

고대 소성제품의 열형광연대측정

- 장도유적의 토기 및 기와 -

강형태 · 나경임 · 서인애 *

목 차

- | | |
|---------------|--------------------|
| I. 머리말 | IV. 고고선량과 연간선량의 측정 |
| II. 조립자법 | V. 결과 및 고찰 |
| III. 시료 및 전처리 | <참고문헌> |

I. 머리말

대부분의 천연광물은 가열하면 미약한 빛을 방출한다. 한번 발광한 광물은 다시 가열해도 발광하지 않지만 인공적으로 방사선을 쬐인 다음 가열하면 발광하게 된다. 이와같이 방사선을 받은 광물을 가열하면 발광하는 현상을 열형광(thermoluminescence)^(1,2,3)이라 한다.

토기를 제조하기 위해서 사용한 점토에는 석영, 장석, 방해석 등 열형광을 나타내는 광물 질들이 포함되어 있다. 과거의 어느 시점에 토기를 제작하기 위해 소성하였다면 태토의 광물 질은 당시까지 자연방사선으로 누적된 열형광을 방출하게 되는데 이 시점은 시간상으로 영년에 해당된다. 그후 토기가 장기간 매장되면서 다시 방사선을 받게되는데 발굴되는 시점까지 토기에 누적된 방사선량을 총방사선량(고고선량)이라 할 수 있다. 고고선량은 토기가 소성된 이후 열형광량을 측정하기 까지의 기간에 광물질이 받은 총방사선량이므로 토기가 연간 받는 방사선량(연간선량)을 측정하면 아래식으로부터 간단히 토기의 연대를 구할 수 있다.

$$\text{연대(Age)} = \frac{\text{고고선량(Palaeodose)}}{\text{연간선량(Annual Dose)}}$$

* 국립문화재연구소 유적조사연구실

열형광연대측정법^(1,2,3)은 시료로 사용되는 입자의 크기에 따라 조립자법(Quartz inclusion technique)과 미립자법(Fine grain technique)을 사용할 수 있다. 조립자법의 경우는 토기로 부터 직경 90~150 μm 정도의 석영 입자를 추출해서 고고선량과 연간선량을 측정하며, 미립자 법은 직경 10 μm 이하의 입자를 측정시료로 사용하여 측정하는 방법이다.

본고는 전남 완도군 장도유적에서 토기 및 기와 3점을 입수하여 조립자법으로 열형광연 대를 측정한 결과이다.

II. 조립자법^(1,4,5)

토기의 태토에는 여러 가지 광물이 포함되어 있고 그 입도도 일정치 않지만 이 중에서 직 경 100 μm 정도 크기의 석영입자만을 추출해서 측정하는 방법이다. 우선 토기편의 양 표면층 을 약 2mm 두께로 깎아낸다. 알파선과 베타선은 이 두께를 투과하지 못하므로 토기 시료의 주변 흠에 포함된 우라늄, 토륨, 칼륨으로부터 알파선과 베타선에 의한 열형광량을 고려하 지 않아도 된다.

조립자법의 경우 시료의 석영입자가 받는 자연방사선은 주위의 흠에 포함되는 방사성원 소에서 방출되는 감마선, 토기 태토층의 방사성원소에서 방출되는 베타선과 감마선, 우주선 이다. 이 중 토기 태토로부터 방출되는 감마선량은 매우 적기 때문에 다른 자연방사선량에 비교해서 무시할 수 있다. 그리고 100 μm 정도의 석영입자는 베타선이 통과하면서 선량이 약 10% 감쇠되므로 이를 고려한 연대측정식은 다음과 같다. 여기서 D는 각 방사선의 연간선 량이며 c는 우주선이다.

$$\text{연대(Age)} = \frac{\text{고고선량(Palaeodose)}}{0.90D_{\beta} + D_{\gamma} + D_c} \quad \text{----- (1)}$$

연간선량(Annual dose)은 방사선의 피폭 모니터링에 사용되는 열형광선량계(TLD) 입자 를 사용해서 측정한다. 주위 흠으로부터 감마선과 우주선 측정은 열형광선량계 입자를 봉입 한 캡슐(동(銅)과 폴리에틸렌으로 제작)을 토기가 발굴된 장소에 묻어 수개월내지 일년 후 에 꺼내어 측정한다. 알파선과 베타선은 캡슐에 의해서 차단되므로 열형광선량계 입자의 발 광량으로부터 감마선의 연간선량을 구할 수 있다. 토기 태토로부터 베타선량은 β 열형광선 량계(β TLD)로 측정한다. 시료처리중에 남겨둔 90 μm 이하의 입자를 가압성형하여 원판을 만 들고 그 사이에 열형광선량계 입자를 얇게 펴놓는다. 시료로부터 열형광선량계로 방출되는 알파선을 막기위해 폴리에틸렌을 사용한다. 주변으로부터의 감마선을 막기위해 납상자안에서 수주일간 방치한후 연간선량을 측정한다⁽⁴⁾.

실험적으로 연간선량을 측정할 수 없는 경우에는 토기태토와 주변흙의 화학분석으로 우라늄, 토륨, 칼륨성분을 정량하여 연간선량을 측정하는 방법을 사용한다⁽¹⁾.

III. 시료 및 전처리

1. 시료의 선정

전남 장도 유적의 두지점에서 출토된 토기 및 기와를 시료로 사용하였다. 출토 위치는 Fig. 1의 A 및 B지점으로 우선 기와편 9점, 토기 7점 그리고 토양시료를 각각 채취하였다.

A지점은 성벽 절개부 다짐층으로 점토와 막돌 또는 석편으로 쌓아 놓아서 매우 단단하며 주변의 자연층보다 수분 함량이 대단히 적은 상태였다. 시료는 S2W118.5 지점의 성벽 정상점을 기준으로 100-130cm 밑에서 수습하였다. B지점은 섬입구에서 우측으로, 북서-남동간으로 이어진 성벽 단면의 내측으로 100cm 이상 들어간 지점으로서, 무르고 습기가 많으며 석편이 섞인 암갈색 사질점토층(II)에서 시료를 채취하였다. 시료들은 즉시 검은색 비닐 주머니에 넣어 빛과 수분의 영향을 받지 않도록 조치하였다.

위의 시료중에서 A지점에서 3점, B지점에서 5점을 불산처리 후 현미경으로 관찰하여 조립자법에 사용될 수 있는 시료를 선별하였다. 석영입자가 풍부하여 측정에 사용될 수 있는

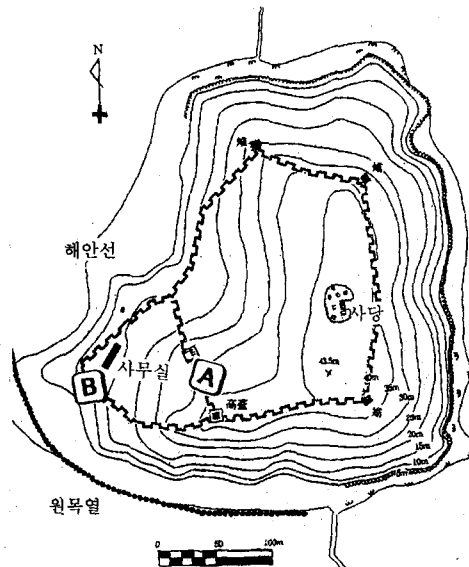


Fig. 1. 전남 장도유적의 시료채취 지점

시료는 A지점에서 3점, B지점에서 2점이였다. 열형광연대측정은 시료의 조건이 매우 중요하다. 또한 초기시험(initial test)과정을 거친 후 최종적으로 연대측정 조건에 알맞는 시료로서 A지점에서 3점(Kyn 1-2, Kyn 1-5, Kyn 1-7)을 시료로 선정하였다.

2. 시료의 전처리

토기 및 기와시료의 고고선량, 연간선량 및 수분함량을 측정하기 위하여 각 시료를 바이스에 몰려 압착하여 4조각으로 분할하였다. 시료전처리 및 측정과정중에 석영입자가 빛에 노출되면 시료의 열형광이 손실되므로 모든 과정은 어두운 조명에서 수행하였다.

각 시료의 양측면을 다이아몬드휠이 부착된 절단기를 사용하여 2mm 두께로 깎아내었다. 각 시료를 50℃에서 2일간 건조시킨 다음 막자사발에 넣고 석영알갱이가 깨지지 않도록 분쇄하였다. 분쇄한 시료알갱이를 체로 걸러 입자크기(직경 ; <90 μ m, 90-150 μ m, >150 μ m)별로 분리해서 보관하였다. 90-150 μ m 범위의 시료 알갱이는 실온에서 45분동안 40% 불산으로 식각(etching)하여 석영알갱이 표면에서 알파선의 영향을 제거하고 석영이외의 광물들을 녹여 버렸다. 식각된 부분을 38% 염산에 1시간 동안 담그어 침전된 결정성 물질을 제거하였다. 석영의 분율은 식각된 후 밀도가 높은 sodium polytungstate 용액처리를 하여 높은 수율을 얻도록 하였다. sodium polytungstate 용액(밀도가 2.6g/cm³)을 사용하여 잔존하는 장석(feldspar)을 제거하였고, 2.7g/cm³의 용액은 지르코늄(Zr)과 같은 중(重)광물을 제거하기 위해서 사용하였다. 스테인레스스틸 디스크(직경 10mm) 표면에 실리콘(silicone) 오일로 얇게 코팅한 다음 석영 알갱이(~1mg aliquots)를 단층으로 일정하게 올려 놓았다.

연간선량을 측정하기 위해서는 토기 및 기와 시료편의 표면을 제거할 필요없이 건조된 시료를 분쇄기(ball mill)로 분쇄(직경 \leq 55 μ m)한 후 시료통(필름통)에 넣어 보관하였다. 토양 시료도 동일한 방법으로 분쇄해서 시료통에 넣어 보관하였다.

IV. 고고선량과 연간선량의 측정

1. 고고선량(Palaeodose)

고고선량은 석영알갱이의 열형광량을 측정한 다음 기지(既知)의 방사선량(⁹⁰Sr/⁹⁰Y, 0.165Gy)을 시간단위로 시료에 조사(照射)하고 각 열형광량을 측정하여 구한다.

먼저 석영 알갱이들이 놓여있는 스테인레스스틸 디스크를 가열판위에 올려놓고 열형광측정시스템을 진공상태로 해준 다음 질소가스를 흘려주면서 180℃까지 2℃/sec로 예열(preheating)하였다. 다음 가열판을 냉각시키고 다시 실온에서 10℃/sec로 450℃까지 가열하여 열형광 읽개(TL reader)로 열형광량을 측정하였다. 또 동일시료로서 다른 석영알갱이들

을 올려 놓은 디스크를 가열판에서 예열한 후 기지(既知)의 방사선량 (KYN 1-2와 1-5시료 ; 300, 600, 900sβ dose, KYN 1-7시료 ; 400, 800, 1200sβ dose)을 조사(照射)하였다. 다음 10°C/sec로 450°C까지 가열하여 각 방사선량에 대한 1차 열형광곡선(first-glow curve)으로부터 Q 값을 구하였다. 2차 열형광곡선은 동일시료를 기지의 방사선량(KYN 1-2시료 ; 300과 400sβ dose, KYN 1-5시료 ; 600과 900sβ dose, KYN 1-7시료 ; 900과 1200sβ dose)으로 조사하여 위와 동일한 방법으로 2차 열형광곡선(second-glow curve)을 얻어 I 값을 계산하였다. 위의 1차 열형광곡선과 2차 열형광곡선으로부터 각각 Q값과 I값을 계산하여 고고선량(palaeodose), P(Q+I)를 구하였다. 대표적으로 KYN 1-7 시료의 고고선량 측정결과와 1차 및 2차 열형광데이터 그래프를 Table 1과 2, Fig. 2와 3에 각각 나타내었다.

시료의 온도범위에 따른 고고선량을 Table 3에 나타내었다.

Table 1. 토기시료(Kyn 1-7)의 1차열형광측정 결과

Disc No.	Dose(sB)	Weight(mg)	Counts	Normalised by weight
1 (N)	0	1.39	8777	6314
2 (N)	0	1.22	5594	4585
3 (N)	0	1.21	7701	6364
4 (N)	0	1.16	7507	6472
5 (N)	0	1.04	10554	10148
6 (N)	0	1.41	7862	5576
7 (N+ 400sB)	400	1.17	13740	11744
8 (N+ 400sB)	400	1.23	13396	10891
9 (N+ 400sB)	400	1.42	17309	12189
10(N+ 800sB)	800	1.22	25220	20672
11(N+ 800sB)	800	1.29	21487	16657
12(N+ 800sB)	800	1.15	17453	15177
13(N+1200sB)	1200	1.00	21991	21991
14(N+1200sB)	1200	1.14	30352	26625
15(N+1200sB)	1200	1.10	32538	29580
Intercept		Q(s)		-396.71
		dQ(s)		48.54
		O(Gy)		-4.07
		dQ(Gy)		0.50

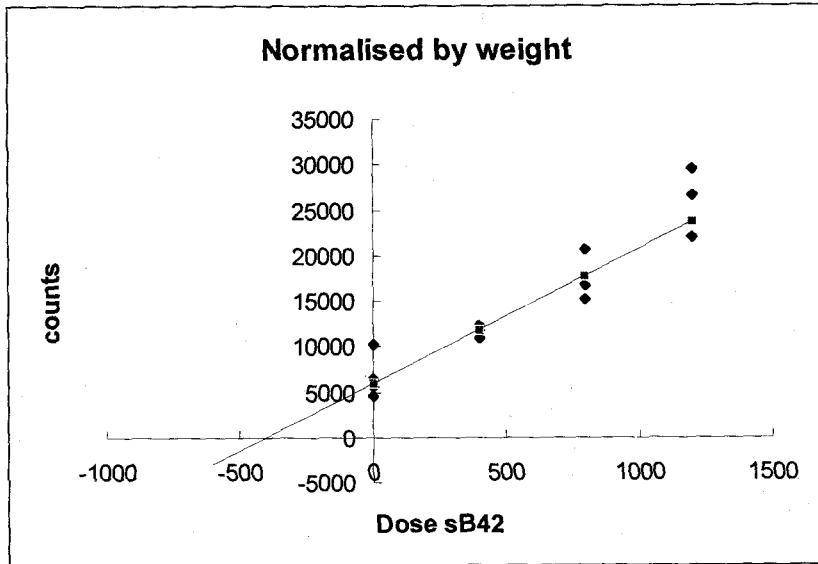


Fig. 2. 토기시료(Kyn 1-7)의 Q(equivalent dose)값

Table 2. 토기시료(Kyn 1-7)의 2차열형광측정 결과

Disc No.	Dose	Weight	Counts	Normalised by weight	Normalised by Natural
1(N, 400sB)	400	1.39	8099	5827	0.92
2(N, 400sB)	400	1.22	4816	3948	0.86
3(N, 800sB)	800	1.21	15370	12702	2.00
4(N, 800sB)	800	1.16	15456	13324	2.06
5(N,1200sB)	1200	1.04	24199	23268	2.29
6(N,1200sB)	1200	1.41	21224	15052	2.70
Intercept		I (s)		137.83	-21.67
		dI (s)		95.90	69.96
		I (Gy)		1.41	-0.22
		dI (Gy)		0.98	0.72

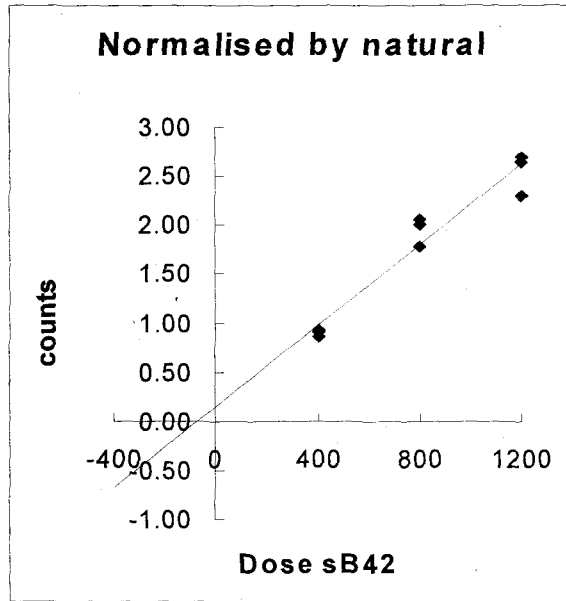


Fig. 3 토기시료(Kyn 1-7)의 I(supralinearity correction)값

Table 3. 토기 및 기와의 고고선량(Palaeodose:Q+I)

Sample	Temp. range(°C)	Q(Gy)	I(Gy)	Palaeodose(Gy)
KYN 1-2	315-360	3.32	0.81	4.13
KYN 1-5	315-360	2.3	1.86	4.16
KYN 1-7	315-360	4.07	0.22	4.29

2. 연간선량(Annual dose)

토기 및 기와의 석영입자가 받는 자연방사선은 토기의 점토광물중 ^{238}U , ^{232}Th 으로부터 알파선, ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K 으로부터 베타선 그리고 토기가 매장되어 있던 주위의 토양으로부터 오는 감마선 및 우주선이다. 조립자법에서는 석영알갱이를 불산으로 처리했기 때문에 알파선의 영향은 무시할 수 있다. 우주선에 의한 연간선량은 $0.181 \text{ mGy/a}^{(6)}$ 값을 사용하고 있다. 시료의 β 선량 측정에는 β 열형광선량계(Fig. 4)를 사용하였다. β 열형광선량계는 용기바닥에

얇은 플라스틱 창(mylar window)이 있어 베타입자가 투과되고 알파입자는 투과되지 않는다. CaF_2 선량계(dosimetry)는 창아래에 위치한다. CaF_2 선량계는 구리 접시판위에 CaF_2 와 실리콘 수지를 섞어서 담아놓은 것이다. 시료와 CaF_2 선량계를 납용기에 넣어서 1주간 방치한 후 꺼내어 열형광 읽개로부터 열형광량을 측정하였다. CaF_2 선량계를 기지의 방사선량($\approx 0.04\text{mGy}$)으로 30초간 조사한 다음 열형광읽개를 사용하여 열형광량을 측정하였다.

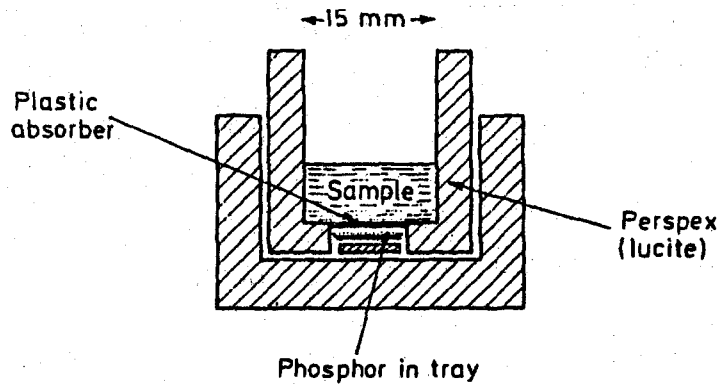


Fig. 4. β -열형광선량계 구조

감마선량은 토양시료의 알파선 계측값과 β 열형광선량계(β TLD)로 측정된 베타선량값으로 % K_2O 값을 계산한 다음에, 알파선 계측값과 % K_2O 값을 사용하여 계산하였다.¹⁾ 토양의 베타선량 측정은 β 열형광선량계를 이용한 위의 토기와 동일한 방법으로 구하였으며 알파선계측은 Fig. 5에서 보는바와 같이 시료를 zinc sulphide screen 위에 직접 올려놓고 측정하였다.

토기 및 기와 시료가 일년에 받은 자연방사선으로써 ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K 으로부터 방사되는 베타선량은 2.94 mGy/a 이었다. 시료가 매장되어 있던 토양으로부터 받은 감마선량은 토양의 알파선량값(10.802 ks^{-1})과 β 선량값(2.94 mGy/a)으로부터 K_2O (3.14%) 함량을 먼저 구하였고 알파선량값과 % K_2O 값을 사용하여 감마선량을 계산하였다. 우주선의 연간선량은 0.18mGy/a 을 사용하였다. 각 시료의 연간선량은 Table 4와 같다. $D_{\beta\text{ceramic}}$ 은 β 선이 $90\text{-}150 \mu\text{m}$ 석영입자를 통과할 때 감소되는 양($\approx 10\%$)과 수분에 의한 감소량을 다음 3절에서 포화수분함량(%)을 구하여 모두 보정해준 값이다. $D_{\gamma\text{soil}}$ 은 토양의 수분함량(%)을 다음 3절에서 구하여 보정해준 값이다.

Table 4. 토기 및 기와의 연간선량(Annual dose)

Sample	D_{β} ceramic (mGy/a)	D_{γ} soil (mGy/a)	D_{cosmic} (mGy/a)	Annual dose (mGy/a)
KYN 1-2	1.99	1.327	0.18	3.500
KYN 1-5	2.45	1.327	0.18	3.958
KYN 1-7	1.92	1.327	0.18	3.430

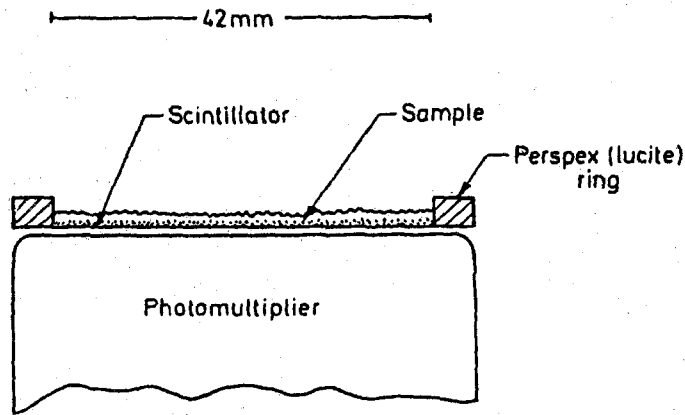


Fig. 5 알파선 계측시스템

3. 수분함량

토기가 받는 방사선량은 토기 및 토양이 함유하고 있는 수분에 의해서 일부가 흡수되므로 매장 기간동안의 평균 수분함량을 측정해서 보정해 주어야 한다. 열형광연대측정 결과의 정확도는 이러한 수분함량과 밀접한 관계가 있다. 토기 및 기와시료의 무게를 칭량한 후 50°C의 건조기에 넣고 2주간 건조시켰다. 건조후 시료를 꺼내어 무게(W_{dry})를 칭량한 후 물에 깊숙히 담가둔 후 7주 후에 시료를 꺼내어 무게(W_{wet})를 칭량하였다. 포화무게에서 건조무게를 뺀 후 건조무게로 나누어 줌으로써 포화 흡수율(water uptake)(%)를 구하였다.

$$\text{포화흡수율(\%)} = \frac{W_{\text{wet}} - W_{\text{dry}}}{W_{\text{dry}}}$$

다음으로 토양시료의 무게(W_{wet})를 칭량한 후 50°C 건조기에 넣고 10일동안 건조시켰다. 시료를 건조기에서 꺼내어 무게(W_{dry})를 칭량하였다. 수분이 포함된 무게에서 건조무게를 뺀 다음 수분이 포함된 무게로 나누어 수분함량(water content)(%)을 계산하였다.

$$\text{수분함량(\%)} = \frac{W_{wet} - W_{dry}}{W_{wet}}$$

전남 장도 청해진 유적의 토기 및 기와시료 3점의 포화 흡수율(water uptake,%)과 토양 시료의 수분함량(%)을 측정한 결과 KYN 1-2는 14.5%, KYN 1-5는 5.1%, KYN 1-7은 13.4%로 측정되었고 토양시료 KYN 1은 14.8%의 수분함량을 나타냈다.

V. 결과 및 고찰

조립자법에 의해 고고선량과 연간선량을 위의 연대식(1)에 대입하여 연대를 계산하였다. 결과는 Table 5와 같다. 연대값의 오차는 두가지로 나타낸다. random 오차는 유적지내 같은 지점(site)에서 채취된 시료의 열형광연대결과를 서로 비교할 때 사용되며 overall 오차는 서로 다른 지점에서 채취된 시료의 연대결과를 비교하거나 방사성탄소연대측정 같은 다른 연대측정 방법으로 얻어진 연대값과 비교할 때 사용된다.

Table 5. 고고선량 및 연간선량에 의한 장도유적 토기 및 기와의 열형광연대측정 결과

Sample	Temp. range (°C)	고고선량 (Palaeodose) (Gy)	연간선량 (Annual dose) (mGy/a)	TL. Age (Year)	TL. Date : (± random error; ± overall error; 68% level of confidence)
KYN 1-2	315-360	4.13	3.500	1180	817AD ± 137 ± 154
KYN 1-5	315-360	4.16	3.958	1051	946AD ± 121 ± 133
KYN 1-7	315-360	4.29	3.430	1251	746AD ± 259 ± 269

〈참 고 문 헌〉

- 1) Aitken, M. J. 1985. *Thermoluminescence Dating* (Orlando:Academic press) 17-39.
- 2) Parkes, P. A. 1986. *Current scientific techniques in archaeology* (Great Britain: Mackays of Chatham Ltd) 36-60.
- 3) Aitken, M. J. 1990. *Science-based dating in archaeology* (Singapore: Longman archaeology series) 141-185.
- 4) Nagatomo T. 1991. Thermoluminescence Dating of Earthenwares and other related materials, *Japanese Antiques and Art Crafts* 29: 111-120.
- 5) 전영수, 1989. 「질그릇의 연대측정에서 열형광법의 응용」, 『조선고고학연구』(사회과학출판사) 2: 46-48.
- 6) Prescott, J. R. and Hutton, J. T. 1994. 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.