

열형광측정법에 의한 고대도자기의 연대측정 (熱螢光測定法에 의한 古代陶磁器의 年代測定)

韓國原子力研究所 李 基 善

도기(陶器), 벽돌, 타일 등(等)과 같은 고대(古代) 도자기(陶磁器)들은 인류(人類)의 문화(文化)와 사회경제적(社會經濟的) 역사(歷史)를 이해(理解)하기 위(爲)한 과학적(科學的) 중요성(重要性) 뿐만 아니라, 흔히 높은 예술성(藝術性)과 따라서 귀중(貴重)한 값어치를 지니고 있다. 그리하여 오늘날에는 그러한 유물(遺物)들의 모조품(模造品)들이 많이 만들어지고 있는 실정(實情)이다. 이들은 때로는 정교(精巧)한 방법(方法)으로 만들어지고 있기 때문에 겉으로 보거나 현징경적(顯徵鏡的) 검사(檢査) 또는 화학적(化學的), 광물학적(鑛物學的) 분석(分析)으로 그들을 구별(區別)하기는 거의 불가능하다. 따라서 비교적(比較的) 간단한 방법(方法)으로 고예술품(古藝術品)들의 진부(眞否)를 가려내는 일은 각국(各國)의 경찰이나 세관당국 뿐만아니라 고고학자(考古學者), 미술사가(美術史家), 미술품취급자(美術品取扱者) 및 수집가(收集家)들에게도 대단히 흥미(興味) 있는 일이다.

실제(實際)로 석영(石英), 장석(長石), 혹은 자기(磁器)의 다른 구성물중(構成物中)에 축적(蓄積)되어 방사선(放射線)에 의(依)해 유기(誘起)된 열형광(熱螢光) 신호(信號)를 측정(測定)함으로써 그러한 것이 가능(可能)하다. 왜냐하면 자기(磁器)들은 점토(粘土)를 불에 구워서 만들므로 그 이전(以前)에 있었던 모든 열형광(熱螢光) 신호(信號)들은 소멸(消滅)되고 소성후(燒成後)의 열형광(熱螢光) 신호(信號)만이 축적(蓄積)되어 있기 때문이다.

비록 20여년전(餘年前)에 처음으로 이 방식(方式)이 제시(提示)되고¹⁾ 그후 여러 연구진(研究陳)에 의(依)해 12년여(年餘)에 걸쳐 연구(研究)되었지만(가장 괄목(刮目)할 만한 연구(研究)는 Oxford의 Aitken과 그의 연구진(研究陳)에 의(依)해서였다) 현재(現在)까지 전세계(全世界)에서 그러한 검사(檢査)를 수행(遂行)할 수 있는 설비(設備)를 갖춘 연구실(研究室)은 10여(餘)군데에 불과(不過)하다. 그의 주원인(主原因)은 이 분야(分野)의 선구자(先驅者)들이 그들의 저서(著書)에서 지적(指摘)해 왔듯이 매우 복잡한 장치(裝置)와 비싼 가격(價格) 때문에 작은 연구실(研究室)과 경험(經驗)이 적은 연구자(研究者)들이 이 연구(研究)에 참여(參與)할 수 없었기 때문이다. (이 분야(分野)에 관한(關)한 최근(最近)의 해설(解說)은 참고문헌(參考文獻) (2)-(5)참조(參照)) 오늘날 열형광(熱螢光) 측정법(測定法)은 암석(岩石)과 도자기(陶磁器)들의 연대측정(年代測定)에 성공적(成功的)으로 응용(應用)되고 있어 고고학(考古學)에 있어 매우 가치있는 도구(道具)로 등장(登場)하고 있다.⁶⁾⁷⁾⁸⁾

여기서 간단히 이 방법(方法)의 원리(原理)를 살펴보기로 한다.

도자기(陶磁器)를 구성(構成)하고 있는 주성분(主成分) 가운데 석영(石英)이나 장석등(長石等)의 미립자(微粒子)들은 구성원자(構成原子)들이 규칙적(規則的)으로 배열(配列)되어 있는 결정(結晶)으로 되어있다. 이 결정(結晶)들은 많은 격자결함(格子缺陷)들을 지니고 있는데, 가령 규칙적(規則的)인 위치(位置)에서 원자(原子)가 빠져나간 부위(部位)에는 쉽사리 자유전자(自由電子)들이 빠져들기 쉽다. 따라서 이러한 결함부위(缺陷部位)는 흔히 trap(함정(陷井))이라고 불리운다. 이 결함부위(缺陷部位)에 전자(電子)가 빠져들어 있는 상태(狀態)의 부도체(不導體)들은 준안정상태(準安定狀態)에 있다. 이 trap에 빠져 있는 전하(電荷)는 가열(加熱)에 의(依)해 쉽사리 해방(解放)이 되어 주변의 전위장벽(電位障壁)을 넘어서 빛을 방출(放出)하면서 낮은 에너지 상태(狀態)로 옮겨간다. 이 현상(現象)을 열형광(熱螢光)이라 한다.

trap들이 전하(電荷)들로 메꾸어진 결정(結晶)을 가열(加熱)하면 형광신호(螢光信號)는 0에서 시작(始作)하여 온도(溫度)를 높임에 따라 형광신호(螢光信號)도 증가(增加)하며 최종적(最終的)으로 모든 trap들이 비워지는 고온(高溫)에서 다시 0으로 떨어진다.

이처럼 온도(溫度)에 따른 열형광신호(熱螢光信號)의 변화곡선(變化曲線)을 glow curve(광휘곡선(光輝曲線))라 하며 열형광(熱螢光)의 최정점(最頂點)을 glow peak라고 한다. 때로는 이 glow peak가 몇 개씩 나타날 수도 있다. glow curve의 모양을 상세(詳細)히 분석(分析)함으로써 trap의 깊이, 종류(種類)와 숫자 및 trap들이 메꾸어진 농도등(濃度等) 기타(其他) 많은 정보(情報)들을 얻게 된다.

도자기(陶磁器)의 제작(製作)은 열형광(熱螢光) 연구(研究)를 위(爲)한 시료제작(試料製作)의 이상적(理想的)인 한 예(例)로 볼 수 있다. 왜냐하면 점토(粘土)를 가마에서 700~1,000℃의 온도(溫度)로 구워야하기 때문이다. 이 소결(燒結)에 의(依)해 모든 전자(電子) trap들은 비워지게 된다. 더욱이 도자기(陶磁器) 원료(原料)는 열적(熱的) 및 전기적(電氣的)으로 절연체(絶緣體)이므로 열적수축(熱的收縮)으로 인(因)한 균열(龜裂)을 피하기 위해 서서(徐徐)히 냉각(冷却)시켰음에 틀림없다.

따라서 이 도자기(陶磁器)들은 전기적평형(電氣的平衡)을 이루고 있으며 모든 trap들은 비워져 있다. 이 때부터 도자기(陶磁器)는 전자(電子) trap의 형태(形態)로 『시계(時計)』를 지니게 되며 이 trap들은 도자기(陶磁器) 재료중(材料中)에 포함(包含)돼 있는 방사성물질(放射性物質)의 방사성붕괴(放射性崩壞)에 의(依)한 내부조사(內部照射)와 흡수에 묻혀져 있던 물질(物質)은 토양(土壤)으로 부터의 감마선조사(線照射)에 의(依)해 점차로 채워지게 된다. 이 시계(時計)를 읽기 위해서는 채워진 trap의 숫자(數字)와 방사선량(放射線量) 및 방사선조사(放射線照射)를 받는 동안 trap이 채워지는 속도(速度)를 측정(測定)해야 한다. trap 밀도(密度)는 glow peak의 강도(強度)로부터 측정(測定)할 수 있으나 trap의 충전속도(充填速度)의 측정(測定)은 도자기중(陶磁器中)에 포함(包含)되어 있는 여러 방사성원소(放射性元素)의 농도(濃度)의 정밀(精密)한 분석(分析)을 요(要)한다. 이 분석(分析)으로 방사성원소(放射性元素)의 종류(種類)와 함량(含量) 및 붕괴기구(崩壞機構)가 밝혀진다. trap충전(充填)에 대(對)한 여러 종류(種類)의 방사선(放射線)의 효과(效果)를 결정(決定)하기 위(爲)하여 정확히 선량(線量)을 알고있는 방사선(放射線)을 실험실(實驗室)에서 조사(照射)시킬 수가 있다.

전형적(典型的)인 도자기점토(陶磁器粘土)들은 수(數) p.p.m.정도(程度)의 ²³⁸U과 ²³²Th 그리고 수백(數百) p.p.m.정도(程度)의 ⁴⁰K등(等)의 방사성물질(放射性物質)을 포함(包含)하고 있으며, 이들은 매우 긴 반감기(半減期)를 갖고 있어서 어떤 도자기(陶磁

器)의 존속기간(存續期間)을 통(通)하여 방사선량(放射線量)은 본질적(本質的)으로 일정(一定)하며 대략 1 rad/year(즉 10^{-2} joules absorbed per kg per year)정도(程度)이다. Aitken⁷⁾은 통상(通常) 흙속에 묻혀진 도자기(陶磁器)에 대(對)한 α -, β -그리고 γ -선(線)의 조사효과(照射效果)에 의 기여도(寄與度)는 각각 57%, 24% 및 19% 임을 인용(引用)하고 있다. 이와같이 하여 시료(試料)의 열형광신호(熱螢光信號)의 세기와 방사선조사(放射線照射)에 의(依)한 열형광조성율(熱螢光造成率)(trap 충전율(充填率)이라 해도 좋다) 및 시료내부(試料內部)와 주변(周邊) 흙으로 부터의 방사선(放射線)의 연간선량(年間線量)을 측정(測定)하면 다음 식(式)에 의(依)하여 연대(年代)를 계산(計算)할 수 있다.

$$\text{연대(年代)} = \frac{\text{시료(試料)의 열형광(熱螢光)}}{(\text{열형광(熱螢光)/선량(線量)}) \times (\text{선량(線量)/年})}$$

정량측정(定量測定)을 위(爲)해서 시료(試料)는 도자기(陶磁器)의 내부(內部)에서 채취(採取)해야 하며 빛에 노출(露出)시키지 않는 상태(狀態)에서 분말(粉末)로 분쇄(粉碎)해야 한다.⁹⁾ 이렇게 함으로써 시료표면층(試料表面層)에 대(對)한 일광(日光)이나 조명광(照明光)에 의(依)한 소멸효과(消滅效果)를 제거(除去)할 수 있다. 흙속에 묻혀져 있던 시료(試料)의 경우 무게로 약 10%까지의 수분(水分)을 포함(包含)하고 있어서 실제(實際)의 방사선량(放射線量)을 변화(變化)시키기도 한다.

기타(其他) 많은 보정요인(補正要因)을 감안(勘案)하면 이 방법(方法)에 의(依)한 현재의 연대측정(年代測定)의 정밀도(精密度)는 $\pm 10\%$ 이다. 이 방법(方法)으로는 결코 $\pm 5\%$ 보다도 더 좋은 정밀도(精密度)는 기대(期待)할 수 없을 것 같다. Romano-Britain 시대(時代)의 도자기(陶磁器)에 대(對)해서 소성연대(燒成年代)는 ± 80 년 이내(以內)로 측정가능(測定可能)하다. 더욱 오래된 시료(試料)에 대(對)해서도 이 방법(方法)을 적용(適用)하였는바 그 결과(結果)는 방사성탄소연대측정(放射性炭素年代測定)과 매우 잘 일치(一致)하고 있다. Dolni Vestonici에서 발견(發見)된 상기(上期) 구석기시대(舊石器時代)의 한 점토(粘土) 조각은 열형광(熱螢光) 측정법(測定法)에 의해 B.C. 31000 \pm 3000년으로 밝혀졌으며 방사성연대측정법(放射性年代測定法)에 의(依)해서는 B.C. 28500년으로 나타났다.

도자기(陶磁器)의 열이력(熱履歷)에 관(關)한 연구(研究)도 만약 그 시료중(試料中)에 일개이상(一個以上)의 glow peak가 존재(存在)한다면 가능(可能)하게 된다. 예(例)를 들어 어떤 옛그릇이 가령 300 $^{\circ}$ C와 500 $^{\circ}$ C에서 glow peak를 가지고 있을 때 만약 그 옛그릇이 실온(室溫)으로 보존(保存)되어 왔다면 그 두 peak를 그대로 가지고 있을 것이다.

그러나 그 옛그릇이 만들어진 후(後)에 다시 열처리(熱處理)를 받았었다면 낮은 에너지 쪽의 peak는 소멸(消滅)되었을 것이다. 이로써 우리는 요리용(料理用) 그릇과 기타(其他)의 예술품(藝術品)과를 구별(區別)할 수 있을 것이다.

또한 옛 도자기(陶磁器)의 모조품(模造品)과 같은 현대도자기(現代陶磁器)의 경우 열형광신호(熱螢光信號)가 전혀 나타나지 않는다. 물론(勿論) 위조품(僞造品)도 인위적(人爲的)인 방사선조사(放射線照射) 예(例)컨데 의학용(醫學用)X-선(線)이나 γ -선조사(線照射)에 의(依)해 옛것처럼 만들수도 있다. 이런것들도 석영입자(石英粒子)들중의 방사선(放射線) 조사선량(照射線量) 분포(分布)의 차(差)로써 최근(最近) 외부(外部)로부터의 방사선(放射線) 조사(照射)를 밝혀낼 수 있다. 진품(眞品)의 경우(境遇) 총(總) 열형광(熱螢光)의 일부(一部)는 고운 점토(粘土)로부터의 α -입자(粒子)에 의(依)한 것이며 이

에 의(依)한 열형광(熱螢光)은 석영입자(石英粒子)의 표면층(表面層)에 집중(集中)되어 있을 것이다.

왜냐하면 α-입자(粒子)는 다른 방사선(放射線)보다도 투과력(透過力)이 훨씬 작기 때문이다. 따라서 그러한 석영입자(石英粒子)들을 계속적(繼續的)으로 화학약품(化學藥品)에 의(依)해 부식(腐蝕)시켜 감에 따라 처음에는 강(強)하던 열형광신호(熱螢光信號)가 차차 감소(減少)하게 된다. 이에 반(反)해 외부(外部)로부터 인위적(人爲的)으로 조사(照射)시킨 위조품(偽造品)의 경우에는 방사선량(放射線量) 분포(分布)가 균일(均一)하다.

현재(現在) 국내(國內)에서는 한국원자력연구소(韓國原子力研究所)에서 7, 8년전(年前)부터 수년간(數年間) LiF와 CaF₂ 결정(結晶)의 열형광특성(熱螢光特性)에 관(關)해 연구(研究)한 실적(實績)이 있고 현재 개인(個人) 방사선(放射線) 피폭량(被曝量)을 측정(測定)하는 데에도 이 열형광(熱螢光) 측정법(測定法)을 사용(使用)하고 있어 그에 필요(必要)한 설비(設備)가 갖추어져 있다. 그러나 이러한 설비(設備)가 갖추어져 있다해도 고고학분야(考古學分野)에의 응용(應用)에도 많은 기초적(基礎的) 조사연구(調查研究)가 이루어져야 할 것이다.

즉 국내(國內) 각지역별(各地域別) 점토성분(粘土成分)의 정밀(精密)한 분석(分析)으로 방사성(放射性) 물질(物質)의 종류(種類)와 함량(含量)의 측정(測定) 도자기(陶磁器)가 묻혀진 주변(周邊) 토양(土壤)으로 부터의 방사선량(放射線量)의 측정(測定) 및 각종(各種) 방사선량(放射線量)의 표준화(標準化) 연구등(研究等)이 그것이다.

결론적(結論的)으로 과거(過去) 우리의 찬란했던 문화(文化)의 유산(遺産)인 고대유물(古代遺物)들의 올바른 인식(認識)과 고증(考證)을 위해서 이 방면(方面)의 연구(研究)가 하루 빨리 토착화(土着化)되어야 하며 이러한 연구(研究)는 외국(外國)의 연구기관(研究機關)에 의뢰(依賴)할 수도 없는 것이다. 현재로서는 고고학관계(考古學關係) 연구기관(研究機關)에서 제반설비(諸般設備)를 갖추고 독자적(獨立的)으로 해결(解決)하기는 어려운 실정(實情)이며 결국(結局) 이러한 설비(設備)와 기술(技術)을 가진 과학연구(科學研究) 기관(機關)과 연관(連關)을 가질 수 밖에 없을 것이다. 그러면 현단계(現段階)에서는 갑자기 고대(古代) 도자기시료(陶磁器試料)를 들고 와서 연대측정(年代測定)을 의뢰(依賴)한다해도 금방 해결(解決)될 수는 없다. 따라서 국내(國內)에서 이 방법(方法)의 기술(技術)이 확립(確立)되었을 때를 기다려 의뢰만을 할 생각 이전(以前)에 좀더 능동적(能動的)으로 기술개발(技術開發)을 위한 노력(努力)과 투자(投資)가 선행(先行)되어야 할 것이다.

◇참고문헌(參考文獻)◇

- 1) F. Daniels, C. A. Boyd, and D.F. Saunders, Science 117, 343, (1953)
- 2) M.J. Aitken and S.J. Fleming, "Thermoluminescence Dosimetry in Archaeological Dating" in F.H. Attix, ed. *Topics in Radiation Dosimetry*, Academic Press New York, 1972.
- 3) H.N. Michael and E.K. Ralph, *Dating Techniques for Archaeologists*, MIT Press Cambridge, Mass. 1971.
- 4) V. Mejdahl, *Dosimetry Techniques in Thermoluminescence Dating* Risö-Rap. 261. Danish AEC, Risö. Roskilde (1972)
- 5) J.W. Michels *Dating Methods in Archaeology*, Seminar Press, New York and London, 1973.
- 6) D. Brothwell and E. Higgs, eds. *Science in Archaeology*(Basic Books, N.Y.) 1963.
- 7) M.J. Aitken, *Rep. Prog. Phys.* 33 941 (1970)
- 8) D.J. McDougall, ed., *Thermoluminescence of Geological Materials*(Academic Press) 1968
- 9) S.J. Fleming, *Archaeometry* 12,133 (1970)

- 끝 -