

울릉분지 천부 퇴적층에서의 가스 생성과 천연가스 하이드레이트 형성 잠재력

류병재¹⁾, 이영주²⁾, 김지훈³⁾, 김일수⁴⁾, 박명호⁵⁾

Potential of gas generation and natural gas hydrate formation in the near seafloor sediments of the Ulleung Basin

Byong-Jae Ryu, Young-Joo Lee, Ji-Hoon Kim, Ilsoo Kim, Myong-Ho Park

Key words: natural gas hydrate(천연가스 하이드레이트), total organic carbon(총유기탄소), sedimentation rate (퇴적률), residual hydrocarbon (잔류 탄화수소)

Abstract: Basic studies on natural gas hydrates in the East Sea were been carried out by the Korea Institute of Geoscience and Mineral Resources (KIGAM) from 2000 to 2004, involving 2D multichannel seismic lines and piston coring. 27 piston cores recovered from the deep-water Ulleung Basin of the East Sea were analyzed in this study. In piston cores, cracks generally developed parallel to bedding suggest significant gas content. The core analyses showed high total organic carbon (TOC) content, sedimentation rate and heat flow of sediments. The cores recovered from the southern study area show also high residual hydrocarbon gas concentrations for the formation of natural gas hydrates. This study indicates that there is the potential for the generation of biogenic gas and the formation of natural gas hydrates in the near seafloor sediments of the study area.

subscript

TOC : total organic carbon
RHCG : residual hydrocarbon gas
NGHSZ: natural gas hydrate stability zone
BSR : bottom simulating reflector

1. 서론

천연가스 하이드레이트(natural gas hydrate)는 고압·저온의 조건 하에서 물과 천연가스(주로 메탄: methane)가 결합하여 형성된 고체상 결합체로 영구 동토지역과 심해저에 광범히 분포되어 있다. 천연가스 하이드레이트는 막대한 매장량(10^4 Gt organic carbon) 때문에 미래의 에너지원으로 각광을 받고 있다. 그러나 천연가스 하이드레이트는 해리(dissociation)될 경우 지구온난화, 자연 재해(natural hazard) 등의 문제를 야기할 수도 있다.

천연가스 하이드레이트가 형성되기 위해서는 우선 충분한 양의 천연가스가 생성되어야 하며, 성된 가스가 하이드레이트로 상변화(phase change)하기 위해 필요한 충분한 양의 물과 저온·고압의 조건이 요구된다[1,2,3,4]. 또한 생성된 천연가스가 삼투(percolation)될 수 있는 투수성

과 천연가스 하이드레이트가 형성되고 성장할 수 있는 공간(=공극: pore)이 필요하다[5]. 다시 말하자면 천연가스가 생성되고 하이드레이트가 형성되려면 온도·압력과 천연가스의 이동·집적 조건 이외에 높은 퇴적률($30 \sim 300 \text{ m}/10^6 \text{ year}$), 퇴적물에 포함된 높은 총유기탄소(> 0.5% TOC: total organic carbon)와 잔류 메탄(> 10 ml/l of wet sediments)의 함량과 농도, 높은 지열 등의 조건이 충족되어야 한다[4,5,6,7].

- 1) 한국지질자원연구원 석유해저자원연구부
E-mail: bjryu@kigam.re.kr
Tel: (042)868-3211 Fax: (042)862-7275
- 2) 한국지질자원연구원 석유해저자원연구부
E-mail: yjl@kigam.re.kr
Tel: (042)868-3209 Fax: (042)862-7275
- 3) 한국지질자원연구원 석유해저자원연구부
E-mail: save@kigam.re.kr
Tel: (042)868-3276 Fax: (042)862-7275
- 4) 한국석유공사 대륙붕개발단
E-mail: ilsookim@knoc.co.kr
Tel: (042)868-3362 Fax: (042)861-0066
- 5) 한국석유공사 석유기술연구원
E-mail: myongho@knoc.co.kr
Tel: (031)380-2608 Fax: (031)385-2473

울릉분지와 인접해역에서 취득·분석된 수은, 지온구배, 간극수의 성분, 천부 퇴적물에 포함된 잔류 탄화수소 가스(residual hydrocarbon gas: RHCG)의 성분 등 자료를 이용해 분석한 천연가스 하이드레이트 안정영역(natural gas hydrate stability zone: NGHSZ)에 대한 연구결과 울릉분지의 경우 수심이 약 300 m 보다 깊은 해역의 천부 퇴적층에서 하이드레이트가 형성될 수 있는 것으로 보고되었다[1,2]. 대부분의 경우 천연가스 하이드레이트는 회수되는 과정에서 온도·압력의 변화에 의해 해리되며, 해리된 천연가스와 물에 의해 퇴적구조가 교란을 받게 된다.

본 연구에서는 우리나라 동해 울릉분지 심해역 천부 퇴적층에서의 메탄 생성과 천연가스 하이드레이트 형성 잠재력을 평가하기 위해 연구해역에서 채취한 피스톤 코어(piston core) 퇴적물에 대한 지질·지화학적 분석을 수행하였다.

2. 지질개요

연구지역인 울릉분지는 동해의 남서부에 위치하고 있으며, 북쪽으로 한국대지, 동쪽으로 오키뱅크(OkI Bank), 서쪽과 남쪽으로는 한반도와 일본열도의 대륙사면과 접하고 있다(그림 1a).

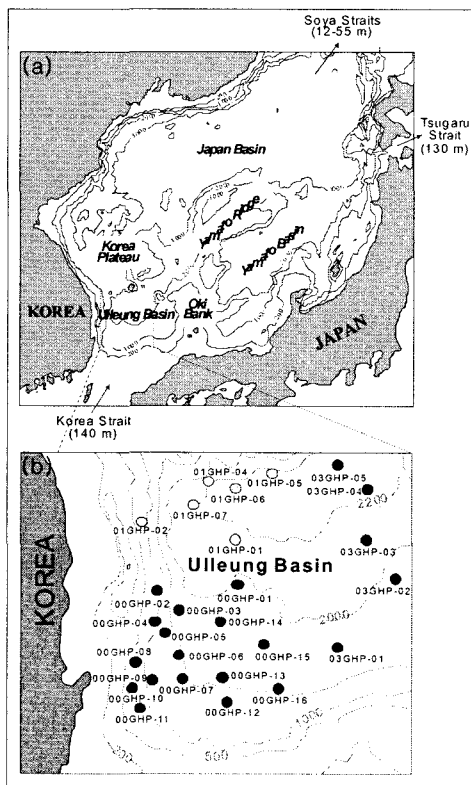


Fig. 1 Study area (a) and sampling location (b) (contour line: bathymetry in meter).

장사방형(rhomboid) 형태의 울릉분지는 약 200

x 150 km 정도 크기의 해양 퇴적분지이다. 분지의 서부에는 좁은 대륙붕과 급경사의 대륙사면이 발달되어 있다. 반면, 분지의 남쪽에는 넓은 대륙붕과 비교적 완만한 경사의 사면이 발달되어 있다. 분지는 북동쪽으로 가면서 수심이 증가하는 양상을 보이며, 울릉도와 독도 사이에 발달되어 있는 울릉 평원간 통로(Ulleung Interplain Gap)를 통해 일본분지로 연결된다[8].

탄성과 탐사자료에 의하면 울릉분지에 발달된 제3기(Tertiary)와 제4기(Quaternary) 퇴적층의 두께는 남부에서 10 km 이상인 반면 중앙부에서는 5 km 정도이다[9]. 이중 천부 퇴적층은 주로 쇄설류(debris flow) 또는 대규모의 질량류(mass flow)와 반심해성 퇴적물 침강(hemipelagic settling)에 의한 퇴적물 및 저탁류(turbidite)에 의한 퇴적물로 구성되어 있다. 특히, 경사가 급한 분지의 북쪽과 서쪽의 대륙사면에는 대규모의 사면침식, 사면 사태/붕락(slide/slump), 그리고 쇄설류 퇴적체가 특징적으로 발달하고 있다. 남쪽과 동쪽 사면의 경우 다소 경사가 완만하지만 역시 다양한 사면침식, 사면사태/붕락과 소규모 협곡(gully)이 발달하고 있다. 분지의 중앙부와 북부에는 반심해성 퇴적물 침강(hemipelagic settling)에 의한 퇴적물과 저탁류(turbidite)에 의한 퇴적물이 발달되어 있다.

3. 코어 채취 및 분석

울릉분지 해저면 부근의 천부 퇴적층(near seafloor sediment)에서의 가스(주로 메탄과 소량의 에탄) 생성과 천연가스 하이드레이트 형성 잠재력을 알기 위하여 한국지질자원연구원의 탐해-2호를 이용, 천연가스 하이드레이트가 형성될 수 있는 조건을 충족하고 있는 27개 지점(수심: 790 ~ 2179 m) 5 ~ 8 m 길이의 피스톤 코어를 채취하였다(Fig. 1b). 채취한 코어를 X-선 촬영용 slab 제작을 고려하여 탐해-2호 선상에서 1.2 ~ 1.6 m 간격으로 절단하였으며, 퇴적물의 잔류 탄화수소가스(residual hydrocarbon gas: RHCG) 및 간극수 분석을 위하여 시료를 sampling 하고 geochemical can(또는 glass vial)과 Nalge 사의 원심분리기용 polyethylene bottle에 넣었다. 이렇게 sampling된 시료와 절단된 코어를 실험실에서의 추가 분석을 위하여 저온(4 °C) 상태로 보관·운반하였다. 실험실로 운반된 코어는 절단기를 이용하여 2등분 하였으며, 절단된 코어중 하나는 보관용 코어로 다른 하나는 퇴적물 및 지화학 분석을 위한 연구용 코어로 사용하였다.

가스(또는 천연가스 하이드레이트)와 관련된 구조(texture)와 퇴적상(sedimentary facies)의 변화양상을 살펴보기 위하여 코어 시료의 입도(grain size), 색(color), 구조 등을 기재하고 사진촬영을 실시하였다. 퇴적학적·지화학적 분석을 위해 퇴적상이 변화하지 않는 구간에서는 10 cm 간격으로, 퇴적상이 변화하는 구간에서는 퇴적상이 변화할 때마다 시료를 sampling하고, 퇴적물의 함수율(water content), 입도 등의 기본적인 분석을 수행하였다.

가스의 생성과 천연가스 하이드레이트의 형성 잠재력을 파악하기 위해 퇴적물에 포함되어 있는

총유기탄소(total organic carbon: TOC) 함량을 Vinci사의 Rock-Eval 6을 이용 측정하였으며, 퇴적물에 포함된 RHCG의 성분과 함량을 Hewlet Packard사의 HP 5890 II GC(gas chromatograph)를 이용하여 분석하였다. 또한 유기 속성작용(organic diagenesis)을 파악하기 위해 2개 코어(01GHP-04, 01GHP-06)로부터 선별한 부유성 유공충(planktonic foraminifera)에 대한 탄소(^{14}C) 연대 측정결과를 이용 퇴적률을 계산하였다. ^{14}C -연대는 AMS(accelerator mass spectrometry)를 이용하여 측정되었다.

퇴적물에 함유된 RHCG의 기원을 밝히기 위한 탄소동위원소비($\delta^{13}\text{C}_{\text{org}}$)와 질소 함량을 분석하였다. 이를 위해 HP 6890 GC, Finnigan Mat의 산화·주입장치(GC Combustion III)가 연결된 IRMS(isotope ratio mass spectrometer)를 이용하였다. 또한 퇴적물에 포함된 유기물의 기원과 퇴적 환경을 파악하기 위하여 Leco사의 CHN-900과 SC-132를 이용 퇴적물 내 총 탄소(C), 수소(H), 질소(N) 및 황(S)의 함량을 분석하였다. 이밖에 천연가스 하이드레이트의 존재 가능성을 알아보기 위하여 퇴적물의 간극수에 포함된 Cl^- 의 농도를 측정하였다. Cl^- 농도는 Alltech사의 IC(ion chromatograph; 01GHP와 02GHP 코어의 경우)와 질산은(AgNO_3)을 이용한 Mohr-적정법(03GHP 코어의 경우)을 이용하여 측정하였다.

4. 결과 및 토의

4.1 퇴적률

퇴적물이 교란을 받지 않은 지역에서 채취한 01GHP-04 및 01GHP-06 코어의 각 4개 구간으로부터 산출된 부유성 유공충을 선별·채집하였으며(각 시료 당 800 ~ 1500 개체), 이를 이용하여 AMS ^{14}C -연대를 측정하였다. ^{14}C -연대 측정결과와 기존에 발표된 테프라층(tephra layer)에 대한 ^{14}C -연대 측정결과[10]를 이용하여 분석한 코어가 회수된 구간의 퇴적률은 01GHP-04 코어의 경우 71 ~ 253 $\text{m}/10^6\text{yr}$ (평균 168 $\text{m}/10^6\text{yr}$), 01GHP-06 코어의 경우 62 ~ 640 $\text{m}/10^6\text{yr}$ (평균 190 $\text{m}/10^6\text{yr}$)이다. 코어 퇴적물의 퇴적률을 기준으로 할 때, 2개 코어가 채취된 구간의 천부 퇴적층은 [4]가 제시한 유기 속성작용이 일어나기 위한 퇴적률을 충족하는 것으로 분석되었다.

퇴적물에 대한 연구는 극히 제한된 지역과 구간을 대상으로 수행되었다. 따라서 향후 울릉분지 전역의 퇴적작용에 대한 심도 깊은 연구가 필요하다 생각한다.

4.2 TOC 함량

선별한 15개 코어로부터 sampling한 1304개 시료(00GHP 4개 코어, 422 시료; 01GHP 6개 코어, 385 시료; 03GHP 5개 코어, 497 시료)에 대해 TOC 함량을 분석하였다. 코어 퇴적물에 포함된 TOC 함량은 00GHP 코어의 경우 0.02 ~ 4.50%(평균 1.69%), 01GHP 코어의 경우 0.10 ~ 4.72%(평균

1.66%), 03GHP 코어의 경우 0.01 ~ 5.09%(평균 1.89%)로 측정되었다(Fig. 2). 조립질 입자와 패각으로 구성된 구간을 제외한 대부분의 시료(약 94.2%)는 0.5% 이상의 TOC 함량을 보인다. 코어 퇴적물의 TOC 함량을 기준으로 할 때, 연구해역에 발달된 천부 퇴적층은 가스가 생성될 수 있는 양호한 조건과, [4]가 제시한 천연가스 하이드레이트 형성에 필요한 기본 요건을 만족하는 것으로 분석되었다.

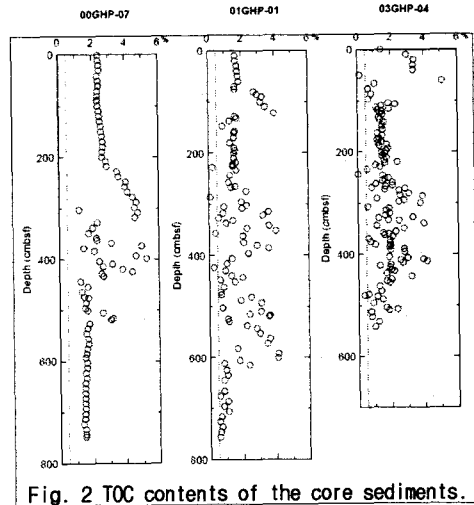


Fig. 2 TOC contents of the core sediments.

코어 퇴적물 시료의 대부분은 4 ~ 12의 TOC/N 비(ratio)를 가진다. 이는 연구해역 천부 퇴적층에 포함된 유기물이 해양 조류기원임을 지시하는 것으로, Rock-Eval 열분석 결과(Type II)와도 일치한다. 또한 TOC/S 비 측정결과 연구해역 천부 퇴적층에 포함된 유기물은 해양성 기원이며 anoxic 내지는 euxinic 환경에서 퇴적된 것으로 분석되었다.

본 연구에 이용된 코어의 길이는 최대 8m에 불과하다. 따라서 향후 심부 시추를 통해 보다 깊은 심도에 발달한 퇴적층에 대한 연구가 필요하다 판단한다.

4.3 RHCG 농도

27개 코어의 79개 구간에서 sampling된 시료(00GHP 16 코어, 32 시료; 01GHP 6 코어, 12 시료; 03GHP 5 코어, 35 시료)에 포함된 RHCG의 농도를 분석한 결과 00GHP 코어에서 0.06 ~ 87.40 ml/l of wet sediment(평균 31.34 ml/l of wet sediment), 01GHP 코어에서 0.04 ~ 35.44 ml/l of wet sediment(평균 4.44 ml/l of wet sediment), 03GHP 코어에서 0.00 ~ 126.68 ml/l of wet sediment(평균 14.80 ml/l of wet sediment)로 측정되었으며, 심도가 깊어짐에 따라 증가하는 양상을 보였다. 코어의 가장 하부구간 시료에 포함된 RHCG의 농도는 00GHP 코어의 경우 평균 39.58 ml/l of wet sediment, 01GHP 코어의 경우 평균 8.62 ml/l of wet sediment, 03GHP 코어의 경우 평균 41.84 ml/l of wet sediment로 코어의

평균 농도 보다 높게 측정되었다(Table 1). 코어 퇴적물에 포함된 RHCG의 농도를 기준으로 할 때, 27개 코어 중 14개 코어(00GHP 10 코어; 01GHP 2 코어; 03GHP 2 코어)가 채취된 지점에 발달된 천부 퇴적층은 [4]가 제시한 천연가스 하이드레이트 형성에 필요한 농도를 만족하는 것으로 분석되었다. 코어 퇴적물에 포함된 RHCG는 거의 대부분(> 97%) 메탄으로 구성되어 있으며, -94.31 ~ -55.50%의 가벼운 $\delta^{13}C_{CH_4}$ 를 가지는 점으로 미루어 열기원 가스보다는 생물기원 가스로 분석된다 [4].

Table 1 RHCG concentrations in the core sediments.

00GHP			
Core No.- Depth	RHCG Concentration	Core No.- Depth	RHCG Concentration
01-518	77.23	09-800	82.02
02-586	0.10	10-800	79.93
03-575	1.21	11-800	55.51
04-800	4.39	12-800	64.12
05-800	8.52	13-800	6.81
06-800	23.16	14-800	0.41
07-800	87.40	15-800	43.27
08-800	21.97	16-800	71.62
01GHP		03GHP	
Core No.- Depth	RHCG Concentration	Core No.- Depth	RHCG Concentration
01-768	12.62	01-552	76.34
02-742	0.05	02-522	126.68
04-760	1.44	03-544	1.95
05-735	1.20	04-734	2.83
06-755	35.44	05-536	1.39
07-732	0.94	16-800	

Depth: cmbsf, Concentration: ml/l of wet sediment

본 연구에 이용된 코어의 길이는 최대 8 m에 불과하며, 연구해역의 남쪽에 위치한 대륙붕지역에서는 현재 천연가스가 생산되고 있다. 또한 RHCG 농도가 낮은 코어에서도 가스가 생성될 수 있는 높은 TOC 함량을 보인다. 따라서 향후 심부 시추를 통해 보다 깊은 심도에 발달한 퇴적물에 포함된 RHCG에 대한 분석과 함께 SMI (sulfate methane interface)의 심도와 열기원 가스의 존재에 대한 심도 깊은 연구가 필요하다 생각한다.

4.4 퇴적구조

선별한 15개 코어에 대한 퇴적학적 분석을 수행한 결과 연구해역의 남부에서 채취된 5개 코어(00GHP-01, 00GHP-07, 00GHP-11, 03GHP-01 및 03GHP-02 코어)로부터 층리면과 수평하게 발달된 수평 균열(crack)을 확인하였다(Fig. 3). 이들 균열은 코어 회수 과정에서 퇴적물에 포함된 자유가스(free gas)의 팽창(expansion) 또는 천연가스 하이드레이트로부터 해리된 가스의 팽창에 의하여 형성된 것으로 분석된다.

천연가스 하이드레이트의 해리에 의해 형성되는 것으로 판단되는 soupy layer는 00GHP-07 코어의 심도 581 ~ 568 cmbsf 구간과 03GHP-03 코어의 심도 761 ~ 742 cmbsf 구간에서 관찰되었다(Fig.

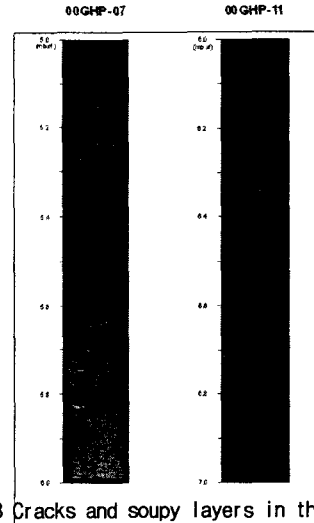


Fig. 3 Cracks and soupy layers in the cores.

3). 이들 soupy layer의 퇴적물과 상·하위에 발달된 퇴적물은 입자와 색은 물론 구성광물도 동일한 것으로 분석되었다. 그러나 soupy layer의 간극수 분석결과 천연가스 하이드레이트 해리에 의한 Cl^- 농도의 감소 현상은 확인하지 못하였다. 이는 코어 회수과정에서 해수의 유입에 의한 간극수의 오염(contamination) 때문으로 생각된다.

본 연구에 이용된 코어의 길이는 최대 8 m에 불과하다. 또한 균열과 soupy layer가 나타나지 않은 코어의 경우 대부분 SMI가 코어 회수구간 보다 깊은 심도에 위치하는 것으로 분석되었다. 따라서 향후 심부 시추를 통해 보다 깊은 심도에 발달한 퇴적층에 대한 연구가 요구된다. 또한 soupy layer와 천연가스 하이드레이트와의 관계를 명확히 밝히기 위해서는 향후 동일한 지점에서 추가적인 코어 채취와 정밀 분석이 수행되어야 할 것으로 생각한다.

후기

이 초록은 산업자원부 국가지질조사 및 자원탐사사업의 일환으로 2000년부터 2004년까지 한국지질자원연구원에서 수행한 “가스 하이드레이트 탐사 및 개발 기술” 연구 결과의 일부이다. 이 연구에 지원을 해 주신 한국가스공사와 산업자원부에 감사를 드린다.

References

- [1] 류병재, 선우돈, 장성형, 오진용, 1999, “동해 울릉분지 남서부 해역에서의 가스 하이드레이트 안정영역,” 한국석유지질학회지, Vol. 7, No. 1/2, pp. 1-6, 1999.
- [2] 류병재, 서유택, 강성필, 이훈, 2000, “전해질이 메탄 하이드레이트 평형조건과 안정영역에 미치는 영향,” 화학공학회지, Vol. 38, No. 3, pp. 380-386, 2000.
- [3] Makogon, Y.F., 1997, “Hydrate of hydro-

- carbons," PennWell Books, 482p., 1997.
- [4] Sloan, E.D., 1998, "Clathrate hydrate of natural gases (2nd edition)," Marcel Dekker, 705p., 1998.
 - [5] Max, M.D., Pellanbarg, R.E. and Hurdle, B.G., 1997, "Methane hydrate, A special clathrate: its attribute and potential," Report of U.S. Naval Research Laboratory, NRL/MR/6101-97-7926, 74p., 1997.
 - [6] 松本良, 奥田義久, 青木豊, 1994, "メタンハイドレート 21世紀の巨大天然ガス資源," 日経サイエンス社, 253p., 1994.
 - [7] Kvenvolden and von Huene, 1985, "Natural gas generation in sediments of the convergent margin of the eastern aleution trench area," In: Howel, D.G.(ed.), Tectonostratigraphic Terranes of the Circum-Pacific Region, Circum-Pacific Council for Energy and Minerals, Earth Sciences Series, 1, pp. 31-49, 1985.
 - [8] Chough, S.K., Lee, L.J. and Yoon, S.H., 2000, "Marine geology of Korean Seas (2nd edition)," Elsevier, 313p., 2000.
 - [9] Park, K.S., 1992, "Geologic structure and seismic stratigraphy of the southern part of Ulleung Basin," In: Sedimentary basins in the Korean Peninsular and adjacent seas (Chough, S.K. ed.), pp. 40-59, 1992.
 - [10] Machida, H. and Arai, F., 1992, "Atlas of tephra in and around Japan," Univ. of Tokyo Press, 276p., (in Japanese), 1992.