

## 전남 해남지역 납석, 명반석 및 도석광상의 분포, 광물조성 및 형성기구

문희수\* · 송윤구\*

### Mineralogy, Distribution and Origin of Some Pyrophyllite-Dickite-Alunite Deposits in the Haenam Area, Southwest Korea

Hi-Soo Moon\* and Yungoo Song\*

**ABSTRACT:** Mineral assemblages, mineral chemistries and stable isotope compositions of altered rocks of the Ogmae, Seongsan, Haenam and Gusi mines near the Haenam volcanic field in the southwestern part of the Korea peninsula were studied. Characteristic hydrothermal alteration zones in these deposits occurring in the Cretaceous volcanics and volcanogenic sediments, acidic tuff, and rhyolite, were outlined. Genetic environment with particular reference to the spatial and temporal relationships for these deposits were considered.

The alteration zones defined by a mineral assemblage in the Ogmae and Seongsan deposits can be classified as alunite, pyrophyllite, kaolinite or dickite, quartz, illite or illite/smectite. Alunite was not developed in the Gusi and Haenam deposits. Boundaries between the adjacent zones are always gradational except for vein-type alunite. Alteration zones are superimposed upon each other in some localities. These deposits formed  $71.8 \pm 2.8 \sim 76.6 \pm 2.9$  Ma ago, which is the almost same age of later volcanic rocks  $79.4 \pm 1.7 \sim 82.8 \pm 1.2$  Ma, the Haenam Group, corresponding to Campanian. It indicates that hydrothermal alteration of these deposits appeared to be related to felsic volcanism in the area.

Consideration of the stability between kaolinite, alunite, pyrite and pyrophyllite, and the geothermometry based on the mineral chemistry of illite and chlorite suggests that the maximum formation temperature for alunite and pyrophyllite can be estimated at about  $250^\circ\text{C}$  and  $240 \sim 290^\circ\text{C}$ , respectively. It also suggests that these deposits were formed by acidic sulfate solution with high aqueous silica and potassium activity in a shallow depth environment. Compositional variation of alunite also suggests that the physico-chemical conditions fluctuated considerably during alteration processes, indicating shallow depth environment. The Haenam deposit was formed at a relatively greater depth than the others. The sulfur isotope composition of alunite and pyrite indicates that sulfur probably had a magmatic source, and the oxygen isotope composition for kaolinite indicates that the magmatic hydrothermal solution was diluted by circulating meteoric water.

## 서 언

전남 서남부 해남군 일대는 경상계의 화산암이 넓게 분포되며, 이들 화산암류를 모암으로하여 여러개의 비금속광상을 형성시켰다. 이들 광상에 대한 연구는 木野崎吉郎 (1934)에 의하여 명반석광상에 대한 연구가 이루어진 이래, 많은 학자들 (김규봉, 1970; 문희수, 1975; 조한익 및 문희수, 1978)에 의하여 자원확보 측면에서의 연구가 있었다. 이 지역의 지질과 이들 광상에 대한 광상학적 연구로서 이들의 분포, 광물학적 특성 및 성인에 관한 많은

연구가 수행되었다 (손진담 등, 1980; 박홍봉 등, 1982, 1988; 차문성 및 윤성효, 1988; 유장한, 1985; 신상은, 1988; Cho and Kim, 1989; 김종환 등, 1990; 신상은 및 박홍봉, 1990; 정영욱 및 전효택, 1990; 김영희 등, 1990; 문희수 등, 1990, 1991; Moon et al., 1991; 이성록 및 김문영, 1985; 전효택 등, 1991; Kim, 1989). 이러한 일련의 연구결과로서 이 지역에 주로 분포되는 화산암의 시대가 백악기 Albian에서 Maastrichtian에 해당됨과 광상이 분포되는 지역은 후화산활동의 일환으로 칼데라가 형성되었음을 밝혔고, 광석광물의 광물조성과 물리적 특성 및 열수변질산물로서의 성인에 대한 이해가 명확하게 되었다. 그러나 이들 연구는 각개 광상을 대상으로한 연구로서 이

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

지역에서의 변질작용을 인접한 광상 상호간의 관계로 연계시켜 설명하지는 않았다.

본 연구자는 이 지역에서 해남, 구시, 옥매산 및 성산 광산을 연구하면서 옥매산과 성산광상은 명반석을 수반하는데 반하여, 구시 및 해남광상은 이를 수반하지 않지만 이들 광상의 형성기구가 매우 유사하며, 거의 시기적으로도 동일한 시기에 해당되는 것을 알았다. 이들 광상들의 형성기구는 서로 시대를 달리하는 독립된 별개의 광화작용이 아닌 일련의 매우 유사한 변질작용에 의하여 형성되었으므로 지금까지의 상기 광상들에 대한 연구 결과를 비교·종합하여 이들 광상들이 시·공간적으로 어떤 관계를 갖고 있는지와 변질작용의 유사점과 차이점을 밝히고자 한다.

## 지질개요

해남 일대의 지질은 선캠브리아기의 변성암류를 기반암으로하며 유라기의 화강암류가 이를 관입하고 있다. 이를 부정합으로 백악기의 퇴적암류 및 화산암류가 피복되며, 이를 백악기말의 화강암류 및 반암류가 관입한다 (Fig.1).

선캠브리아기의 변성암류는 퇴적기원이며 (이대성 및 이하영, 1976), 일반적으로 유라기의 화강암은 풍화가 심해서 신선한 노두관찰이 어려우나, 진도에서 채취된 이의 K-Ar연대는  $161 \pm 6.0$  Ma (문희수 등, 1990) 이다. 이를 본 역에서 가장 넓은 분포를 보이는 화산암류가 피복한다. 이들 화산암류는 하부로부터 중성화산암류, 산성화산암류로 구분되며, 하위의 중성화산암류인 해남층군이 상위의 산성화산암류인 화원층군을 피복한다 (손진담 등, 1980; 문희수 등, 1990). 이들 하부의 중성화산활동을 대표할 수 있는 안산암의 전암 분석결과는  $94.1 \pm 2.0$  Ma로서 상부 백악기의 최하부에 해당되고, 산성화산활동을 대표할 수 있는 암석들의 연령은  $79.4 \pm 1.7 \sim 82.8 \pm 1.2$  Ma로 Campanian에 해당되는 것으로 보고되었다 (문희수 등, 1990; 김중환 등, 1990). 이들 산성화산암류의 시기는 본역 남부의 추자군도에서 채취한 유문암질용회암의 연령인  $84.9 \pm 5.9$  Ma (원종관 및 이문원, 1988) 와 잘 일치된다. 본 역에서 함몰대의 형성은 손진담 등 (1980) 이 제안한 후, 차문성 및 윤성효 (1988) 에 의하여 환상관입암류의 존재를 밝히고 함몰대의 가상적인 경계를 제안한 바 있으며, 최근에는 김중환 등 (1990, 1991) 에 의하여 함몰대의 형성과 화산활동과의 관계를 밝힌 바 있다. 이들 산성화산암류의 분출은 칼데라 형성이후의 화산활동에 기인되는

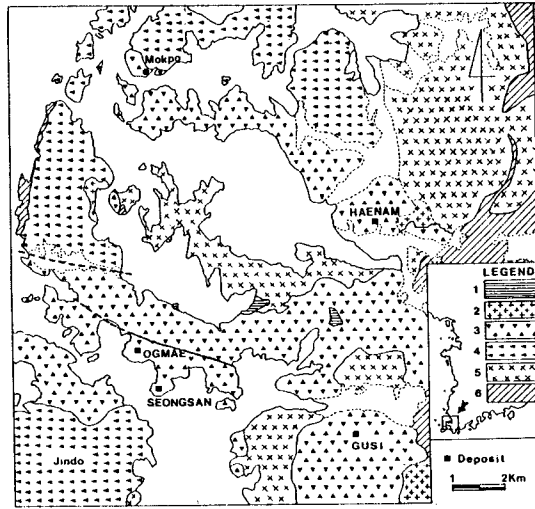


Fig. 1. Simplified geologic map of the Haenam area, showing the locations of the Ogmae, seongsan, Gusi and Haenam deposit. 1:porphyry, 2:Cretaceous granite, 3:the Haenam Group (volcanic and sedimentary rocks of Cretaceous), 4:The Hwawon Group, 5:Jurassic granite, and 6: Pre-cambrian metamorphic rocks.

것으로 해석된다.

대흥사지역에 분포되는 안산암의 K-Ar 연령 측정결과 ( $68.6 \pm 1.9$  Ma) 및 야외증거를 근거로 과거 화원층군 및 해남층군은 별도로 이보다 후기인 백악기말 최후기인 Maastrichtian에 해당되는 제3의 화산활동을 제안하고 있다 (문희수 등, 1990). 그러나 중성의 화산암류가 해남층군을 관입한다해서 반드시 별개의 화산활동으로 구분해야 하느냐 하는 점에서는 이견이 있을 뿐만 아니라, 단 한개 시료의 측정결과만 있을 뿐이어서, 이의 구분은 더욱 검토되어야 할 문제이다. 그러나 해남층군으로 해석한다해도 최후기의 화산활동은 산성화산암류의 분출외에도 중성화산암류의 분출이 있었음을 지시한다. 제3의 화산활동은 본 역의 화산층서에 대한 정밀지질조사가 수행될 때 확실한 결론을 얻을 수 있을 것이다.

이들 백악기 화산암류는 백악기 말의 반암류 및 화강암에 의하여 관입된다. 산성화산암류를 관입한 천부관입암류가 화원반도의 곳곳에 분포하며, 이들 중의 하나인 화원면 월강두의 장석반암은  $79.6 \pm 1.9$  Ma이다 (문희수 등, 1990). 화원반도 북단에 분포되어 있는 흑운모화강암은 67 Ma 이다 (이대성 및 이하영, 1976). 이러한 상대적인 관계는 산성용회암류를 형성시킨 잔류마그마가 천부관입형태로 반암류를 형성시켰으며, 이보다 상대적으로 후기에

Table 1. Stratigraphic horizon, lithology, alteration zone and mineral assemblages of ore zone, and formation ages in some pyrophyllite, alunite, and dickite deposits occurred in the Haenam area.

Name of deposit	Geologic time & Stratigraphic horizon	Host rock	Dominant Mineral Assemblages of Ore zone	Alteration zone
Ogmae deposit	Upper Cretaceous Haenam Group	acidic tuff	kaolinite-dickite-quartz alunite-quartz-pyrite	alunite zone, kaolinite zone, sericite zone, quartz zone
Seongsan deposit	Upper Cretaceous Haenam Group	acidic tuff or rhyolite	dickite-pyrophyllite-quartz, alunite-quartz-pyrite	alunite zone, dickite zone, quartz zone
Gusi deposit	Upper Cretaceous Haenam Group	acidic tuff or rhyolite	dickite-pyrophyllite-quartz	quartz zone, pyrophyllite zone, dickite zone, illite-smectite zone
Haenam deposit	Upper Cretaceous Haenam Group	acidic tuff	pyrophyllite-kaolinite	pyrophyllite zone, illite zone, kaolinite zone

화강암류가 관입되었을 가능성을 지시한다.

### 광상별 광석광물 조성과 변질대의 구분

#### 광상의 분포

이번 연구의 비교대상인 옥매산, 성산, 구시 및 해남광상은 해남층군에 해당되는 산성화산활동에 수반되어 형성된 산성응회암류 혹은 유문암을 모암으로 하여, 해남층군이 분포된 지역에서 산출된다 (Fig. 1, Table 1). 그러나 구시광상은 본 역 最後期의 화산활동으로 여겨지는 중성화산암류와 산성화산암류가 互層으로 분포되는 지역에서 산성응회암류를 모암으로하여 산출되며, 성산광상의 일부 광체구간은 유문암 내에 배대된다. 이들 광상의 모암이 되는 酸性鷹灰岩硫는 酸性 火山灰가 주구성물질로서, 이와 호층 혹은 이를 절단하며 산출되는 유문암의 화학조성과 매우 유사하다 (김중환 등, 1990; 김영희 등, 1990). 이들 광상들의 분포는 해남지역의 구조선과 밀접한 관계가 있어, 옥매산 및 성산 광상은 칼데라 함몰시에 형성된 環狀斷層線의 남단에 위치하는 (손진담 등, 1980; 김중환 등, 1990; 차문성 및 윤성효, 1988) 黃山斷層이란 正斷層線에 위치하며, 구시광상과 해남광상 또한 추정된 함몰체의 경계 내·외부에 존재하는 차이는 있지만, 둘다 단층면을 중심으로 광상이 胚胎되어 있다. 그러나 이 단층의 형성시기는 함몰대의 형성과 동시인지의 여부는 알 수 없으나 광화작용 이전에 형성된 것은 분명하다. 이러한 사실은 이들 광상 모두가 어떤 변질작용에 의하여 광체를 형성시켰든지간에 동일한 구조적 규제 요인을 갖고 있음을 말해준다.

각 광상별로 광석광물의 주요 광물조성을 기초로 구분한 변질대는 Table 1에 기재한 바와 같다. 이들 광상은 채광하는 대상에 따라 광석의 광물조성이 서로 다르다. 그러나 각 광상별로 산출되는 광석광물 조합을 나열하면 다음과 같다. 옥매산광상의 명반석대는 맥상명반석의 경우 명반석-석영-황철석의 광물조합을 보이나 적철석을 흔히 수반한다. 카올리나이트帶와 납석대에서는 디카이트-납석-석영-명반석-황철석의 광물조합을 보인다. 그러나, 이 변질대에서도 명반석이 광염상으로 산출되는 부위에서는 세립의 황철석이 濃集된 산출상을 보이기도 한다. 石英帶로 구분되는 석영이 우세한 변질대가 주로 광체의 상부에 발달되고 있다. 성산광상의 경우도 옥매산광상과 유사한 광물조성을 보이나, 명반석의 산출이 상대적으로 적으며, 곳에 따라 일라이트대를 형성시킨다. 옥매산광상과 성산광상은 맥상의 순수한 명반석이 산출된다. 구시광상과 해남광상은 도석과 납석을 산출하며 명반석을 함유하지 않는다. 구시광상의 광물조성은 납석 및 도석광석이 산출되는 帶에서는 납석-디카이트-일라이트-석영-다이아스포어의 광물조합을 보이며, 광체의 외곽 즉 변질정도가 약한 쪽으로 갈수록 카올리나이트, 녹니석과 일라이트/스멕타이트 혼합층상광물이 산출된다. 이러한 점토광물은 그 양이 매우 적지만 역시 옥매산광상에서도 산출된다. 해남광상의 경우 구시광상과 광물조합이 매우 유사하나 다이아스포어 외에도 열수의 통로로 여겨지는 단층선을 따라 강옥과 홍주석을 산출한다. 해남광상에서 산출되는 일라이트는

거의 網雲母化된 결정도가 매우 높고 膨脹層의 함유비가 구시광상의 시료들에 비하여 매우 낮다 (문희수 등, 1991).

변질산물로 산출되는 광물을 기준으로 한 변질대의 구분은 광상간에 약간의 차이가 있지만 매우 유사한 경향을 보인다. 이들 광상에서 관찰되는 변질대는 변질대의 중심부에서 外殼으로 가면서 옥매산광상은 명반석대, 명반석-석영대, 석영대 및 카올리나이트대로 변하고 규화작용이 현저한 석영대가 광체의 상부에 나타나서 帽岩 (cap rock)의 형태로 산출된다. 성산광상도 매우 유사하나 명반석대의 발달이 상대적으로 옥매산광상에 비하여 미약하며, 일라이트대가 발달하고 녹니석의 양이 상대적으로 다른 광상에 비하여 많아 일라이트-녹니석대로 분류가 가능하다 (Kim, 1989). 구시광상은 납석대, 디카이트대, 일라이트-스멕타이트대와 석영대로 구분이 가능하나 석영대의 위치가 변질대 내에서 可變的이다. 이는 옥매산 및 성산광상의 경우도 마찬가지이나 옥매산 및 성산광상의 경우는 좀 더 규칙적이고 변질대의 最上位로 오는 傾向이 있다. 해남광상의 경우는 납석대 및 일라이트대로 區分이 가능하고, 석영대는 분대가 불가능하고, 카올리나이트대 또한 발달이 매우 미약하나 다른 광상에 비하여 상대적으로 高溫性 광물들을 裂隙을 따라 더욱 많이 형성시킨 특징을 보인다.

## 화산활동과 광화작용과의 관계

### 열수의 기원

열수의 성질은 우선 변질대에서 관찰되는 광물조합에 근거하여 유추할 수 있다. 어느 변질대에서나 석영은 항상 존재하며, 변질광물인 납석 및 디카이트가 우세한 광물조합은 적어도 규산이 포화된 상태에서의 산성용액에 의한, 수소이온 활동도가 매우 높은 환경에서의 변질작용임을 지시한다. 그러나 명반석을 형성한 옥매산 혹은 성산광상의 열수는 상대적으로 황이온 농도가 명반석을 수반하지 않는 구시나 해남납석광상을 형성시킨 열수의 것보다는 높았을 것이다. 해남, 구시 및 다도 광상에서 산출되는 황산염광물과 황화광물의 황동위원소 분석결과들 (김영희 등, 1990; 정효택 및 전효택, 1991; 전효택 등, 1991) 을 한 도표 (Fig.2) 에 도시하였다.  $\delta^{34}\text{S}$ 는 대체로 0~+5‰의 범위로서 마그마 기원으로 추정되고, 황화물과 황산염광물은 동위원소적으로 비평형 상태에서 생성되었음을 지시한다. 이러한 현상은 성산광상에서도 동일하게 관찰

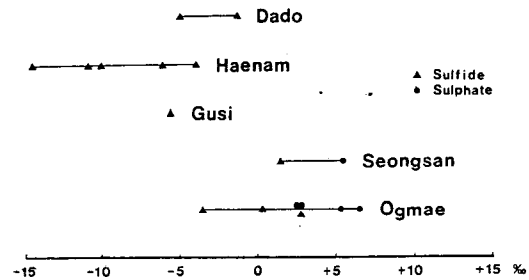


Fig. 2 Sulfur isotope composition of sulfide(pyrite) and sulfate(alunite) from the Gusi, Seongsan, Ogmae (Kim et al., 1990), Haenam (Kim et al., 1990; unpublished data from Kim, 1991), and Dado (Chun et al., 1991) deposit.

되며, 특히 명반석이 공존하지 않는 해남, 구시 및 다도 광상의 경우, 황철석의  $\delta^{34}\text{S}$ 가 더욱 낮은 값을 갖는 것은 변질과정 중 열수의 성질이 점점 더욱 강한 산성으로 변화되었음을 지시하며, 실제로 이는 이들 광상이 카올린족 광물이 우세한 것과도 일치된다. 이는 카올린광물의  $\delta^{18}\text{O}$ 와  $\delta\text{D}$ 의 값으로부터도 (김영희 등, 1990; 신상은 등, 1991; 전효택 등, 1991) 유사한 결론을 얻을 수 있다. 특히 -50~-90‰ 정도로 낮은  $\delta\text{D}$ 는 지표수의 혼입을 증거해 준다. 그러나 이와 같은 낮은  $\delta\text{D}$ 는 지표수의 혼입을 가정해도 매우 낮은 값으로 해석하기가 어려운 점이 있다. 이런 낮은  $\delta\text{D}$ 는 열수가 증기상태로 가열된 상태로 변하면서 가벼운 동위원소체가 우세해진 결과 (Rye et al, 1989) 로 해석할 수도 있다. 하여튼 지표수의 혼입은 상승하는 열수에 포함된 황의 산화를 도왔고, 이러한 환경 하에서 명반석이 침전되었다. 지표수의 유입이 상대적으로 더 많은 환경에서는 온도가 급격히 내려가 충분한 변질작용을 주지 못했을 것이다. 이러한 예는 황산면 일대에 수 개소가 더 나타난다. 지표수의 유입은 열수용액 (혹은 증기 상태의 열수 포함)의 pH와  $f_{\text{O}_2}$ 를 증가시키고  $f_{\text{S}_2}$ 는 감소시킬 것이다. 이 때의 온도가 광물조성 및 광물화학적 방법에 의해 측정된 결과대로 (김영희 등, 1990; 문희수 등, 1991) 250°C 정도라면 Stoffregen (1987) 이 제시한 값에 의하면, 이때의 pH는 3정도이고, 명반석이 적철석과 황철석이 공존하는 것으로 보아  $-\log f_{\text{O}_2}$ 는 31 내외이었을 것이다. 용액으로 수소이온의 공급이 증가하게 되어 pH가 그 이하인 강한 산성으로 변하게 되면 명반석을 침전시키지 못하고 구시와 해남광상의 경우처럼 납석과 디카이트만을 형성시키게 되었을 것이다. 이때 형성된 황화광물과 황산염광물의 황동위원소 조성은 유사한 범위에 오게되는데 (Rye et al, 1989), 본 역의 경우 황철석과 명

반석이 이러한 범위에 온다 (김영희 등, 1990). 만약 동위원소적인 평형상태에서 이 두 광물이 형성되었다면 황산염광물인 명반석의 경우 +5% 정도가 아니라 이보다 훨씬 무거운 동위원소 조성을 가져야 한다. 이러한 변질작용은 천부 마그마 활동과 관련된 acid-sulfate type의 변질작용에 해당되며, 또한 steam-heated type 천열수계 변질작용에서 흔히 관찰되는 동위원소 조성의 변화이다 (Stoffregen, 1990; Rye et al., 1989; Matsuhisa et al., 1990). 명반석을 수반하는 옥매산이나 성산광상을 형성시킨 열수에 비하여, 이를 수반하지 않는 구시나 해남광상을 형성시킨 열수는 이러한 환경하에서는 황이온의 농도가 상대적으로 낮았을 것임을 추측할 수 있지만, 이러한 영향과 함께 열수의 pH의 변화 또한 광물형성에 큰 영향을 주었을 것이다.

이러한 결과를 종합해 보면, 열수는 마그마 기원이며 상승하는 과정에서 지표수가 혼입되는 정도에 따라 그 화학적 성질이 변화되었음을 지시한다.

### 천열수 변질작용의 증거

덕카이트대 및 카올리나이트대에서 산출되는 카올린족 광물은 덕카이트와 카올리나이트이며 드물게 나크라이트가 산출된다. 일반적으로 덕카이트는 결정도가 높으며, 구조 내의 내부치환이 거의 없는 이상적인 조성을 갖고 있다 (Cho, 1990; 김영희 등, 1990; 이성록 및 김문영, 1985; 문희수 등, 1991). 그러나 옥매산 광산의 경우, 카올리나이트의 결정도는 X-선회절분석 및 示差熱分析 결과 little disordered에서 well ordered에 이르기까지 다양한 변화를 보인다 (김영희 등, 1990). 한 광상의 같은 장소에서 결정도의 차이가 큰 동일한 광물이 混在되어 산출되는 것은 광물 형성 당시, 온도의 변화가 쉽게 일어났을 가능성을 지시하며, 이런 변화는 熱損失이 비교적 쉽게 일어날 수 있는 地表 가까운 곳의 변질작용임을 지시하는 증거가 된다.

이보다는 높은 온도 영역에서 안정한 명반석의 경우도 결정구조내 A-site의 K이온을 치환한 Na이온의 비가 0~40% 범위로 다양하게 나타나고 있다 (김영희 등, 1990; Cho and Kim, 1989). 여러가지 가정이 가능하겠으나, 이들이 지하 심부에서 변질되었다면 거의 균질한 K/Na비를 갖거나, 점이적인 변화를 보일 것이다. Stoffregen 과 Cygan (1989) 은 K/Na 비가 일정한 조건하에서는 온도가 높은 환경에서 Na가 명반석의 구조내에 더욱 쉽게 결합

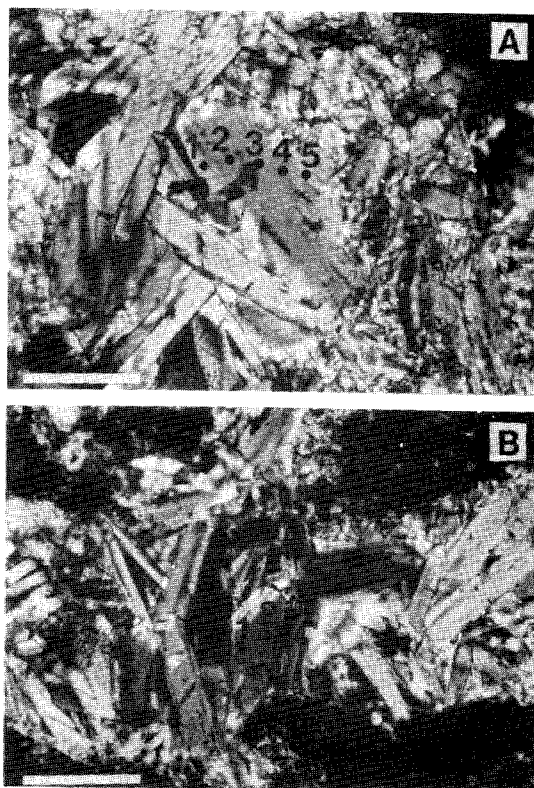


Fig. 3. Photomicrographs of alunitic with calcedonic quartz from the Ogmae deposit, showing zonal structure in both A and B. Numbers on photomicrographs indicate the point for EPMA. Scale bar indicates 0.1 mm.

한다는 사실을 밝혔다. 옥매산광상에서 산출되는 명반석 (Fig.3) 은 대상구조를 보이며, 이의 분석결과를 예시하였다. Table 2의 B에 제시한 바와 같은 단일결정 내의 K/Na 비의 급격한 변화는 온도의 급격한 변화나 유황농도의 변화를 지시한다. 열수용액 중의 Na이온 농도가 낮아 모암 내에 존재하는 사장석의 용리에 의하여 Na이 공급되거나, 온도가 점이적으로 변화되었다면 점이적으로 이 비가 변화되어야 할 것이다. 하여튼 이러한 K/Na 비가 명반석 단일결정 내에서도 결정의 부위에 따라 심한 차이를 보이는 것은 온도의 변화가 일어나기 쉽거나 혹은 열수의 화학적 변화가 용이한 환경 즉 지표에 가까운 산화환경이었음을 지시한다 (Aoki, 1980; Stoffregen and Cygan, 1989).

변질대 내부의 스펙타이트의 존재 또한 낮은 온도의 변질작용임을 지시하며, 특히 해남광상의 경우 상대적으로 고온성 광물인 강옥과 다이아스포어등이 변질대의 중심 부위인 열극 혹은 단층선을 따라 제한적인 분포를 보이는

Table 2. Electron microprobe analyses and structural formulae for allunites.

Sample Name	(A)					(B)	
	1	2	3	4	5	1	2
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	36.90	36.79	36.57	36.59	36.60	35.83	36.57
FeO	0.02	0.00	0.00	0.00	0.01	0.06	0.00
Na <sub>2</sub> O	0.98	1.16	0.90	0.79	0.80	0.33	1.20
K <sub>2</sub> O	9.35	8.70	9.42	9.59	9.93	10.64	9.20
SO <sub>3</sub>	39.47	38.76	39.29	38.70	39.14	38.31	39.18
Total	86.72	85.41	86.18	85.67	86.48	85.17	86.15
Number of cations on the basis of oxygen 11							
Al	2.971	3.000	2.963	2.989	2.967	2.963	2.965
Fe	0.001	0.000	0.000	0.000	0.001	0.004	0.000
Na	0.130	0.156	0.120	0.106	0.107	0.045	0.160
K	0.815	0.768	0.826	0.848	0.871	0.952	0.807
S	2.023	2.013	2.027	2.013	2.020	2.018	2.023

것 (문희수 등, 1991) 은 고온의 열수가 빠른 속도로 상승한 결과로 여겨지며, 이러한 빠른 속도의 이동은 비교적 지표에 가까운 환경이거나 비교적 열극이 잘 발달된 파쇄대이거나 단층면에 해당될 것이다. 그러나 규화대가 잘 발달하지 못한 것으로 보아, 상대적으로 용탈작용이 우세한 하부에 해당될 것이다 (Fig.5).

황동위원소 연구 결과는 변질대의 공간적인 위치를 좀 더 명확하게 추정할 수 있게한다. 동일한 마그마 기원의 황이라 할지라도 증기상태로 가열된 (steam-heated) 열수에 의하여 형성된 광물들의 황철석과 명반석, 그리고  $\delta^{34}\text{S}$ 의 값은 매우 유사한 범위에 오는 것은 전술한 바와 같다. Steam-heated alteration 자체가 지표 근처의 변질작용이며, 위와 같은 형성온도는 이를 뒷받침 해주는 증거가 된다. 이런 환경에서의 황은 그보다 하부의 boiling fluids로부터 분리된 H<sub>2</sub>S 상태로 공급된다 (Rye et al., 1989). 황동위원소 조성으로 보아도 성산과 옥매산광상은 boiling zone의 상위에 위치하는 천부 변질작용임을 알 수 있다.

#### 변질광물의 추정 생성온도

변질산물로 나타나는 광물의 추정 생성온도는 다음과 같다. 지금까지 연구된 광물학적 상평형관계, 안정동위원소 및 광물화학을 이용한 이들 변질작용의 온도 조건은 다음과 같다. 구시광상의 경우 일라이트-스멕타이트대는 200°C 이하, 덤카이트대는 본대에 수반되는 자생 녹니석지질 온도계와 상평형관계를 근거로 200~260°C 에서, 납석대는

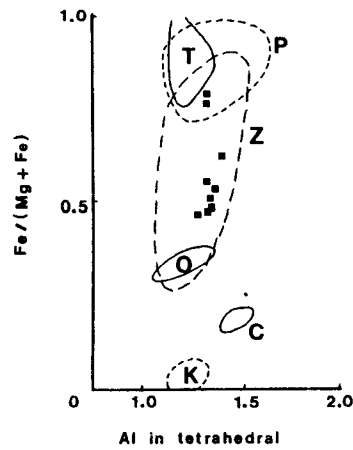


Fig. 4. Chemical composition of chlorites associated with ore from the Gusi pyrophyllite deposit in Korea and vein type and Kuroko deposits in Japan, All data except for the Gusi quoted from Ohta & Yajima(1988) T:Toyoha veins, P:Polymetallic veins, Z:Cu-Pb-Zn veins, O:Ore Pb-Zn-Mn veins, C:Chitose Au-Ag vein, K:Kuroko deposit, X:Gusi pyrophyllite deposit.

265°C 보다는 높은 온도에서 형성되었다고 추정하였다 (Moon et al., 1991). 옥매산광상의 경우 산소 및 수소 안정동위원소 측정결과로부터 카올린대는 150°C이하에서 형성되었으며, 상평형 관계로부터 명반석대는 250°C 이하에서 형성되었음을 (김영희 등, 1990) 밝혔다. 해남광상의 경우는 Cathelineau (1988) 가 제안한 일라이트 지질온도계 및 상평형관계를 이용하여 납석대의 형성온도를 240~290°C 로 추정하고 있다 (문희수 등, 1991). 이상의 결과를 종합하여 보면, 카올리나이트대와 순수한 일라이트가 아닌 일라이트-스멕타이트대의 형성온도가 제일 낮고, 명반석대 및 일라이트대 혹은 납석대의 순으로 형성온도가 증가함을 알 수 있다.

변질산물로서 산출되는 녹니석의 경우, Fe/(Fe+Mg)는 성산광상의 경우 0.21~0.26이며 (Kim, 1989), 구시광상의 경우 0.23~0.39 (Moon et al., 1991) 로서 매우 유사한 범위에 온다 (Fig.4). 이 비는 주변의 변질받지 않은 모암에서의 Fe/(Fe+Mg)비와 매우 유사한 값으로서, 녹니석은 리피돌라이트에 해당된다. Ohta와 Yajima (1988) 는 Fe/(Fe+Mg)비는 녹니석의 형성 당시의 평형온도와의 관계가 매우 높은 사실을 밝히고, 이 비가 0.8 이상인 경우는 적어도 이의 형성온도가 450°C 이상이며, 이 비가 0.2 이하이면, 80~200°C의 범위로 추정하고 있다. 이 비로만 보면, 이들의 형성온도는 200°C 내외의 온도로 추정될

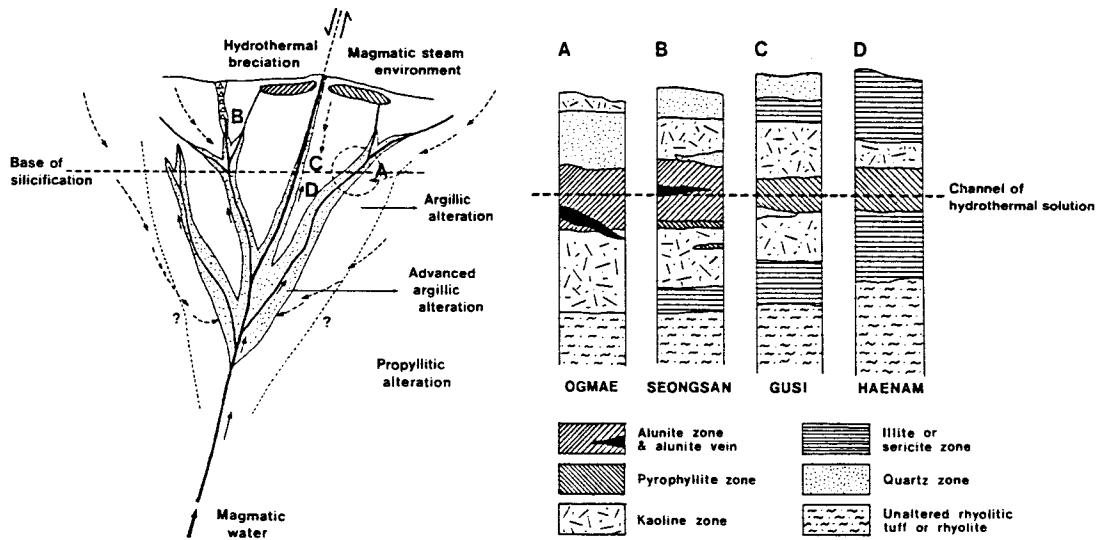


Fig. 5. Schematic model of felsic volcanism related hydrothermal systems modified from Silverman and Bereer(1985), showing estimated depth of formation of the Ogmæ, Seongsan, Gusi and Haenam deposit (right) based on the alteration zones shown in the left schematic cross section, stability relationships between alteration products, and geochemical data. Dotted line with arrow and solid line with arrow indicate the pathway of groundwater and magmatic hydrothermal solution, respectively. The advanced argillic alteration zone grades into the argillic alteration zone and quartz zone was normally developed in the top of the alteration zones. A:Ogmæ, B:Seongsan, C:Gusi, and D: Haenam deposit.

뿐만 아니라, 이러한 값은 일본의 천연수 광상에서 형성된 녹니석의 Fe/(Fe+Mg)비의 범위와 잘 일치되고 있음을 알 수 있다. 또한 이 결과는 상평형관계로 유추한 각 변질광물의 생성온도와도 비교적 잘 일치되는 결과를 보여 주고 있다.

### 변질작용의 규제요인

본 역은 이들 광상 형성의 규제요인으로서 화학적인 규제와 구조적인 규제, 두 가지 모두를 받고 있다.

우선 화학적인 규제를 들면 다음과 같다. 각 광상들의 모양을 이루는 산성용회암이나 유문암은 생성시기와 화학조성에서 매우 유사하나, 옥매산광상과 성산광상은 명반석을 수반하고, 해남과 구시광상은 명반석을 수반하지 않는 차이점을 보인다. 이러한 이유는 모양의 화학조성이나 암석의 종류 혹은 조직의 차이로서는 설명될 수가 없으며, 열수의 화학적성질의 변화로서 설명되어진다. 이들 광상들은 여러번의 변질작용이 반복·중첩되어 있다. 예를 들어 옥매산광상의 경우, 명반석 내의 조성의 변화는 열수의 화학 조성이 계속 변화되고 있음을 지시하며, 맥상의 명반석은 산점상의 명반석을 꿰고 발달된다. 또한 구시광

상의 경우 납석의 세맥이 기존의 납석대 및 일라이트대를 절단하는 구조가 관찰되기도 한다 (문희수 등, 1991). 이러한 사실은 광화작용의 반복을 지시하는 증거가 되며, 반복된 변질작용에서도 동일한 변질광물군이나 각기 다른 광물을 형성시켰음은 반복되는 변질작용 혹은 광화작용시 열수의 물리화학적 조건의 변화에 기인하였음을 지시한다. 가장 큰 이유는 지표수와 혼합되는 정도의 차이에 의한  $f_{SO_2}$ 나 pH의 변화가 열수의 상승에 따른 온도의 강하이었을 것이다. 지금까지의 실험적인 연구결과 (Hemley et al., 1969; Stoffregen, 1987) 에 의하면 석영-명반석-카올리나이트의 공존관계로 보아  $\log a_K$ 가 변질작용의 어느 경우에도 적어도  $-2.8$  이상에 해당됨을 알 수 있다. 만약  $\log a_K$ 가  $-2.8$  이하라면 이들이 공존하는 광물상은 존재할 수 없다. 이때 열수의 pH가 증가하는 방향으로 변화가 일어나면 명반석의 침전은 일어날 수 없으며 (Hemley et al., 1980; Knight, 1977), 카올린족의 광물을 형성하게 된다. 이러한 사실로 미루어 보아, 이들 해남과 구시광상에서 관찰되는 광물조성의 차이는 광화작용의 시기에 따라 열수의 화학적 성질이 변화된데 기인한 것으로 설명하는 것이 가장 합리적일 것이다. 그러나 다량의 지표수 혼합으로  $H_2S$  상태로 공급되던 황이온의 농도 감소 또한 이들

광물 생성에 영향을 미쳤을 것이다.

구조적인 규제요인으로는 단층을 들 수 있다. 단층선이나 파쇄대를 중심으로 변질대가 강한 변질작용으로부터 약한 변질작용으로 변화되는 현상을 옥매산, 성산, 구시 및 해남광상 共히 觀察할 수 있으며, 납석, 도석 및 명반석 광체는 단층선을 중심으로 발달한다. 이는 構造線들이 熱水의 通路가 되었음을 지시하는 증거가 된다. 그러나 이러한 단층선을 따라 상승하는 열수용액은 층수에 따라 선택적인 변질작용을 주었다. 특히 상대적으로 투수율이 높은 응회암의 경우 변질대의 수평적 규모가 유문암의 경우보다 더 큰 것을 구시나 성산광상에서 관찰할 수 있다. 따라서 광체의 공간적인 형태는 열수의 통로인 단층선을 따라 분포되나, 선택적인 변질작용의 결과로 응회암층내에서 가장 잘 발달된다. 큰 규모의 파쇄대가 하부에 발달되는 (손진담 등, 1980) 옥매산이나, 단층들이 서로 교차되면서 조밀하게 발달되는 (김종환 등, 1991) 성산광상의 경우 광체의 규모가 상대적으로 다른 광상에 비하여 크다. 이들 광상에서는 광화작용의 중첩에 의하여 그 전체 규모는 차라리 불규칙한 형태가 되며, 이는 이들 광상에서 변질대의 구분을 매우 어렵게 만든다.

### 화산활동 및 변질작용의 시·공간적 관계

화산활동의 시기는 전술한 바와 같이 화원층군인 안산암류의 연령은  $94.1 \pm 2.0$  Ma 로서 상부백악기의 하부에 해당되고, 해남층군은 그보다 훨씬 후기인 Campanian의 연령 ( $82.8 \pm 1.2 \sim 79.6 \pm 3.2$  Ma) 에 해당된다. 본 역에서 칼데라를 제안한 차문성 및 윤성효 (1988) 는 해남층군을 형성한 산성화산암류의 분출에 따라 본 역의 칼데라를 형성한 것으로 보고 있으며, 산이반도의 화강암류를 칼데라 생성 후의 화산활동으로 보고하였다. 또한 이들은 옥매산 및 성산광상이 위치한 황산단층이 칼데라 형성시에 생긴 정단층으로 보고 있다. 이에 반하여, 김종환 등 (1990) 은 이 두 광상을 배제한 산성화산암류의 분출을 칼데라 형성 후의 화산활동의 결과로 보고, 이때 형성된 함몰대의 경계나 약선대를 따라 분출된 것으로 보고 있으므로, 이 단층의 형성은 본 역의 주합몰대의 형성과는 관계가 없으며 後火山 活動後의 構造運動으로 해석하고 있다. 차문성 및 윤성효 (1988) 는 산이반도에 분포되는 화강암류의 시기를 백악기로 보고 함몰 후의 화산활동으로 기재하고 있으나, 이 산이반도에 분포하는 화강암류는 주라기 관입암류로서 화원반도 북단의 백악기의 흑운모화강암과는

시대를 달리한다 (문희수 등, 1990). 백악기의 화산암류가 이들 화강암류를 부정함으로 피복하는 경계부가 잘 관찰된다 (손진담, 1980; 문희수 등, 1990). 이러한 관입암류의 시기는 칼데라의 형성과정을 이해하는데 매우 중요한 것으로서 차문성 및 윤성효가 제시한 칼데라의 경계가 옳다면 이들은 함몰후 재상승된 것을 지시하며, 이의 driving force로서의 역할은 백악기 후기 관입암류로서 화원반도 등에 소규모의 산출을 보이는 흑운모화강암의 관입으로 해석할 수 있다.

이들 광상들의 변질작용의 시기는 절대연령 측정치의 誤差限界를 고려할때 거의 同時期에 해당된다. 이미 발표된 變質產物의 K-Ar 연령 (문희수 등, 1990) 은 성산광상의 명반석이  $76.6 \pm 1.9$  Ma, 옥매산 명반석의 경우  $73.9 \pm 2.8 \sim 71.8 \pm 2.1$  Ma 이며, 해남광산의 일라이트는  $73.9 \pm 2.8$  Ma 로 보고 (문희수 등, 1990) 되어 있다. 이 형성시기는 본 역의 산성화산암류로 구성된 해남층군의 화산암류의  $82.8 \pm 1.2 \sim 79.4 \pm 1.7$  Ma 보다 다소 후기로 차문성 및 윤성효 (1988) 가 제안한대로라면 칼데라의 형성과 거의 동시에 변질작용이 진행되었으며, 김종환 등 (1990) 의 제안이 옳다면 칼데라형성의 시기와 변질작용의 시기와는 시간적인 間隔을 가질 것이다. 광상들의 분포는 前者들이 제안한 칼데라의 가상 경계부와는 관계없이 분포되어 있고, 칼데라의 進化過程 (김종환 등, 1990) 으로 보아 후자들의 연구결과가 합리적인 해석으로 보인다. 특히 본역의 백악기 후기 화강암류는 67 Ma 로서 (이대성 등, 1976) 광화작용 후에 관입되었으므로, 본 역의 변질작용은 화강암과의 관계보다는 화산활동과 직접 관계된 화산활동 종식후 淺部에 잔류된 마그마에 기인된 것으로 생각한다. 실제로 천부관입암류인 반암류의 연령은  $79.6 \pm 3.2$  Ma 로서 이를 뒷바침 해준다. 본 역에서 중성화산암류의 분출이 끝나고, 함몰대가 형성된 후, post-caldera 화산활동으로서 산성화산암류를 분출한 화산활동이 終息되고 이들 殘留마그마로부터 基因된 열수에 의한 변질작용임을 지시한다.

이들의 변질작용이 천부 변질작용임을 전술한 바와 같으며, 이러한 변질작용에 흔히 수반되는 천연수 금 은 광화작용을 고려할 때, 이 변질작용이 일어난 相對的인 深度는 매우 중요하다. 변질작용이 일어난 심도에 대한 既發表된 논문은 없으나, 일반적으로 본 역의 경상계 암류의 침식심도는 매우 깊었을 것으로 생각하고 있어서, 변질심도 또한 상당한 심도를 가질 것으로 생각하고 있다. 이러한 주장을 하는 가장 근본이 되는 증거로서는 백악기 화강암류의 지표 노출을 들고 있다. 그러나, 흥미롭게도



지금 연구된 4개 광상의 광물조성이나 안정동위원소 연구결과로 보아 이들의 변질작용이 일어난 심도는 정확히 추정할 수는 없으나, 매우 낮은 천부 변질작용임을 알 수 있고, 지금까지 예상한대로 엄청난 침식을 하지는 않았으리라는 사실이다. 특히 Fig.5에 도시한 바와 같이 옥매산 및 성산광상 등 규화대를 갖고 있는 경우, 구성광물이 자형의 조립 내지는 중립의 석영이 아닌 칼세도닉 혹은 은미정질의 석영으로 구성되어있음은 이들의 변질대가 最上位에 오는 것을 고려할 때, 이들 변질대가 노출되고 있음은 적어도 본역에서 변질작용 이후 침식의 깊이가 매우 제한된 것임을 지시한다.

이러한 관찰결과는 변질대 중 석영대의 발달이 미약하고, 고온성 광물이 변질대의 중심부에 발달되는 해남광상의 경우 상대적으로 가장 깊은 심도에서, 비교적 열수의 이동속도가 빠른 곳에서 변질작용이 일어났음을 지시하고, 이와 유사한 환경의 상대적으로 약간 상위에서 구시광상이 형성되었음을 지시한다. 광물조성이나 동위원소조성으로 온도가 이보다 낮은 상대적으로 지표에 더 가까운 부위에서 변질작용이 일어났음을 지시한다. 특히 옥매산이나 성산광상의 경우 열수의 상승 혹은 화산분출의 결과로 해석되는 가력압이 변질대의 중심부에 예외없이 존재하는 것은 이를 뒷바침하는 증거가 된다. 이들의 변질 심도가 낮은 점과 황화물이 공존하는 것은 이들 하부에 천열수 귀금속광상의 부존 가능성을 시사하는 것으로서 이들에 대한 탐사의 필요성을 제시한다.

사 사

해남, 옥매산 및 구시광상 조사시 많은 도움을 준 정승우, 김영희 및 노열 군에게 감사하며, 시추코아 자료를 검토할 수 있게 협조해주신 성산광산에도 감사를 드린다. 본 연구는 과학재단의 지원에 의하여 수행되었고, 연구의 종료시에 지원을 해준 전략광물자원연구센터에 감사를 드린다. 본 원고를 검토해주신 한국자원연구소의 오민수, 김인준 박사에게 감사를 드린다.

참고문헌

김규봉 (1970) 전남일대 명반석광상 조사보고서. 국립지질조사소, 지질광상조사연구보고서, 제12호, p.171-235.  
 김영희, 문희수, 김종환, 유장한, 김인준 (1990) 전남 옥매산 광상의 열수변질작용 및 광석광물에 대한 광물학적 연구. 광산지질, 23권, p. 287-308.

김종환, 조한익, 고상모, 채수천, 신흥자, 이성복, 홍세진, 문희수, 김용준, 윤성효, Reedman, A.J. (1990) 화산원 천열수성 광상 탐사 모델 정립(I). 한국동력자원연구소, p. 23-56.  
 木野崎吉郎 (1934) 朝鮮鑛床調査要報, 8권, P. 1-50.  
 문희수 (1975) 전남지역 명반석 광상의 성인에 관한 연구. 광산지질, 8권, p. 183-202.  
 文熙壽, 金英姬, 金種煥, 柳長漢 (1990) 海南地域 火山岩類와 납석 및 고령토 鑛床의 K-Ar 年代. 광산지질, 13권, p. 135-141.  
 문희수, 정승우, 송윤구, 박영석 (1991) 전남 해남지역 해남 납석광상의 변질작용 및 생성환경. 광산지질, 24권, p. 83-96.  
 박홍봉, 권순문, 박태영, 신상은 (1982) 고 내화도 광석광물의 분포와 성인에 관한 연구. 대한광산학회지, 15권 201-207.  
 朴鴻鳳, 朴培榮, 申相垠, 許民 (1988) 全南과 河東地域에서 產出하는 窯業 및 粘土鑛 物資源과 成因에 關한 研究. 광산지질, 21권, p. 1-15.  
 손진담, 윤현수, 김홍렬, 고미자, 조동행, 구자학, 김상길 (1980) 해남 목포지역 백악기 함유질 세일층에 대한 연구. 자원개발연구소. KIGAM Bull, 21권, p. 1-37.  
 신상은 (1988) 구시 납석광상의 광물조성과 광상 성인에 관한 연구. 대한광산학회지, 25권, p. 1-9.  
 신상은, 박홍봉 (1990) 전남 서남부지역의 납석, 고능석과 명반석광상의 광물조성 및 지구화학적 특성에 대한 연구. 광산지질, 23권, p. 11-23.  
 신상은, 박홍봉, 문희수 (1991) 전남지역에서 산출되는 열수성 카올린광물의 안정동위 원소 연구. 한국자원공학회지, 28권, p. 99-103.  
 원종관, 이문원 (1988) 추자군도 유문암질 응회암의 연대 측정. 지질학회지, 24권, p. 82-83.  
 유장한 (1985) 전남해남군 황산면 일대 고령토질 도석광상의 연구. 한국동력자원연구소, 비금속광상연구보고, 제14호, p. 85-114.  
 이대성, 이하영 (1976) 한국 서남해안에 분포하는 함유질 세일층에 대한 지질학적 및 지구화학적 연구. 광산지질, 9권, p. 45-74.  
 이성복, 김병영 (1985) 해남 성산 광산물 덕카이트에 관한 연구. 한국동력자원연구소, 비금속광상연구 85-14, p. 117-127.  
 전효택, 정영욱, 김인준 (1991) 경남 및 전남 일부 납석광상의 산소-황 동위원소 조성과 광상 성인. 광산지질, 24권, p. 97-105.  
 정영욱, 전효택 (1990) 전남 화순, 다도 및 해남지역 납석광상의 지구화학적 연구. 한국자원공학회지, 27권, p. 63-76.  
 조한익, 문희수 (1978) 한국의 명반석 광상. 한국자원개발연구소, 연구특보 2, 106p.  
 車文星, 尹成孝 (1988) 韓半島의 火山陷沒構造 및 環狀複合岩體에 關한 研究. 지질학회지, 24권, 특별호, p. 67-86.  
 Aoki, M. (1990) Mineralogical features and genesis of alunite solid solution in high temperature magmatic hydrothermal systems. Symposium on High-temperature Acis Fluids and Associated Alteration and Mineralization, Geological Survey of Japan, p. 31-32.  
 Cathelineau, M. (1988) Cation site occupancy in chlorites and illites as a function of temperature. Clay Minerals, v. 23, p. 471-485.  
 Cho, H.K. (1990) Mineralogy of clays and their associated minerals in the Sungsan mine, Korea. Seoul Nat. Univ., Ph.D. Thesis, 200p.  
 Cho, H.K. and Kim, S.J. (1989) Mineralogy of alunite from the Sungsan mine. J. Miner. Soc. Korea, v. 2, p. 81-89.  
 Hemley, J.J., Hostetler, P.B., Gude, A.J., and Mountjoy, W.T.

- (1969) Some Stability Relation of Alunite. *Econ. Geol.*, v. 64, p. 599-612.
- Hemley, J.J., Montoya, J.W., Marinenko, J.W., and Luce, R.W. (1980) Equilibrium in the System  $Al_2O_3$ - $SiO_2$ - $H_2O$  and Some General implications for Alteration/mineralization Processes. *Econ. Geol.*, v.75, p.210-228
- Kim, I.J. (1989) Hydrothermal alteration of the felsic volcanic rocks in the Haenam district, Jeonnam prefecture, southwestern part of the Korean peninsula. Tokyo Univ., M.Sc. Thesis, 144p.
- Knight, J.E. (1977) A Thermochemical Study of Alunite, Enargite, Luzonite, and Tennantite Deposits. *Econ. Geol.*, v. 72, p. 1321-1336.
- Moon, H.S., Roh, Y., Kim, I.J., Song, Y. and Lee, H.K. (1991) Consider the mechanism of the hydrothermal alteration related to Cretaceous felsic magmatism in Gusi mine, southern Korea. *J. Korea Inst. Min. Geol.*, v. 24, p. 9-20.
- Ohta, E. and Yajima, J. (1988) Magnesium to iron ratio of chlorite as indicator of type of hydrothermal oew deposits. Wall rock alteration and ore genesis. The Society of Mining Geologists of Japan, Mining Geology Special Issue, no. 12, p. 17-22.
- Rye, R.O., Bethke, P.M., and Wasserman, M. (1989) Diverse origins of alunite and acid-sulfate alteration: stable isotope systematics. U.S.G.S. Open-file report 89-5, 33p.
- Silverman, M.L. and Berger, B.R. (1985) Relationship of trace-element patterns to alteration and morphology in epithermal precious-metal deposits. In Berger, B.R. and Bethke, P.M. (eds) *Geology and Geochemistry of Epithermal Systems*, Society of Economic Geologists, p. 203-232.
- Stoffregen, R.E. (1987) Genesis of acid sulfate alteration and Au-Cu mineralization at Summitville. *Econ. Geol.*, v. 82, p. 1575-1591.
- Stoffregen, R.E. and Cygan, G.L. (1989) An experimental study of Na-K exchange between alunite and aqueous sulfate solutions. *Am. Mineral.*, v. 35, p. 209-220.
- Stoffregen, R.E. (1990) Stable isotope systematics of alunite. Symposium on high temperature acid fluids and associated alteration and mineralization. Geological Survey of Japan, p. 27-30.
- Matsuhisa, Y., Hedenquist, W. and Aoki, M. (1990) Isotopic evidence for the origin of Nansatsu fluids. Symposium on High-Temperature Acid Fluids and Associated Alteration and Mineralization, Geological Survey of Japan, p. 45-50.

---

1992년 3월 2일 원고접수