

다검출기 유도결합 플라즈마 질량분석기를 이용한 경주 입실, 장항리 단층 파쇄대 충전 탄산염암 맥의 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 비평형 연대측정

정창식* · 최만식 · 김현철 · 임창복¹

한국기초과학지원연구원 동위원소분석팀, ¹한국원자력안전기술원 규제기술연구부

$^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ disequilibrium dating of fracture-filling carbonate veins from the Ipsil and Janghangri fault zones, Gyeongju, Korea by multiple collector inductively coupled plasma mass spectrometry

Chang-Sik Cheong*, Man Sik Choi, Hyeoncheol Kim and Chang Bock Im¹

Isotope Research Team, Korea Basic Science Institute, 52 Eoeun-Dong, Yuseong-Ku, Daejeon 305-333, Korea

¹Korea Institute of Nuclear Safety, PO Box 114, Yuseong-Ku, Daejeon 305-600, Korea

요약: 경북 경주시 인근의 제4기 추정단층 중 입실단층과 장항리단층의 파쇄대를 충전하고 있는 탄산염암 맥을 대상으로 다검출기 유도결합 플라즈마 질량분석기를 이용한 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 비평형 연대를 측정하였다. 완전히 녹인 시료로부터 공침과 이온교환화학을 통해 간편하게 U, Th를 단체분리하였는데 회수율은 Th 80%, U 70% 정도였다. 이 부분으로부터 기기 조건이 최적화된 다검출기 유도결합 플라즈마 질량분석기를 이용하여 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$, $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ 비를 분석하였고 U/Th비는 처리하지 않은 시료로부터 직접 분석하였다. 분석 결과 입실 단층의 탄산염암 맥은 ^{234}U - ^{230}Th 시차평형에 도달하여 기존의 ESR 연대측정 결과를 지지하였으며 쇄설성 부분이 보정된 장항리단층 탄산염암 맥의 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 비평형 연대는 48 ± 41 ka로서 파쇄대의 최소 형성시기를 지시한다.

핵심어: 탄산염암, 다검출기 유도결합 플라즈마 질량분석기, $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 비평형 연대

Abstract: We report $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ disequilibrium ages of fracture-filling carbonate veins from the Ipsil and Janghangri fault zones, Gyeongju, Korea by multiple collector inductively coupled plasma mass spectrometry. The U and Th fraction was extracted from totally dissolved samples by rapid and convenient coprecipitation and ion exchange chemistry. The recovery was around 80% for Th and 70% for U. The $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$, $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ ratios were analysed for this preconcentrated fraction and the U/Th ratio was directly analysed for untreated sample solution. The ^{234}U - ^{230}Th system is in secular equilibrium for the Ipsil carbonate samples, supporting previously reported ESR ages. The detrital-corrected $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ age of the Janghangri carbonate samples is 48 ± 41 ka, which constrains the minimum age of the fracture zone.

Key words: carbonate vein, multiple collector inductively coupled plasma mass spectrometry, $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ disequilibrium age

서 언

^{238}U , ^{235}U , ^{232}Th 은 복잡한 붕괴계열을 거쳐 각각 안정한 납 동위원소인 ^{206}Pb , ^{207}Pb , ^{208}Pb 가 되는데 붕괴계열에 있는 딸핵종들에 비해서 모핵종의 반감기가 훨씬 길기 때문에 일정 시간이 지나면 모핵종과 딸핵종

의 붕괴율이 같아지는 시차평형(secular equilibrium)에 도달한다. 암석의 용융, 광물의 침전 등의 지질학적 과정 동안에 시차평형에 있는 모핵종과 딸핵종 사이에 화학적 분별(fractionation)이 일어나게 되면 시차평형 상태에서 비평형 상태가 되게 되며 이러한 비평형 상태가 다시 평형에 도달하는 원리를 이용하는 것이 U

*Corresponding author: Tel.82-42-865-3446, E-mail. ccs@comp.kbsi.re.kr

계열 비평형 연대측정이다.

U 계열 비평형 연대측정은 그 원리에 따라 최초 시스템에 딸핵종이 없었다고 가정하는 딸핵종결핍법 (daughter-deficiency method)과 최초 시스템에 과잉 존재하는 딸핵종의 붕괴를 이용하는 딸핵종과잉법 (daughter-excess method)으로 나눌 수 있다(Ivanovich *et al.*, 1992). 전자의 대표적인 방법이 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$, $^{231}\text{Pa}/^{235}\text{U}$ 법이고 후자의 예는 심해저 퇴적물에 대한 ^{230}Th , ^{231}Pa 법 등이다.

U은 Eh값이 높은 산화상태에서 탄산염, 인산염이나 황산염 이온의 형태로 수용액에 수 ppm 단위까지 존재할 수 있다. 탄산염암이 침전되는 경우 일반적으로 지하수에 잘 녹지 않는 Th보다는 U이 선택적으로 농집된다. 따라서 탄산염암은 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 법이나 $^{231}\text{Pa}/^{235}\text{U}$ 법과 같은 딸핵종결핍법이 성공적으로 적용될 수 있는 물질이다. 두 방법 중 더 흔하게 적용되는 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 법의 모핵종인 ^{234}U 의 반감기는 $2.48 \times 10^5\text{y}$ 이고 딸핵종인 ^{230}Th 의 반감기는 $7.52 \times 10^4\text{y}$ 이다(Ivanovich, 1992의 Table 1.2). ^{230}Th 과 ^{234}U 의 붕괴율, 즉 방사능은 시스템 내에 ^{230}Th 의 수가 가장 많아지는 $T_{\max} = (\ln\lambda_{230} - \ln\lambda_{234}) / (\lambda_{230} - \lambda_{234}) = 185,828\text{년}$ (λ_{230} 과 λ_{234} 는 각각 ^{230}Th , ^{234}U 의 붕괴상수) 이후 같아지기 시작하여 시차평형에 접근하며 분석 오차를 감안할 때 가능한 연대측정 범위는 약 35만년 정도이다. 최초 시스템의 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U} = 0$ 이라고 가정하면 폐쇄계를 유지하였을 경우 일정 시간 t 가 지난 후 시스템의 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 방사능비는 다음 식과 같이 정의된다(Ivanovich *et al.*, 1992).

$$\frac{^{230}\text{Th}}{^{234}\text{U}} = \frac{1 - e^{-\lambda_{230}t}}{^{234}\text{U}/^{238}\text{U}} + \left(1 - \frac{1}{^{234}\text{U}/^{238}\text{U}}\right) \frac{\lambda_{230}}{\lambda_{230} - \lambda_{234}} (1 - e^{-(\lambda_{230} - \lambda_{234})t})$$

초기 30,000년까지는 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 비의 변화가 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 비와 별 관계를 보이지 않아서 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U} = 1 - e^{-\lambda_{230}t}$ 로 보아도 된다.

$^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 법의 가장 큰 문제점은 초기 시스템에 있을 수 있는 쇄설성(detrital) ^{230}Th 이다. 탄산염암에 있는 쇄

Table 1. MC ICP-MS instrument settings and data acquisition parameters
(Model: Fisons AXIOM)

Plasma		
Forward power/W		1350
Cool gas flow/lmin ⁻¹		13.0
Aux gas flow/lmin ⁻¹		0.78
Neb gas flow/lmin ⁻¹		1.00
MCN 6000		
Sample uptake rate/mlmin ⁻¹		0.10
Nebulizer: PFA 100		
Spray chamber:	material	PFA
	temperature (°C)	100
Sweep gas:	Ar / lmin ⁻¹	2.14
	N ₂ / lmin ⁻¹	0.10
Beam tuning		
X Lens (V)		-1701
X1 deflection (V)		-13
Y1 deflection (V)		-16
X2 deflection (V)		-32
Y2 deflection (V)		29
Y3 deflection (V)		-12
Acquisition parameters		
Multicollection	Detector	EM, H1, H2, H3, H4
	Acquisition time (sec)	10
	Cycle	1
	Acquisition No.	20
E-scan	Detector	EM
	Points/peak	5
	Scans	1
	Peak widths	1
	Sweeps	100
	Dwell time (ms)	10

설성 ^{230}Th 에 대해 적절한 방법으로 보정하지 않으면 실제 연대에 비해 오래된 걸보기 연령이 나올 수 있으며 최근 제시된 대표적인 쇄설성 ^{230}Th 보정방법으로 시료를 다 녹이는 등시선 방법(TSD; total sample dissolution; Bischoff and Fitzpatrick, 1991; Luo and

Table 2. The arrangement of detectors of MC ICP-MS in $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$, $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$, and $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ measurements.

Measurement	EM	H1	H2	H3	H4
$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	234	235	236	237	238
$^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$	230	232		235	238
$^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$	232	235	236	237	238

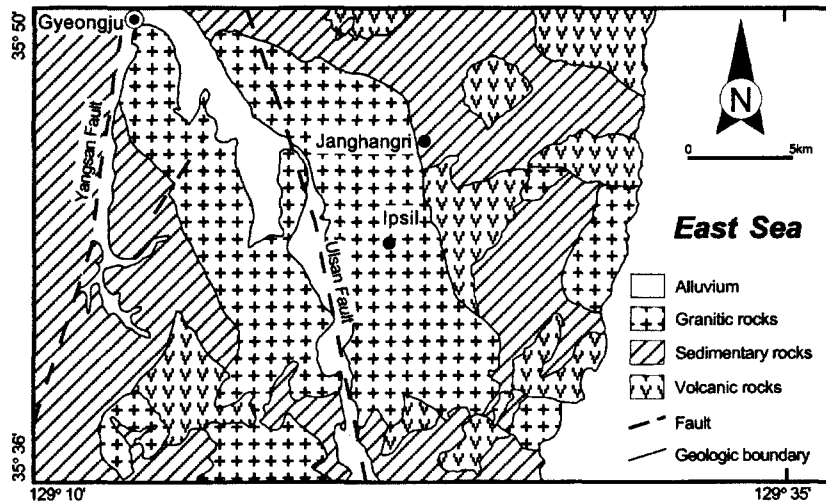


Fig. 1. Generalized geologic map of the Gyeongju-Ulsan area, Korea (after Lee *et al.*, 1995) and the locations of the Ipsil and Janghangri fault zones.

Ku, 1991)을 들 수 있다.

질량분석기에 의한 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 동위원소희석법 연대 측정은 고전적인 자연방사능 측정시스템(α spectrometry)에 의한 방법보다 일반적으로 자료의 정밀도가 우수하지만(Edward *et al.*, 1987) 자연방사능측정법과 마찬가지로 U, Th의 분리에 오랜 시간이 소요된다. 그러나 자연방사능측정법에서 스펙트럼의 간섭 현상 때문에 요구하는 U과 Th 사이의 화학적 분리는 질량분석법의 경우 필요하지 않다는 장점이 있다.

이 논문에서는 경주 일대에 분포하는 제4기 추정 단층 중 입실단층과 장항리단층의 파쇄대를 충전한 탄산염암 맥을 대상으로 한국기초과학지원연구원의 다검출기 유도결합 플라즈마 질량분석기(MC ICP-MS; multiple collector inductively coupled plasma mass spectrometer, Fison AXIOM model)와 간편하고 신속한 U, Th 단체분리법을 이용한 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 비평형 연대를 보고한다. 탄산염암은 파쇄대를 충전하고 있기 때문에 그 연대는 파쇄대의 최소 생성시기를 지시할 것이다.

지질 배경과 시료

연구지역은 경북 경주시 일대의 제4기 추정단층 중 입실단층과 장항리단층이다(Fig. 1; Lee *et al.*, 1995). 연구지역의 지질은 전반적으로 경상누층군의 퇴적암과 화산암류, 그리고 그를 관입한 제3기 화강암체로 이루어져 있다.

입실단층은 경주시 외동읍 입실리에서 양남면으로

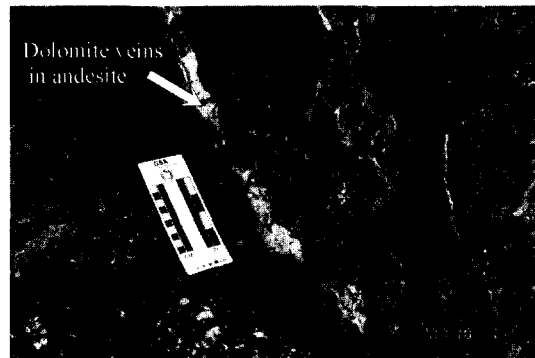


Fig. 2. Field photograph of fracture-filling carbonate vein in the Ipsil fault zone.

가는 지방도로의 남쪽 (N35°43'09.1"/ E129°21'12.2")에 발달되어 있다. 주단층면의 주향과 경사는 NS/70°E 정도이고 단층면을 경계로 하여 동측은 안산암이 그리고 서측은 화강암이 접하며 이들을 부정합으로 덮는 신기계 퇴적층이 약 7m의 낙차로 변위되어 있다. 최위찬 외(1998)는 입실단층대의 모암인 안산암에 대해 48.8 ± 1.6 Ma의 K-Ar 연대를 보고하였다. 입실 지역 화강암의 연대가 직접적으로 측정된 바는 없지만 Kim and Kim(1997)은 남산 알칼리 화강암에 대한 동위원소 연구를 통해 경주 지역 A-type 알칼리 화강암과 각섬석 흑운모 화강섬록암 및 흑운모 화강암의 Rb-Sr 전암 연대를 49.7 ± 0.1 Ma($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr} = 0.70486 \pm 0.00001$)로 보고한 바 있다. 따라서 입실 지역 단층대의 모암인 화

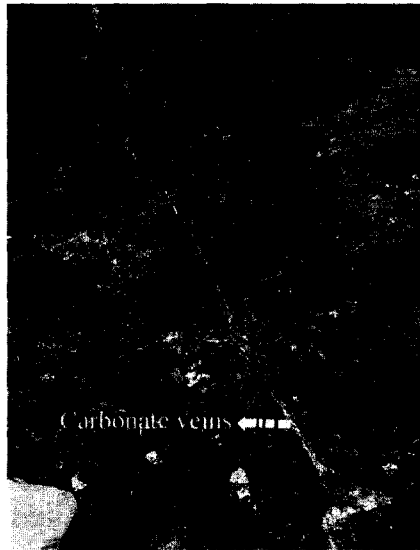


Fig. 3. Field photograph of fracture-filling carbonate vein in the Janghangri fault zone.

강암과 안산암은 거의 동시기 화성 활동의 산물로 생각된다. 계곡 퇴적층은 폭 약 10 m의 안산암 파쇄대를 덮고있어 제3기 이전에 이미 단층활동이 있었음을 알 수 있다. 이 단층은 우수향의 주향이동단층으로 해석되고 있다(최위찬 외, 1998). 이회권(1998)은 입실단층의 단층비지에 대해서 1131±104 ka, 1601±193 ka, 1724±235 ka의 평탄역 ESR 연령(plateau ESR age)을 보고한 바 있다. 입실 단층대의 안산암 파쇄대에는 탄산염암 맥이 충전되어 있다(Fig. 2). 파쇄대의 주향 방향은 단층 비지대와 비슷한 NS이고 경사는 70°E 내지 수직이다. 그를 채운 탄산염암 맥의 두께는 대개 1~3 cm 정도이다. 한 돌로마이트 맥에서 수 cm 내지 수십 cm 간격으로 4개의 시료(9912IPIR-1A, -1B, -1C, -1D)를 채취하였고 약 6 m 정도 떨어진 위치의 다른 돌로마이트 맥에서 수 cm 간격으로 3개의 시료(9912IPIR-2A-1, -2A-2, -2B)를 채취하였다. 그리고 그 주변에서 포 상으로 파쇄대를 채운 방해석 시료(CIPIR2-1)와 돌로마이트 시료(CIPIR2-2)를 채취하였다.

장항리단층(N35°46'20.1"/E129°22'36.3")은 경상누층군의 호운펠스를 모암으로 발달해 있는 N38°E/82°NW 방향의 고각도 단층인데 단층대 상부의 신기 퇴적층까지 단층이 연장되어 있는지는 불명확하다. 퇴적층의 층리 방향은 대개 N48°E/25°NW 정도이다. 단층과 거의 같은 방향(N24°E/67°SE)의 파쇄대를 채운 탄산염암 맥을 채취하였다(Fig. 3; 시료 0007JH-4-1, 4-2).

실험 방법

시료 전처리

^{230}Th 과 ^{232}Th 은 자연계에서 함께 거동한다고 보아도 되므로 쇄설성 ^{230}Th 의 보정에는 ^{232}Th 을 이용한다. 시료에 있는 자생적인(authigenic) 부분의 연대를 구하기 위하여 약한 산(대개 2M 질산)으로 자생적인 부분만 용해될 수 있도록 추출하여 추출물과 남아있는 잔류물의 U, Th 동위원소비 관계를 이용하거나(L/R method; Ku *et al.*, 1979), 같이 생성된 부분의 산 추출물들을 이용하는 방법(L/L method; Schwarcz and Latham, 1989)이 이용되어 왔다. 그러나 대부분의 탄산염암은 약산으로 녹인다고 해도 잔류물이 별로 남지 않으며 L/R 법이나 L/L법에서 시료에 산을 가했을 때 동위원소들이 각각 서로 다른 비율로 녹아 나올 가능성(DIF; differential isotopic fractionation)은 실험실에서 조절하여 반복적으로 재현하기 매우 어렵다(Schwarcz and Latham, 1989; Kaufman, 1993). Bischoff and Fitzpatrick(1991), Luo and Ku(1991) 등은 이러한 문제점들이 TSD(total sample dissolution)법에 의해 극복될 수 있다고 주장하였으며 이번 실험에서도 시료를 완전히 녹이는 TSD법을 적용하였다.

시료 약 1g을 50 ml 원심분리기 튜브에 넣고 초순수 10ml로 시료를 적신 다음 진한 염산(12N)을 첨가하면서 탄산염을 산 분해한다. 진한 염산 10 ml 정도를 첨가하여 염산 용액이 6N 정도 되면 물 중탕기(water bath)에서 6시간 정도 반응을 계속시킨다. 반응이 끝난 후 원심분리(2500 rpm 15분)하여 상등액을 50 ml 플라스틱 병에 보관하고 초순수 20 ml를 원심분리기 튜브에 넣고 잔류 Ca를 씻은 다음 다시 원심분리하여 상등액을 앞의 병에 합친다. 원심분리기 튜브에 남은 고형물을 테플론 가압 산분해 용기로 옮기고 혼합산(불산 : 과염소산 = 4 : 1) 2 ml로 12시간 동안 용해시킨다. 잔류산을 증발시킨 후 1N 염산 용액으로 용출하여 앞의 플라스틱 병에 합쳐 총용액을 평량한다. 이 용액 중 2 ml를 취해 5배 희석하여 Th 및 U 농도 및 $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 비율 측정에 사용하고 나머지 용액은 ^{230}Th 과 ^{234}U 을 농축하기 위하여 아래 과정과 같이 처리하였다.

U 계열 비평형 연대측정을 위한 핵종의 화학적 분리는 일반적으로 공침, 이온교환수지, 액상-액상 분리법 등을 이용한다(Lally, 1992). 이번 실험에서는 공침과 이온교환수지법을 함께 적용하여 U과 Th을 단계 분리하였다.

먼저 Fe 공침을 위해 1000 ppm Fe 표준용액 2 ml를

Table 3. The calibration result of measured U/Th ratio.

U(ppb) ¹	Th(ppb) ¹	²³⁸ U/ ²³² Th ¹	²³⁸ U/ ²³² Th _m ²	%SE	true/measured
50.60	0.270	181.438	262.765	0.44	0.6905
49.63	0.531	90.375	126.533	0.23	0.7142
49.23	1.050	45.365	62.305	0.23	0.7281

1. Standard values

2. Measured ratio

각 시료에 넣고 암모니아로 pH 8.5-9 사이로 조절하여 Fe(OH)₃ 침전물을 만들었다. 원심분리하여 상등액을 버리고 초순수 10 ml로 잔류물을 씻은 다음 다시 원심분리하여 상등액을 버렸다. 진한 질산 2-3 ml로 Fe 침전물을 용해하고(이 때 시료에 따라서는 용해가 잘 안되므로 물중탕이 필요하다) 초순수로 20 ml 정도 맞춘 다음 암모니아로 다시 Fe(OH)₃ 침전물을 만들었다. 원심분리하여 상등액을 버리고 8 M 질산용액 7-8 ml로 침전물을 용해시켰다. 두 번의 Fe 공침으로 염소 이온을 거의 제거할 수 있으며 대부분의 Th과 U을 회수할 수 있었다. AG1-X8(100-200 mesh) 음이온 교환수지 4 ml를 플라스틱 컬럼(8 mm×200 mm)에 충전하고 8 M 질산용액 12 ml를 통과시켜 수지를 질산염 형태로 만들었다. 여기에 시료를 통과시키고 8 M 질산 8 ml로 잔류물을 씻어낸 다음 1 N 염산 12 ml와 9 M 염산 12 ml로 Th과 U을 추출하여 테플론 바이알(vial, 30 ml)에 받았다. 이를 가열판에서 증발 건조시키고 진한 질산 2-3 방울로 잔류 유기물을 분해시킨 다음 1 N 질산 2 ml로 Th과 U을 용해시켰다. 이 과정을 통해 Th 80%, U 70% 정도를 회수할 수 있었다. 시료 용해와 칼럼화학 과정의 총 바닥값은 ²³⁴U 0.007pg, ²³⁸U 0.077ng, ²³⁰Th 0.01pg, ²³²Th 0.67ng 수준이었다.

기기 측정

시료의 U, Th 함량은 사중극자 유도결합 플라즈마 질량분석기(Quadrupole inductively coupled plasma mass spectrometer, VG PQ3 model)로 측정되었다. 동위원소비 측정 기기는 MC ICP-MS이고(기기 구성에 대해서는 이 논문과 함께 수록된 최만식 외(2001)에 설명되어 있다) 시료 도입 부분은 입실단층 시료의 경우 표준 뉴머틱(pneumatic) 시스템을 이용하였다. 장항리 단층 시료의 U, Th은 0.2 ppm 이하이므로 ²³⁰Th 및 ²³⁴U의 신호를 최대 만들기 위해 시료 도입 장치로 MCN6000(Cetac Ltd.)에 PFA-100 네블라이저(nebulizer)와 PFA 스프레이 챔버(spray chamber; Elemental Scientific Ltd.)를 장착하여 사용하였다. 이 장치를 사용하면 ²³⁰Th/²³²Th 비율을 측정할 때 시료 1 ml로 가능하며

보통의 뉴머틱 네블라이저보다 5배 이상의 감도를 얻을 수 있기 때문이다. 기기측정 조건은 Table 1과 같다.

먼저 EM(Electron Multiplier)과 페러데이 검출기 사이의 효율을 U010 표준시료의 ²³⁴U/²³⁸U비 측정값을 사용하여 측정하였다(N=30, 10s integration). 이 때 표준물질의 ²³⁸U/²³⁵U비와 지수법칙(exponential law)를 사용하여 질량분별효과를 동시에 보정하였다. 기기 상태에 따라 달라지지만 그 효율 보정인자는 대개 2.17~2.32 정도였다. 효율 보정인자를 고정시킨 상태에서 측정된 표준물질(U015)의 ²³⁴U/²³⁸U비에 대한 외부정밀도(N=4)는 0.18%(2σ RSE) 수준으로 이 오차가 효율 보정인자의 변화에 따른 오차에 대한 최대값이다. 왜냐하면 이 오차에는 효율 보정인자의 변화와 함께 기기가 자체적으로 가지는 전자적인 배경값(instrumental noise)까지 반영되어 있기 때문이다. ²³⁴U/²³⁸U, ²³⁰Th/²³²Th, ²³²Th/²³⁸U비를 측정할 때 검출기 배치는 Table 2와 같다. 시료의 경우 ²³⁸U/²³⁵U = 137.88과 지수법칙을 이용하여 질량분별효과를 보정하면서 정적인 모드(static mode)로 ²³⁴U/²³⁸U, ²³⁰Th/²³²Th를 측정하였다(N=30, 5s integration).

²³²Th/²³⁸U 비를 측정할 때에는 스파이크 없이 약 500 배 희석 용액을 이용하여 직접 측정하였다(N=30, 5s integration). 질량분별효과는 지수법칙을 이용하여 ²³⁸U/²³⁵U = 137.88 기준으로 보정하였다. 서로 다른 원소의 동위원소비를 측정할 때에는 두 원소가 플라즈마에서 이온화되는 성질이 다를 수 있기 때문에 표준용액에 의한 보정이 필요하다(Halliday et al., 1995). 이번 실험에서는 입실단층 시료를 위해 U/Th = 200, 100, 50 (U = 50 ppb) 표준용액을 이용하였으며 그 보정 결과는 Table 3과 같다. U/Th비가 변화에 따라 보정 인자는 다소 변하며 그 변화 정도는 U/Th = 200-50 범위에서 약 5% 수준이다. 실제로 계산과정에서 적용할 때에는 각 시료와 가장 U/Th비가 가까운 표준용액의 보정인자를 사용하였다. 한편 장항리 단층 시료의 경우 낮은 U, Th 농도때문에 보통의 페러데이(Faraday) 검출기는 사용할 수 없었으며 ²³²Th/²³⁸U 비율을 EM(Electron Multiplier)만으로 측정하였는데 이스캔 모드(E-scan mode)에서 각

시료당 5회 반복하였다. 원소별 분별은 비율 표준 용액 3가지(Th/U 비율 0.1, 1, 5)를 이용하여 보정하였다. 실제값과 측정값 사이에는 실제값 = 1.347 × 측정값 - 0.127 ($r^2 = 0.998$)의 관계를 보였다. 시료의 $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 비가 가지는 오차에는 EM과 패러데이 검출기 사이의 효율 보정인자의 변화 및 전자적인 배경값 외에도 시료의 매트릭스 효과(matrix effect)까지 같이 반영되기 때문에 현재 자료로 정확하게 평가하기는 어려우며 그에 대해서는 현재 추가적인 연구가 진행 중이다.

분석 결과 및 토의

Luo and Ku(1991)가 유도한 TSD법의 방사능 관계식을 인용하면 다음과 같다. 아래 식의 비율은 모두 방사능비이며 아래 첨자 a는 자생적인 부분, d는 쇄설성 부분을 의미하며 $^{230}\text{Th}^*$ 는 자생적이든 쇄설성이든간에 ^{234}U 의 붕괴에 의해 생긴 ^{230}Th 의 방사능을 지시한다. 다음 식에 의해 쇄설성 부분이 보정된 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 연대를 구할 수 있다.

$$\frac{^{230}\text{Th}}{^{232}\text{Th}} = U \frac{^{234}\text{U}}{^{232}\text{Th}} + E, \quad \frac{^{234}\text{U}}{^{232}\text{Th}} = W \frac{^{238}\text{U}}{^{232}\text{Th}} + F$$

$$U = \left(\frac{^{230}\text{Th}^*}{^{234}\text{U}} \right)_a, \quad E = \left(\frac{^{230}\text{Th}}{^{232}\text{Th}} \right)_d e^{-\lambda_{230}t} +$$

$$\left[\left(\frac{^{230}\text{Th}^*}{^{234}\text{U}} \right)_d - \left(\frac{^{230}\text{Th}^*}{^{234}\text{U}} \right)_a \right] \left[\left(\frac{^{234}\text{U}}{^{232}\text{Th}} \right)_d \right]$$

$$W = \left(\frac{^{234}\text{U}}{^{238}\text{U}} \right)_a,$$

$$F = \left(\frac{^{238}\text{U}}{^{232}\text{Th}} \right)_d \left[\left(\frac{^{234}\text{U}}{^{238}\text{U}} \right)_d - \left(\frac{^{234}\text{U}}{^{238}\text{U}} \right)_a \right]$$

Luo and Ku (1991)는 증발잔류암을 대상으로 TSD법을 적용하여 $(^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th})_A$, $(^{234}\text{U}/^{232}\text{Th})_A$, $(^{234}\text{U}/^{238}\text{U})_A$, $(^{238}\text{U}/^{232}\text{Th})_A$ 그림의 등시선 각도로부터 각각 쇄설성 부분이 보정된 $(^{230}\text{Th}/^{234}\text{U})_A$, $(^{234}\text{U}/^{238}\text{U})_A$ 비를 구했는데 보정되지 않은 연대에 비해 경우에 따라 10배 이상 젊은 경우도 있었다. 그들의 쇄설성 부분이 보정된 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 연대는 야외 관계 및 깊이 순서와 일치하여 자료의 신빙성을 지시한다.

입실단층과 장항리단층 파쇄대 충전 탄산염암의 최종 분석결과는 Table 4와 같다. 입실단층 시료의 경우 시료의 U, Th 함량을 다 측정하지 않았으나 예비적인 사중극자(quadrupole) ICP-MS 분석결과에 의하면 U 함

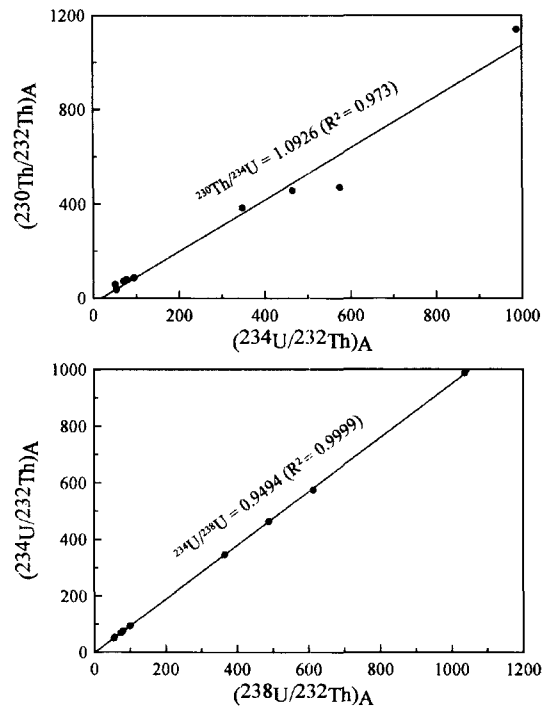


Fig. 4. Isochron plots for carbonate samples of the Ipsil fault zone.

량이 5 ppm 내외이다. 입실단층 시료의 $(^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th})_A$ 방사능비는 36.7~1139.4로 매우 높은 편이다. $(^{234}\text{U}/^{238}\text{U})_A$ 방사능비는 0.94 내지 0.95 정도로 균질하다. $(^{238}\text{U}/^{232}\text{Th})_A$ 방사능비는 54.3~1037.4 범위로 역시 대단히 높고 U/Th 농도비로 환산하면 17.9~341.9가 된다. 한 맥에서 채취한 시료들도 매우 불균질한 U/Th 방사능비를 보여 이들이 cm 규모에서도 U/Th 방사능비에 있어 불균질함을 알 수 있다. 개별 시료의 $(^{230}\text{Th}/^{234}\text{U})_A$ 방사능비는 두 시료 정도(9912IPIR-1A, 9912IPIR-2A-2)를 제외하고는 대개 1 근처로서 거의 시차평형에 도달해 있다. 자료들을 TSD 등시선 그림에 점시해 보면 Fig. 4와 같다. 자생적인 부분의 $(^{234}\text{U}/^{238}\text{U})_A$ 방사능비로 해석되는 $(^{234}\text{U}/^{232}\text{Th})_A$ - $(^{238}\text{U}/^{232}\text{Th})_A$ 그림의 각도는 0.9494($R^2 = 0.9999$)로 잘 정의되지만 $(^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th})_A$ - $(^{234}\text{U}/^{232}\text{Th})_A$ 그림의 각도는 1.0926($R^2 = 0.973$)로서 분산 정도가 심하다. 하지만 Fig. 4에서 계산된 자생적인 부분의 $(^{230}\text{Th}/^{234}\text{U})_A$ (=1.0926) 역시 이들 시료들이 ^{234}U - ^{230}Th 시차평형에 도달해 있다는 점을 지시한다. TSD법으로 구한 $(^{234}\text{U}/^{238}\text{U})_A$ 방사능비와 $(^{230}\text{Th}/^{234}\text{U})_A$ 방사능비가 개별 시료의 자료와 거의 유사한데 이는 시료 내에 쇄설성 부분이 거의 무시할 만한 수준이라는 것

Table 4. U-Th isotope data of carbonate samples from the Ipsil and Janghangri fault zones, Korea.

	U ¹		Th ¹		$(^{238}\text{U}/^{238}\text{U})_A$		$(^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th})_A$		$(^{238}\text{U}/^{232}\text{Th})_A$		$(^{230}\text{Th}/^{234}\text{U})_A$		$^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ age ² (ka)
	(ppm)	(ppm)	Mean	2σ%SE	Mean	2σ%SE	Mean	2σ%SE	Mean	2σ%SE	Mean	2σ%SE	
Ipsil fault zone													
CIPIR2-1			0.940	0.20	72.4	1.06	74.4	1.77	1.035	2.07			
CIPIR2-2			0.931	0.22	59.0	0.50	54.3	1.18	1.168	1.30			
9912PIR-1A			0.938	0.13	471.4	0.60	613.4	0.87	0.819	1.07			
9912PIR-1B			0.952	0.06	1139.4	0.22	1037.4	0.44	1.154	0.49			
9912PIR-1C			0.949	0.09	457.5	0.20	489.1	0.97	0.985	0.99			
9912PIR-1D			0.948	0.13	384.3	0.44	366.0	0.60	1.108	0.76			
9912PIR-2A-1			0.952	0.27	87.1	0.31	99.4	1.30	0.921	1.36			
9912PIR-2A-2			0.962	0.26	36.7	0.73	55.6	1.10	0.686	1.35			
9912PIR-2B			0.958	0.17	79.6	0.24	79.8	0.78	1.042	0.84			
Janghangri fault zone													
0007JH-4-1	0.106	0.199	1.050	0.15	4.45	0.56	6.18	1.25	0.686	1.38			124.2±3.2
0007JH-4-2	0.090	0.114	1.046	0.21	4.77	0.78	7.05	0.46	0.647	0.93			112.0±1.8

1. Determined by quadrupole ICP-MS
 2. Calculated by Ludwig (1994), detrital ²³⁰Th is not corrected. Two point isochron age = 41± 41 ka (see text).

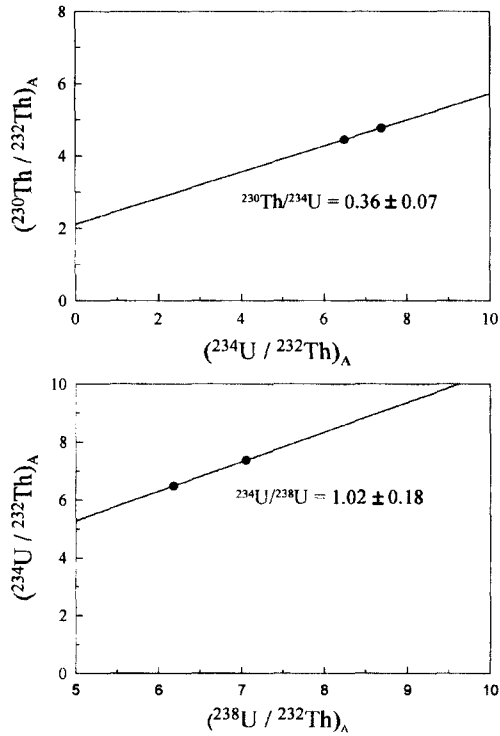


Fig. 5. Isochron plots for carbonate samples of the Janghangri fault zone.

을 의미한다. $(^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th})_A$ - $(^{234}\text{U}/^{232}\text{Th})_A$ 그림에서 나타나는 입실단층 시료의 자료 분산(Fig. 4)은 ^{234}U 의 유동 때문이거나 시료 개개별로 개입된 쇄설성 물질의 종류가 달랐기 때문일 것이지만 전체적으로 시료의 쇄설성 부분을 거의 무시할 수 있어 전자의 가능성이 더 높다. 지표 환경에서 ^{234}U 이 ^{238}U 보다 더 유동적으로 거동하는 점은 잘 알려져 있으며(Osmond and Ivanovich, 1992) 입실 단층대 탄산염암 시료들의 경우 그 유동이 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 비에 큰 영향을 줄 정도는 아니었으나 시료의 U/Th비가 매우 높아서 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 비에는 영향을 줄 수 있었을 것이다. 이상의 결과로 미루어 볼 때 입실 단층대 파쇄대를 충전한 탄산염암 맥의 생성 시기는 시차평형을 이루는 데 필요한 시간 즉 35만년 이상이라고 해석된다. 따라서 입실 단층 파쇄대의 형성 시기 또한 35만년 이상으로 판단되며 이러한 결론은 기존에 보고된 입실 단층대 단층비지의 ESR 연대(이회권, 1998)가 대개 110만년, 160만년 및 170만년 정도인 점과 부합된다.

Table 4에 정리된 장항리단층 방해석 맥(0007JH-4)에 대한 분석결과를 Ludwig(1994)의 ISOPLLOT 프로그램

으로 계산해 보면 두 시료의 $(^{230}\text{Th}/^{234}\text{U})_A$, $(^{234}\text{U}/^{238}\text{U})_A$ 방사능비가 지시하는 걸보기 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 연대는 $124.2 \pm 3.2(2\sigma)$ ka, $112.0 \pm 1.8(2\sigma)$ ka 정도이지만 그 연대는 쇄설성 ^{230}Th 에 대한 보정이 이루어지지 않은 값이다. Table 4에서 보는 바와 같이 시료의 Th 농도는 U 농도보다 오히려 높아 의미있는 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 연대를 구하기 위해서는 쇄설성 부분의 보정이 필수적이다. Fig. 5에서 $(^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th})_A$ - $(^{234}\text{U}/^{232}\text{Th})_A$ 그림의 기울기는 $0.36 \pm 0.07(2\sigma)$ 로서(Ludwig, 1994) TSD법에 의해 구한 자생적인 부분의 $(^{230}\text{Th}/^{234}\text{U})_A$ 방사능비를 의미한다. 또 $(^{234}\text{U}/^{232}\text{Th})_A$ - $(^{238}\text{U}/^{232}\text{Th})_A$ 그림의 기울기는 $1.02 \pm 0.18(2\sigma)$ 로서(Ludwig, 1994) TSD법에 의해 구한 자생적인 부분의 $(^{234}\text{U}/^{238}\text{U})_A$ 방사능비를 의미하며 거의 시차평형에 도달해 있음을 알 수 있다. Fig. 5의 두 기울기가 지시하는 자생적인 부분의 $(^{230}\text{Th}/^{234}\text{U})_A$, $(^{234}\text{U}/^{238}\text{U})_A$ 방사능비를 Ludwig(1994)의 ISOPLLOT 프로그램으로 계산해 보면 두 비 사이의 상관계수(correlation coefficient)를 0으로 주었을 때 48 ± 41 ka의 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 연대를 나타낸다. 연대의 오차가 큰 이유는 두 시료의 $(^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th})_A$, $(^{234}\text{U}/^{232}\text{Th})_A$, $(^{238}\text{U}/^{232}\text{Th})_A$ 값 변화폭이 매우 좁아 기울기의 오차가 커졌기 때문이다. 결론적으로 장항리 단층대 탄산염암맥의 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 비평형 연대는 48 ± 41 ka로서 파쇄대의 최소 형성시기를 지시한다고 볼 수 있다. 그러나 두 시료만으로 등시선을 정의하는 것은 무리가 있으며 장항리 단층대 시료의 U 함량이 0.1 ppm 내외로 매우 낮은 수준이라는 점을 고려한다면 연대를 정확히 측정하기 위해서는 앞으로 추가적인 분석이 필요하다고 판단된다.

결 언

경주 지역 입실단층과 장항리단층 파쇄대를 충전한 탄산염암 맥을 대상으로 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ TSD 비평형 연대를 측정하기 위하여 공침과 이온교환화학을 이용하는 쉽고 간편한 U, Th 단체분리법을 시행한 결과 Th 80%, U 70% 정도를 회수할 수 있었다. 기기 조건이 최적화된 다검출기 유도결합 플라즈마 질량분석기를 이용하여 U, Th를 분리한 부분으로부터 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$, $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ 비를 분석하였고 U/Th비는 녹인 시료용액으로부터 직접 분석하였다. 분석 결과 입실단층의 탄산염암 맥은 ^{234}U - ^{230}Th 시차평형에 도달하여 기존의 ESR 연대측정 결과를 지지하였고 장항리단층의 탄산염암 맥은 48 ± 41 ka의 쇄설성 부분이 보정된 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 비평형 연대를 보이는데 이는 파쇄대의 최소 형성시기를 지시하는 것으로 생각된다.

사 사

이 연구는 과기부 원자력증장기 계획사업(과제명: 지진 안전성 평가기반 기술개발)에 의해 지원되었으며 이에 감사드린다. 이 논문을 심사하면서 유익한 지적과 충고를 해 준 부경대학교 박계현 교수와 연세대학교 권성택 교수께 감사드린다.

참고문헌

이희권, 1998, 단층 활동시기 결정. 양산단층을 고려한 설계기준지진의 재평가 최종보고서, 한국자원연구소, 한국전력공사, 555-671.

최위찬 외 45인, 1998, 양산단층을 고려한 설계기준지진의 재평가 최종보고서, 한국자원연구소, 한국전력공사, 1694p.

Bischoff, J.L. and Fitzpatrick, J.A., 1991, U-series dating of impure carbonates: An isochron technique using total-sample dissolution. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 55, 543-554.

Edward, R.L., Chen, J.H. and Wasserburg, G.J., 1987, ^{238}U - ^{234}U - ^{230}Th - ^{232}Th systematics and the precise measurement of time over the past 500,000 years. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 81, 175-192.

Halliday, A.N., Lee, D.C., Christensen, J.N., Walder, A.J., Freedman, P.A., Jones, C.E., Hall, C.M., Yi, W., Teagle, D., 1995, Recent developments in inductively coupled plasma magnetic sector multiple collector mass spectrometry. *Int. Jour. Mass Spec. Ion Processes*, 146/147, 21-33.

Ivanovich, M., 1992, The phenomenon of radioactivity. In *U-series disequilibrium: Applications to earth, marine, and environmental sciences* (ed. M. Ivanovich and R.S. Harmon), Clarendon Press, Oxford, 1-33.

Ivanovich, M., Latham, A.G. and Ku, T.-L., 1992, U-series disequilibrium applications in geochronology. In *U-series disequilibrium: Applications to earth, marine, and envi-*

ronmental sciences (ed. M. Ivanovich and R.S. Harmon), Clarendon Press, Oxford, 62-94.

Kaufman, A., 1993, An evaluation of several methods for determining $^{230}\text{Th}/\text{U}$ ages in impure carbonates. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 57, 2303-2317.

Kim, C.S. and Kim, G.S., 1997, Petrogenesis of the early Tertiary A-type Namsan alkali granite in the Kyongsang Basin, Korea. *Geosci. Jour.*, 1, 99-107.

Ku, T.L., Bull, W.B., Freeman, S.T. and Knauss, K.G., 1979, Th^{230} - U^{234} dating of pedogenic carbonates in gravelly desert soils of Vidal Valley, southern California. *Geol. Soc. Amer. Bull.*, 90, 1063-1073.

Lally, A.E., 1992, Chemical procedures. In *U-series disequilibrium: Applications to earth, marine, and environmental sciences* (ed. M. Ivanovich and R.S. Harmon), Clarendon Press, Oxford, 95-126.

Lee, M.J., Lee, J.I. and Lee, M.S., 1995, Mineralogy and major element geochemistry of A-type alkali granite in the Kyeongju area, Korea. *Jour. Geol. Soc. Korea*, 31, 583-607.

Ludwig, K.R., 1994, ISOPLOT-A plotting and regression program for radiogenic isotope data, version 2.71. USGS Open File Rep. 91-445.

Luo, S. and Ku, T.-L., 1991, U-series isochron dating: A generalized method employing total-sample dissolution. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 55, 555-564.

Osmond, J.K. and Ivanovich, M., 1992, U-series mobilization and surface hydrology. In *U-series disequilibrium: Applications to earth, marine, and environmental sciences* (ed. M. Ivanovich and R.S. Harmon), Clarendon Press, Oxford, 259-289.

Schwarcz, H.P. and Latham, A.G., 1989, Dirty calcites 1. Uranium-series dating of contaminated calcite using leachates alone. *Chem. Geol.*, 80, 35-43.

(2001년 2월 19일 접수, 2001년 10월 17일 채택)