

고대토기의 열형광 연대측정법

강형태 · 나경임

(국립문화재연구소 보존과학연구실)

- 1. 머리말
- 2. 원리
- 3. 측정방법
 - 3.1 조립자법(Quartz inclusion technique)
 - 3.2 미립자법(Fine-grain technique)
 - 3.3 Pre-Dose법

1. 머리말

토기는 유적지에서 가장 많이 출토되는 유물이며 고고학에서는 이의 형식학적 분류 기준을 마련하여 편년을 제시하고 있다. 그러나 이러한 연대결정법은 다분히 주관적인 판단에 의한 것으로 학자간의 견해 차이로 고고학 연구에 많은 제약을 가져왔다. 이러한 제약은 자연과학적인 방법을 이용하여 절대연대를 구하고자 하는 많은 필요성을 가증시켰다.

자연과학적 연대측정법에는 여러 가지가 있으나 가장 체계적으로 확립된 것은 방사성 탄소 연대측정법(^{14}C dating)이다. 이 방법은 목재, 목탄, 뼈, 패각류 등을 대상으로 좋은 결과를 얻고 있으나 탄소를 함유하는 유기물 시료에만 한정되어 있다. 그런데 동일 유적에서 유기물 시료의 연대와 토기의 사용연대가 다를 경우가 있다. 따라서 방사성 탄소 연대측정 결과의 타당성을 검증할 수 있고 토기 자체의 연대를 측정할 수 있는 별도의 자연과학적 연대측정법의 확립이 요구된다. 이와 같은 요구에 합당한 방법으로 열형광을 이용한 연대 측정법을 들 수 있다. 열형광 연대 측정법(Thermoluminescence dating)은 토기 그 자체를 측정시료로 하며 방사성 탄소 연대측정법과는 전연 다른 원리에 의한 연대측정법이다. 현재 열형광연대측정법은 5~10%의 정밀도로서 연대를 결정할 수 있게 되었으며 고온분위기에서 생산된 토기, 자기, 기와 등의 고고학적 시료 이외에도 지질학적 시료에 50만년 이상의 연대측정이 가능하다. 최근에는 문화재의 진위여부를 판정하는데 유용하게 사용되고 있다.

본고는 고고학적 시료의 열형광 연대측정을 위한 기본원리 및 측정방법을 정리한 것으로 외국에서 진행되고 있는 최근의 연구 결과를 참고하였다. 열형광 연대측정법을 토기시료에 처음으로 적용한 것은 1960년 캘리포니아대학의 Kennedy이며 그 이후 영국 옥스퍼드대학, 미국 펜실바니아대학, 덴마크 원자력연구소 등에서 열형광 연대측정법의

연구가 진행되고 있다. 일본에서는 시천(市川)·동촌(東村)들에 의해 1960년대 전반에 시작되었고 장우(長友)등과 함께 많은 데이터를 제공하고 있다. 우리나라에서는 아직 이 방법을 소개하는 정도로 극히 미약한 실정이므로 이 방면에 많은 관심과 활발한 연구가 진행되기를 기대한다.

2. 원 리

천연의 대부분의 광물은 가열되며 미약한 빛을 방출한다. 한번 발광한 광물은 다시 가열해도 발광하지 않지만 인위적으로 강한 방사선을 쬐인 다음 가열하면 다시 발광한다. 이와같이 방사선을 받은 후에 가열하면 발광하는 현상을 열형광(thermoluminescence)이라 부른다. 천연광물이 열형광현상을 나타내는 것은 그 광물이 생성된 이래 자연방사선을 받아왔기 때문이다. 고대 토기 시료를 500℃까지 가열했을 때 방출되는 빛을 그림 1(a)에서 볼 수 있으며, 그림 1(b)는 동일 시료를 재가열하여 얻은 곡선이다(이를 적열 또는 black body라 한다). 이처럼 가열온도에 대하여 발광강도를 기록한 것을 열형광곡선(glow curve)이라 부른다.

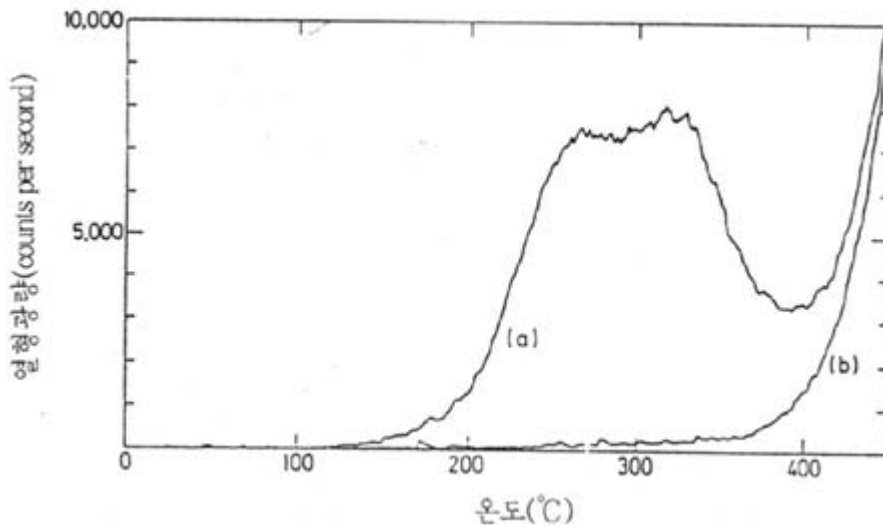


그림 1. 토기의 열형광곡선, (a) 1차 가열후 관찰된 열형광곡선, (b) 2차 가열후 관찰된 열형광곡선

토기는 점토를 구워서 제조한 것으로 점토중에는 석영, 장석, 방해석 등 열형광현상을 나타내는 광물이 포함되어 있다. 토기 태토로부터 추출한 이들 광물을 시료로 사용하여 토기의 연대를 측정하는 것이 열형광측정법(thermoluminescence dating)이다.

그림 2에 열형광 연대측정법의 원리를 나타내었다. 이 그림에 의해서 토기중 석영입자를 시료로 하는 연대측정법의 원리를 설명하면 다음과 같다.

토기가 소성된 과거의 어느 시점 A에서 점토에 포함되어 있는 석영은 그때까지 받아

은 자연방사선에 기인된 열형광을 방출한다. 이때 석영의 열형광은 시간상 영년으로 생각할 수 있다.

그 후 오랜동안 땅속에 묻혀 지나오다 발굴되어 측정되는 시점 B까지 기간중에 토기 속의 석영이 받은 총방사선량은 D_N 이며 이에 해당하는 발광량 $I(D_N)$ 이 기록된다. 다음으로 같은 토기에서 추출한 동량의 석영시료에 방사선을 인위적으로 D_L (부가선량)을 쬐여 준 다음 측정하면 $D_N + D_L$ 의 방사선량에 해당하는 $I(D_N + D_L) = I(D_N) + I(D_L)$ 의 열발광량이 기록된다. 이상의 측정에서 축적선량 D_N 을 다음과 같이 구할 수 있다.

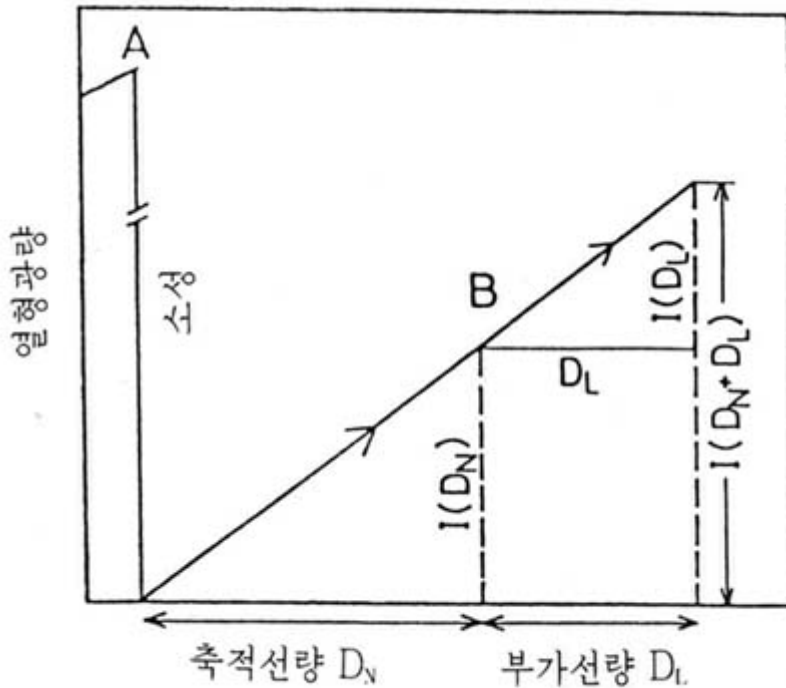


그림 2. 열형광 연대측정의 원리

그림 2. 열형광 연대측정의 원리

축적선량은 토기가 소성된 다음 측정까지의 사이에 석영이 받은 총 자연방사선량이므로 연간 석영이 받은 방사선량 D_A (연간선량)를 다른 방법으로 측정할 수 있다면 토기의 연대(year)는 D_N/D_A 가 된다.

이 측정원리에서는 시료가 1년간에 받는 방사선량은 소성에서 측정까지 일정하다는 것 그리고 열발광량은 석영시료가 받은 방사선량에 비례한다는 것을 가정하고 있다. 시료가 받는 자연방사선으로는 알파선, 베타선, 감마선, 우주선이 있는데 이중에서 우주선을 제외한 방사선은 흙중에 포함된 우라늄(U), 토륨(Th), 칼륨(K) 등의 방사성 원소로부터 방출된다.

알파, 베타, 감마선을 방출하는 우라늄과 토륨의 흙중에서도 농도는 각각 수 ppm과

10~15ppm이다. 칼륨은 흙중에 수 %로 포함되어 있지만 방사성 칼륨은 0.012%이고 베타선과 감마선을 방출한다. 흙이나 암석중의 방사성 원소의 농도는 일정치 않고 일반적으로 점토쪽이 농도가 크고 암석에서는 현무암이나 사암보다 화강암쪽이 방사능이 강하다. 방사선이 흙이나 암석을 투과하는 두께는 방사선 종류에 따라 다르고 알파선은 수 10 μ m, 베타선은 수 100 μ m~수 mm, 감마선은 수 10cm이다. 우주선은 물질중을 투과하는 능력이 크고 흙중에서는 60cm의 깊이에서 지표면의 반으로 감소하는데 불과하지만 토기중의 석영입자가 받는 총 방사선량에 차지하는 비율은 비교적 적어도 5~10% 정도이다.

석영의 열형광현상에서 발광량은 석영이 받았던 방사선량에 비례하지만 알파선에 의한 발광은 효율이 낮아 같은 선량의 베타선, 감마선에 의한 발광량의 10~20% 정도인 것으로 알려져 있다.

3. 측정 방법

3.1 조립자법(Quartz inclusion technique)

토기의 태토에는 여러 가지 광물이 포함되어 있고 그 입도도 일정치 않지만 이중에서 직경 100 μ m정도 크기의 석영 입자만을 추출해서 측정하는 방법이다.

먼저 토기편의 표면층을 약 2mm 깎아낸다. 알파선과 베타선은 이 두께를 투과하지 못하므로 이들 방사선에 의해 토기 시료가 받았던 자연방사선중 주위의 흙에 포함되는 우라늄, 토륨으로부터 알파선과 베타선의 열형광에 대한 기여도를 고려하지 않아도 된다. 태토중의 석영입자를 파괴하지 않도록 세심하게 토기편을 분쇄한 후 100~200 메쉬(149~74 μ m) 정도의 입자와 200메쉬이하의 것으로 분리한다. 이중 100~200 메쉬의 입자를 자기분리기에 넣어 비자성광물(석영, 장석 등)과 자성체를 갖는 광물(운모, 각섬석 등)을 분리해 낸다.

비자성광물을 불산으로 처리하면 석영 이외의 비자성광물이 용해 제거되고 석영입자만의 분말 시료를 얻을 수 있다. 이때 석영입자도 표면층은 에칭(etching)되어 제거된다. 알파선은 투과력이 약하고 열형광에 대한 기여도 적기 때문에 이 불산처리에 의해서 토기중의 우라늄, 토륨으로부터 방출되는 알파선의 영향은 무시할 수 있다. 이와 같이 얻어진 석영입자를 물과 아세톤으로 세척하여 측정시료로 한다. 위와같이 처리한 석영시료에서 20mg을 취해서 열형광 읽개(TL reader)로 측정하면 그림 3의 열형광곡선(a)와 같이 열형광 강도가 기억된다. 이 곡선은 축적선량 D_N 의 자연방사선에 기인하는 형광이다.

다음에 동일 시료의 잔여부분 20mg에 인공적으로 방사선을 조사한 후 측정하면 열형광 강도는 그림의 열형광곡선 (b)와 같이 기억된다. 부가선량에 해당하는 열형광강도로부터 비례적으로 곡선 (a)의 시료를 축적선량 D_N 을 구할 수 있다. 이때 곡선 (a)와 곡선(b)의 비를 구하고 plateau test를 한다. 즉, 300 $^{\circ}$ C 이상에서 평평한 plateau 구역을 나타내는 온도 범위에서 계산하면 축적선량 D_N 을 구할 수 있다.

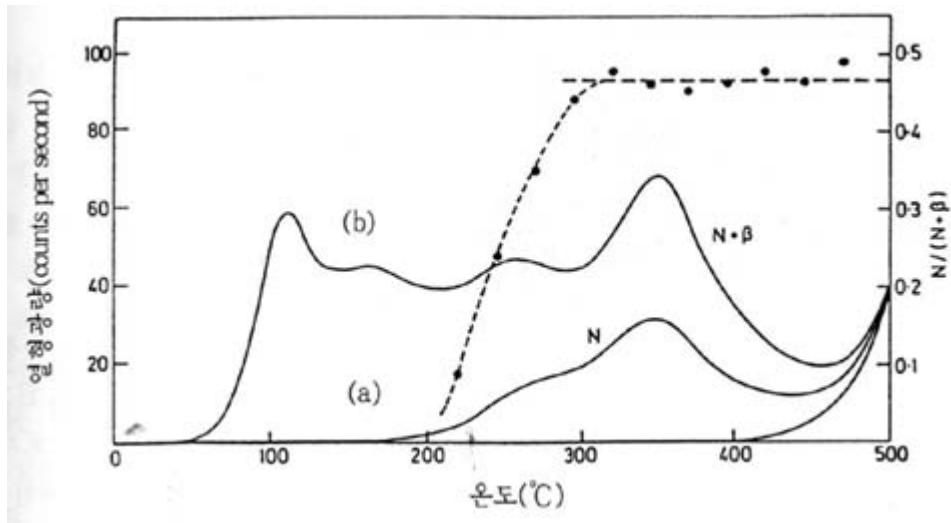


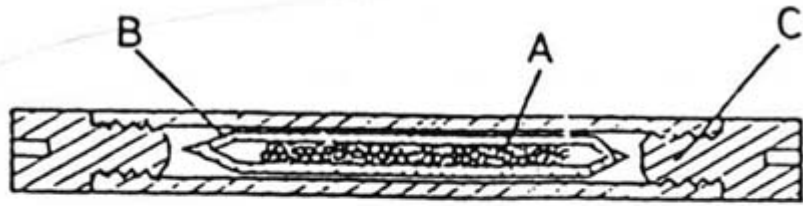
그림 3. 곡선 (a)는 시료의 자연방사선에 의한 열형광곡선, 곡선 (b)는 시료에 인공적으로 베타선을 쬐여준 후 나타난 자연방사선+인공방사선에 의한 열형광곡선, 점선(-----)은 두 개의 열형광 곡선의 비를 나타내고 이를 Plateau라 한다.

조립자법의 경우 시료의 석영입자가 받는 자연방사선은 ① 주위의 흙에 포함되는 방사성 원소에서 방출되는 감마선, ② 토기 태토층의 방사성원소에서 방출되는 베타선과 감마선 및 ③ 우주선이다. 이 중 토기 태토로부터 감마선량은 적고 다른 자연방사선량에 비교해서 무시할 수 있다.

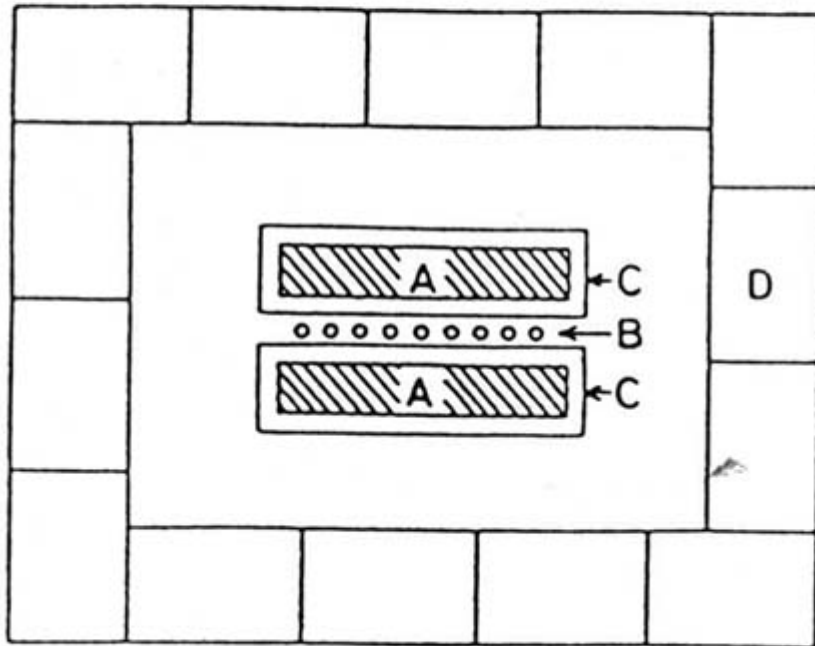
이들 방사선의 연간선량은 방사선의 피폭 모니터링에 사용되는 열형광선량계(TLD) 입자를 사용해서 그림 4와 같이 위의 ①과 ③, 및 ②로 나누어 측정한다. 그림 4(a)는 주위 흙으로부터 감마선과 우주선을 측정하는 것이고 동과 폴리에틸렌으로 제작한 캡슐 속에 TLD 입자가 봉입되어 있다. 이것을 토기 시료가 발굴된 장소에 묻어놓고 수개월 내지 일년간 방치한 후에 꺼내어 측정한다. 알파선과 베타선은 캡슐에 의해서 차단되므로 TLD 입자의 발광량으로부터 감마선의 연간선량을 구할 수 있다.

토기 태토로부터 베타선량은 그림 4(b)와 같이 측정된다. 시료 처리중에 남겨둔 200 메쉬 이하의 입자를 가압 성형하여 원판을 만들고 그 사이에 TLD 입자를 그림과 같이 얇게 편다. 폴리에틸렌은 알파선을 막기 위한 것이다. 주변의 감마선을 막기 위해 납상자 안에 수주일간 방치한 후 연간선량을 측정한다.

이처럼 실험적으로 연간선량을 측정할 수 없는 경우에는 토기 태토와 유적의 흙을 화학 분석함으로써 우라늄, 토륨, 칼륨을 정량하여 연간선량을 추정한다.



(a)



(b)

그림 4. (a) 연간선량(감마선)을 측정하기 위한 캡슐(A:TLD 입자, B:폴리에틸렌, C:동(銅)),
(b) 토기태토의 베타선을 측정하기 위한 장치(A:토기 태토 분말, B:TLD 입자, C:폴리에틸렌, D:납)

3.2 미립자법(Fine-grain technique)

토기 태토 중의 광물입자 중 직경 $10\mu\text{m}$ 이하의 입자를 측정 시료로 하는 방법이다. 토기 표면을 깎아 낸 후에 분말로 해서 아세톤 속에서 $10\mu\text{m}$ 이하의 입자를 선별한다. 액체 중에서 입자의 침강속도가 입자크기에 따라 다른 것을 이용하는 것이다.

처리한 측정 시료중에는 방해석 등의 광물도 포함되어 있기 때문에 그 glow curve는 석영 조립자법과 같이 명료한 피크는 나타나지 않는다.

이 방법에서는 태토중에 포함되는 우라늄, 토륨으로부터의 알파선의 열형광에 대한

기여를 고려하여야 하므로 연간선량의 평가는 석영조립자법에 비교해서 복잡하다. 태도가 굵고 100 μm 정도의 석영입자를 함유하지 않는 시료에는 이 방법이 유효하다.

3.3 Pre-Dose법

방사선에 대한 열형광 감도(방사선 1rad당 열발광량)는 같은 광물에서도 그 광물이 받은 방사선량과 온도 등의 조건에 따라서 변화하는 경우도 있는 것으로 알려져 있다.

석영입자의 경우, 열형광 곡선의 110 $^{\circ}\text{C}$ 에 대응하는 피크도 이 성질을 나타낸다. 이 피크는 방사선을 받아도 상온에서 약 2시간마다 반감하기 때문에 발굴된 토기편에서 석영입자를 추출해서 측정해도 발광하지 않는다. 그러나 이 110 $^{\circ}\text{C}$ 피크는 발광감도를 기억하는 성질이 있어 500 $^{\circ}\text{C}$ 까지 가열하면(이것을 활성화라 한다) 기억하고 있는 감도를 측정할 수 있게 된다.

석영의 110 $^{\circ}\text{C}$ 피크의 발광감도는 석영이 받은 방사선 양에 비례하는 것을 알 수 있고 이 성질을 이용해서 토기의 연대측정을 할 수 있다. 이 측정법을 Pre-Dose법이라 하고 그림 2에서 중축의 열발광량을 열형광 감도로 바꾼 것이다.

시료 전처리는 석영조립자법의 경우와 거의 같은 과정으로 처리를 하지만 일반적으로 불산에 의한 처리를 하면 측정 결과의 폭이 커지는 경향이 있기 때문에 이 과정은 생략하는 편이 좋다.

Pre-Dose법에서는 발광량이 아니고 발광감도를 측정한다. 감도변화를 일으키지 않는 정도로 적은 방사선량(이것을 test-dose라 한다)을 준 직후에 시료를 측정하고 그때의 110 $^{\circ}\text{C}$ 피크의 발광량을 가지고 감도로 한다. 그림 5의 측정 예에 따라서 측정선량의 측정방법을 설명한다.

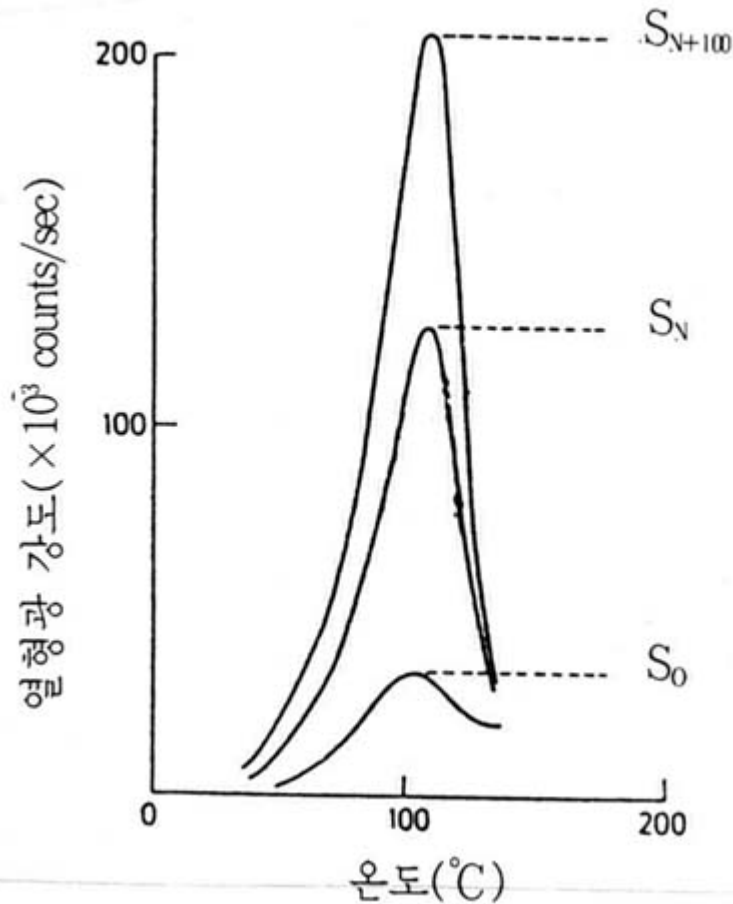


그림 5. 석영 입자에 대한 110°C 피크에서 pre-dose 효과.

석영 시료를 활성화 하기전에 test-dose를 주고 측정하면 S_0 가 기록된다. 이것은 토기가 과거에 소성되었던 직후에 가지고 있던 발광감도를 나타내고 있다. 다음에 이 시료의 온도를 500°C까지 올려서 활성화한 후에 test-dose를 주고 측정하면 S_N 을 얻는다. S_0 에서 S_N 으로의 감도증가는 축적선량 D_N 에 비례한다. 같은 시료에 인위적으로 100rad의 방사선량을 부가해서 활성화한 후에 Test·Dose를 주고 측정하면 S_{N+100} 이 기록된다. S_{N+100} 은 축적선량과 부가선량의 합, $D_N+100\text{rad}$ 에 비례하며 $S_{N+100}-S_N$ 은 100rad의 방사선량에 비례하므로 축적선량 D_N rad를 구할 수 있다. 이 방법은 ① 연간선량이 고고연대에 걸쳐서 일정한 점, ② 감도증가가 방사선량에 비례하는 것이 가정되어 있다.

Pre-Dose법에서 연간선량의 측정은 석영조립자법과 다르게 시료처리에서 알파선의 영향을 제거하기 위한 불산처리를 행하지 않은 점을 고려하지 않으면 안된다. 그러나 다행스럽게 석영입자의 110°C 피크의 감도증가에 대한 알파선의 기여는 베타선, 감마선과 비교해서 약 1% 정도에 불과하기 때문에 이것을 무시할 수 있다. 따라서 Pre-Dose법의 연간선량의 측정법은 석영조립자법의 정의와 같다.

참 고 문 헌

1. M. J. Aitken, Thermoluminescence Dating, Academic Press, 1985.
2. M. J. Aitken, Science-based Dating in Archaeology, Longman Archaeology Series, 141-186 pp., 1990.
3. P. A. Parkes, Current Scientific Techniques in Archaeology, Mackays of Chatham Ltd., 36-60 pp., 1986.
4. U. Leute, Archaeometry, New York VCH, 65-76 pp., 1987.
5. 長友恒人, Thermoluminescence Dating of Earthenwares and Other Related Materials, 古文化財の科學, 29, 83-93 pp. (1984).
6. 김영덕 외, 열형광으로 옛토기 연대를 추정하는 방법의 개발, 박물관 개요 7, 단국대학교 중앙박물관, 111-120 pp. (1991).
7. 전영수, 질그릇의 연대측정에서 열형광법의 응용, 조선고고학연구(사회과학출판사) 2, 46-48 pp., (1989).