

## 미립자법에 의한 옛 소성물의 열발광 연대측정

-경기도 광주군 실촌면 삼리 기와가마(1, 2호)-

정광용 · 강형태\*

대전보건대학 박물관과, \*국립중앙박물관 보존과학실

### Thermoluminescence Dating of Ancient Firing Materials by Fine Grain Method

- Tile Sherd from Samni Kiln Site, Kwangju, Gyunggido

Kwang Yong Chung and Hyung Tae Kang\*

Department of Museology, Daejeon Health Sciences College

\*Department of Conservation Science, National Museum of Korea

경기도 광주군 실촌면 삼리 산 29-9번지 일대의 발굴조사 결과 세 곳에서 구석기시대의 문화층 뿐 아니라 고려 및 조선시대 질그릇 조각들과 3기의 민묘가 확인되었으며 또한 기와 가마터에서 많은 기와 편들이 발굴되었다<sup>1</sup>.

기와는 점토를 성형하여 소성한 물질로서 가마의 조성 및 사용 연대를 과학적으로 측정할 수 있는 좋은 자료이다. 기와 등의 시료는 가열하면 미약한 빛을 방출하는데 이를 열발광(thermoluminescence)<sup>2,3</sup>이라 하며 열발광량은 기와가 매장된 토양에 함유되어 있는 방사성 원소가 방출하는 방사선량에 비례하고 매장 기간에 비례한다. 따라서 이러한 원리를 이용하여 매장 기간동안 기와 시료가 받은 총방사선량(고고선량, Palaeodose)을 결정한 다음 시료가 일년간 받는 방사선량(년간선량, Annual dose)을 측정하여 나누어주면 기와가 폐기되거나 매장된 시점의 연대를 계산할 수 있게 된다<sup>2</sup>. 열발광연대측정은 사용하는 시료 입자 크기에 따라 조립자법<sup>4,5</sup>(Quartz inclusion method)과 미립자법<sup>6</sup>(Fine grain method)으로 구분되는데 본 연구에서는 미립자법을 채용하였다. 시료의 열발광량으로부터 고고선량 즉, 매장 기간중에 받은 총방사선량을 결정하였고, 기와 편 및 토양 각각의 알파선량을 측정, 산화칼륨(% K<sub>2</sub>O) 분석 그리고 수분함량을 측정하여 년간선량을 계산하였다.

미립자법은 기와 태토의 광물 입자중에서 직경 2~10  $\mu\text{m}$ 의 입자를 추출하여 측정 시료로 사용하는 방법이다. 미립자 시료가 받는 방사선은 1) 태토 중의 방사성원소로부터 방출하는 알파선, 베타선, 감마선, 2) 주위 토양에 포함되어 있는 방사성원소에서 방출하는 감마선, 그

리고 3) 우주선이다. 그런데 알파선은 태토 내에서 침투범위가 10~50  $\mu\text{m}$ 이며 이온화 밀도가 상당히 크기 때문에 전자의 열발광 덫(trap)은 곧 포화되고 이온화 전자의 상당량이 소모되어 버린다. 그 결과 알파선은 베타선과 감마선에 비하여 그레이(Gy)당 열발광량은 0.05~0.5 정도로 훨씬 적다. 이를 고려한 연대측정식을 식(1)에 나타내었다. 여기서  $D'_\alpha$ 는 유효알파선량(effective alpha dose-rate)으로서  $D'_\alpha = aD_\alpha$ 이다. a는 유효알파계수(effective alpha coefficient)로서  $a = Q_\beta/Q_\alpha$ 이다.  $Q_\alpha$  및  $Q_\beta$ 는 시료의 자연열발광량과 동일한 열발광량을 나타내는 등가알파선량(equivalent alpha dose) 및 등가베타선량(equivalent beta dose)이다. D는 각 방사선의 연간선량이며 c는 우주선이다.

$$\text{연대(Age)} = \frac{\text{고고선량(Palaeodose)}}{D'_\alpha + D_\beta + D_\gamma + D_c} \quad (1)$$

### 1. 시료 준비

경기도 광주군 실촌면 1호 및 2호 기와가마에서 각각 시편을 입수하였고 고고선량 측정을 위한 시료 조각의 양 측면을 각 2 mm 두께로 깎아 내었다. 2일간 완전히 건조시킨 다음 막자로 부드럽게 눌러 빵아서 분말 시료로 만들었다. 시료 입자들을 체로 걸러 입자 크기 (<90  $\mu\text{m}$ , 90~150  $\mu\text{m}$ , >150  $\mu\text{m}$ )별로 필름 통에 담아 넣고 표시한 후 50°C 건조기에 보관하였다. 연간선량 측정을 위한 시료 조각은 건조기에 넣고 50°C에서 2일간 완전히 건조시킨 다음 분쇄기를 사용하여 고운 분말(38  $\mu\text{m}$  이하)로 만들었다. 이 분말 시료는 차후 알파선량을 계측 및  $\text{K}_2\text{O}$  함량분석을 위해서 사용된다. 나머지 시료 조각은 포화수분 함량 측정을 위해 물을 담은 용기에 깊이 넣어 보관하였다.

**미립자 추출** : 필름통에 보관중인 시료(<90  $\mu\text{m}$ )를 4개의 각 시험관에 넣은 다음 정확히 6 cm 높이로 아세톤(aceton)을 첨가하고 격렬하게 흔들어 주었다. 아세톤 용액 중에서 입자 크기에 따른 침강속도 차이를 이용하여 2~10  $\mu\text{m}$ 의 입자 침전물을 얻었고 50°C에서 24시간 건조시켰다.

**시료 디스크** : 미립자법에서는 열발광측정을 위해 각 알루미늄 디스크(직경 0.95 cm, 두께 0.45 mm) 위에 미립자 시료 2 mg을 균일하게 부착시키는 방법을 사용하였다. 다음 알루미늄 디스크를 꺼내서 열발광읽개(thermoluminescence reader)의 원형 시료판에 가만히 올려 놓아 열발광을 측정한다.

### 2. 고고선량(Palaeodose)

**1차 열발광곡선** : 1호 및 2호 기와에 대하여 각각 알루미늄 디스크 36개씩 준비하였다.

12개 디스크는 시료의 자연열발광량(natural glow)을 측정하기 위한 것이다. 12개 디스크를 4개씩 세 셋트로 나누어 Sr-90 베타선원(0.075 Gy/sec)으로 각각 50초, 100초, 150초간 부가선량을 조사하였다. 나머지 12개 디스크도 세 셋트로 나누어 Am-241 알파선원(0.0297  $\mu$ -2/sec)으로 각각 100초, 200초, 300초간 조사하였다. 본 실험에서는 알파 및 베타선원이 함께 들어 있는 조사장치(801 Multiple irradiator, Daybreak Co., USA)를 사용하였다. 36개 시료 디스크를 열발광읽개(TL Reader, Model 1100 TL system, Daybreak Co., USA) 시료실의 가열판(heater) 위에 올려놓고 1차 열발광량을 측정하였다.

**2차 열발광곡선 :** 위 1호 및 2호 시료의 자연열발광량을 측정했던 각 12개 디스크를 3개씩 나누어 네 셋트로 나누었다. 네 셋트의 디스크를 Sr-90 베타선원으로 각각 50초, 100초, 150초, 200초씩 조사하고 디스크를 열발광읽개에 옮겨 2차 열발광량을 측정하였다.

프레토 범위에서 시료의 1차 및 2차 열발광량에 대한 방사선량 Q 값과 I 값을 Table 1에 나타내었고 1호 및 2호 시료의 고고선량, P를 계산한 결과는 5.14 Gy 및 6.05 Gy이었다.

### 3. 연간선량(Annual Dose)

미립자 시료가 받은 자연방사선은 태토에 함유된 방사성원소 즉, 우라늄, 토륨에서 방출하는 알파선, 베타선, 감마선 그리고 칼륨에서 방출하는 베타선, 감마선이며 매장 토양에 포함된 우라늄, 토륨, 칼륨에서 방출하는 감마선이다. 그리고 우주선을 고려하여야 한다. 우주선에 의한 연간선량은 7.015 mGy/a를 사용하고 있다. 이들 방사선의 연간선량을 측정하는 방법은 여러 가지가 있으나 시료 및 토양으로부터 각각의 알파선량을 측정 및 K<sub>2</sub>O 분석을 통

**Table 1.** 경기도 광주군 실촌면 기와 가마 1호 및 2호 시료의 고고선량(P = Q + I)

Kiln site	Sample no.	Plateau (°C)	Q (Gy)	I (Gy)	Palaeodose (Gy)
No. 1	Kcp00TLfg 25	350~420	4.60±0.19	0.54±0.31	5.14±0.35
No. 2	Kcp00TLfg 26	350~410	5.40±0.09	0.64±0.16	6.05±0.17

**Table 2.** 경기도 광주군 실촌면 기와 및 토양의 알파계수율, K<sub>2</sub>O 및 수분함량

Kiln site	Sample	$\alpha_0$ (cnts/ks/cm <sup>2</sup> )	K <sub>2</sub> O (%)	Water (%)
No. 1	Tile	0.956±0.22	2.73	23.31
	Soil	1.017±0.13	2.02	19.09
No. 2	Tile	1.096±0.22	2.31	23.85
	Soil	1.090±0.13	2.65	22.67

하여 시료가 받은 알파선, 베타선 및 감마선의 양을 계산하였다.

#### 4. 열발광연대 계산

그런데 기와 및 토양은 실제 매장된 기간 동안에는 수분이 포함되어 있었으므로 방사선 종류에 따른 수분흡수계수<sup>2,3,6</sup>를 고려해 주어야 한다. 따라서 건조 시료를 측정해서 방사선량을 평가하였다면 수분의 흡수를 고려한 각 방사선의 연간선량을 보정해 주어야 하는데 이의 계산은 아래와 같다.

$$D'_{\alpha, \text{pot}} = \frac{(D'_{\alpha})_{\text{dry}}}{1 + 1.50FW}, D_{\beta, \text{pot}} = \frac{(D_{\beta})_{\text{dry}}}{1 + 1.25FW}, D_{\gamma, \text{pot}} = \frac{(D_{\gamma})_{\text{dry}}}{1 + 1.14FW_1}$$

여기서  $D'_{\alpha} = aD_{\alpha}$ 이다.  $a$ 는 유효알파계수(effective alpha coefficient)로서  $a = Q_{\beta}/Q_{\alpha}$ 이다.  $Q_{\alpha}$  및  $Q_{\beta}$ 는 시료의 자연열발광량과 같은 열발광량을 나타내는 등가알파선량(equivalent alpha dose) 및 등가베타선량(equivalent beta dose)이다.  $W$ 는 시료의 포화흡수율(%),  $W_1$ 은 토양의 수분함량(%)이다.  $F$ 는 매장기간 중 평균 수분흡수분율(fractional uptake of water)로서 극한 조건이 아닌 경우에 대부분  $F = (0.8 \pm 0.2)$ 를 사용하고 있다.

#### 5. 맺음말

기와가마 1호 : 1호 기와 시료의 열발광연대 계산에 필요한 고고선량, 각 방사선의 연간선량을 Table 3에 나타내었다. Table 3에서 시편이 받은 고고선량( $Q+I$ )은 5.14 Gy이었고, 연간선량(annual dose)은 5.10 mGy/a 임을 알 수 있다. 고고선량을 연간선량으로 나누어 주면 1호의 열발광연대는  $1008 \pm 73$  BP이며 실연대로 전환하면 AD  $992 \pm 73$ 년이다. 즉, AD 990년경이 중심연대이며 연대범위는 대략 AD 935~1,080 이다. 또 연간선량에 대한 각 방사선의 기여도를 보면 알파선은 24.7%, 베타선 43.1%, 감마선 29.2%, 우주선 2.9% 임을 알 수 있다. 열발광연대에서 yr. BP는 열발광연대를 측정한 시점이므로 측정연도인

Table 3. 경기도 광주군 실촌면 기와가마 시료의 고고선량, 연간선량 및 열발광연대

Kiln site	Palaeodose (Gy)		Alpha efficiency (a)	Annual dose (mGy/a)				TL age (yrs. BP)*	Calibrated age (AD/BC)
	Q	I		$D'_{\alpha}$	$D_{\beta}$	$D_{\gamma}$	$D_c$		
No. 1	4.60	0.54	0.080	1.26	2.20	1.49	0.15	$1008 \pm 73 \pm 107$	AD992 ± 73
No. 2	5.40	0.64	0.083	1.48	2.06	1.63	0.15	$1136 \pm 45 \pm 103$	AD864 ± 45

\*열발광연대에서 BP yr는 측정연도, 즉 2,000년을 기준으로 함

2,000년도를 기준으로 1008년 전이라는 의미이고 우연오차(random error)는  $\pm 73$ 년으로서 오차범위는 약 7%에 해당된다. 총 오차(total error)는  $\pm 107$ 년인데 여기에는 계통오차가 포함된 것이며 타 연대측정 결과와의 비교 시에 사용된다.

**기와가마 2호** : 2호 기와 시료의 고고선량, 각 방사선의 연간선량을 Table 3에 나타내었다. Table 3에서 시편의 고고선량(Q+I)은 6.05 Gy이었고, 시편이 받은 연간선량(annual dose)은 5.32 mGy/a 임을 알 수 있다. 따라서 2호의 열발광연대는  $1136 \pm 45$  BP이며 전환연대는 AD  $864 \pm 45$ 년이다. 따라서 중심연대는 AD 864년이며 연대범위를 보면 대략 AD 820~910이다. 연간선량에 대한 기여도를 보면 알파선은 27.8%, 베타선 38.7%, 감마선 30.7%, 우주선 2.8% 임을 알 수 있다. 열발광연대에서 yr. BP는 열발광연대를 측정할 시점이므로 측정연도인 2,000년도를 기준으로 1136년 전이라는 의미이고 우연오차(random error)는  $\pm 45$ 년으로서 오차범위는 약 4%에 해당된다. 총 오차(total error)는  $\pm 103$ 년인데 여기에는 계통오차가 포함된 것이며 이를 포함하면 총오차는 약 9%가 된다.

## 참고문헌

1. 한남대학교, 경부고속철도 대전연결선 구간의 옥천 대천리 유적 발굴조사 현장설명회 자료, 한남대학교박물관, 2000. 8. 21.
2. Aitken, M. J. 1990. Science-based dating in archaeology (Singapore: Longman archaeology series) 141-185.
3. Aitken, M. J. 1985. Thermoluminescence Dating (Orlando:Academic press) 17-39.
4. Fleming, S.J, Thermoluminescence Techniques in Archaeology, Clarendon Press, Oxford, 257, 1979.
5. Fleming, S.J, Thermoluminescence Daring : refinement of the quartz inclusion method, Archaeometry, 12, 13-30, 1970.
6. Zimmerman, D.W, Thermoluminescence dating using fine grains from pottery, Archaeometry, 13, 29-52, 1971.
7. Prescott, J. R. and Hutton, J. T., Cosmic ray contribution to dose rates for luminescence and ESR dating: large depths and long-term time variations. Radiation Measurements 23: 2/3, 497-500, 1994.