

한동해 제3기 해성 퇴적분지에서의 점토광물 속성작용

손병국

한국자원연구소 석유해저연구부, 대전광역시 유성구 가정동 30

1. 서론

동해 주변의 대표적인 제3기 해성 퇴적분지인 일본의 아키타분지와 니이가타분지, 그리고 우리나라의 포항분지 (Fig. 1)는 동해의 형성과 시기를 같이하는 분지들로서 퇴적물의 암상이 거의 비슷하게 산출되고 있다. 니이가타 분지와 아카타 분지에서는 현재 석유와 가스가 산출되고 있으며, 매장량 확보를 위하여 탐사 및 시추가 계속되고 있다. 포항분지는 과거, 석유의 산출이 기대되었던 곳으로 많은 시추공이 존재한다. 시추시료와 야외노두에 나타난 암석시료에 의하면 이들 분지 퇴적물에는 유기물의 양이 매우 풍부하며 주 구성암석은 이질암으로서 스멕타이트와 일라이트/스멕타이트 혼합층 광물을 주 구성성분으로 하고 있다.

해성 퇴적물에서 풍부하게 산출되는 점토광물인 스멕타이트는 매몰되어 온도가 증가함에 따라 일라이트/스멕타이트 (I/S) 혼합층 광물을 거쳐서 일라이트 (S→I/S→I) 로 변화한다 (Hower *et al.*, 1976; Boles and Franks, 1979; Hillier *et al.*, 1996; Son and Yoshimura, 1997). 이러한 일라이트화 과정은 속성작용의 정도를 지시하는 하나의 지시자로 사용될 수 있으며 지층의 온도를 지시하는 온도계로서 석유탐사에 기여할 수 있는 것으로 알려졌다 (Pollastro, 1990; Pollastro, 1993). 일라이트/스멕타이트 혼합층광물은 스멕타이트 성분층이 연속적으로 감소하고 일라이트층은 연속적으로 증가하면서 R=0 I/S → R=1 I/S → R=3 I/S로 변화한다. R=0 I/S는 약 100°C의 온도에서 R=1 I/S로 변화하며, 약170°C에 도달하면 R=3 I/S로 변화한다 (Fig. 2) 또한, 스멕타이트는 온도증가에 따라 녹니석/일라이트 (C/S) 혼합층광물의 단계를 거쳐서 녹니석으로 변화한다 (Chang *et al.*, 1986; Beaufort *et al.*, 1997). 이때 녹니석의 성분층과 스멕타이트 성분층이 1:1인 C/S는 약 100°C의 온도에서 산출된다 (Inoue and Utada, 1991). 퇴적분지의 지층에 석유를 생성할 수 있는 유기물이 함유되어 있는 경우, 이 유기물은 100°C에서 석유를 생성할 수 있다. 또한 이 유기물이 170°C가 되면 천연가스로 변화한다. 따라서 점토광물의 변화를 인지하게 되면 석유생성 가능지층을 알 수 가 있다.

이 연구는 동해 주변의 니이가타, 아키타, 포항분지의 시추시료를 대상으로 하여 매몰심도에 따른 점토광물 변화를 광물학적 및 화학적으로 증명한다. 또한, 점토광물 변화를 유기물의 변화와 비교 관찰하였으며, 세 분지에서의 점토광물 변화를 비교하여 포항분지

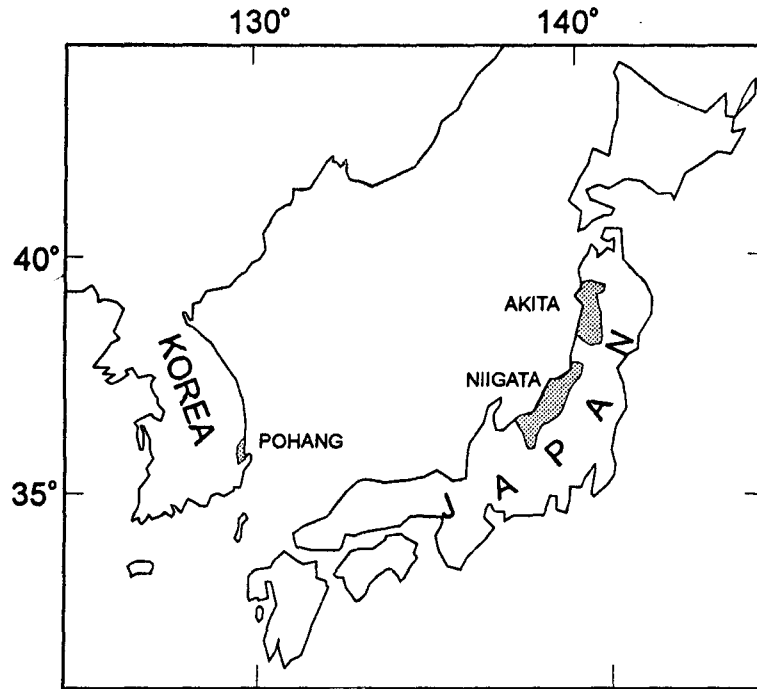


Fig. 1. Location map of the study basins.

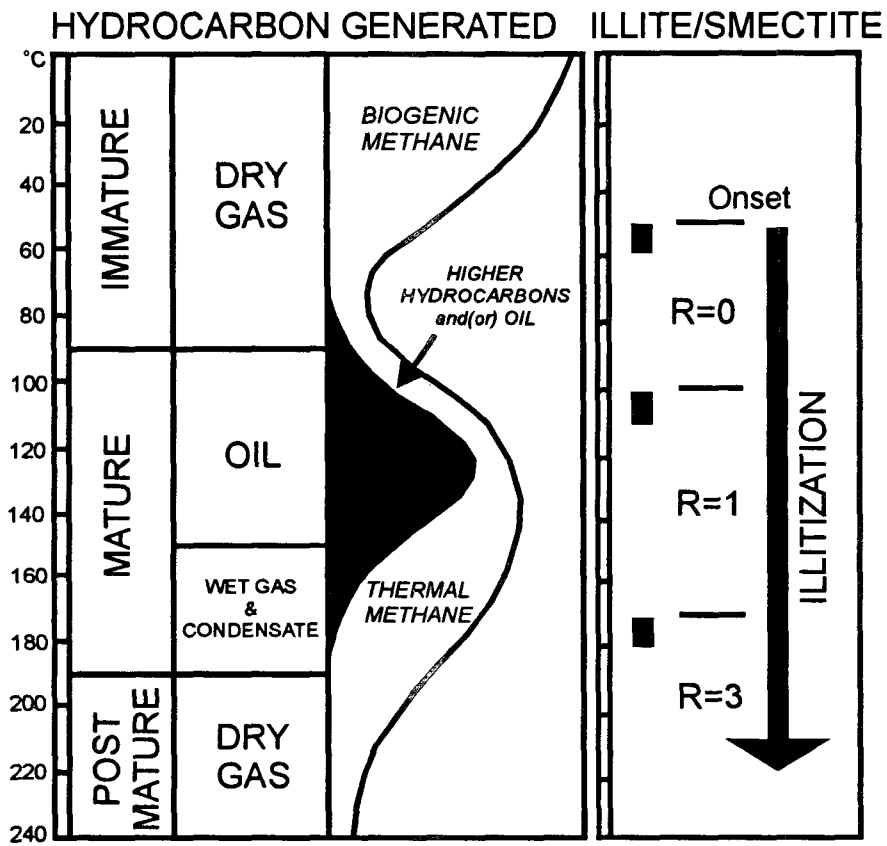


Fig. 2. Generalized relationships between temperature, hydrocarbon generation and change in I/S (Pollastro, 1993).

의 석유생성 가능성에 대하여 고찰한다.

2. 시료 및 연구방법

연구된 시료는 점토광물의 함량이 매우 높은 이질암이다. 니이가타 분지와 아키타 분지의 시추공에서는 약 200 m 간격으로 시추암편 시료를 채취하였으며, 포항분지에서는 3개의 시추공 코아에서 약 50 m 간격으로 분석용 시료를 채취하였다.

채취된 시료는 고속원심분리기를 사용하여 $<2\mu\text{m}$ 와 $<0.2\mu\text{m}$ 입도의 점토광물을 분리하였으며 정방향 시료를 제작하여 X-선 회절분석을 실시하였다. NEWMOD2 프로그램을 사용하여 X선 회절분석기에 의하여 만들어진 X선 회절도와 일치되는 X선 회절도를 계산하여 혼합층 광물의 성분층 비를 결정하였다.

불순물이 없는 순수한 $<0.2\mu\text{m}$ 입도의 점토시료에 대하여서는 전자현미분석 (EPMA) 을 실시하였다.

유기탄소량과 유기물의 성숙도 측정을 위하여 압편시료를 분쇄하여 록-에발 (Rock-Eval) 열분석을 실시하였다.

3. 아키타 분지의 점토광물 속성작용

Akita현의 Honjo시 앞바다의 대륙붕에 위치한 Koyoshigawaoki 시추공에 대하여 연구하였다. 아키타분지의 배사구조를 시추한 이 시추공은 총심도 4802 m로써 Miocene에서 Pleistocene에 이르는 지층을 관통하였다. 전 구간을 통하여 사질암 보다는 이질암이 우세하게 발달하여 있기 때문에 매몰심도 증가에 따른 이질암의 속성변화를 연구하기에 좋은 시추공이다. 이암의 성분은 세립의 석영과 점토광물이 주를 이루며 점토광물 중에는 일라이트/스멕타이트 혼합층 광물이 우세하게 산출된다. 구조적으로 시추공의 약 2470 m에서 역단층에 의하여 두 지층이 반복되는 것이 특징이다.

일라이트/스멕타이트 혼합층광물은 R=0 불규칙 배열의 혼합층광물 (R=0 I/S)과 R=1 규칙 배열의 혼합층 광물 (R=1 I/S)이 산출된다. X-선 회절도 상에서 R=0 I/S 는 12-12.6Å에서 001 주피크가 나타나며 에틸렌글리콜 처리시 이 피크는 17Å으로 이동한다. 또한 550°C로 가열시 주피크는 10Å으로 이동한다. 에틸렌글리콜 시료들의 X선 회절도에서 나타나는 17Å 피크는 일라이트 성분층이 증가하고 스멕타이트 성분층이 감소함에 따라 그 강도가 감소한다. 또한 17Å 피크의 저각도 쪽의 강도는 증가하는 모양으로 나타난다 (Fig. 3).

R=1 규칙배열의 일라이트/스멕타이트 혼합층광물은 Figure 3에서 보는 80% 일라이트 성분층과 20% 스멕타이트 성분층으로 된 일라이트/스멕타이트 혼합층 광물에서 볼 수 있는 바와 같이 11Å에서 나타나며 에틸렌글리콜 처리 시 두 피크로 쪼개진다.

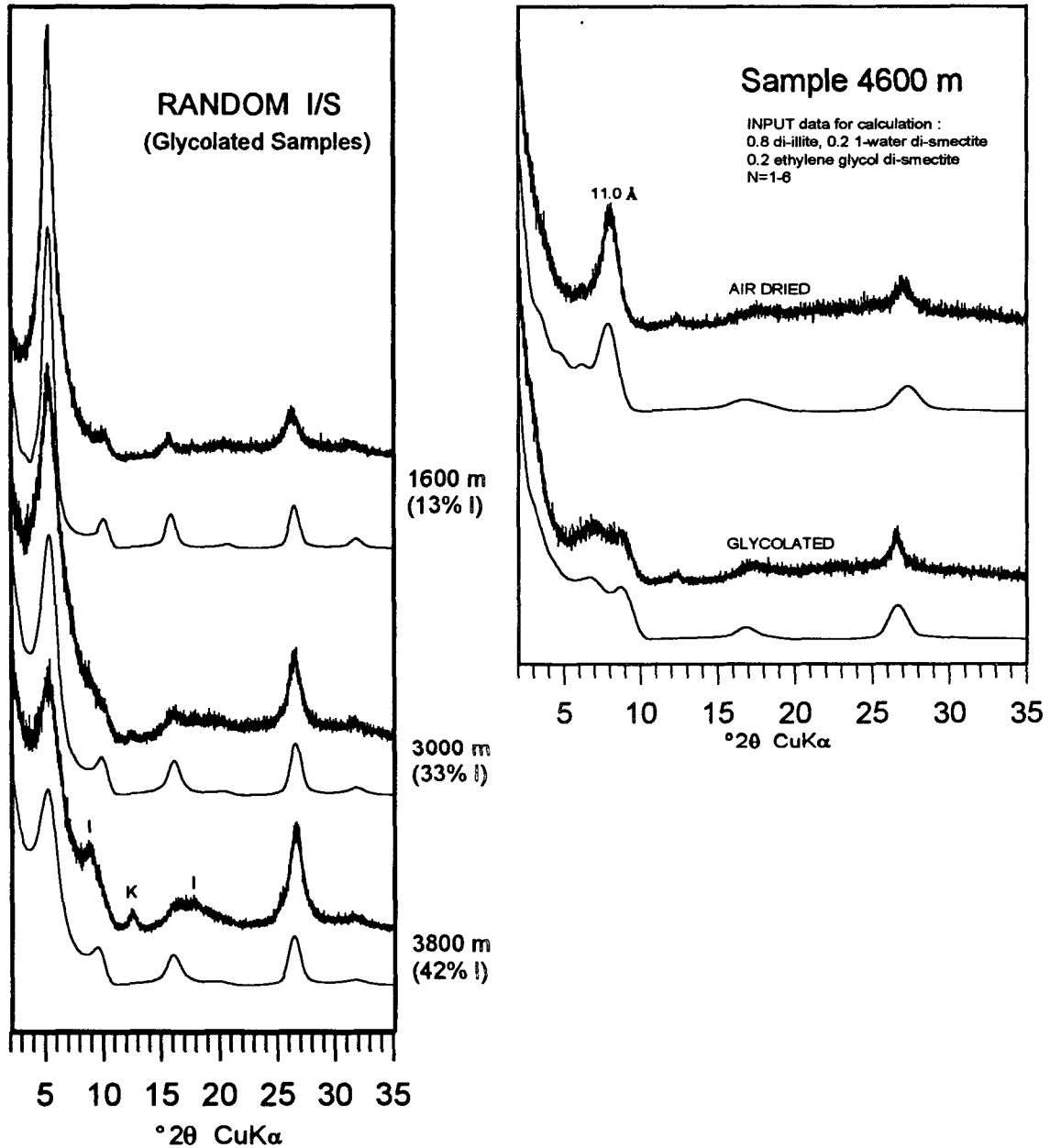


Fig. 3. X-ray powder diffraction patterns of R=0 I/S (left) and R=1 I/S (above) from Akita Basin. The patterns are compared with calculated patterns.

매물심도가 증가함에 따라 일라이트/스멕타이트 혼합층 광물의 일라이트 성분층은 증가하고 스멕타이트 성분층은 감소하는 것이 뚜렷이 나타난다 (Fig. 4). 또한 R=1 I/S는 4000 m 하부의 심도에서 나타난다.

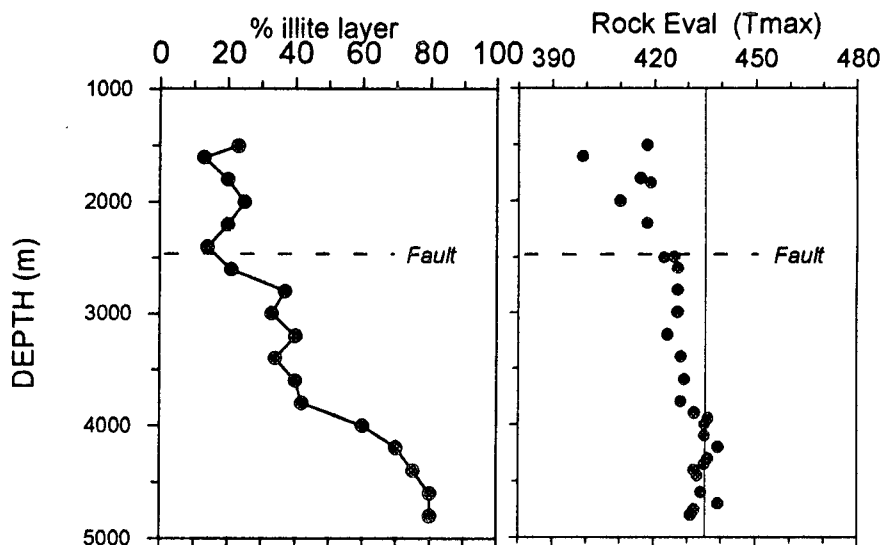
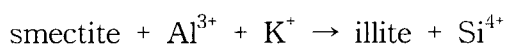


Fig. 4. Comparison of I/S with Tmax in the Akita Basin.

일라이트/스멕타이트의 화학분석 결과 SiO_2 의 함량은 매몰심도 증가에 따라 감소하며, Al_2O_3 , K_2O 성분은 매몰심도가 증가함에 따라 증가한다. 위에서 설명한 바와같이 매몰심도가 증가함에 따라 스멕타이트 성분층이 감소하고 일라이트 성분층이 증가하기 때문에 이 매몰심도에 따른 화학조성의 변화는 스멕타이트에서 일라이트로 변화하는 일라이트화 과정을 나타낸다. 또한, 결정구조의 팔면체층 보다는 사면체 층에서 전하가 증가되는 것을 보아 일라이트화는 사면체 층에서 일어나며, 이 화학변화는 다음의 반응식으로 설명될 수 있다.



즉, 사면체층의 Si^{4+} 대신에 Al^{3+} 이 들어감에 따라 발생하는 불균형을 층간 (interlayer)에 K^+ 가 들어감으로써 균형을 맞춘다.

록-에발 열분석 결과 약 4000 m에서 Tmax 435°C의 석유생성 열분해 온도에 도달한다. R=0 I/S에서 R=1 I/S로 천이하는 심도도 약 4000 m로서 록-에발 열분해 온도와 잘 일치한다. 이것은 약 4000 m가 고지온 약 100°C임을 지시한다. 그러나 시추를 담당한 석유회사에서 측정한 지온구배는 3.04°C/100m로서 현재온도 100°C는 약 3000m에서 도달하고 4000 m에서는 약 130°C가 된다. 현재 4000 m에서의 온도는 130°C임에도 불구하고 일라이트/스멕타이트 변화와 록-에발 Tmax 온도로서 추정되는 4000 m의 고지온은 100°C 밖에 되지 않는다. 이것은 2470 m에서 나타나는 플라이스토세 이후에 일어난 역단층에 의하여 설명될 수 있다. 즉, 역단층에 의하여 더 깊이 매몰된 I/S와 유기물은 아직 현재의 온도와 일치하는 평형조건에 도달하지 않았다는 것을 시사한다.

4. 니이가타 분지의 점토광물 속성작용

니이가타 분지내의 중앙부에 위치한 Nagaoka시 근처의 배사구조에 시추한 Shinkumoide-SK1D공에서의 점토광물 매물속성작용에 관하여 연구하였다. 시추공은 마이오세에서 플라이스토세 지층을 관통하였으며 총 심도는 약 4820 m에 이른다. 암상은 주로 셰립질의 쇄설성 및 화산쇄설성 이질암으로 되어 있다.

이 공에서는 특징적으로 이팔면체형 스멕타이트 (di-octahedral smectite)와 삼팔면체형 스멕타이트 (tri-octahedral smectite)가 심도에 따라 번갈아 가며 나타난다 (Fig. 5). 상위구간인 1200-2000 m는 이팔면체형 스멕타이트가 산출된다. X-선 회절도에서 001 주 피크는 약 12Å에서 나타나며 에틸레글리콜 처리시 16.7Å에서 산출한다. 060 피크는 1.499Å에서 나타나며 이것은 이 스멕타이트는 이팔면체형임을 지시한다. 2200-2600 m 구간에서는 삼팔면체형의 스멕타이트 (이 광물에 대하여 “사포나이트”란 광물명이 사용된다)가 산출된다. 이 광물은 060 피크가 1.537Å에 나타나는 것으로부터 알 수 있다. 2800-3000 m에서는 일라이트 성분층이 40% 이상인 이팔면체형의 일라이트/스멕타이트 혼합층광물이 산출된다. 약 3400 m에서는 스멕타이트 성분층과 녹니석 성분층이 1:1로 혼합된 녹니석/스멕타이트 혼합층 광물 (이 광물에 대하여 Corrensite란 광물명을 사용하기도 한다)이 산출된다. 이 점토광물은 X선-회절도 상에서 29.2Å에 주 피크가 나타나며, 에틸레글리콜 처리시 31.1Å로 이동한다. 마지막으로 3400 m 하부 구간의 매물심도에서는 R=1 일라이트/스멕타이트 혼합층 광물이 나타난다.

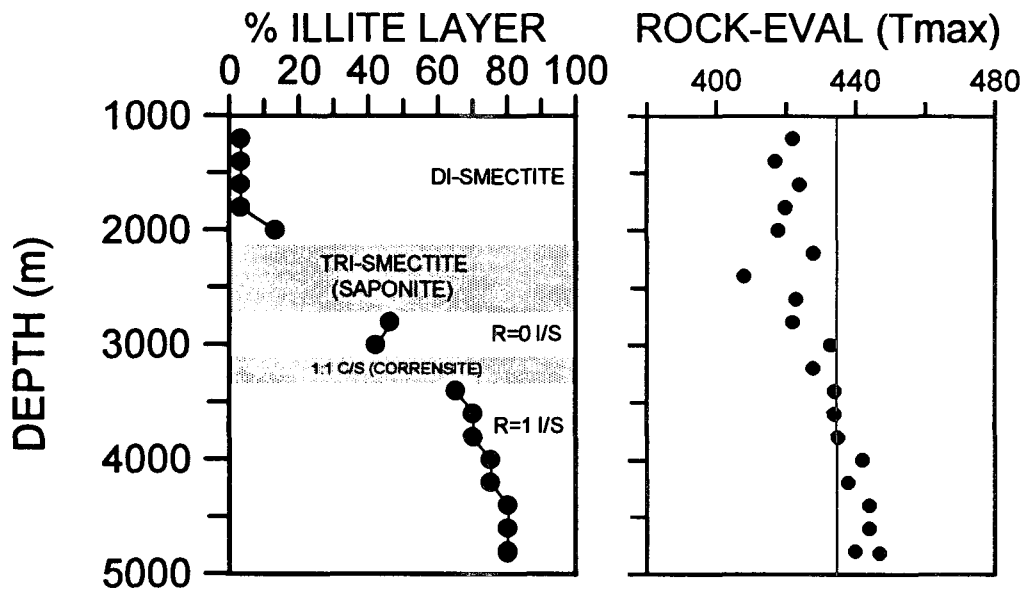


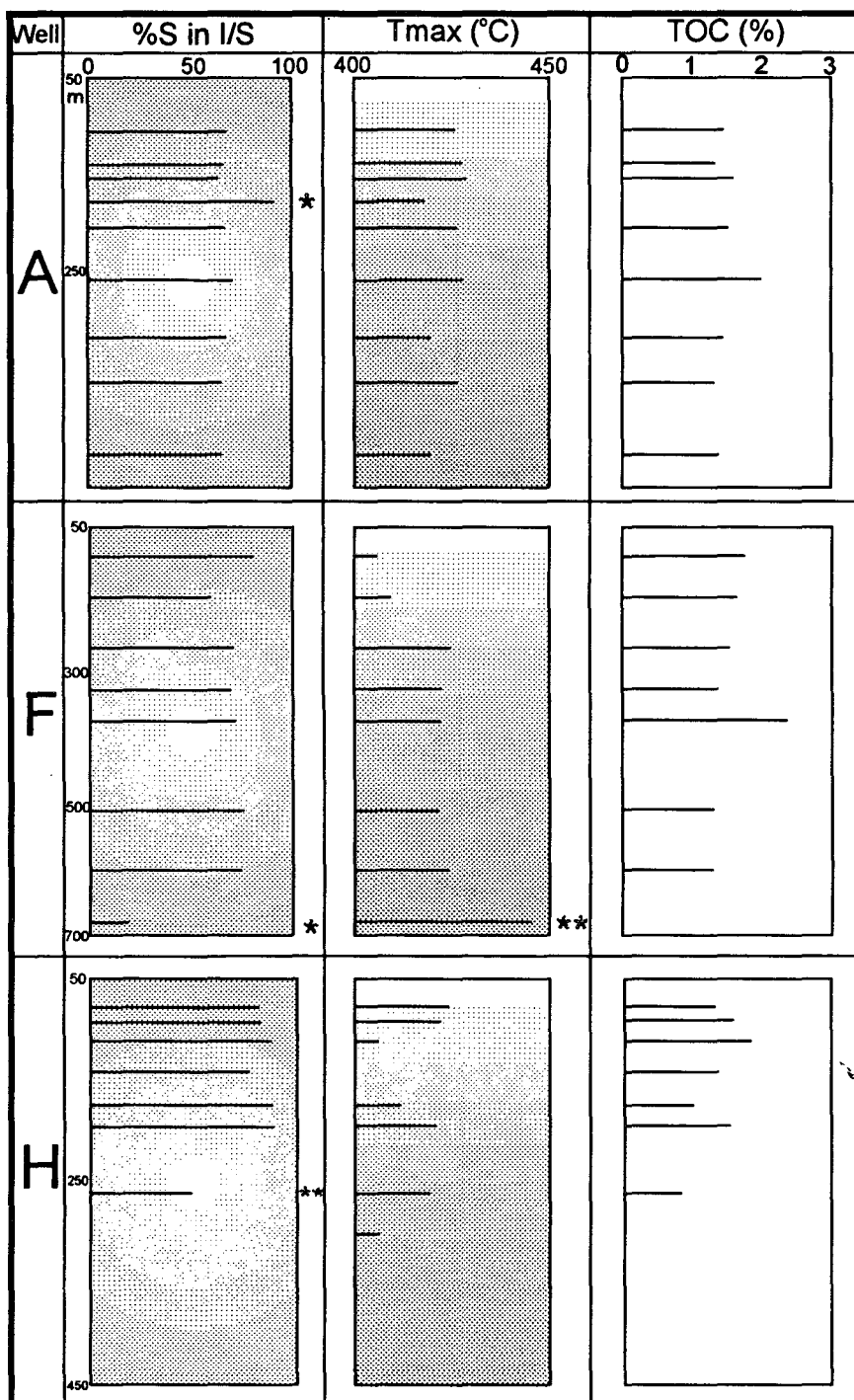
Fig. 5. Variation in clay minerals compared with Tmax in the Niigata Basin. Note an alternate occurrence of di- and tri-octahedral clay mineral phases.

이팔면체형 스멕타이트 (di-octahedral smectite)와 삼팔면체형 스멕타이트 (tri-octahedral smectite)가 심도에 따라 변갈아 가며 나타나는 이 점토광물변화는 이팔면체 스멕타이트의 일라이트화 ($S \rightarrow I/S \rightarrow I$)와 삼팔면체 스멕타이트의 녹니석화 ($S \rightarrow C/S \rightarrow C$)로 설명할 수 있다. 이 두 변화는 심도 구간별로 다르게 나타나는 암상의 차이에 의하여 나타난다. 즉, $S \rightarrow I/S \rightarrow I$ 변화는 쇄설성 이암 내에서 산출되며 $S \rightarrow C/S \rightarrow C$ 는 화산쇄설성의 이질암에서 산출한다. I/S 변화는 점이적으로 스멕타이트 성분층이 감소하고 일라이트 성분층이 증가하면서 나타나지만, C/S는 완전한 스멕타이트에서 1:1 C/S 로 변화한다. 보통 이질암에서 100°C 이상의 지온이 되어야 1:1 C/S 가 처음 나타나는 것으로 알려져 있다 (Inoue and Utada, 1991). 이 시추공에서 1:1 C/S가 나타나는 심도는 3200 m이다. 따라서 이 심도가 100°C 인 것으로 생각된다. 또한 3200 m 상부의 심도에서는 R=0 불규칙배열의 I/S가 나타나며, 이 심도 하부에서는 R=1 규칙배열의 I/S 가 산출된다. R=0 I/S에서 R=1 I/S 로 전환되는 퇴적층의 온도는 약 100°C로 알려져 있다 (Pollastro, 1993). 록-에발 열분석의 Tmax 온도도 심도가 증가함에 따라 증가하다가 3200 m 부근에서 약 435°C의 Tmax 온도에 도달한다 (Fig. 5). 점토광물 데이터와 유기물 데이터는 서로 잘 일치하며 약 3200 m가 약 100°C의 고지온 임을 지시한다.

5. 포항분지의 점토광물 속성작용

과거 석유탐사를 위하여 시추된 시추공들 중에서 분지의 가장 서쪽에 있는 H공, 가장 동쪽에 있는 F공, 그리고 중간에 있는 A공에 대하여 연구하였다. 제3기 해성퇴적층의 두께는 매우 얇기 때문에 H공의 총 심도는 430 m, F공의 심도는 730 m, 그리고 A공의 총 심도는 310 m이다. 세공 모두 전체 구간을 통하여 이질암이 우세하게 나타나며, 이질암 사이에 얇은 사암층이 협재되어 나타난다. 이 이질암들은 많은 유기물을 함유하고 있어 암회색을 띤다.

이질암을 구성하는 점토광물은 R=0 불규칙 배열의 일라이트/스멕타이트 혼합층 광물이 우세하게 나타난다. X-선 회절도에서 001 주 피크는 15Å 부근에서 나타나며 에틸렌 글리콜 처리 시 17Å으로 이동한다. 세 공에서 총 심도 구간을 통하여 스멕타이트 성분층이 감소하고 일라이트 성분층이 증가하는 경향은 보이지 않고 총 심도 전 구간에서 성분층은 거의 비슷하여 변화가 나타나지 않는다 (Fig. 6). 록-에발 Tmax 값도 약 420°C 정도로서 435°C에는 미치지 못하며, 매몰심도에 따른 증가는 나타나지 않는다. 즉, 일라이트/스멕타이트 변화와 Tmax 값은 비슷한 양상을 보여준다. 매몰 심도에 따른 수직적인 변화는 나타나지 않지만 시추공의 위치에 따른 측방 변화를 잘 보여 준다. 즉, 분지의 서쪽 가장자리의 시추공인 H공은 A공 과 F공에 비하여 I/S의 일라이트 성분층의 비가 적고 스멕타이트 성분층이 크게 나타난다. Tmax 값도 H공은 A공이나 F공에 비하여 작



Notes * Bentonitic mudstone
** Uncertain data due to a small amount

Fig. 6. Variation of % smectite in I/S and Tmax in the Pohang Basin.

은 값으로 나타난다. 이것은 A공과 F공의 심도가 H공 보다 상대적으로 두껍기 때문에 매몰속성작용이 더 진행된 것으로 생각된다. 포항분지의 매몰속성작용은 $R=0$ I/S가 우세하게 나타나고 T_{max} 값이 435°C 에 미치지 못하는 것으로 보아서 석유가 생성될 수 있는 온도에는 도달하지 못한 것으로 생각된다.

6. 점토광물 속성변화와 석유생성

동해 주변의 제3기 해성 퇴적분지에서는 점토광물의 매몰 심도에 따른 속성변화가 뚜렷하게 나타난다 (Fig. 7). 특히, 주목되는 것은 일라이트 성분층이 증가하고 스멕타이트 성분층이 감소하는 일라이트/스멕타이트의 변화로서, 연구된 세 퇴적분지에서 잘 나타난다. 또한 니이가타 분지에서는 구간에 따라 암상이 다르므로 인하여 스멕타이트에서 코렌사이트 (1:1 C/S)로의 변화도 잘 보여준다. 이들 점토광물의 속성변화는 모두 온도의 증가에 기인한 것으로, 퇴적층의 고지온을 추정할 수 있게 한다. 유기물에서의 석유생성은 온도에 크게 지배되며 퇴적층의 온도를 인지하는 것은 석유탐사의 중요한 요소이다. 따라서 점토광물의 속성변화는 지질온도계로 사용될 수 있음을 잘 보여준다.

약 5000 m를 관통한 일본의 니이가타 분지와 니이가타 분지에서의 점토광물 변화에 대한 연구 결과는 $R=0$ 일라이트/스멕타이트 혼합층광물에서 $R=1$ 까지의 I/S 변화가 잘 나타난다. 그러나 우리나라의 포항분지는 매몰심도가 낮기 때문에 $R=0$ I/S에서 그쳤다. 우리나라의 포항분지는 매몰심도가 낮은 관계로 석유를 생성할 수 있는 온도에 도달하지 못한 것으로 생각된다.

7. 결론

환동해 제3기 해성 퇴적분지에서는 매몰에 따른 온도증가에 기인한 점토광물의 속성변화가 뚜렷하게 관찰된다. 스멕타이트에서 일라이트/스멕타이트 혼합층 광물을 경유하여 일라이트에 이르는 일라이트화 과정 ($S \rightarrow I/S \rightarrow I$)과 스멕타이트에서 녹니석/일라이트를 경유하여 녹니석에 이르는 녹니석화 과정 ($S \rightarrow C/S \rightarrow C$)이 모두 나타난다. 특히 석유 생성 온도를 지시하는 $R=0$ 일라이트/스멕타이트 혼합층 광물에서 $R=1$ 일라이트/스멕타이트 광물로의 천이가 잘 나타난다.

이들 해성 퇴적물에는 석유를 생성하기에 충분한 유기물을 함유하고 있기 때문에 석유의 생성은 온도에 지배될 수 있으며 $R=0$ I/S에서 $R=1$ I/S의 변화 심도를 인지함으로써 석유생성 가능성을 추정할 수 있다. 일본의 니이가타분지와 아키타 분지에서는 3000 m 이상의 깊은 심도에서는 $R=1$ I/S가 잘 나타난다. 실제로 니이가타 분지와 아키타 분지는 석유가 산출되고 있다. 그러나 우리나라의 포항분지는 매몰심도가 얇은 관계로 $R=0$ I/S에 그쳤으며, 석유를 생성하기에 충분한 유기물은 존재하나 석유생성 온도에 도달하

기 못하여 석유가 산출되지 않는 것으로 생각된다.

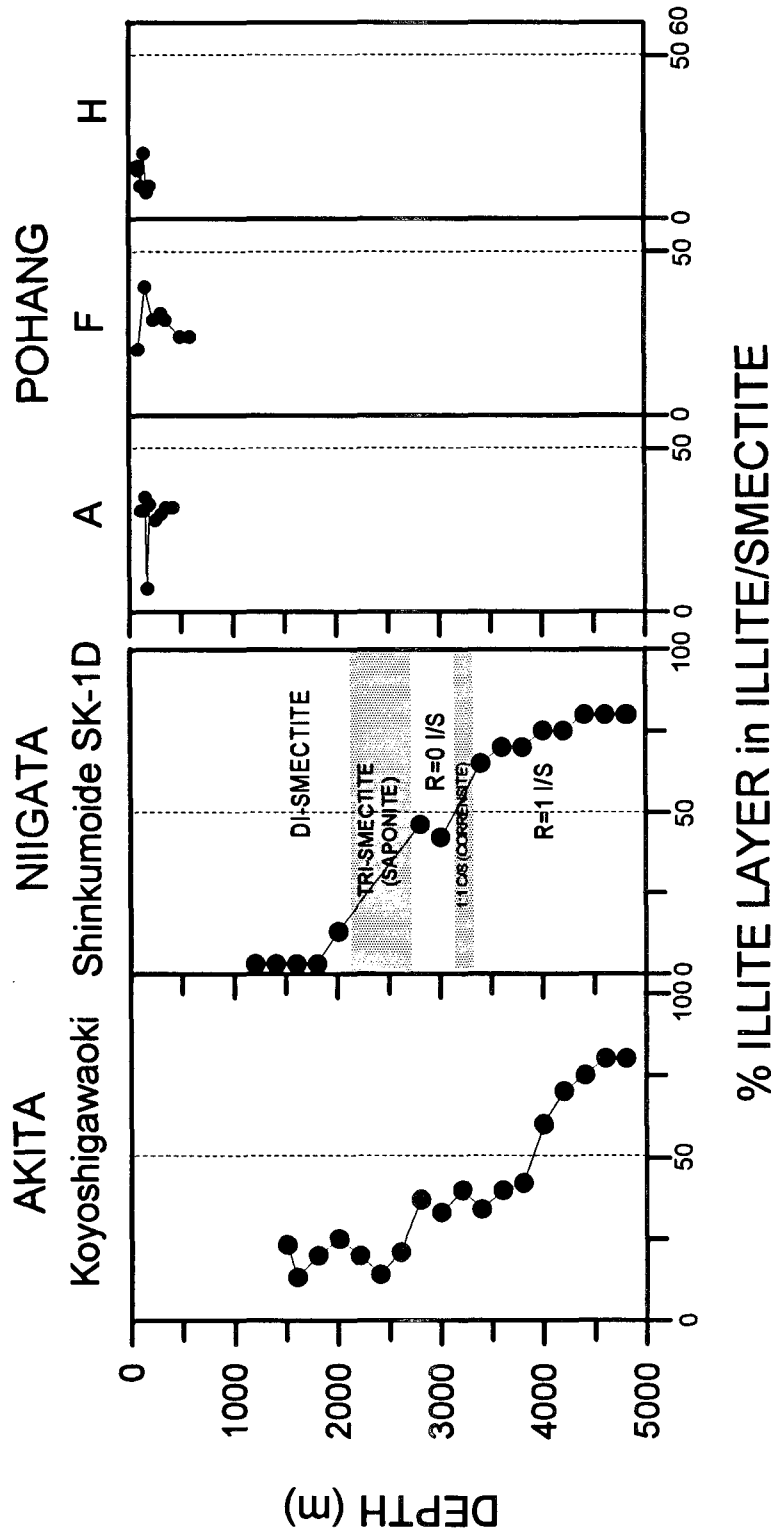


Fig. 7. Comparative features of the clay mineral diagenesis among three sedimentary basins.

참고문헌

- Beaufort, D., Baronnet, A., Lanson, B., and Meunier, A., 1997, Corrensite: A single phase or a mixed-layer phyllosilicate in the saponite to chlorite conversion series? A case study of Sancerre-Couy deep drill hole (France): *American Mineralogists*, 82, p. 109-124.
- Boles, J., and Franks, S., (1979) Clay diagenesis in Wilcox sandstones of southwest Texas: Implications of smectite diagenesis on sandstone cementation: *Journal of Sedimentary Petrology*, 49, p. 55-70.
- Chang, H. K., Mackenzie, F. T., and Schoonmaker, J., 1986, Comparisons between the diagenesis of dioctahedral and trioctahedral smectite, Brazilian offshore basins: *Clays and Clay Minerals*, 34, p. 407-423.
- Hillier, S., Son, B.K., and Velde, B., 1996, Effect of hydrothermal activity on clay mineral diagenesis in Miocene shales and sandstones from the Ulleung (Tsushima) back-arc basin, East Sea (Sea of Japan), Korea: *Clay Minerals*, 31, p. 113-126.
- Hower, J., Eslinger, E.V., Hower, M.E., and Perry, E.A., 1976, Mechanism of burial metamorphism of argillaceous sediment: Mineralogical and chemical evidence: *Geological Society of American Bulletin*, 87, p. 725-737.
- Inoue, A. and Utada, M., 1991, Smectite-to-chlorite transformation in thermally metamorphosed volcanoclastic rocks in the Kimikita area, northern Honshu, Japan: *American Mineralogists*, 76, p. 628-640.
- Pollastro, R.M., 1990, The illite/smectite geothermometer - Concept, methodology, and application to basin history and hydrocarbon generation. In *Application of Thermal Maturity Studies to Energy Exploration*. Nuccio, V.F. and Barker, C.E., eds., p. 1-18.

Pollastro, R.M., 1993, Considerations and applications of the illite/smectite geothermometer in hydrocarbon-bearing rocks of Miocene to Mississippian age: Clays and Clay Minerals, 41, p. 119-133.

Son, B-K. and Yoshimura, T., 1997, The smectite-to-illite transition in the Koyoshigawaoki well in the Akita sedimentary basin, Northeast Japan: Clay Science, 10, p. 163-183.