Proceedings of the Annual Joint Conference,
Mineralogical Society of Korea and Petrological Society of Korea
June 1, 2001, Pusan, Korea

하나로 원자로와 불활성기체 질량분석기를 이용한 ^{40}Ar-^{39}Ar 연대측정

김정민[1*], 정창식[1], 한현수[2], 조운갑[2]
[1]한국기초과학지원연구원 동위원소 분석팀 (j-mkim@comp.kbsi.re.kr)
[2]한국원자력연구소 하나로이용연구단

1. 서론

^{40}Ar-^{39}Ar 연대 측정은 기존에 이용되었던 K-Ar 법이 갖고 있는 여러 가지 약점들을 보완할 수 있어 최근에 가장 많이 이용되고 있는 연대 측정법 중의 하나이다. ^{40}Ar-^{39}Ar 연대 측정을 위해서는 시료에 속중성자 (fast neutron)를 조사하여 ^{39}K를 ^{39}Ar으로 바꾸는 중성자 조사과정 (neutron irradiation) 이 반드시 필요하다. 이번 연구에서는 한국원자력연구소의 하나로 (Hanaro) 원자로와 한국기초과학지원연구원의 불활성기체 질량분석기를 이용한 ^{40}Ar-^{39}Ar 연대 측정법을 소개하고 지금까지 얻은 결과에 대해 보고하고자 한다.

2. ^{40}Ar-^{39}Ar 연대 측정의 원리

^{40}Ar-^{39}Ar 연대 측정은 K-Ar 연대 측정의 원리와 거의 같다. 암석이나 광물이 생성된 이후 내부의 ^{40}K는 방사성 붕괴를 통해 ^{40}Ar으로 바뀐다. 이 과정을 이용해 다음의 연대 측정식이 유도되고 시료내의 ^{40}Ar과 ^{40}K의 양을 구해 암석이 형성되었을 때의 연대를 계산하게 된다.

$$t = \frac{1}{\lambda} \cdot \ln\left(1 + \frac{\lambda}{\lambda_e + \lambda'_e} \cdot \frac{^{40}Ar^*}{^{40}K}\right) \quad (1)$$

λ_e : ^{40}K이 ^{40}Ar으로 붕괴할 때의 붕괴상수

λ_e' : ^{40}K이 ^{40}Ca 로 붕괴할 때의 붕괴상수

λ : ^{40}K의 전체 붕괴상수

^{40}Ar-^{39}Ar 연대 측정을 위해 시료를 중성자 빔에 노출시키면 시료내의 ^{39}K 핵은 다음의 반응에 의해 중성자와 반응하여 ^{39}Ar을 만들고 한 개의 양성자를 방출한다.

$$^{39}_{19}K + {}^{1}_{0}n \rightarrow {}^{39}_{18}Ar + {}^{1}_{0}H + Q \quad (2)$$

중성자 조사를 통해 만들어지는 $^{39}Ar_K$의 양은 중성자 조사시간, 중성자속의 세기와 반응단면적의 함수로서 다음의 식으로 계산된다 (Mitchell, 1968).

$$^{39}Ar_K = {}^{39}K \cdot \Delta \int \Phi(E)\sigma(E)dE \quad (3)$$

Δ : 중성자 조사 시간

Φ(E) : 에너지 E에서의 중성자속의 강도 (neutron flux)
σ(E) : 에너지 E에서의 중성자 흡수단면적
(neutron capture cross section)

(1)과 (3) 식을 결합하면 다음과 같은 ^{40}Ar-^{39}Ar 연대 측정 기본식이 얻어진다.

$$\frac{^{40}Ar^*}{^{39}Ar_K} = \frac{^{40}K}{^{39}K} \cdot \frac{\lambda_e + \lambda'_e}{\lambda} \cdot \frac{1}{\Delta} \cdot \frac{e^{\lambda t} - 1}{\int \Phi(E)\sigma(E)\,dE} \qquad (4)$$

K-Ar 연대를 잘 알고 있는 물질 (neutron fluence monitor) 을 미지의 시료와 같이 중성자 조사시킨 후 Ar의 동위원소비를 구하여 아래의 식에 의해 정의된 J factor를 얻을 수 있다.

$$J = \frac{^{39}K}{^{40}K} \cdot \frac{\lambda}{\lambda_e + \lambda'_e} \cdot \Delta T \cdot \int \Phi(E)\sigma(E)\,dE \qquad (5)$$

J factor가 계산되면 미지의 시료에 대한 ^{40}Ar-^{39}Ar연대는 다음의 식에 의해 쉽게 계산될 수 있다.

$$t = \frac{1}{\lambda} \cdot \ln\left(1 + J \cdot \frac{^{40}Ar^*}{^{39}Ar_K}\right) \qquad (6)$$

(6) 식에서 볼 수 있듯이 ^{40}Ar-^{39}Ar 연대 측정은 Ar의 동위원소 비율만 알면 연대가 계산되므로 K이나 Ar의 절대량을 구할 필요가 없고 K-Ar 연대 측정에서 문제가 되는 시료의 불균질성에 의한 문제도 해결할 수 있다.

3. 실험 과정

중성자 조사

30 MW 급 연구용 원자로인 하나로는 36 개의 중성자 조사공을 갖고 있으며 노심 쪽은 2.1 × 10^{14} n/cm^{2}s, 노심의 외곽에 위치한 중성자 방사화 분석 조사공은 1.5 × 10^9 n/cm^{2}s의 속 중성자속 (fast neutron flux) 값을 갖는다. (2) 식으로부터 ^{39}Ar이 만들어 지기 위해서는 1.2 MeV이상의 에너지를 갖는 속중성자가 필요하므로 (McDougall and Harrison, 1999) 될 수 있는 대로 노심에 가까운 조사공이 적합하다. 이번 연구에서는 IP15 조사공을 선택하였으며 조사공 내의 속중성자는 1.3 × 10^{12} n/cm^{2}s 의 flux를 갖는다. 총 조사시간은 32시간이었고 15일간 냉각기를 거친 후 인도되었다.

시료 준비

중성자 조사를 위해 모든 시료는 99% 이상의 Al-foil로 둥글게 포장하였다. J factor를 구하기 위해서 세계적으로 널리 이용되는 GA1550 흑운모 (McDougall and Rosandic, 1974), SORI93 흑운모 (Sudo et al., 1998), FCS sanidine (Renne et al., 1997) 을 선택하였으며 간섭 Ar 동위원소의 영향을 측정하기 위해 CaF_2와 K_2SO_4를 같이 Al-foil에 포장하여 조사용기에 투입하였다. 각 시료의 양은 질량분석기의 감도와 조사시간을 고려하여 약 20

mg 내외로 정하였다.

질량분석기

Ar 동위원소의 분석에는 영국 Micromass에서 제작되어 1997년 기초과학지원연구원에 도입된 불활성기체 질량분석시스템 (모델명: VG5400) 를 이용하였다. 이 시스템은 시료를 가열하여 기체를 발생시키는 흑연 전기로와 발생된 기체 중 Ar만 추출하는 전처리 장치, 동위원소 비율을 측정하는 질량분석기 및 자료획득장치로 구성된다. 중성자 조사를 마친 시료는 흑연 전기로에서 500 - 600 ℃ 의 온도에서 50 - 100 ℃ 간격으로 가열되어 Ar을 방출한다. 방출된 Ar gas는 전처리 장치의 U-trap, Ti-sponge furnace, SAES getter를 거치면서 순수한 Ar으로 정제된다. 질량분석기에서는 정제된 Ar을 받아들여 이온화시킨 후 전자석과 검출기를 통해 각 동위원소들의 비율을 측정한다.

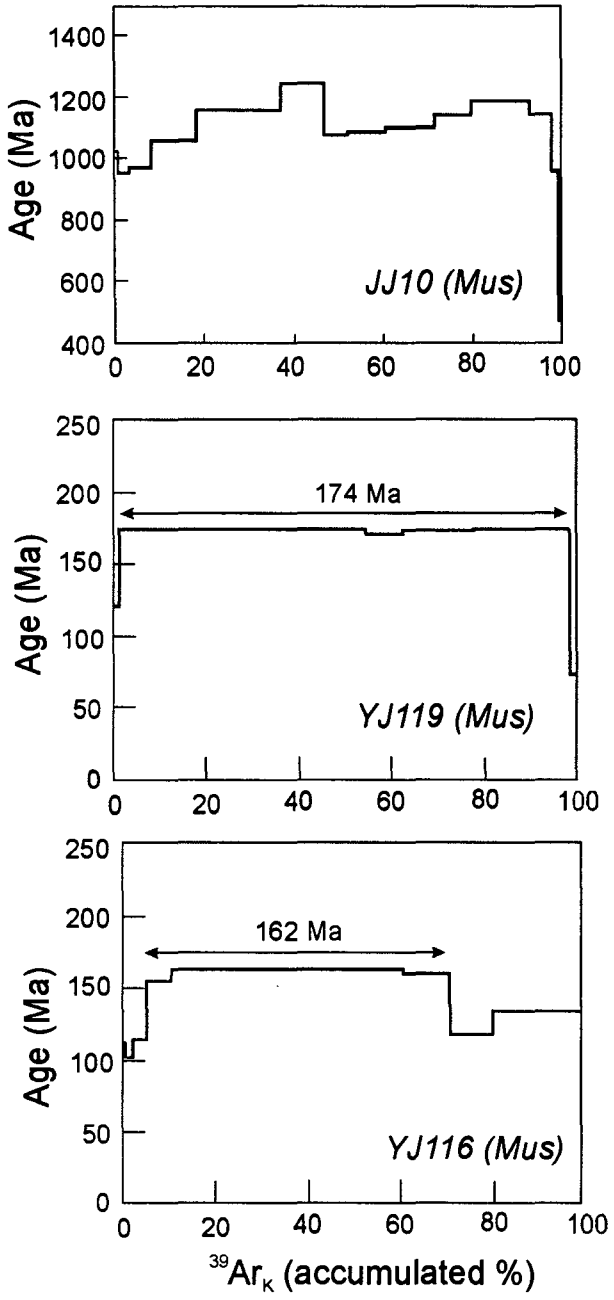

Fig. 1. ^{40}Ar-^{39}Ar age spectrum for muscovites from leucogranite in Northeastern Yeongnam Massif.

4. 측정 결과

^{40}Ar-^{39}Ar 연대 측정의 정확성을 알아보고자 K-Ar 연대가 잘 알려진 시료에 대한 실험을 수행했다. 영남 육괴 북동부 지역의 우백질 화강암 및 페그마타이트에서 추출한 백운모는 중생대 영주 화강암과의 거리에 따르는 ^{40}Ar-^{39}Ar 연대의 체계적인 변화를 보여주고 있다 (Fig. 1). 실험에 이용된 시료는 YJ116, YJ119, JJ10으로서 YJ116이 화강암과의 거리가 가장 가깝고 JJ10이 가장 멀리 위치하고 있다. 우백질 화강암의 관입은 Sm-Nd 석류석-전암법으로부터 약 19억년 전인 것으로 확인된 바 있다. 그러나 각각의 K-Ar 연대는 166 ± 3, 171 ± 3 Ma, 1191 ± 3 Ma로서 중생대 화강암의 관입에 의한 재평형

된 값을 갖는다. ^{40}Ar-^{39}Ar 연대의 경우 화강암과 비교적 가까운 YJ116과 YJ119는 각각 162 Ma, 174 Ma의 plateau 연대를 갖는 반면 JJ10은 일정한 plateau 연대를 갖고 있지 않다. 이러한 사실은 중생대 화강암의 관입에 의한 Ar계의 재평형이 넓은 범위에 걸쳐 일어났음을 의미하며 단순한 K-Ar 광물연대로는 그 암석이 형성되었던 시기를 유추하기가 어려움을 지시한다.

5. 결 론

하나로 원자로를 이용해 중성자 조사를 실시한 시료에 대해 불활성기체 질량분석기를 이용하여 비교적 만족할 만한 ^{40}Ar-^{39}Ar 연대를 얻을 수 있었다. 아직 정확도가 떨어지는 결과가 얻어지는데 이는 중성자의 조사과정이 최적화되지 않았고 분석 과정 중에 약간의 오류가 있었기 때문이다. 향후 중성자 조사공 내부의 중성자속의 수직적 및 수평적인 변화를 보정하고, ^{39}Ar의 최적 생성 조건을 확립함으로서 ^{40}Ar-^{39}Ar 연대의 신뢰성을 높힐 수 있다. 벌크 시료를 이용한 ^{40}Ar-^{39}Ar 연대 측정법을 확립한 이후 앞으로 Nd-Yag 자외선 레이져를 이용한 spot ^{40}Ar-^{39}Ar 연대측정을 실시하고자 한다. 이 실험법이 성공적으로 도입되면 국내에서도 미세규모의 연대측정연구가 활발히 이루어질 것으로 기대된다.

6. 참고 문헌

Mitchell, J.G., 1968, The argon-40/argon-39 method for potassium-argon age determination. Geochim. Cosmochim. Acta., 32, 781-790.

Sudo, M., Uto, K, Anno, O, Ishizuka, O., and Uchiumi, S., 1998, SORI93 biotite: A new mineral standard for K-Ar dating. Geochem. Jour., 32, 49-58.

Renne, P.R., Swisher, C.C., Deino, A.L., Orsi, G., and Civetta, L., 1997, $^{40}Ar/^{39}Ar$ dating into the historical realm: calibration against Pliny the Younger. Science, 277, 1279-1280.

McDougall, I., and Harrison, 1999, Geochronology and thermochronology by the $^{40}Ar/^{39}Ar$ method, 2nd. Ed., Oxford Univ. Press, Oxford, 269p.

McDougall, I. and Rosandic, Z., 1974, Total fusion $^{40}Ar/^{39}Ar$ ges using HIFAR reactor. Geol. Soc. Aust. Jour., 21, 81-89.