 수반되고 diaspore는 구상으로 나타난다. 다도 및 해남지역의 광상들의 주요구성광물은 석영, kaoline 광물, 납석, diaspore, 황철석 등으로 이들 변질암들은 털색화 되어있으며 부곡광상 (BG)은 기타광상들과 달리 명반석을 함유한다. 다도

**Table 1.** Mineralogical composition of pyrophyllite deposits in the Yangsan-Milyang and Whasoon-Dado-Haenam areas.

Mine	Mineralogical compositions
CB	quartz, pyrophyllite, sericite, kaolinite, diasporite, pyrite
UK	quartz, sericite, interstratified mineral, pyrite
DM	quartz, sericite, pyrophyllite, smectite, kaolinite interstratified mineral, pyrite, chalcopyrite
DR	quartz, kaolinite, andalusite, sericite, pyrite
SJ	quartz, sericite, kaolinite, pyrite
ML	quartz, pyrophyllite, diasporite, kaolinite, dumortierite, pyrite
BS	kaolinite, andalusite, chloritoid, mica, pyrophyllite carbonaceous matter
SS	pyrophyllite, diasporite, kaolinite, quartz
DD	quartz, pyrophyllite, kaolinite, diasporite, pyrite
BG	quartz, kaolinite, alunite, pyrite
NW	quartz, pyrophyllite, diasporite, kaolinite, sericite, pyrite

CB; Cheonbulsan mine, UK; Youkwang mine, DM; Dyumyong mine, DR; Dongrae mine, SJ; Sungjin mine, ML; Milyang mine, BS; Byuksong mine, SS; Songseok mine, DD; Dado mine, BG; Bugock mine, and NW; Nowha mine. Data summarized from Cheong and Chon (1989, 1990)

및 해남지역광상들의 규질정도가 강한 변질암에서 석영립들은 주로 중립질과 미립질이 주이면 중립질 석영들은 suture 조질을 나타나며 포유물들에 의해 지저분하게 보이며 경계부는 변질작용에 의해 상당히 융식되어 있다. 납석의 현미경적 조직은 간혹 유동구조(송석 및 다도광석)를 보이기도 하는데 이는 유문암질 모암(다도광상)에 기인하던가 혹은 변성작용에 의한 염상광물의 배열(송석광상)에 의한것으로 추정된다. 모암의 반정흔적이 보존된 곳에서 납석 및 견운모는 주로 결정정벽이 엽편상으로 기저부보다 크게 나타난다.

### 안정동위원회 지구화학

#### 활동위원회 조성

경남 양산-밀양지역의 천불산광산(CB), 유광광산(UK), 동래광산(DR), 승진광산(SJ) 및 밀양광산(ML) 그리고 전남 다도광산(DD) 및 노화광산(NW)의 납석 및 견운모광상에서 산출되는 황철석에 대한 활

**Table 2.**  $\delta^{34}\text{S}$  (CDT) values of pyrites from the pyrophyllite deposits.

Region	Samples	$\delta^{34}\text{S}(\%)$
Yangsan-Milyang Area	CB-02	2.2
	UK-04	2.7
	DR-14	1.6
	SJ-24	-3.4
	SJ-01	-3.7
	SJ-02	-5.8
	SJ-03	2.6
	SJ-66	3.3
	ML-04	-0.3
	ML-05	-0.6
	ML-56	-3.5
	ML-61	-2.4
	ML-86	-2.5
	ML-99	-0.5
	ML-150	-2.4
	ML-28	-0.5
	ML-90	-0.6
	ML-96	-2.3
	ML-104	-3.7
	ML-109	-0.2
	ML-501	-0.8
	ML5012	-2.4
	ML4002	-0.9
Dado-Haenam Area	DD-21	-1.2
	DD-27	-5.0
	NW-41	-12.4

CB; Cheonbulsan mine, UK; Youkwang mine, DR; Dongrae mine, SJ; Sungjin mine, ML; Milyang mine, DD; Dado mine, and NW; Nowha mine.

동위원소 조성값 ( $\delta^{34}\text{S}_{\text{Pyrite}}$ )이 Table 2에 수록되어 있다. Fig. 2에 도시되어 있듯이 양산 및 밀양지역의 변질암에서 채취된 황철석의  $\delta^{34}\text{S}$  (CDT) 값은 -5.8% 내지 3.3%의 범위 값을, 밀양광산의 모암인 안산암질암(ML 4002, ML 5012)은 -2.4~-0.9%의 값을 보인다. 다도 및 노화광산에서는 각각 -5.0~1.2% 및 -12.4%의 값을 보인다. 양산 및 밀양지역과 다도지역의 황동위원회 값들이 0% 부근의 값을 중심으로 분산되어 있는데 열수변질당시(수소화작용) 수소이온농도와 온도의 범위에 따라서 알루미나광물상(예로 납석, 견운모, kaolinite 등)의 안정영역이 규정되며 변질당시의 수소이온농도에 의해서 황동위원회 조성비의 변화가 일어날 수 있는 것으로 알려져 있는데 실제로 황철석이 채취된 변질암내의 광물조성등은 고알루미나광물들의 집합체로

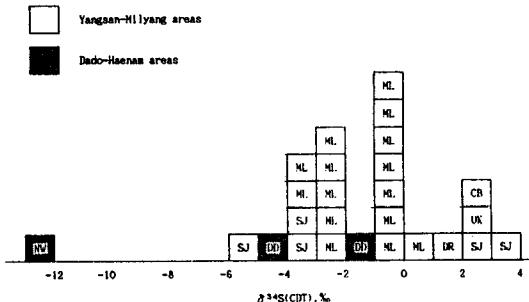


Fig. 2. Histogram of  $\delta^{34}\text{S}$  (%) values of pyrite from the pyrophyllite deposits.

서 광물기재가 된다. 따라서 이러한 범위의 황동위원소 조성값의 분산은 구성광물의 조합을 고려해 보면 설명이 가능할 것으로 사료되며 또한 열수성기원의 황화광물의  $\delta^{34}\text{S}$  (CDT)의 값이  $-7\sim+15\%$ 로 알려져 있으므로 (Henderson, 1982) 황철석의 기원이 화성기원임을 제시해 주고 있다. 한편 노화납석 광상의 경우 황철석의  $\delta^{34}\text{S}$  (CDT) 값이  $-12.4\%$ 로서 대단히 가벼운 것이 특징이다. 이러한 경향은 해남광상의 황철석에서도 나타나는데, 즉  $\delta^{34}\text{S}$  (CDT) 값이 3개의 시료에서 각각  $-6.0\%$ 과  $-10.0\%$  및  $-10.8\%$ 로서 (김인준, 未發表) 대단히 가벼운 특징을 보이고 있어서 퇴적기원의 황철석일 가능성 을 보여주며 문희수 (1990)는 해남지역의 우한리 흑색 세일에 의한 퇴적기원의 황의 오염가능성을 제시한 바 있다. 그러나  $\delta^{34}\text{S}$  값은 열수용액의 pH,  $f_{\text{O}_2}$  및 온도등의 요소에 의해  $\delta^{34}\text{S}$  값이 상당히 변할 수 있는 것으로 알려져 있다 (Hoefs, 1987). 즉 광상내에서 pH가 변화함에 따라서 초기생성된 황화광물과 후기에 생성된 황화광물내의  $\delta^{34}\text{S}$ 가 다르다든가 혹은  $\delta^{34}\text{S}_{\text{fluid}}$ 가 일정할지라도 열수용액의 온도 및  $f_{\text{O}_2}$ 가 변화함으로써 열수광물의  $\delta^{34}\text{S}$ 가  $10\%$  이상까지도 변화할 수도 있으므로 (Ohmoto and Rye, 1979) 해남지역의 황기원의 문제는 기타 지질학적 자료와 함께 해석이 병행되어야 할 것이다.

### 산소동위원소조성

정영욱, 전효택 (1989, 1990)에 의해 발표된 천불산 납석 (CB-10) 및 두명납석 (DM-15)의 산소동위원소

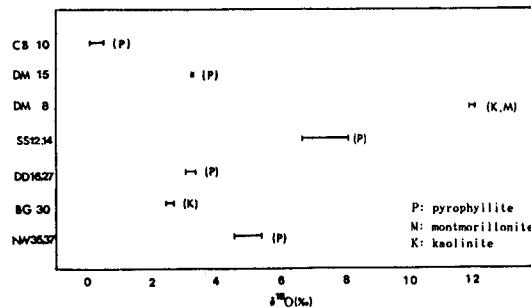


Fig. 3. Range of  $\delta^{18}\text{O}$  values of pyrophyllite and clay minerals. CB; Cheonbulsan mine, DM; Dumyung mine, SS; Songseok mine, DD; Dado mine, BG; Bugock mine, and NW; Nowha mine.

조성비 ( $\delta^{18}\text{O}$ )는 각각  $0.23\sim0.6\%$ 과  $3.40\%$ , 전남 다도 지역 다도납석은  $3.16\sim3.46\%$ , 해남지역 노화납석은  $4.60\sim5.35\%$  범위를 보인다 (Fig. 3). 이러한 산소동위원소값은 화성암의  $\delta^{18}\text{O}$  값 범위 즉,  $+5\sim+9\%$ 과 비교할 때 낮은 산소동위원소 조성비를 나타낸다.  $\text{Al}_2\text{O}_3 - \text{SiO}_2 - \text{H}_2\text{O}$  계에서  $260^\circ\text{C}$  내지  $375^\circ\text{C}$ 의 온도와  $2\text{kb H}_2\text{O}$  범위에서 납석과 석영은 공존할 수 있고 (Hemley et al., 1980), 납석이  $300^\circ\text{C} \pm 50$ 에서 O'Neil and Taylor (1969)의 운모-물 분별작용과 일치한다고 가정하고 천불산, 두명, 다도광산 납석과 평형을 이루었을 변질당시의 용액은 Taylor (1979)의 다이아그램 (p. 239)에 투영해 보면 대략  $-4\%\sim1\%$ 의 동위원소 조성값을, 노화납석의 경우는  $-0.4\sim3\%$ 의 동위원소 조성값을 갖었을 것으로 나타나며 이러한 용액의 산소동위원소 조성값은 magmatic water 보다 상당히 낮은 값을 의미한다. 한편 송석납석의 경우  $6.70\sim8.13\%$ 로서 (Fig. 3) kaolinite와 석영이  $335\sim355^\circ\text{C}$ 에서 반응하여 납석이 생성되었다고 할 때 (Thompson, 1970), 송석납석과 평형을 이루었을 용액은 같은 방법으로 투영해 보면 약  $6\%$  정도로 구해지므로 상기 전술된 용액들의 동위원소조성비와는 현저하게 대비된다. 한편 속성작용의 산물로서 해석된 바 있는 장기, 하서 및 감포지역 montmorillonite의 산소 동위원소 조성은  $16.9\sim25.1\%$  범위 (문희수, 1986)를, 두명 광산의 smectite 및 kaolinite는  $11.90\sim12.06\%$ 의 범위를 또한 해남지역 부곡광상 kaolinite는  $2.58\sim2.71\%$ 의 범위를 보인다 (정영욱, 전효택, 1989). 한편 저온에서의

산소동위원소 교환반응은 물 자체에  $\delta^{18}\text{O}$ 가 부화되어 있지 않더라도 높은  $\delta^{18}\text{O}$ 의 부화가 가능하므로 (Henderson, 1982) 동위원소 교환당시 유체의  $\delta^{18}\text{O}$  차이가 이들 지역에서 크지 않았다고 가정하면  $\ln \alpha = 1/T^{\circ}$  관계식으로부터 장기·하서·감포(두명광산<부곡광산 순으로 kaolin광물 및 smectite의 생성당시 온도가 높았을 것으로 사료된다.

### 납석광상 성인 및 분류

양산-밀양지역 및 벽송-다도-해남지역 납석광상을 구성광물, 변질암의 조직, 산소·황동위원소 조성비, 백색도 그리고 기타 연구자료 (이동진, 1987) 등에 의해 광상을 분류하면 다음과 같다. 열수변질에 의한 광상으로 양산-밀양지역광상, 다도 및 해남지역 다도광상, 부곡광상 및 노화광상과 변성작용을 받은 화순지역 벽송광상 및 송석광상으로 구분할 수 있다 (Table 3). 양산-밀양 및 다도-해남지역 광상들의 광물조합은 주로 고알루미나광물과 석영으로 조합된 변질대를 형성하는데 이는 알카리이온의 용탈과 강력한 규질작용의 환경을 제시하며 이러한 광물들의 공존 (수반관계)은 화학적으로 양이온/ $\text{H}^+$ 가 알루미나광물상의 안정영역에 부합할 수 있을 정도의 낮은 비가 열수변질과정에서 유지될 경우 가능하다 (Rose and Burt, 1979). 즉, hydrolysis시 열수용액내  $\text{H}^+$  이온이 모암을 변질시키며 소모되고 용액은  $\text{OH}/\text{H}^+$  비의 증가, base-metal cation 및 규질성분의 부화와 온도의 변화에 의해서 다양한 고알루미나질 광물조성 및 변질누대를 형성시켰을 것이다. 변질대의

황화광물은 황/metal 비가 큰 황철석이 주를 이루며 두 명광상의 점토변질대에서는 황/metal 비가 작은 황동석이 수반되어 있고 약변질대 (propylitic)에서 자철석 및 적철석등과 소량의 황철석이 산출 (신흥자 등, 1988)되는 점으로 보아 변질대간의 황/metal 비가 달라지는 경향 (Meyer and Hemley, 1967; Beane, 1982)을 유추할 수 있다. 따라서 이들광상의 변질작용시 환경은  $\delta^{18}\text{O}$ 가 작은 천수의 유입과 함께 화성기원의 황이 풍부한 환경으로 특정지을수 있을것이다. 열수성 납석광상들은 규화대가 광상상부에 걸쳐 발달하는 관계로 비교적 작은 규모의, 경사가 급한 지형적 특성을 표출하는 경향을 보인다. 열수변질에 의해 이들 변질암들은 상당히 백색화되어 있고 또한 공극들이 관찰되는데 이는 열수변질작용에 의한 부피감소로 사료된다. 한편 부곡광상의 경우, 광물조성은 kaolinite, cristobalite (유장한, 1985), 명반석등인데 이러한 광물조성은  $\text{H}_2\text{S}$ 등의 산화작용에 의한 sulfuric acid 환경임과 변질온도가 150°C (Kita and Honda, 1987) 이하의 저온환경을 의미한다. 문희수 (1990) 및 신상은, 박홍봉 (1990)에 의한 해남지역 점토광상의 변질온도도 이와 유사한 범위를 보여준다.

한편 벽송광상은 알루미나가 풍부한 이질퇴적물이 쇠성작용을 거쳐 변성작용 (400-500°C)을 받으면서 납석 및 홍주석을 형성하였고 후기의 변질작용에 의하여 홍주석이 카오리나이트 및 운모류등으로 변하여 고알루미나광상이 형성되었다 (이동진, 이성록, 1988). 송석광상은  $\delta^{18}\text{O}$ 가 상기 열수성 납석광상들 보다는 높은 값을 보이며 변성조직인 pressure solution 및 편암조직 그리고 낮은 백색도등은 전기한 납석 광상들과는 상이한

Table 3. Origin of high alumina deposits in the Yangsan-Milyang and Hwasoon-Dado-Haenam areas.

Genesis	Mine	$\delta^{18}\text{O}$ (‰)	$\delta^{34}\text{S}$ (‰)	Texture	Silicification	Whiteness
hydro-thermally	CB, UK, DM, DR, SJ, ML, DD, BG, NW	0.23 ~ 5.35	-12.4 ~ 3.3	aphanitic, microcrystalline aggregate	strong	54 ~ 64 (bleaching)
metamorphic	BS SS	6.70 ~ 8.13	-	porphyroblasticm, macrogranular, pressure solution	-	25 40 (gray, reddish)

CB; Cheonbulsan mine, UK; Youkwang mine, DM; Dumyung mine, DR; Dongrae mine, SJ; Sungjin mine, ML; Milyang mine, BS; Byuksong mine, SS; Songseok mine, DD; Dado mine, BG; Bugock mine, and NW; Nowha mine.

지질학적 특징이다. 따라서 송석광상은  $\delta^{18}\text{O}$ 가 작은 천수의 유입이 없이 건조상태 (dry system)에서 변성작용에 의해 장석이 납석으로 변질된 변성기원의 납석광상으로 해석된다. 변성기원으로 해석되는 벽송광상 및 송석광상은 고알루미나 광상들로서 전기한 열수성광상들보다 알루미나 함량이 높고 변질암의 조직은 전형적인 변성조직을 갖는다. 또한 규질대의 발달과 황화광물의 부화가 확인되지 않고 백색도가 상당히 낮아 열수변질에 의한 물리적변화인 bleaching 효과가 미약하다. 벽송광상 주변부에서는 습곡구조와 이와 관련된 균열대가 관찰된다. 따라서 연구대상 광상들은 크게 열수형 광상과 변성형 광상으로 구분할수 있고 열수형 광상은 변질 당시의 온도에 의해 다시 세분할 수 있다.

산소동위원소 조성비는 열수변질범위 및 천수의 유입규모등에 대한 정보를 제공한다. 따라서  $\delta^{18}\text{O}$ 의 분포도 (map)를 이용하여 열수변질 당시 열수변질의 분포 양상 및 변질대에 대한 개략탐사에 이용될 수 있다 (Allegre and Michard, 1974). 또한 납석광상들은 규화 대가 광상상부에 걸쳐 발달하는 관계로 비교적 작은 규모의 경사가 급한 지형적 특성을 표출하는 경향성을 나타내므로 지형의 관찰도 열수변질형 고알루미나 광상에 대한 탐광지침의 한 방면이 될 수 있을 것이다.

화산암들은 열수변질에 의해서 석영, 황철석, 금홍석, 견운모, 명반석, kaolinite, 납석, 홍주석 등의 변질광물들을 생성시키며 특히 중성화산암을 모암으로 하는 견운모, 납석, kaolinite 및 명반석등의 변질대들은 다금속, 금 및 구리광화작용과 관련되는 것으로 알려져있다 (kuzvar and bohmer, 1986). 본 연구대상 지역과 관련된 변질화산암과 금속광화작용의 연구예증의 하나인 경남 칼테라지역에 분포된 화산암질암과 퇴적암의 지화학적 및 암석학적연구 (신홍자 등, 1988)에 의하면 이들 양산지역의 열수변질대중 금의 함량이 약 45ppb 이하인 금 이상대를 보고한 바 있으나 관입암체와의 공간적 해석이나 탐광지침은 제시하지 않았다. 한편 고알루미나 광상과 관련하여 금광화작용을 기재한 바 있는 Klein and Criss (1988)의 연구결과를 인용하면 관입암 (porphyry stock)과 중성화산암의 변질누대중 관입암 상부의 고온열수 변질대에서 금의 이상대를 확인하였고 또한  $\delta^{18}\text{O}$ 의 contour map의 경사 (gradient)가 급한곳과 금의 이상대와 상관성이 있음을 지적한 바 있다.

납석광물은 가열시 전체적으로 용적변화가 적은것으로 알려져서 내화물 자원으로 널리 활용되는데 본 연구대상 납석광상들은 수반광물이 다양하다. 특히, kaolinite는 가열시 물을 방출하게 되어 수축을 유발시키며 규질성분 (석영)은 팽창을 야기시키므로 각 광상별 납석광석은 열적특성에 있어서 차이점이 기대된다.

## 결 론

경남 양산 및 밀양지역 (천불산, 유광, 두명, 동래, 숭진 및 밀양광산등 6개 광산) 그리고 전남 화순지역 (벽송과 송석광산), 다도지역 (다도광산) 그리고 해남지역 (부곡 및 노화광산) 납석광상 (총 11개 광산)의 구성광물 및 암석기재, 황 및 산소동위원소 조성에 대한 연구 결과는 다음과 같다.

1) 양산-밀양지역 납석광상의 주요 변질작용은 규화작용, 견운모화작용, 납석화작용, 점토화작용 등이며, 다도 및 노화광상의 변질작용은 규화작용, 납석화작용 및 점토화작용을 들수 있고 부곡광상의 경우 규화작용, 명반석화작용 및 점토화작용들이 발달되어 있다. 이들 광상들은 강력한 규질작용과 고알루미나 광물로 구성되어 있는데 이는 광상 생성당시 열수의 특성이 산성이었음을 의미하며 규화정도에 의해 알루미나 함량이 제어된다. 그러나 전남 화순지역 벽송 및 송석광상은 구성광물 및 조직에 있어서 상기 언급된 광상들과는 달리 변성작용의 특징을 보여주는 광상들로 주로 고알루미나 광물로 구성되어 있으며 석영의 함량이 소량이다. 한편 양산-밀양지역 납석광상들은 강력한 견운모작용과 봉소가 풍부한 환경을 제시하는 dumortierite 광물이 수반되어 있는데 이는 전남지역 광상들과 대비되는 특징이다.

2) 변질암 및 광석내에서 채취된 황동위원소 조성은 양산-밀양지역 광상들과 다도지역 다도광산의 경우 -5.8% 내지 3.3%의 범위를, 해남지역 노화광산의 경우 -12.4%의 값을 보이는데 노화광산의 경우를 제외한 황동위원소 조성은 화성기원임을 제시하는 반면 해남지역 노화광상의 경우는 퇴적기원의 황의 오염가능성을 제시한다.

3) 천불산납석 및 두명납석의 산소 동위원소 조성비 ( $\delta^{18}\text{O}$ )는 각각 0.23~0.6%과 3.40%, 다도납석의 경우 3.16~3.43% 그리고 노화광상의 경우 4.6~5.35%의 범

위를 보인다. 이러한 낮은 산소동위원소 조성값은 납석이 천수의 유입에 의한 열수변질로 생성되었음을 의미하며 열수변질 당시 용액의  $\delta^{18}\text{O}$ 은  $-4\text{‰} \sim -3\text{‰}$  정도로 추론되며 또한 이를 납석광물을 포함하는 광석들의 백색도도 높아 열수기원임을 뒷받침된다. 반면 송석납석의  $\delta^{18}\text{O}$ 은  $6.70\text{‰} \sim 8.13\text{‰}$ 로서 기타 납석광상들보다 비교적 큰값을 갖는데 이는 송석광상이 천수의 화석수 혹은 변성작용에 의해 생성된 용액과 동위원소 교환이 일어났을 것으로 사료되며 변질당시 용액의  $\delta^{18}\text{O}$ 은 약  $6\text{‰}$ 로 추측된다. 이러한 변성기원의 해석은 변성조직(pressure solution), 암상(편암조직) 및 낮은 백색도등에 의해서도 뒷받침된다.

4) 양산-밀양지역 및 화순-다도-해남지역의 고알루미나광상에 대한 암석조직, 구성광물, 암석학적 기재, 그리고 황 및 산소동위원소 조성비 등을 종합 평가한 결과 양산-밀양지역 광상들과 다도-해남지역의 다도, 부곡 및 노화광상들은 열수변질형 고알루미나광상으로, 화순지역의 벽송광상 및 송석광상은 최소한 변성작용을 받은 고알루미나 광상으로 구분 가능하다.

## 사사

본 연구는 한국과학재단의 1989 목적기초연구과제인 “비금속 및 고품위요업 광물자원 (세부과제: 고알루미나 광상에 관한 지구화학적 연구)”의 일부이며 연구비를 지급해준 당재단에 심심한 감사를 드린다. 黃同位元素組成 측정은 과학재단의 국제공동연구인 “열수광상의 동위원소 지구화학적 연구”의 일환으로 著者 (전효택)가 1990년 1月/2月 일본 동경대학 이학부 지질학 교실의 島崎英彦 교수 연구실에서 머무는 동안 이루어졌다.

## 참고문헌

- 김규봉, 황상규(1988) 밀양도폭 지질보고서. 한국동력자원연구소.
- 김영규(1989) 경남 양산지역의 납석광석에 대한 광물학적 연구. 서울대학교 석사논문.
- 노열(1989) 구시납석 광상에 대한 광물·광상학적 연구. 연세대학교 석사논문.
- 문희수(1990) 전남해남지역 고령토 및 납석광물자원에 관한 연구. 한국과학재단 목적기초연구 제2차 중간보고서 (미발표)
- 문희수(1986) 3기층에 배태된 벤토나이트의 산소 및 수소 동위원소 연구. 광산지질, 19권, p. 131-138.
- 민경덕, 김옥준, 윤석규, 이대성, 김규환(1988) 한국남부의 백악기말 이후의 화성활동과 광화작용에 대한 판구 조론의 적용성 연구(Ⅱ). 지질학회지, 24권, p. 11-40.
- 김옥준, 윤석규, 이대성, 주승환(1982) 한국남부의 백악기 말 이후의 화성활동과 광화작용에 대한 판구조론의 적용성 연구(Ⅰ). 광산지질, 15권, p. 123-154.
- 박홍봉, 박배영, 신상은, 허민(1988) 전남과 하동지역에서 산출하는 요업 및 점토광물자원과 성인에 관한 연구. 광산지질, 21권, p. 1-15.
- 상기남(1986) 한반도 남부지역의 고령토-납석광상 생성기구. 광산지질, 19권, p. 43-52.
- 신상은, 박홍봉(1990) 전남지역의 요업원료광물 광상의 안정동위원소 연구. 요업 원료광물 자원의 현황과 전망. 한국자원공학회, p. 155-163.
- 신상은(1988) 구시납석광산의 광물조성과 광상성인에 관한 연구. 대한광산학회지, 25권, p. 1-8.
- 신홍자, 장영남, 이평구(1988) 경남 칼데라지역에 분포된 화산질암과 퇴적암의 지화학적 및 암석학적연구. 광물연구, 한국동력자원연구소, p. 55-98.
- 엄상호, 전희영(1982) 한국의 지질(1:1,000,000 대한지지도 설명서). 한국동력자원연구소, p. 73-83.
- 유장한(1985) 전남 해남군 황산면일대 고령토질 납석광상 연구. 비금속광상연구, 한국동력자원연구소, p. 95-116.
- 이길수(1986) 국내납석광상의 부존특성. 광업진흥, 5권, p. 33-38.
- 이동진, 이성록, 김대엽(1989) 비금속광물특성(I). 한국동력자원연구소, p. 12-73.
- 이동진, 이성록(1988) 천운산내 고알루미나 광석에 대한 광물학적 연구. 광물연구, 한국동력자원연구소, p. 3-39.
- 이동진(1987) 고알루미나 세일의 광물조성과 성인. 산업소재광물, 한국광물학회, p. 51-64.
- 이윤종, Ueda(1976) 한국경상남도 언양도폭 및 북서부 울산도폭 지역산 화강암질암의 K-Ar연대. 광산지질, 9권.
- 이장섭(1986) 경남양산, 유광납석광상의 성인에 관한 연구. 부산대학교 석사논문.
- 이해창, 신상은, 박홍봉(1985) 성산 및 옥매산광석 도석의 광석광물 및 성인. 대한광산학회지, 22권, p. 163-169.
- 장기홍(1977) 경상분지 상부 중생계의 충서퇴적 및 지구조. 지질학회지, 13권, p. 76-90.
- 정영욱, 전효택(1990) 전남 화순, 다도 및 해남지역 납석광상의 지구화학적 연구. 한국자원공학회지, 27권, p. 63-76.
- 정영욱, 전효택(1989) 경남 양산 및 밀양지역 납석광상의 지구화학적 연구. 광산지질, 22권, p. 341-354.
- 진명식, 주승환(1980) Rb-Sr age determination of the Yoocheon granitic rocks. Workshop on age dating, Seoul, SE Asia regional network of geosciences, UNESCO.

- 차문성, 윤성효(1988) 한반도의 화산암물구조 및 환상복합체에 관한 연구. *지질학회지*, 24권, p. 67-86.
- 홍영국(1985) 한국동남부에 분포하는 백악기 언양 및 유천화강암의 지화학적 연구. *지질학회지*, 21권.
- Allegre and Michard(1974) Introduction to geochemistry. D. Reidel publishing Company, Dordrecht Holland, 113p.
- Beane, R. E. (1982), Hydrothermal alteration in silicate rocks. In Advances in geology of the prophyry copper deposits, southwestern North America, S.R. Titley, ed., The university of Arizona, p. 117-135.
- Bowman, R. and Tauber, E. (1979) Potential applications of two high grade kaolinitic clays and a pyrophyllite deposits. *J. Aust. Ceram. Soc.*, v. 15, p. 5-8.
- Clayton, R. N. and Mayeda, T. K. (1963) The use of bromine pentafluoride in the extraction of oxygen from oxides and silicates for isotope analysis. *Geochim. Cosmochim. Acta*, v. 27, p. 43-52.
- Cornish, B. E. (1983) Pyrophyllite. In Industrial minerals and rocks, S.J. Lefond ed.: AIME, v. 2, p. 1085-1108.
- Eberl, D. (1979) Synthesis of pyrophyllite polytypes and mixed layers. *Am. Miner.*, v. 64, p. 1091-1096.
- Fuji, N. and Inoue, H. (1971) Geologic features and classification of the pyrophyllite deposits in the Hokushin district, Central Japan. *Mining Geol.*, v. 21, p. 1-10.
- Hemley, J. J., Montoya, J. W., Marinenco, J. W. and Luce, R. W. (1980) Equilibria in the system  $\text{Al}_2\text{O}_3 - \text{SiO}_2 - \text{H}_2\text{O}$  and some general implications for alteration/mineralization processes. *Econ. Geol.*, v. 75, p. 210-228.
- Henderson, P. (1982) Inorganic geochemistry. Pergamon press, Oxford, p. 236-250.
- Hoefs, J. (1987) Stable isotope geochemistry. Springer-Verlag, Berlin, p. 184-196.
- Kita, I. and Honda, S. (1987) Oxygen isotopic difference between hydrothermally and diagenetically altered rocks from the Tsugaru-Yunosawa area, Aomori, Japan. *Geochem. J.*, v. 21, p. 35-41.
- Klein, T.L. and Criss, R.E. (1988) An oxygen isotope and geochemical study of meteoric-hydrothermal systems at Pilot mountain and selected other localities, Carolina slate belt. *Econ. Geol.*, v. 83, p. 801-821.
- Kuzvart, M. and Bohmer, M. (1986) Prospecting and exploration of mineral deposits. Elsevier, Amsterdam, p. 231-244.
- Lee, D. S. (1987) Geology of Korea. The Kyohaksa publishing Co., p. 175-187.
- Lee J. H. and Guggenheim, S. (1981) Single crystal X-ray refinement of pyrophyllite-1 Tc. *Am. Miner.*, v. 66, p. 350-357.
- Meyer, C. and Hemley, J. J. (1967) Wallrock alteration. In Geochemistry of hydrothermal ore deposits, H. L. Barnes, ed., Holt, Rinehart and Winston, New York, p. 166-235.
- Ohmoto, H. and Rye, R. O. (1979) Isotopes of sulfur and carbon. In Geochemistry of hydrothermal ore deposits, H. L. Barnes, ed., John Wiley and Sons, New York, p. 509-529.
- O'Neil J. R. and Taylor, H. P. (1969) Oxygen isotope fractionation between muscovite and water. *J. Geophys. Res.*, v. 74, p. 6012-6022.
- Rayner, J. H. and Brown, G. (1965) Structure of pyrophyllite. *Clays Clay Miner.*, Proceeding of the 13th National Clay Conference in Madison, WI, p. 73-84.
- Rose, A. W. and Burt, D. M. (1979) Hydrothermal alteration. In Geochemistry of hydrothermal ore deposits, H. L. Barnes, 2nd ed.; John Wiley and Sons, New York, p. 173-205.
- Rosenberg, P. E. (1974) Pyrophyllite solid solutions in the system  $\text{Al}_2\text{O}_3 - \text{SiO}_2 - \text{H}_2\text{O}$ . *Am. Miner.*, v. 59, p. 173 - 205.
- Taylor, H. P. (1979) Oxygen and hydrogen isotope relationships in hydrothermal mineral deposits. In Geochemistry of hydrothermal ore deposits, H. L. Barnes, ed. John Wiley and Sons, Inc., New York, 239 p.
- Tauber, E., Peplinkoush and Crock, D. N. (1976b) Replacement of silica by pyrophyllite in vitreous china products. *Interceram.*, v. 25, p. 195-198.
- Tauber, E., Peplinkoush and Murray, M. T. (1973) Stoneware bodies based on pyrophyllite. *J. Aust. Ceram. Soc.*, v. 9, 47-51.
- Thompson, A. B. (1970) A note on the kaolinite-pyrophyllite equilibrium. *Am. J. Sci.*, v. 267, p. 259-272.
- Wardle, R. and Brindley, G. W. (1972) The crystal structures of pyrophyllite, 1Tc, and of its dehydroxylate. *Am. Miner.*, v. 57, p. 732-750.
- Yanagisawa, F. and Sakai, H. (1983) Thermal decomposition of barium sulfate-vanadium pentaoxide-silica glass mixtures for preparation of sulfur dioxide in sulfur isotope ratio measurements. *Anal. Chem.*, v. 55, p. 985-987.