

광 여기 루미네센스를 이용한 신기 퇴적층의 연대측정

홍덕균* · 최정현¹ · 한정희 · 최만식 · 정창식

기초과학지원연구원 동위원소팀, ¹서울대학교 지구환경과학부

Optical dating of Quaternary sediment

Duk-Geun Hong*, Jeong-Heon Choi¹, Jeong-Hee Han,
Man Sik Choi and Chang-Sik Cheong

Korea Basic Science Institute, Isotope Research Team,

52 Eoeun-Dong, Yuseong-Ku, Daejeon 305-333, South Korea

¹School of Earth and Environmental Sciences, Seoul National University,

Shillim-Dong San 56-1, Kwanak-Ku, Seoul 151-742, South Korea

요약: 루미네센스(luminescence)는 석영이나 장석 등과 같은 무기결정이 외부에서 에너지를 받아 흡수된 에너지를 빛으로 바꿔 외부에 방출하는 물리적인 현상이다. 가전자대(valence band)에 존재하는 하전입자들은 전리성 방사선에 의해 전자와 정공(hole)으로 이온화 되고, 이온화된 전자와 정공들은 결정 내에서 자유로이 움직이다가 결정 내에 존재하는 격자결함에 포획된다. 이러한 결정을 빛으로 여기하면 격자결함에 포획된 전자들이 결합에서 빠져 나와 발광중심(recombination center)에서 정공과 재결합하면서 빛을 동반하게 되는데, 이를 광 여기 루미네센스(optically stimulated luminescence; OSL)라 한다. 열 루미네센스(thermoluminescence; TL) 연대 측정법의 원리와 같이, 광 여기 루미네센스를 적당한 조건에서 관측하면 퇴적층의 연대 계산에 응용할 수 있다. 광 여기 루미네센스를 연대측정에 이용하면 빛에 민감한 전자들만 여기시킬 수 있는 장점이 있다. 이 연구에서는 신기 퇴적층으로부터 분리된 석영을 청색 파장의 빛으로 여기하여 그로부터 검출된 광 여기 루미네센스를 신기 퇴적층의 연대 산출에 응용하였다. 논문에서는 광 여기 루미네센스 연대측정법과 관련된 일련의 실험방법 및 최근에 소개된 연구성과, 그리고 앞으로 보다 신뢰도 높은 연대측정 결과를 얻기 위해 연구되어야 할 내용을 이 연구에서 수행한 신기 퇴적층의 연대측정 결과와 함께 기술하였다.

핵심어: 루미네센스, 열 루미네센스 연대 측정, 광 여기 루미네센스 연대 측정, 퇴적층, 석영

Abstract: Luminescence is a physical phenomenon exhibited by many non-conducting, crystalline materials, such as quartz and feldspar. Within the crystals, energy absorbed from ionising radiation frees electrons to move through the crystal lattice and some are trapped at defects in the lattice. Observable luminescence is produced by electrons, released from traps by stimulation by absorption of light, which recombine with lattice defects which act as luminescence centers - optically stimulated luminescence (OSL). In a similar way to thermoluminescence(TL) dating, controlled measurement of the OSL signal can provide a means of determining the time since the last exposure of a layer of sediment to sunlight, the age of the sediment. However, whereas in the thermoluminescence dating of sediment only part of the latent thermoluminescence signal is bleached by sunlight as the sediment is deposited and allowance must be made during the laboratory measurements for the light insensitive component, optically induced luminescence dating has the advantage of working only with light sensitive traps in the crystal. Determination of the time since deposition of Quaternary sediment samples from the OSL of quartz grains using blue light was performed. A series of experiments and recent developments relating OSL dating are described, beginning by identifying the features which make OSL signals suitable for the development of a dating method. Additionally, there are suggestions as to future research for obtaining reliable ages and a comment on current best practice on procedures, with the dating results of Quaternary sediment.

Key words: Luminescence, Thermoluminescence dating, Optically stimulated luminescence dating, sediment, quartz.

*Corresponding author: Tel. 82-42-865-3517, E-mail: dghongkorea@hanmail.net

서 론

루미네센스(luminescence)는 석영이나 장석 등과 같은 무기결정이 외부에서 어떠한 형태의 에너지를 받아 흡수된 에너지를 빛으로 바꿔 외부에 방출하는 물리적인 현상이다. 외부에서 주는 에너지의 형태에 따라 여러 종류의 루미네센스가 존재하나, 연대 측정용 목적으로 한 연구에서는 열 루미네센스(thermoluminescence; TL)와 광 여기 루미네센스(optically stimulated luminescence; OSL)가 주로 이용된다. 연대측정에 이용되는 루미네센스 현상에 대한 모델은 지금까지 계속 논의되고 있으나 띠 이론(band theory)으로 어느 정도 설명될 수 있다. 즉, 가전자대(valence band)에 존재하는 하전입자(charged particle)들은 알파, 베타, 감마선과 같은 전리성 방사선(ionization radiation)에 의해 전자(electron)와 정공(hole)으로 이온화 되고, 이온화된 전자와 정공들은 결정 내에서 자유로이 움직이다가 가전자대와 전도대(conduction band) 사이에 존재하는 여러 에너지 준위의 격자결함(lattice imperfection 또는 trap)에 포획된다(trapping; 덩치기 현상). 이러한 결정을 가열하거나 빛으로 여기(stimulation)하면 격자결함에 포획된 전자들이 결함에서 빠져 나와 발광중심(recombination center)에서 정공과 재결합하면서 빛을 동반하게 되는데, 전자(前者)와 같이 열로 인하여 루미네센스(luminescence)를 방출하는 경우가 열 루미네센스 이고, 후자(後者)처럼 빛의 여기로 루미네센스(luminescence)를 내는 경우가 광 여기 루미네센스이다.

루미네센스 연대 측정법은 시료로부터 루미네센스를 적당한 온도에서 관측하여, 관측된 루미네센스의 크기를 연대측정에 응용하는 열 루미네센스 연대 측정법으로부터 시작되었다(Aitken, 1985). 주로 고고학적 시료인 토기 등과 같은 시료가 대상이었으나 퇴적층의 연대측정에도 응용되었다(Wintle and Huntley, 1979). 예를 들면, 토기 내에 존재하는 석영이나 장석 입자들은 토기가 만들어질 때 가마 속에서 높은 온도(500°C 이상)로 소성되기 때문에 기존에 가지고 있던 열 루미네센스 양(결정내의 격자결함에 포획된 전자)을 모두 잃게 된다. 이후, 토기가 땅속에 묻히게 되면 주변 토양의 환경방사선(알파입자, 베타입자, 감마선)과 우주선(cosmic ray)에 의해 루미네센스가 축적되고, 이 루미네센스의 측정은 토기가 땅속에 묻힌 이후 흘러간 시간의 정보를 제공한다. 또한 석영이나 장석은 강물이나 바람에 의해 퇴적될 때, 햇빛에 노출될 수가 있는데 이 과정으로 이들 입자의 열 루미네센스 양이 일정 부분 감소하게 된다. 퇴적 후, 석영과 장석 입자들은 빛

으로부터 차단되고 토기의 경우에서와 같이 환경방사선과 우주선의 영향으로 루미네센스가 축적되는데 이는 지질학적 시료인 퇴적층의 연대를 제공하게 된다. 다만 이 경우, 같은 시료를 실험실에서 강제로 빛에 노출시킨 후, 남아있는 열 루미네센스(빛에는 민감하지 않은 덩치에 포획된 전자들로부터 기인된 루미네센스)를 측정하여 그 값을 연대 산출시 보정해 주어야 하는 단점이 있다. 그러나 Huntley *et al.*(1985)이 발표한 광 여기 루미네센스 연대 측정법은 이러한 단점을 극복할 수 있게 하였다. 그들은 기존의 열 루미네센스 연대 측정법 원리로 퇴적층에서 분리한 석영을 514 nm 파장의 레이저로 여기하여 그로부터 검출된 광 여기 루미네센스를 이용하여 지층의 연대를 성공적으로 얻었다. 광 여기 루미네센스를 연대측정에 이용하면 빛에 민감한 전자들만 여기시킬 수 있어서 열 루미네센스 연대 측정법으로 연대를 산출하는 경우 반드시 고려해야 되는 빛에 민감하지 않은 부분을 실험실에서 다시 보정할 필요가 없을뿐더러, 부분 파괴분석이 가능해 적은 양의 시료로도 연대를 산출할 수 있는 단일 시료 분석법(single aliquot method)이 가능하다(Duller, 1991). 단일 시료 분석법은 소량의 시료로도 연대를 산출할 수 있어 시료분리 및 측정 시간을 단축할 수 있고, 기존의 열 루미네센스 연대 측정법에 의한 결과와 비교할 때 오차를 크게 줄일 수 있는 장점이 있다. 일반적으로 광 여기 루미네센스 연대측정법으로 산출할 수 있는 최대연대는 500 Ka 정도로 알려져 있으며, 바람이나 강물에 의해 퇴적된 지층(aeolian deposit, fluvial deposit 등)들이 연대측정에 적합한 시료로 보고되고 있다(Prescott and Robertson, 1997).

광 여기 루미네센스 연대 측정법이 성립하기 위해서는 다음 몇 가지 가정이 필수적이다. 첫째로, 연대측정에 이용되는 시료(주로 석영과 장석)가 땅속에 묻히기 전에 빛에 노출되어 결정내의 격자결함이 빈 상태로 존재해야 된다(즉, 퇴적 전에 광 여기 루미네센스 양이 0으로 된 후 퇴적되어야 한다). 둘째로, 이온화 방사선의 영향으로 전자(electron)들이 여러 에너지준위의 격자결함에 포획될 수 있는데, 포획된 전자들 중에서 오랜 세월동안 외부에서 어떠한 에너지를 주지 않는 한 여기 되지 않는 안정한 전자(약 300°C 이상의 온도에서 안정한 전자)들로부터의 루미네센스만이 연대측정에 사용되어야 한다. 셋째로, 시료에서 관측된 루미네센스 양이 외부로부터 받은 방사선의 양과 상관관계를 보여 주어야 한다. 넷째로, 여기광원의 파장과 시료로부터의 루미네센스 파장을 분광할 수 있어야 한다.

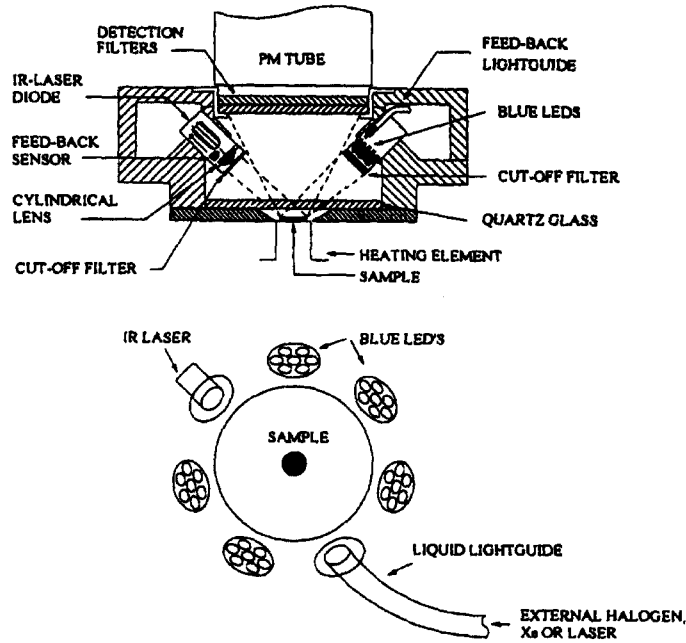


Fig. 1. Schematic of the Riso prototype OSL attachment.

루미네선스를 이용한 연대 측정법은 다음 식에 의하여 연대를 산출한다.

$$\text{연대(Age)} = \frac{\text{자연축적선량(Equivalent dose)}}{\text{연간선량(Dose rate)}}$$

여기서, 자연축적선량은 대상시료의 루미네선스를 측정하여 얻어지고, 연간선량은 시료가 채취된 장소의 주변 시료로부터 알파, 베타, 감마선 및 우주선량을 측정하여 얻어진다.

현재, 실험 방법적으로(Wintle, 1997), 실험 기기적으로(Botter-Jensen, 1997) 활발한 연구들이 수행되어 퇴적층의 연대측정 및 퇴적환경에 관련된 논문들이 상당수 출판되고 있다(Prescott and Robertson, 1997). 이 연구에서는 신기 퇴적층의 연대측정으로 각광받고 있는 광 여기 루미네선스 연대측정법의 원리 및 지금까지의 연구를 간략히 소개하고, 실제 신기 퇴적층으로부터 분리된 석영을 최근 기초과학지원연구원에 도입된 덴마크 Riso 연구소의 광 여기 루미네선스 발생장치에 응용하여 신기 퇴적층의 연대를 산출하였다.

실험 기기

일반적으로 연대측정에 이용되는 광 여기 루미네선

스의 측정원리는 시료를 빛으로 여기시켜 여기시간 동안 시료로부터 발생된 빛(루미네선스)을 측정하는 과정이므로 루미네선스 검출시 여기광원의 파장과 루미네선스 파장은 반드시 분광되어야 한다. 현재 대부분의 실험실에서 이용되는 분광방법은 초기 광 여기 루미네선스 연대측정에서 소개되었던 것(Huntley et al., 1985)과 같은 광전자 증배관(photomultiplier tube) 검출기 앞에 광학필터를 부착하여 여기광원과 루미네선스를 분광하는 방법을 채택하고 있다.

초기 광 여기 루미네선스 연대측정에서는 석영을 아르곤 이온 레이저로 여기시켜 루미네선스를 검출하였다. 여기 광원으로서 레이저를 사용하게 되면, 여기광원의 높은 출력으로 많은 양의 루미네선스를 얻을 수 있지만, 레이저 출력의 불안정성과 설치가 비교적 용이하지 않은 문제가 있다. 석영에 대해, 레이저를 대신할 수 있는 두 여기광원이 소개되었는데 할로겐 램프와 발광 다이오드(light emitting diode; LED)가 그들이다(Galloway, 1992; Botter-Jensen and Duller, 1992). 지금까지 소개된 광원들 중 가장 편리한 것이 발광 다이오드를 이용하는 것인데 초기에 소개된 시스템은 다이오드로부터 나오는 출력이 작아 젊은 연대의 시료를 여기 시키기는 충분치 않았다. 그러나 최근 개발된 일본 니치아(Nichia) 회사의 발광 다이오드는

이 문제를 해결하여 주었다(Galloway *et al.*, 1997). 석영에 대하여, 현재 대부분의 실험실에서는 편리함과 경제성을 이유로 일본 니치아(Nichia) 회사가 개발한 청색 발광 다이오우드를 여기광원으로 사용하고 있다(Hong and Galloway, 2000). Fig. 1은 한국기초과학지원연구원에 설치완료 되어 이 실험에서 사용된 덴마크 Riso 연구소의 자동화 시스템(Automated Riso TL-OSL Reader)이다. 청색 발광 다이오우드(Nichia type NSPB-500S)가 여기광원으로 사용되었고, 여기광원 앞에 GG 420 필터가 부착되어 여기광원의 파장과 루미네센스 파장이 분리되었다. 루미네센스는 U-340 필터와 결합된 광 전자 증배관(EMI 9635QA photomultiplier)으로 검출되었다. 검출기의 전기적 잡음(electric noise) 및 시간에 독립적인 루미네센스 신호(background signal)는 0.1초 당 10(counts; 수) 이하 였다.

시료채취 및 분리

시료는 경주 인근 해안단구층으로부터 채취되었다. 시료를 채취할 때 시료가 빛에 노출되지 않도록 하기 위해서 약 30 cm 길이의 스테인레스-스틸 관을 퇴적층에 박아 시료를 채취한 후, 관의 양끝을 검은색 비닐로 감싼 후 암실에서 운반하였다. 그 후 암실에서 스테인레스-스틸 관의 중앙 부분을 세로로 절단, 중앙부분의 시료는 자연축적선량(equivalent dose)의 측정을 위하여, 나머지 부분의 시료는 연간선량(dose rate) 측정을 위해 사용하였다. 연간선량 보정을 위한 퇴적물의 수분 함량은 시료 채취장소에서 별도의 시료를 채취하여 실험실에서 건조 후, 측정하였다.

이 실험에서 자연축적선량(equivalent dose) 측정을 위한 석영은 다음과 같은 화학처리로 얻어졌다. 먼저, 얻어진 시료 내의 자석을 띠는 광물들을 Nd 자석을 이용하여 분리하였다. 그 후 시료를 물로 세척하여 점토 광물 등을 제거한 뒤 그물망(sieve)을 이용하여 90-150 μm 크기의 시료만을 얻었다. 시료내의 석회나 유기물을 제거하기 위해 10% 염산(HCl)과 과산화수소(H_2O_2)로 시료를 처리하고 처리된 시료는 비중액을 사용하여 석영을 분리하였다. 우선 석영 보다 무거운 입자들을 2.70 g/cm^3 의 비중액으로 제거하고, 2.63-2.70 g/cm^3 사이의 비중에서 석영을 분리하였다. 비중액에 의해 분리된 석영은 장석에 오염될 수 있으므로, 분리된 석영을 40% 불산으로 약 한 시간 정도 처리하였다. 불산 처리는 분리된 석영시료 내의 장석의 오염을 제거할 수 있을 뿐 아니라, 석영입자의 바깥층을 약 10 μm

정도 부식(etching) 하므로 알파입자의 영향으로 석영 입자에 축적된 루미네센스를 무시할 수 있게 한다. 따라서 이 실험에서는 연대산출에 필요한 연간선량을 구할 때 알파입자에 의한 연간선량은 전체 연간선량에서 고려하지 않았다(quartz inclusion technique)(Fleming, 1970). 최종적으로 얻어진 시료는 약간의 시료를 임의로 채취하여 적외선 조사에 의해 장석의 오염이 없음을 확인하였다(Spooner *et al.*, 1990).

자연축적선량 측정

자연축적선량(equivalent dose)은 연대측정의 대상시료가 빛에 노출로 루미네센스 신호를 모두 잃으면서, 퇴적된 후 주변으로부터 시료가 받은 환경 방사선의 총량을 의미한다. 이는 시료로부터 측정된 자연 루미네센스(natural luminescence) 신호와 시료를 실험실에서 방사선 조사하여 얻어진 루미네센스 신호를 비교하여 구할 수 있다. 이 연구에서는 최근 많이 이용되고 있는 단일 시료(single aliquot) 분석법을 이용하여 자연축적선량을 결정하였다. 단일 시료 분석법(single aliquot method)은 기존의 열 루미네센스 연대 측정법에서 많이 이용되었던 다수 시료 분석법(multiple aliquot method)과 달리, 한 개의 시료로 자연축적선량을 구하는 방법으로, Duller(1991)가 장석을 이용하여 소개한 단일 시료 부가 선량법(single aliquot additive dose method)이 그 시초이다. 이 방법이 광 여기 연대 측정법에서만 가능한 이유는 열 루미네센스 연대 측정법이 완전 파괴 분석법(complete destructive method)인 것에 반해, 광 여기 연대 측정법은 부분 파괴 분석법(partial destructive method)이기 때문이다. 최근 단일 시료 부가 선량법을 보완한 단일 시료 재현법(single aliquot regeneration dose method)이 소개되어 연대측정에 많이 이용되고 있다(Murray and Wintle, 2000). 기존의 다수 시료 분석법에 비해 단일 시료 분석법이 갖는 장점은 다음과 같다. 첫째, 하나의 시료를 사용하여 자연축적선량의 결정에 필요한 모든 정보를 얻을 수 있으므로 시료간의 규격화(normalisation) 과정이 필요 없다. 둘째, 결정된 여러 자연축적선량 값으로부터, 시료가 퇴적되기 전 어느 정도 빛에 노출(bleaching)되었는지를 판단 할 수 있다. 셋째, 소량의 시료로도 분석이 가능하다. 넷째, 분석 시간과 분석에 필요한 수고를 덜 수 있다. 이 연구에서는 몇 개의 시료에 대하여 단일시료 부가 선량법 과 단일시료 재현법을 이용하여 자연축적선량을 결정, 그 값을 서로 비교하였다.

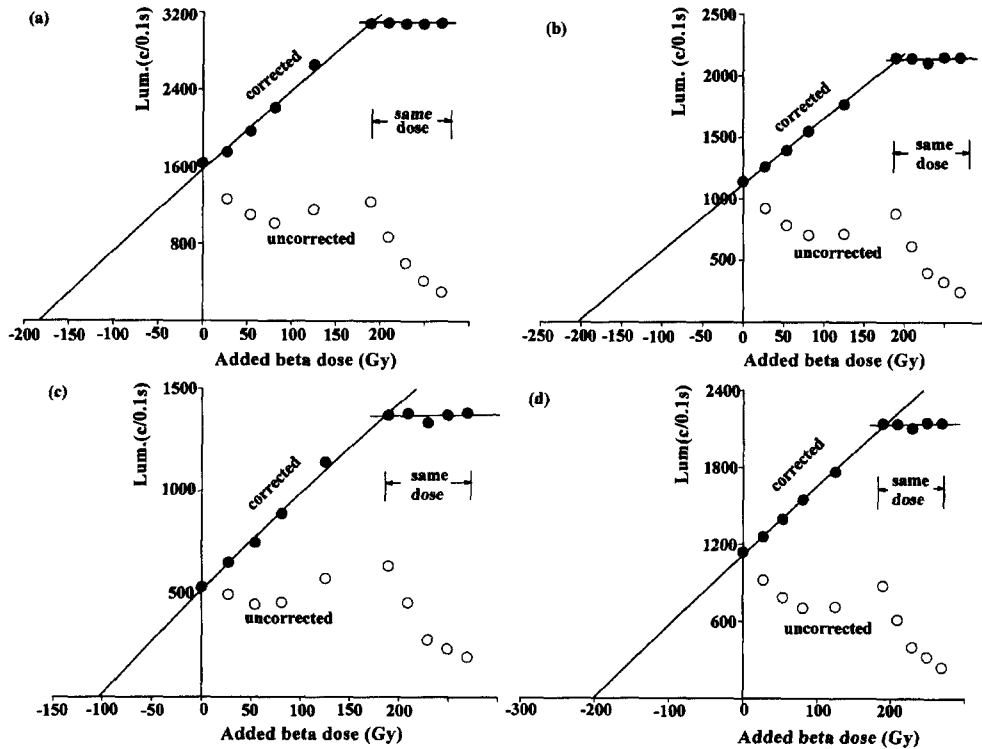


Fig. 2. (a), (b), (c) and (d) are the examples of equivalent dose determination based on single aliquot additive-dose(SAA) method for quartz from samples A, B, C and D respectively, which were corrected by the iterative fitting procedure(Hong *et al.*, 2000b), along with uncorrected data. Also shown, to the right of the figure, are the repeated preheat and read cycles which give the mean correction ratio r and the result of correcting these points by the mean ratio, which should ideally give a horizontal line. Preheating was at 220°C for 1min. and an exposure time 0.1s to blue light. The curves are the single saturation exponential fit to the corrected data points.

단일 시료 부가 선량법

이 방법은 열 루미네선스 연대 측정법에서 가장 널리 사용되었던 다중 시료 부가 선량법(multiple aliquot additive dose method)과 기본 원리는 같으나, 한 개의 시료를 이용하여 자연축적선량을 결정한다는 점에서 다르다. 즉, 측정된 시료의 자연 루미네선스(natural luminescence) 및 같은 시료에 증가된 실험실 방사선 조사 후 측정된 루미네선스를 가지고, 실험실에서 준 방사선 양을 x 축에 그에 대응하는 루미네선스 신호를 y 축에 놓고 성장곡선(growth curve)을 만든 후, 적당한 함수로 외삽하여 자연축적선량을 결정하는 방법이다(회귀곡선이 실험실에서 준 방사선 조사 축(x 축)과 만나는 점이 자연축적선량 값이다). 이 실험에서는 토양 시료로부터 분리된 석영을 단일시료 부가 선량법(single aliquot additive dose method)(Duller, 1991)에 응용하기 위해 4개의 시료를 준비하였다. 먼저, 개개의 시료에 대하여 처음 시료가 가지고 있는 자연 루미네선스

양(natural luminescence)을 측정한 후, 연속적으로 같은 시료에 베타 조사 및 시간적으로 불안정한 격자결함에 포획된 전자(약 300°C 이하의 열에너지에 대응되는 격자결함에 포획된 전자)들을 제거를 위하여 220°C에서 1분간(Hong *et al.*, 2000) 열 전처리(preheating) 후 루미네선스를 측정하였다. 각각의 방사선 조사에 대하여 0.1초 동안 측정된 루미네선스를 합산하여 성장곡선을 만들고 이 성장곡선을 외삽하여 자연축적선량을 결정하였다(Fig. 2). 같은 시료를 반복적으로 여기, 열 전처리 함으로 인한 루미네선스 신호의 감소는 성장곡선을 만들기 위한 측정이 끝난 후, 같은 시료를 실험실 조사 없이 연속적으로 열 전처리 및 여기하여 보정 인자에 대한 정보를 얻었다(Hong *et al.*, 2000). Fig. 2에서 보는 바와 같이 실험실 조사가 없는 부분이 보정 후 일직선으로 표시된 것은 보정이 만족스럽게 된 것이며, 대상시료의 열 전처리 및 여기로 인한 루미네선스 신호가 $f(n) = \exp[-c(n-1)]$ 식의 형태로 감소된 것을 보

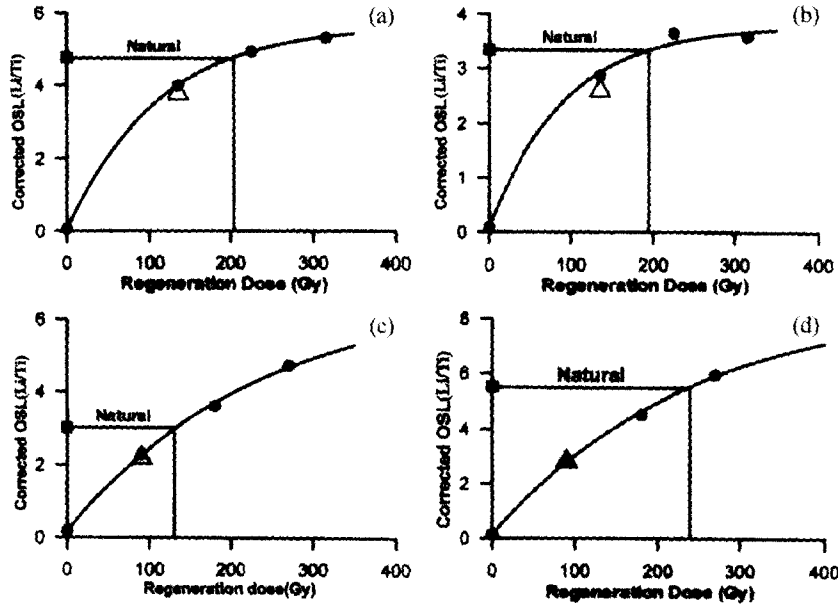


Fig. 3. (a), (b), (c) and (d) are the examples of equivalent dose determination based on single aliquot regenerative-dose (SAR) protocol for quartz from samples A, B, C and D respectively. Three regeneration doses($L_i, i=1,2,3$) were given and the regenerated OSL data were corrected for sensitivity changes by dividing by the subsequent OSL test dose response($T_i, i=1,2,3$), and the ratios($L_i/T_i, i=1,2,3$) are shown as filled circles. Also shown are the sensitivity corrected natural OSL response(L_n/T_n) and repeat point($L_i/T_i, i=4$), indicated by open square and open triangle. The curves are the single saturation exponential fit to the regenerated data points. A preheat of 260°C for 10s was used.

여주는 것이다. 여기서 n 은 시료의 열 전처리 및 루미네센스 측정 횟수이며, $f(n)$ 은 남아있는 루미네센스 신호, c 는 열 전처리 및 루미네센스 측정횟수에 대한 상수이다. 이 식에서 보정인자 $r = \exp(-c)$ 로 하면 $f(n) = r^{n-1}$ 으로 표시될 수 있으며, 이는 보정인자(r)가 열 전처리 및 루미네센스 측정 횟수에 대하여 독립적인 상수임을 의미한다. 4개의 퇴적층으로부터 분리된 각각의 석영 시료로부터 6개의 시료(aliquot)를 만들어, 측정된 각각의 자연추적선량을 평균하여 단일시료 재현법에 의한 결과와 비교하였으며, 평균 자연추적선량에 대한 표준 오차를 결정된 자연추적선량의 오차로 하였다(Table 1).

단일 시료 재현법

일반적으로 재현법(regeneration method)은 부가 선량법(additive dose method)보다 간단하고 쉽게 자연추적선량을 구하는 방법으로 그 과정은 다음과 같다. 우선 시료의 자연 루미네센스를 측정 한 후 모든 시료를 실험실에서 가열(heating)이나 빛의 조사(bleaching)로 시료의 루미네센스 신호를 0으로 만든다. 이 후, 같은 시료에 대하여 몇몇의 다른 방사선 양을 조사하여 루미

네센스를 관측하여 성장곡선을 만들고, 관측된 자연 루미네센스 신호를 이미 만들어진 성장곡선과 비교하여 자연 추적선량을 구하는 방법이다. 이 방법은 자연 추적선량이 내삽에 의해 결정됨으로 부가 선량법 보다 오차를 줄일 수 있으나, 시료의 루미네센스 신호를 0으로 만들기 위한 시료의 가열 혹은 빛의 조사는 시료의 루미네센스 민감도(luminescence sensitivity)를 변하게 할 수 있다는 단점이 있다. 최근 Murray and Wintle(2000)은 앞에서 지정한 열 전처리 및 빛의 조사(bleaching) 과정 중에 일어나는 시료의 루미네센스 민감도 변화를 보정한 단일 시료 재현법을 제안하였다. 즉, 성장곡선을 만들기 위한 실험실 방사선 조사 및 빛의 노출(bleaching) 후 시료에 시험 방사선(test dose)을 주어 변화된 루미네센스 민감도를 보정 하였다. 이 실험에서 사용한 단일 시료 재현법 과정은 다음과 같다. 먼저 시료의 자연 루미네센스를 측정하기 위하여 260°C에서 10초간 열 전처리 후, 125°C에서 40초 동안 여기 시켰다. 루미네센스 민감도의 변화를 보정하기 위하여 같은 시료에 시험 방사선을 주고 시간적으로 불안정한 빛에 포획된 전자의 제거를 위해 160°C까지 가열하였다. 이 후 몇몇의 다른 실험실 방사선 조사 및

Table 1. Equivalent dose values (D_E) determined using single aliquot regeneration protocol (SAR) and single aliquot additive-dose (SAA) method

Sample	Single Aliquot Regeneration protocol		Single Aliquot Additive-dose method	
	D_E (Gy)	n^1	D_E (Gy)	n^1
Sample A	204 ± 4	20	210 ± 7	6
Sample B	196 ± 7	20	199 ± 7	6
Sample C	117 ± 11	10	107 ± 9	6
Sample D	231 ± 28	10	188 ± 17	6

¹the number of single aliquot measurements used

열 전처리로 성장곡선을 만들고, 시험 방사선 조사로부터 얻어진 보정 인자로 성장곡선을 보정 하였다(Fig. 3). 0.1초 동안 여기된 루미네센스를 흡산하여 성장곡선과 보정에 이용하였다. 보정의 성공 여부는 성장곡선을 만든 후, 성장곡선을 만들기 위하여 시료에 준 처음 방사선 양을 시료에 다시 주어 처음의 측정 값과 같은지를 비교하여 판단되었다. 7개의 퇴적층으로부터 분리된 각각의 석영 시료로부터 자연축적선량을 측정하였고, 이들 중 4개의 시료에 대한 결과는 단일 시료 부가 선량법에 의한 결과와 비교하였다(Table 1). 측정된 각각의 자연축적선량을 평균하여 연대를 계산하면 33000년에서 78000년 범위이다(Table 3).

연간선량 측정

자연축적선량 이외에 시료 채취 장소의 연간선량(dose rate)은 연대를 결정하기 위한 필수 요소이다. 연대측정을 위한 연간선량은 시료채취 현장에서 직접 측정할 수도 있고 시료채취 장소의 시료를 채취하여 실험실에서 간접적으로 측정할 수도 있다. 일반적으로 실험의 편리성 때문에 후자의 방법이 널리 이용되는데, 이는 연간선량에 영향을 주는 방사선의 최대 비정(range) 영역의 매질이 균일할 경우, 단위 질량 당 에너지 흡수 비(absorption rate)는 에너지 보존원칙에 의해서 단위 질량 당 에너지 방출 비(emission rate)와 같다는 무한매질(infinite matrix) 가정을 기초로 한다(Aitken, 1985). 따라서 연간선량을 구하기 위한 시료는 감마선의 비정을 고려할 때, 적어도 자연축적선량을 구하기 위하여 채취된 시료 주위 30 cm 지역의 매질이 비슷한 곳에서 채취되어야 한다. 연간선량은 시료가 주위에서 방출된 방사선에 의해 얼마만큼의 에너지를 얻게 되었는지를 나타내며, 단위는 단위시간당 흡수된 에너지의 양을 나타내는 Gy/s 또는 $J \cdot kg^{-1} \cdot s^{-1}$ 이다. 시료에 흡수되는 에너지의 양은 방사선의 종류, 에너지, 그리고 양에 따라 달라진다. 각각의 방사성 핵종이 방출

하는 방사선의 종류 및 에너지는 이미 밝혀져 있으며, 이들 자료를 이용하여 단위농도를 연간선량으로 환산하는 변환상수(conversion factor)들도 계산되어 있다(Nambi and Aitken, 1986; Aitken, 1998). 따라서 방사성 핵종의 양이 결정되면 연간선량을 구할 수 있다.

자연시료에 존재하는 방사성 핵종 중에 연간선량을 결정하는데 영향을 줄 수 있는 것은 ^{238}U , ^{235}U , 그리고 ^{232}Th 의 붕괴계열에 속하는 방사성 핵종들과 ^{40}K 이다. ^{238}U , ^{235}U , 그리고 ^{232}Th 의 붕괴계열에 속하는 방사성 핵종은 폐쇄계(closed system)에서 일정시간이 지나면, 어미 핵종과 딸 핵종 사이에 방사평형(radioactive equilibrium)을 이룬다. 이 경우 붕괴계열에 속하는 방사성 핵종 중 어느 하나의 농도 혹은 방사능량을 측정하면 전체 붕괴계열에 의한 연간선량을 계산할 수 있다. 이때 연간선량을 구하기 위한 식은 $D=f \cdot C$ 이다. 여기서 D 는 연간선량, f 는 붕괴계열 전체에 대한 변환상수 그리고 C 는 핵종의 농도이다. 그러나 자연상태에서는 붕괴계열에 속하는 방사성 핵종과 시료의 물리적 혹은 화학적 특성에 의해 방사비평형(radioactive disequilibrium)을 이루는 경우도 있다. 이 경우 붕괴계열에 속하는 하나의 방사성 핵종을 측정하여 전체 붕괴계열에 대해 적용하면 구한 연간선량은 실제값보다 크거나 작아질 수 있다. 따라서 붕괴계열이 평형 상태로 존재하는지 여부를 확인할 필요가 있으며, 비평형 정도를 측정하여 연간선량계산에 반영한다. 이때 사용되는 식은 $D_i = \sum f_i \cdot C_i$ 이다. 여기서 f_i 는 i 번째 핵종의 변환상수이고, C_i 는 i 번째 핵종의 농도이다.

방사성 핵종의 농도를 분석하는 방법으로는 원소분석을 통하여 U, Th 그리고 K를 측정하는 방법과 이들 방사성 핵종으로부터 방출되는 방사선을 직접 측정하는 방법이 있다. 원소분석의 경우 측정된 U, Th 그리고 K 농도로부터 연간선량을 계산한다. 이 경우 방사성 붕괴계열의 비평형은 확인할 수 없으며, 시료의 특성으로부터 방사평형여부와 비평형 정도를 추정하여 연간선량 계산에 반영한다. 방사성 핵종을 직접 측정

Table 2. Comparison of the dose rates (mGy/yr) obtained by ICP, NAA and gamma spectrometry

Sample	ICP	NAA	gamma spectrometry
Sample A	3.65 ± 0.18	3.78 ± 0.19	3.92 ± 0.20
Sample B	3.41 ± 0.17	3.24 ± 0.16	3.41 ± 0.17
Sample C	3.12 ± 0.16	3.25 ± 0.16	3.40 ± 0.17
Sample D	3.02 ± 0.15	2.80 ± 0.14	2.97 ± 0.15
Sample E	4.05 ± 0.20	4.16 ± 0.21	4.19 ± 0.21
Sample F	3.95 ± 0.20	4.42 ± 0.22	4.69 ± 0.23
Sample G	4.12 ± 0.21	4.39 ± 0.22	4.56 ± 0.23

하는 방법은 자연방사성 핵종 붕괴계열에 속하는 딸 핵종의 농도를 직접 측정할 수 있어 어미 핵종과 딸 핵종 사이의 방사비평형 관계를 알아볼 수 있다는 장점을 가진다. 고순도 게르마늄 검출기를 이용한 감마선 측정법은 다음과 같은 장점들로 인해 연간선량측정에 주로 이용되고 있다. 첫째, 연간선량 측정에 필요한 여러 방사성 핵종을 동시에 측정할 수 있다. 둘째, 자연방사성 핵종 붕괴계열에 속하는 딸 핵종의 농도를 측정할 수 있어 어미 핵종과 딸 핵종 사이의 방사비평형 관계를 알아볼 수 있다. 셋째, 측정에 대량의 시료를 이용할 수 있어 시료의 불균질성(inhomogeneity) 문제를 극복할 수 있다. 넷째, 시료의 전처리 과정이 매우 단순하고, 화학적 전처리 과정을 거치지 않기 때문에 전처리 과정에서 발생할 수 있는 오차발생을 최소화할 수 있다. 다섯째, ⁴⁰K의 농도를 직접 측정할 수 있다.

감마선 검출기로 일반적인 자연시료(암석, 토양, 퇴적물 등)를 측정하면 ²³⁸U 계열의 ²³⁴Th, ²²⁶Ra, ²¹⁴Pb, ²¹⁴Bi, ²¹⁰Pb과, ²³²Th 계열의 ²²⁸Ac, ²¹²Pb 그리고 ⁴⁰K이 측정된다. 여기서 ²³⁴Th는 ²³⁸U, 그리고 ²¹⁴Pb와 ²¹⁴Bi는 ²²⁶Ra의 방사능량을 구하기 위하여 사용된다. 최종적으로 측정되는 방사성 핵종은 ²³⁸U, ²²⁶Ra, ²¹⁰Pb, ²³²Th, ⁴⁰K이다. 일반적으로 자연상태에서 ²³⁵U와 ²³²Th 방사성 붕괴계열은 방사비평형을 이루고 있다는 가정이 성립되어 이들 값으로부터 전체 방사성 붕괴계열의 방사능량을 계산할 수 있다. 그러나 ²³⁸U 방사성 붕괴계열의 경우 방사비평형을 이룰 수 있고, ²³⁸U 방사성 붕괴계열에 속하는 딸 핵종들이 연간선량 계산에서 차지하는 비중이 매우 크므로 각각의 딸 핵종들을 직접 측정하여 연간선량 계산에 이용하여야 한다. 방사비평형 여부와 정도는 ²³⁸U의 딸 핵종 중 ²²⁶Ra과 ²¹⁰Pb 값으로부터 알 수 있다. 현재 한국기초과학지원연구원에서 연간선량 계산에 이용되는 방사성 핵종은 ²³⁸U, ²²⁶Ra, ²¹⁰Pb, ²³²Th, ⁴⁰K이며, ²³⁵U의 농도는 자연상의 ²³⁵U와 ²³⁸U의 비로부터 계산된다.

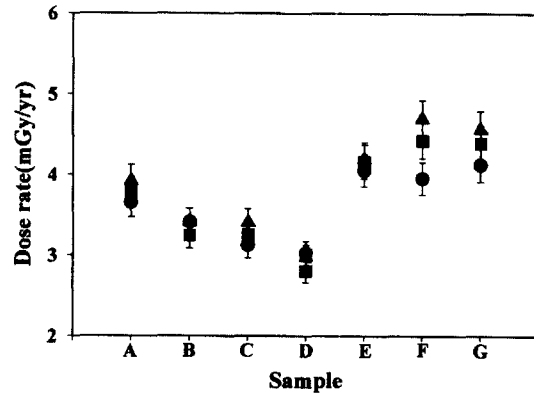


Fig. 4. The dose rates determined by ICP(●), NAA(■) and gamma spectrometry(▲).

신기 퇴적층으로 부터 채취한 8개의 시료에 대해서 한국기초과학지원연구원의 감마선 스펙트럼 분석기로 연간선량을 측정했다. 감마선 측정에 사용한 감마선 검출기는 미국 Canberra사의 GCW3523-7915-30/ULB WIGe 검출기로 ⁴⁰K을 제외한 다른 방사성 핵종에 대한 배경방사능 값이 매우 낮은 특징을 가진다. 감마선 검색기의 측정효율은 IAEA의 감마선 검색기 보정용 표준시료인 RG Set(RGU-1, RGTh-1 그리고 RGK)를 이용하여 구하였다. 분석된 연간선량은 한국기초과학지원연구원의 유도결합 플라즈마 질량분석기(ICP/MS: PQ3 model, Thermo Elemental Ltd.)와 유도결합 플라즈마 분광분석기(ICP/AES: SHIMADZU ICPS-1000III)에 의한 원소 분석과 캐나다 CHEMEX사에 의뢰한 중성자 방사화 분석(neutron activation analysis; NAA)에 의한 원소 분석으로 얻어진 연간선량과 비교하였다 (Table 2). 시도된 세 가지 방법에 의한 연간선량은 오차 범위 내에서 서로 잘 일치하나, 한 개의 시료(sample F)에 대해서는 유도결합 플라즈마 분석기로 분석된 연간선량이 다른 방법에 의한 값보다 낮은 값을 보였다 (Fig. 4). 이는 토양시료를 녹일 때 시료 중에 포함되어

Table 3. Luminescence dating results

Sample	Equivalent dose (Gy)	Total dose rate corrected (mGy/yr)	Age (kyr)
Sample A	204 ± 4	3.92 ± 0.20	52 ± 2.8
Sample B	196 ± 7	3.41 ± 0.17	57 ± 3.5
Sample C	117 ± 11	3.40 ± 0.17	34 ± 3.7
Sample D	231 ± 28	2.97 ± 0.15	78 ± 10
Sample E	185 ± 8	4.19 ± 0.21	42 ± 2.9
Sample F	157 ± 7	4.69 ± 0.23	33 ± 2.2
Sample G	177 ± 6	4.56 ± 0.23	40 ± 2.4

Total dose rate corrected refers to the annual dose rate corrected for water content using the formulae of Zimmerman (1971). Total dose rate corrected also takes account of beta dose attenuation through the grains by a factor of 0.9 (Aitken, 1985). The cosmic ray contribution was taken as 0.13 mGy/yr (Prescott and Stephan, 1982).

있는 중광물이 완전히 용해되지 않았거나, 산 처리 중 CaF_2 혹은 MgF_2 형성에 의해 Th과 U 함량이 적게 평가 된 것으로 생각된다. Table 2에 인용된 전체 연간선량 값은 베타, 감마 연간선량 값과 우주선에 의한 연간선량 값을 합산한 것이다. 실험실에서 석영을 불산으로 한 시간 정도 처리하여 표층을 약 $10 \mu\text{m}$ 정도 에칭(etching)시켰기 때문에 알파입자에 의한 연간선량은 전체 연간선량 계산에서 고려하지 않았으며, 베타입자의 연간선량은 에칭으로 인한 손실을 고려하여 보정하였다(Aitken, 1985). 우주선량(cosmic ray)은 0.13 mGy/yr로 추정하였으며(Prescott and Stephan, 1982) 최종적인 연간선량은 시료의 수분 함량에 대한 보정과 불산의 에칭으로 손실된 선량을 고려하여 결정되었다(Zimmerman, 1971).

연대계산

단일 시료 재현법 의해 얻어진 자연축적선량 과 감마 스펙트럼 분석에 의한 연간선량 값을 연대 방정식에 응용하여 연대를 계산하였다(Table 3). 한 개의 시료(sample D)를 제외한 모든 시료의 자연축적선량 값이 10% 이내의 오차를 보였으며, 이는 이 실험에서 사용된 대부분의 시료들이 광 여기 루미네센스 연대 측정법에 응용될 수 있음을 암시한다. 현재 시료의 열 전 처리로 인한 루미네센스 민감도의 변화 때문에 단일 시료 부가 선량법의 사용이 국제적으로 문제점으로 지적되고 있으나, 이 실험에서 시도된 4개의 시료에 대해서는 단일 시료 부가 선량법에 의한 결과가 단일 시료 재현법에 의해 얻어진 결과와 오차의 범위 내에서 잘 일치하였다. 이는 적어도 이 실험에서 시도된 석영 시료는 열 전처리 후에 루미네센스 민감도가 그다지 심하게 변하지 않았기 때문이라 생각된다. 이 실험에

서 시도된 세 가지 연간선량 측정 방법들의 결과에서 주목할 만한 차이를 보이지 않았지만, 한 개의 시료에 대해서 유도결합 플라즈마 분석기에 의한 결과가 낮은 값을 보였다. 따라서, 유도결합 플라즈마 분석기로 연간 선량을 분석할 경우에는 시료 전 처리에 각별한 주의가 필요하다고 사료된다.

결론

이 연구에서는 최근 기초과학지원연구원에 설치 완료된 덴마크 Riso 연구소의 광 여기 루미네센스 검출 장치를 이용하여 신기 퇴적층의 연대를 산출하였다. 산출된 연대의 오차로 미루어 볼 때 이 연구에서 사용된 신기 퇴적층의 석영은 퇴적되기 전에 비교적 빛에 충분히 노출되어 광 여기 루미네센스 연대측정법에 적합한 시료로 판단된다. 두 가지 단일시료 분석법으로 결정된 자연축적선량 값은 오차의 범위 내에서 서로 잘 일치하지만, 최근 보고된 논문에서 지적된 바와 같이 몇몇 석영시료에서 열 전처리 후 심각한 루미네센스 민감도의 변화를 보여준 것을 고려하면 단일시료 재현법을 이용한 연대측정을 권고할 만 하다. 앞으로 열 전 처리 조건에 따른 자연축적선량 값의 연구 및 퇴적되기 전 시료의 빛에 노출정도를 가늠할 수 있는 연구가 엄밀히 진행된다면 광 여기 루미네센스 연대 측정법은 신기 퇴적층의 연대측정에 매우 기여할 수 있을 것이라 생각한다.

참고문헌

- Aitken, M.J., 1985, Thermoluminescence dating. Academic Press, London, 17p.
Aitken, M.J., 1998, An introduction to optical dating. Oxford University Press, 205p.

- Botter-Jensen L., 1997, Luminescence techniques: instrumentation and methods. *Radiat. Meas.*, 27, 749-768.
- Botter-Jensen L. and Duller G.A.T. 1992, A new system for measuring optically stimulated luminescence from quartz samples. *Nucl. Tracks Radiat. Meas.*, 20, 549-553.
- Duller G.A.T., 1991, Equivalent dose determination of single aliquots. *Nucl. Tracks Radiat. Meas.*, 18, 371-378.
- Fleming S.J., 1970, Thermoluminescence dating: refinement of the quartz inclusion method. *Archaeometry*, 12, 133-147.
- Galloway R.B., 1992, Towards the use of green light emitting diodes for the optically stimulated luminescence dating of quartz and feldspar. *Meas. Sci. Technol.*, 3, 330-335.
- Galloway R.B., Hong D.G. and Napier H.J., 1997, A substantially improved green light emitting diode system for luminescence stimulation. *Meas. Sci. Technol.*, 8, 267-271.
- Hong D.G. and Galloway R.B., 2000, Comparison of equivalent dose values determined by luminescence stimulation using blue and green light. *Nucl. Instrum. Meth. B*, 160, 59-64.
- Hong D.G., Galloway R.B. and Hashimoto T., 2000, Additive dose single and multiple aliquot methods of equivalent dose determination compared for quartz luminescence stimulated by green light. *Jap. J. of Appl. Phys.*, 39, 4209-4216.
- Huntley D.J., Godfrey-Smith D.I. and Thewalt M.L.W., 1985, Optical dating of sediments. *Nature*, 313, 105-107.
- Murray A.S. and Wintle A.G., 2000, Luminescence dating of quartz using an improved single-aliquot regenerative-dose protocol. *Radiat. Meas.*, 32, 57-73.
- Nambi K.S.V. and Aitken M.J., 1986, Annual dose conversion factors for TL and ESR dating. *Archaeometry*, 28, 202-205.
- Prescott, J.R. and Stephan L.G., 1982, Contribution of cosmic radiation to environmental dose. *PACT*, 8, 205-213.
- Prescott, J.R. and Robertson G.B., 1997, Sediment dating by luminescence: a review. *Radiat. Meas.*, 27, 893-922.
- Spooner, N.A., Aitken, M.A., Smith, B.W., Franks, M., and McElroy C., 1990, Archaeological dating by infrared stimulated luminescence using a diode array. *Radiat. Prot. Dosim.*, 34, 83-86.
- Wintle A. G., 1997, Luminescence dating : laboratory procedures and protocols. *Radiat. Meas.*, 27, 769-817.
- Wintle A. G. and Huntley D.I., 1979, Thermoluminescence dating of a deep-sea sediment core. *Nature*, 279, 710-712.
- Zimmerman J., 1971, The radiation-induced increase of thermoluminescence sensitivity of fired quartz. *J. of Phys. C: Solid State Phys.*, 4, 3277-3291.

(2001년 7월 24일 접수, 2001년 10월 23일 채택)