

Pre-dose effect를 이용한 고고학 시료의 연대측정

김명진^{1,2} · 홍덕군^{2*}

¹(재)충청문화재연구원

²강원대학교 물리학과

(2005. 3. 11 접수, 2005. 7. 19 승인)

The age dating for an archaeological sample using pre-dose effect

Myung-Jin Kim^{1,2} and Duk-Geun Hong^{2*}

¹Chungcheong Cultural Properties Research Institute, 233, Bonggok-ri, Banpo-myeon, Gongju 314-923, Korea

²Dept. of Physics, Kangwon National University, 192-1, Hyocha2-dong, Chuncheon 200-701, Korea

(Received March 11, 2005, Accepted July 19, 2005)

요 약 : Pre-dose 연대측정법은 석영의 110°C TL 피크의 민감도가 매장 기간 동안 시료가 흡수한 pre-dose와 활성화 온도까지의 열처리에 의해 변화되는 pre-dose 현상을 이용한 연대측정법이다. 이 연구에서는 서천 추동리 문화유적에서 채집된 후 화학적으로 분리된 석영시료를 대상으로 pre-dose 연대측정을 실시하였다. 자연축적선량 결정을 위하여 MA(Multiple Activation)법이 적용되었으며 활성화온도는 시료의 민감도 변화를 고려하여 500°C로 결정하였고 냉광(luminescence)의 합산은 85-105°C 영역에서 이루어졌다. 최종적으로 산출된 시료의 연대는 1725±25년(1 σ SD)이었으며 오차 범위 내에서 방사성탄소 연대측정 결과와 정확히 일치하고 radiocarbon plateau에 포함된 방사성탄소 연대측정보다 높은 정밀도를 가짐을 알 수 있었다. 결론적으로 pre-dose 연대측정을 통하여 산출된 연대는 정밀도와 정확도의 높은 증가로 인하여 기원 이후의 고고학적 사건들에 대한 지시자로서의 역할이 가능하리라 기대된다.

Abstracts : TL dating using pre-dose effect is concerned with the sensitivity increase of 110°C TL peak in quartz following the pre-exposure of irradiation (pre-dose) in antiquity and heating to thermal activation temperature. Using the multiple activation (MA) method for determining an equivalent dose, the activation temperature was selected to 500°C and the region of interest was selected from 85°C to 105°C on quartz sample from archaeological remains, roof-tile kiln, which was excavated at Chudong-Ri cultural site. It was concluded that the resultant date was determined to the age of 1725±25years AD (1 σ SD), which had more improved precision considering with the radiocarbon dates and was in good agreement with the age derived by archaeological assessment. Also it was concluded that the pre-dose dating should contribute significantly to future archaeological dating work in the range of the last 2000 years.

Key words : Pre-dose dating, MA method, TAC, Kiln

★ Corresponding author

Phone : +82-(0)33-250-8473 Fax : +82-(0)33-250-9689

E-mail: dghong@mail.kangwon.ac.kr

1. 서론

냉광(luminescence) 연대측정은 자연계에 일반적으로 존재하는 석영(quartz)과 장석(feldspar), 방해석(calcite) 같은 무기결정 내에 축적된 냉광이 주위 환경방사능과 상관관계에 있어 이들 결정 내에 축적된 냉광을 자연선량계로 이용할 수 있음을 전제로 한다.^{1,2} 시료를 열로 자극할 경우 방출되는 열냉광(thermoluminescence; 이후 TL로 표기)은 1950년대 초 Daniels³에 의하여 처음으로 고고학 유물의 연대측정에 적용된 이후 발전되어 방사성탄소 연대측정(radiocarbon dating)과 더불어 고고학 분야에서의 일반적인 절대연대측정법으로 활용되었다. 이후 Huntly⁴는 퇴적층에서 분리한 석영을 청색 파장의 빛으로 자극하여 방출되는 광자극 냉광(optically stimulated luminescence; 이후 OSL로 표기)을 이용한 연대측정법을 제안하였으며 단일시료 재현법(single aliquot regenerative dose method)⁵과 결합된 OSL 연대측정은 현재 퇴적층에 대한 연대측정 뿐만 아니라 고고학 시료에 대하여 폭넓게 적용되어지고 있다.^{6,7}

단일시료 재현법은 매장기간 동안 시료가 받은 자연 축적선량(equivalent dose)의 측정을 위하여 열처리, OSL 측정, 실험실 조사를 반복적으로 수행한 후 내삽(interpolation)을 통하여 자연축적선량을 결정하는 방법으로 시료간의 규격화(normalization) 과정이 필요 없고 결정된 여러 자연축적선량 값의 통계처리를 통하여 신뢰도 높은 자연축적선량을 얻을 수 있으며 이를 바탕으로 시료의 절대영년(absolute zeroing)을 판단할 수 있다는 장점이 있다. 또한 적은 양의 시료로도 분석이 가능하므로 많은 양의 시료를 얻을 수 없는 고고학 유물에 특히 유용하다. 그러나 반복적인 열처리 및 여기 광원의 조사를 통한 냉광 측정은 시료의 민감도 변화(sensitivity change)를 발생시키므로 시료의 민감도 보정은 자연축적선량의 결정을 위한 전제 조건이 된다. 또한 방사선에 의하여 이온화된 후 트랩에 포획되는 전자의 수는 시간에 비례하여 증가되므로 짧은 시료에서 방출되는 낮은 OSL 세기는 단일시료 재현법을 이용한 자연축적선량의 결정에 문제가 되는 경우가 있다.

단일시료 재현법에서 시료의 민감도 보정이 올바르게 이루어졌음은 recuperation⁸을 통하여 판단할 수 있다. Recuperation은 optical bleaching 과정 동안 OSL에 기여하는 트랩에서 벗어난 전자들 중 일부가 bleaching 정도가 상대적으로 낮은 다른 트랩으로 이동하고, 이후에 열처리나 또는 짧은 수명(life-time)으로 인하여 그들 중 일부가 다시 OSL 트랩으로 재속박되는 현상을

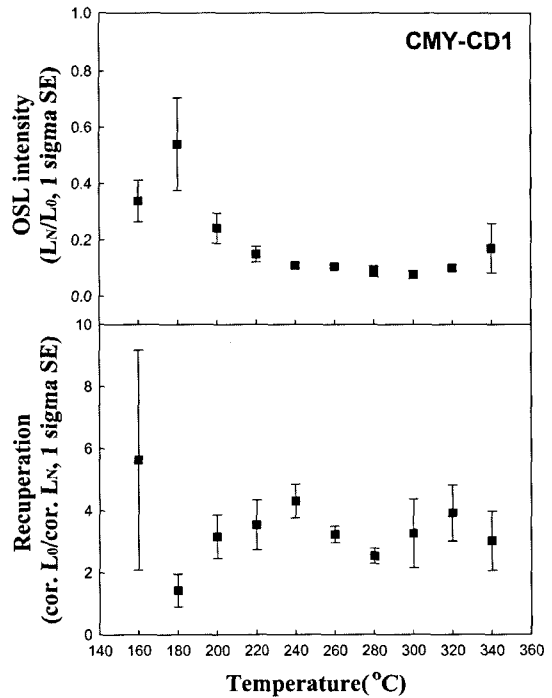


Fig. 1. Plots of the intensity of optically stimulated luminescence and recuperation versus preheat temperature. The intensities were obtained from the ratio natural luminescence over 0-dose luminescence, L_N/L_0 . Also recuperations were calculated using the ratio of 0-dose luminescence over natural luminescence corrected by test dose luminescence, cor. L_0 /cor. L_N . Because of very low natural luminescence and inversely very high recuperation, the general single aliquot regenerative dose method couldn't be applied for determining the equivalent dose.

의미하며 일반적으로 0 부근의 값을 가져야만 한다. Fig. 1에서 냉광의 세기는 자연 냉광과 0-dose 냉광 세기의 비율로 나타내었으며 recuperation은 민감도가 보정된 0-dose와 자연 냉광의 비율로 나타내었다. 그러므로 이 연구에 사용된 시료의 경우 자연 냉광의 세기가 0-dose 냉광의 세기보다 매우 약하고 또한 recuperation 값이 매우 크므로 OSL을 측정하고 단일시료 재현법을 적용하여 자연축적선량을 결정할 수 없음을 알 수 있다.

이 연구에서는 일반적인 단일시료 재현법을 적용하여 자연축적선량을 결정할 수 없었던 서천 추동리 문화유적의 기와 가마로부터 채취된 후 화학적으로 분리된 석영시료를 사용하여 110°C TL 피크를 측정하고 pre-dose 효과를 이용하여 시료의 연대를 산출하는 pre-dose 연대측정을 실시하였다. 또한 동일한 기와 가마 내에서 채취된 목탄에 대한 방사성탄소 연대측정을 실시하여

pre-dose 연대측정 결과의 정확도(accuracy)와 정밀도(precision)를 판단하였다.

2. Pre-dose 연대측정

2.1. Pre-dose 효과

냉광 연대측정에 주로 사용되는 석영과 장석, 방해석 등의 광물에서 발생하는 TL은 일반적으로 안정된 트랩에서 발생하는 TL과 불안정한 트랩에서 발생하는 TL로 구분된다. 특히 석영의 불안정한 트랩에서 발생하는 TL은 110°C TL 피크로 불리며 실온에서의 반감기는 약 1~2시간이므로 자연 상태로는 존재하지 않는다. Pre-dose 효과^{1,2}는 시료가 매장 기간 동안 흡수한 방사선량(pre-dose)과 활성화 온도(activation temperature)까지의 열처리로 인하여 발생하는 110°C TL 피크의 민감도 변화(sensitivity change)를 의미한다.

Pre-dose 효과에서의 민감도 변화는 발광 재결합(radiative recombination) 확률변화로 가정되며 Fig. 2에 나타낸 Zimmerman의 모델^{9,10}로 설명되어진다. 또한 매장 기간 동안 pre-dose에 의한 전자의 포획은 모두 안정한 T_2 트랩에서 이루어지고 정공의 포획은 대부분 L 중심보다 포획 단면적(capture cross-section)이 큰 R 중심에서 시간에 선형적으로 비례하여 증가된다고 가정된다. 이후 시료에 작은 양의 실험실 시험 조사(test dose)가 이루어지면 T_1 과 T_2 의 트랩에는 일정 양의 전자가 포획되며 또한 L과 R 중심에도 정공이 포획된다. 자연

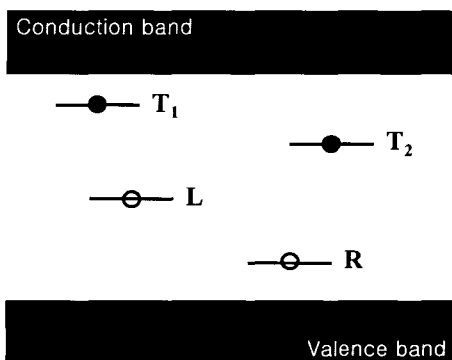


Fig. 2. Zimmerman's energy band model for the pre-dose effect at the 110°C TL peak. In this model, T_1 electron trap is the 110°C TL peak trap and T_2 is the deep trap enough not to be emptied by heating to the thermal activation temperature. L hole center is the radiative recombination center that gives rise to emission of a photon in annihilating with T_1 . R is the non-luminescent center as a reservoir.

상태에서 110°C TL 피크에 관계하는 T_1 트랩에 포획된 전자들은 존재하지 않으므로 발광 재결합 중심 L의 농도가 T_1 의 농도보다 크다. 이 때 측정된 S_0 는 시료의 고유한 특성을 간직하고 있는 110°C TL 피크이다. 다시 활성온도 T_a 까지 가열한 후 시험 조사, TL을 측정하면 처음보다 민감도가 증가된 110°C TL 피크 S_N 이 측정된다. 이러한 TL 신호의 민감도 변화 $S_N - S_0$ 는 활성 온도까지의 열처리 동안 pre-dose에 의하여 R 중심에 포획되었던 정공이 원자가 띠(valence band)로 이동한 후 다시 L 중심에 포획되어 농도가 증가되었기 때문이다.

2.2. Pre-dose 연대측정

Fleming¹¹은 석영에서의 110°C TL 피크의 민감도 변화는 매장 기간 동안 시료가 흡수한 pre-dose에 의존하는 R 중심의 농도 변화와 활성화 온도까지의 열처리가 직접적인 원인이라는 사실에 착안하여 pre-dose 연대측정법을 개발하였다. 일반적으로 pre-dose 연대측정법은 MA(Multiple Activation)법과 AD(Additive Dose)법¹²으로 구분되는데, 이 연구에서는 하나의 시료 디스크(aliquot)를 사용하여 반복적으로 TL을 측정한 후 자연축적선량을 산출하는 MA법을 사용하였다(Table 1).

Aitken과 Murray¹³는 calibration dose의 조사 후 측정된 110°C TL 피크는 방사 소광(radiation quenching)으로 인하여 민감도 감소가 발생할 수 있으며 이의 보정을 위하여 새로운 S_N' 의 측정을 제안하였다. 이러한 민감도 감소는 또한 Zimmerman의 모델로 설명되며 첫 번째 활성온도까지의 열처리 동안 L 중심에 포획되었던 정공 중 일부가 이온화, 3단계 또는 5단계(Table 1)에서 전자와 결합한 후 소멸하여 더 이상 냉광의 발생에 기

Table 1. The sequence of measurements for pre-dose dating with the correction of the radiation quenching effect

Step	Sequence	110°C TL
1	Give test-dose and measure 110°C peak response	S_0
2	Heat to the activating temperature, T_a °C	
3	Give test-dose and measure 110°C peak response	S_N
4	Give laboratory calibrating dose, β	
5	Heat to 160°C	
6	Give test-dose and measure 110°C peak response	S_N'
7	Heat to the activating temperature, T_a °C	
8	Give test-dose and measure response	$S_{N+\beta}$

여하지 않기 때문이다. 그러므로 pre-dose 연대측정에서 자연축적선량은 다음과 같이 계산되어진다.

$$ED(Gy) = \frac{S_N - S_0}{S_{N+\beta} - S'_N} \times \beta \quad (1)$$

식 (1)에서 $S_N - S_0$ 는 시료가 매장 기간 동안에 흡수한 Pre-dose에 의한 110°C TL 피크의 민감도 증가이며 $S_{N+\beta} - S'_N$ 은 방사 소광이 보정된 calibration dose에 의한 민감도 증가이다.

Pre-dose 연대측정에서 시료의 연대는 다음 식으로부터 산출된다.

$$Age(y) = \frac{\text{Equivalent dose (Gy)}}{\text{Annual dose rate(mGy/y)}} \quad (2)$$

여기서, 자연축적선량은 pre-dose 효과를 이용하여 식 (1)에서 계산된 값이며 연간선량을(annual dose rate)은 시료와 시료가 채취된 장소의 토양으로부터 산출된 알파, 베타, 감마선 및 우주선량율의 합이다. 각 측정치에 대한 불확도(uncertainty)는 우연 오차(random error)와 계통 오차(systematic error)의 조합¹⁾으로 표현된다.

3. 시료 및 실험기기

3.1. 시료

서천 추동리 문화유적¹⁴⁾에서는 청동기시대 주거지, 백제시대 고분군, 고려·조선시대 토광묘, 조선시대 건물지 및 기와 가마 등이 발굴조사되었다. 특히 기와 가마는 지하굴식 등으로 연소실과 소성실 사이의 불턱이 높고 소성실 북쪽 좌·우측에 연통부가 만들어진 특이한 구조를 하고 있다. 또한 가마의 남쪽에서 태토 채취장, 용수 저장시설 등으로 추정되는 유구들과 조업 당시의 생활면이 확인되고 있어서 가마 조업 당시의 작업모습을 유추해 볼 수 있는 좋은 자료이다.

이 연구에서는 기와 가마의 연대 결정을 위하여 가마의 벽체를 시료로 채취한 후 Pre-dose 연대측정에 사용하였다. 또한 산출된 연대의 정확도와 정밀도 평가를 위하여 방사성탄소 연대측정을 위한 목탄 시료를 채취하였다¹¹⁾. Fig. 3은 시료가 채취된 서천 추동리 유적의 위치와 기와 가마의 전경을 나타낸다.

현장에서 시료를 채취할 때 가장 주의해야 할 사항은 시료가 빛에 노출되지 않도록 하는 것이다. 기와 가마

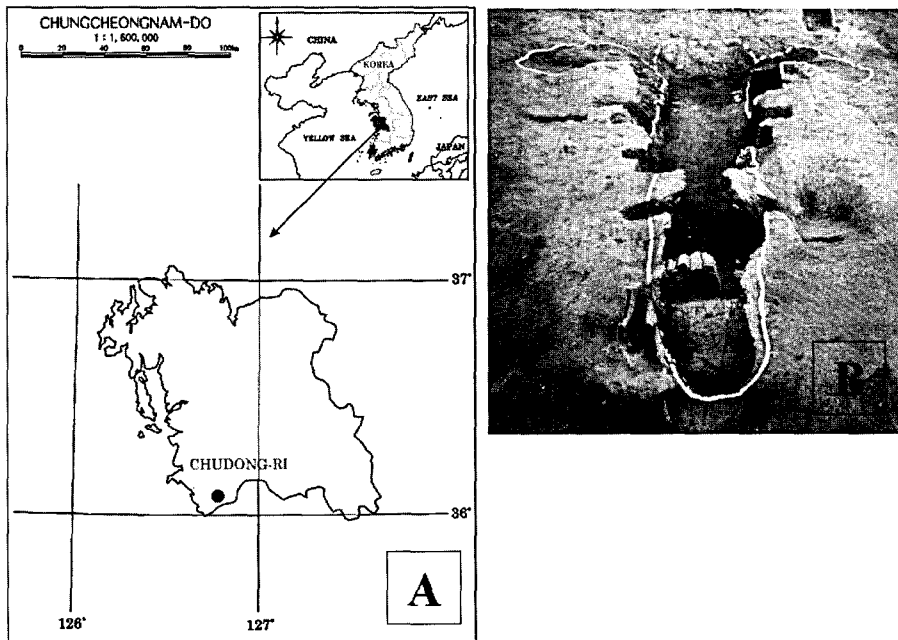


Fig. 3. Location of the cultural site and samples; A: Chudong-ri cultural site, B: The photograph of No. 1 roof-tile kiln in which the sample was collected.

¹¹⁾기와 가마 내에서 방사성탄소 연대측정을 위한 목탄시료는 2점(SNU03-873, SNU03-874)이 채취되었으며 서울대학교 기초과학공동기기원 AMS 연구실에서 측정되었다.

벽체의 경우 시료 채취를 위해서 벽돌 크기 정도로 벽체를 갈라지지 않도록 절단하여 알미늄 호일과 검은 비닐로 감싼 후 암실로 운반하였다. 그 후 자연축적선량의 측정을 위해 빛에 노출되어 있던 벽체의 외면을 제거하고 빛에 노출되지 않았던 안쪽 부분을 시료로 선택하였다. 나머지 부분은 시료의 연간선량을 측정과 수분함량 측정을 위해 사용하였다.

자연축적선량 측정에 필요한 석영은 다음과 같은 화학처리¹⁵로 얻어졌다. 먼저 얻어진 시료 내의 자성을 띠는 광물들을 Nd-자석을 이용하여 제거하였다. 이후 물로 세척하여 진흙 등을 제거한 뒤 표준 그물망체(standard sieve)를 이용하여 90-250 μm 크기의 시료만을 얻었다. 시료 내의 석회나 유기물을 제거하기 위해 10% 염산(HCl)과 과산화수소(H_2O_2)로 시료를 처리하고, 비중액을 사용하여 석영보다 무거운 입자들을 2.70 g/cm^3 의 비중액으로 먼저 제거한 후 2.63-2.70 g/cm^3 비중 사이에서 석영을 분리하였다. 하지만 비중액 만으로 분리된 석영은 장석에 오염될 수 있으므로 48% 불산으로 약 한 시간 정도 처리하였다. 약 한 시간 정도의 불산 처리는 장석의 오염을 제거할 수 있을 뿐 아니라, 석영입자의 바깥층을 약 10 μm 정도 에칭(etching)하므로 알파입자의 영향으로 인한 석영 입자에 축적된 루미네선스를 무시할 수 있게 한다. 따라서 이 연구에서는 연대산출에 필요한 연간선량을 구할 때 알파입자에 의한 연간선량은 고려하지 않았다. 또한 석영은 적외선 여기에 대해서는 루미네선스가 발생되지 않으므로 약간의 시료를 임의로 채취하여 적외선을 조사한 후 루미네선스가 검출되지 않음을 통하여 장석의 오염이 없음을 확인하였다.¹⁶

연간선량을 측정을 위한 시료는 시료의 겉면에 붙어 있는 이물질을 소도구 등을 이용하여 물리적으로 제거하고 건조한 후 마노 유발(agate-mortar)을 이용하여 약 90 μm 크기의 입자상태로 분쇄하여 준비하였다.

3.2. 실험기기

모든 냉광의 측정은 강원대학교 공동실험실습관에 설치된 자동화된 Riso TL/OSL 시스템(Riso TL/OSL-DA-15)¹⁷에 의해 이루어졌다. 여기 열원으로는 선형적으로 온도가 증가되는 shaped Kanthal heater strip이 사용되었으며 시료의 장석 오염도를 측정하기 위하여 875 nm의 파장을 가진 적외선 발광 다이오드(Nichia, Japan)가 사용되었다. TL 신호는 Hoya U-340 필터와 결합된 광전자 증배관(EMI 9635QA photomultiplier)으로 검출되었다. 검출기의 전기적 잡음(electric noise) 및 시간에 특

립적인 루미네선스 신호(background signal)의 계수는 50 counts/s 이하였다. 상온에서 시료에 조사되는 전리성 에너지는 $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ 베타선원으로부터 제공되었으며 시료가 받는 흡수선량은 0.131 Gy/s이다.

연간선량을 산출을 위한 기와 가마 벽체 시료의 방사성 동위원소 농도 계측은 한국기초과학지원연구원 동위원소팀에 설치된 감마선 분석기(GCW3523 - 7915-30 / ULB well-type HPGe detector, Canberra Ltd.)를 이용하여 구해졌다.

4. 결 과

4.1. TAC

Pre-dose 효과로 인한 110°C TL 피크의 민감도 증가는 R 중심의 농도 변화와 활성 온도까지의 열처리에 의존한다. 하지만 R 중심에 포획되었던 정공이 원자가 띠로 이동한 후 다시 L 중심에 포획되기 적합한 활성 온도는 석영의 종류와 thermal zeroing, 시료의 매장 조건 등의 상황에 따라 변화된다. 그러므로 pre-dose 효과를 이용하여 자연축적선량을 결정하기에 앞서 각각의 시료에 대한 R 중심의 활성 에너지(activation energy) 분포에 대한 정보를 얻고 고유의 활성 온도 T_0 를 결정하기 위한 연구가 필요하며 이를 TAC(Thermal Activation Characteristic)^{11,18}라 한다.

Fig. 4는 서천 추동리 유적에서 채취한 기와 가마 벽

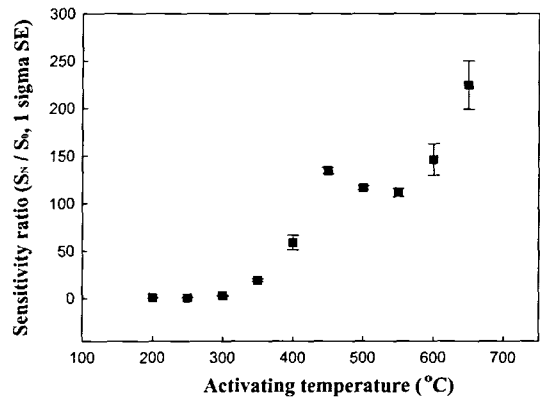


Fig. 4. Thermal activation characteristic (TAC) for the 110°C TL peak. S_0 is the sensitivity before activation and S_N is the sensitivity after thermal treatment to the indicated temperature. The activation temperature was selected to 500°C from the maximum sensitivity ratio at 450°C. Also the sensitivity S_N was increased again over 600°C, which was presumed to the phase transition from α -quartz to β -quartz.

체 시료에서 추출된 석영의 TAC를 나타낸다. 열처리 온도는 200°C 부터 650°C 까지 50°C 씩 증가되어졌고 5개의 시료 디스크로부터 얻어진 값을 각각 평균하였다. 110°C TL 피크의 민감도 변화 S_N/S_0 는 점차로 증가되다가 450°C에서 최대가 됨을 알 수 있으며 이는 R 중심에 포획된 정공이 온도가 증가함에 따라 부분적으로 활성화되다가 450°C에서 최대로 활성화되었음을 의미한다. 이후 온도가 증가함에 따라 민감도 변화 S_N/S_0 는 감소(thermal de-activation)되는데 이러한 현상은 L 중심에 포획되었던 정공이 높은 온도에 의하여 열적으로 방출(thermal eviction)되었기 때문이다. 또한 Fig. 4에서 550°C 보다 높은 온도에서 발생하는 활성 피크는 573°C에서 발생하는 α -석영에서 β -석영의 상변화(phase transition)에 기인한 것으로 추론된다.^{2,19} 만일 시료의 TAC에서 활성 온도가 낮은 온도에서 결정된다면 매장 기간 동안 시료 주변의 온도 변화로 인하여 R 중심에 포획된 정공이 부분적으로 L 중심으로 이동되는 현상(ambient activation)¹이 발생하여 시료 고유의 110°C TL 피크 S_0 가 증가되어질 수 있다. Fig. 4에서 민감도 변화가 최대가 되는 450°C에서 S_N 에 대한 S_0 의 비율이 1% 미만이므로 매장 기간 동안 시료의 주변에는 심한 온도 변화가 없었거나 또는 온도 변화가 발생했다라도 거의 영향 받지 않았으며 그 결과 R 중심의 농도 변화는 발생하지 않았다고 판단할 수 있다.

Baillif¹²는 ambient activation 현상과 무관하게 열처리로 인하여 R 중심의 에너지 분포가 변화되어 pre-dose에 대한 민감도 변화 S_N 와 calibration dose에 대한 민감

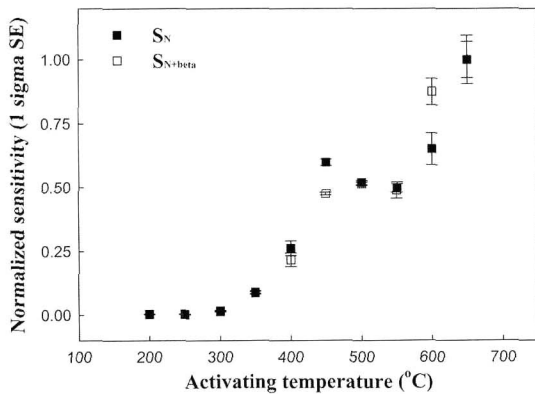


Fig. 5. The TAC modification of R trap distribution due to thermal treatment. The radiation quenching was observed below at 500°C. However after the phase transition of quartz at 573°C, the sensitivity S_N was inversely increased.

도 변화 $S_{N+\beta}$ 의 형태가 달라질 수 있음을 지적하였다. Fig. 5는 규격화된 Pre-dose와 calibration dose에 대한 민감도 변화를 비교하여 열처리 동안 R 중심의 활성화 에너지 분포의 변화가 발생하는지를 조사한 그래프이며 활성화 온도가 400°C 이상으로 올라가면 calibration dose에 의한 110°C TL 피크의 민감도는 감소되고 α -석영에서 β -석영으로의 상변화가 이루어지면 반대로 민감도가 증가됨을 알 수 있다. 그러므로 MA법을 사용하여 자연 축적선량을 산출할 경우 활성화 온도는 매우 중요한 변수이며 이 연구에서는 TAC와 민감도 변화를 모두 고려하여 활성화 온도를 500°C로 정의한 후 자연축적선량 결정에 활용하였다.

4.2. 방사 소광

하나의 시료를 반복적으로 사용하여 TL 신호를 계속하는 MA법의 경우 시료에 대한 높은 활성화 온도까지의 열처리로 인하여 시료의 민감도가 감소하며 calibration dose에 의한 110°C TL 피크 $S_{N+\beta}$ 의 감소는 자연축적선량 값이 높게 산출되는 원인이 된다. 이러한 민감도의 감소는 L 중심에 포획된 정공의 손실과 R 중심의 활성화 에너지의 변화 등이 원인이 될 수 있다. Fig. 6에서 S_N' 은 방사 소광으로 인한 시료의 민감도 감소가 감소된 S_N 을 의미하며 시료의 방사 소광을 POQ(Percent Of Quenching)은 다음과 같이 계산된다.

$$POQ(\%) = \frac{S_N - S_N'}{S_N} \times 100 \quad (3)$$

이 연구에서 산출된 시료의 POQ 값은 10개의 시료 디

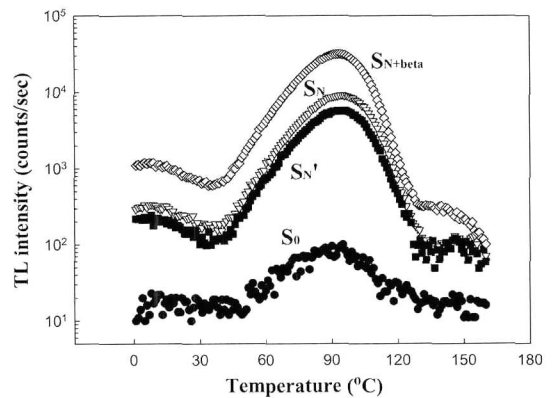


Fig. 6. An example of 110°C TL peaks with the pre-dose effect. The difference of glow curve S_N and S_N' at the same portion was caused by the radiation quenching.

Table 2. The experimental conditions for pre-dose dating. Because of high POQ, the radiation quenching must be corrected using the additional 110°C TL peak, $S_{N'}$

Sample type	Activation temperature (°C)	Calibration dose (Gy)	Test dose (Gy)	POQ (% , 1 σ SD)
Heated quartz	500	4	0.25	35.05 \pm 4.29

스크로부터 얻어진 평균하여 얻어졌으며 Table 2에 정리하였다.

4.3. 자연축적선량

TL 연대측정에서 자연축적선량 결정을 위한 TL 신호의 합산 구간(ROI, Region Of Interest) 선택은 매우 중요한 부분이다. 특히 pre-dose 효과를 이용하여 자연축적선량을 결정하는 경우 110°C TL 피크는 불안정한 트랩에서 발생하는 반감기가 짧은 신호이므로 일반적인 TL 연대측정법에서 사용하는 안정된 트랩에서 나오는 TL 신호를 계측하여 합산 구간을 결정하는 plateau 평가¹⁾를 적용할 수 없다. 이 연구에서 110°C TL 피크의 합산 구간 선택은 활성 온도까지의 열처리로 인한 민감도 변화가 발생하는 현상을 고려하여 결정하였다.

Fig. 7은 110°C TL 피크 S_N 과 $S_{N+\beta}$ 의 관계를 나타낸 예이다. Fig. 7(a)에서 S_N 과 $S_{N+\beta}$ 모두 95°C 부근에서 TL의 세기가 최대가 됨을 알 수 있다. 또한 Fig. 7(b)는 활성온도까지의 열처리로 인한 민감도 변화 $S_{N+\beta}/S_N$ 를 나타낸 그림이며 약 60°C에서부터 민감도는 일정하게 증가하다가 85°C에서부터 120°C까지 부근에서부터 방사 소광으로 인한 민감도 감소가 생김을 알 수 있다. 이러한 TL 신호의 민감도 기울기는 증가와 감소 과정에서 모두 일정한 값을 갖고 안정적으로 변화됨을 알 수 있다(Fig. 7(c)). 그러므로 TL 세기의 최대점, 방사 소

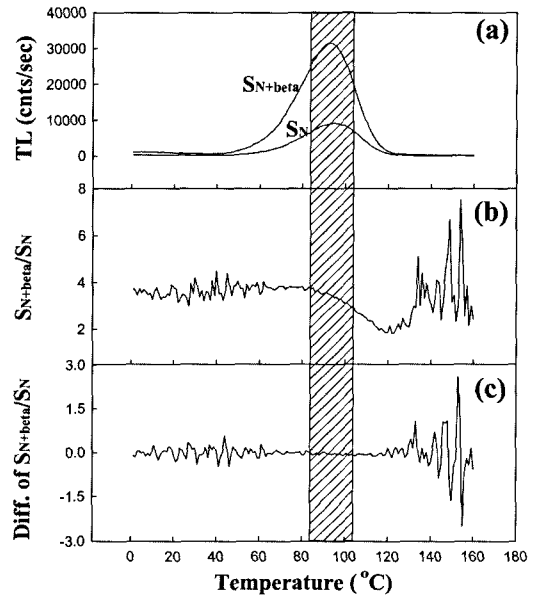


Fig. 7. The determination of ROI (region of interest) for the pre-dose dating. The ROI was selected from 85°C to 105°C considering as the maximum position of growth curve, radiation quenching and the stability of sensitivity change.

광, 민감도 변화의 안정성 등을 모두 고려하여 110°C TL 피크의 합산 구간을 85-105°C 영역으로 선택하였다.

Pre-dose 효과를 이용한 자연축적선량의 결정은 Table 1의 측정 단계를 통해 이루어지며 Table 2에 정리된 실험 조건들이 적용되었다. Fig. 6와 7에서 알 수 있듯이 TL 신호 S_N 과 $S_{N'}$ 이 서로 일치하지 않으므로 정확한 자연축적선량의 산출을 위하여 방사 소광에 대한 보정이 이루어진 식 (1)이 사용되어야만 한다. 이 연구에서는 15개의 시료 디스크에 MA법을 적용하여 모두 15개의 자연축적선량을 얻은 후 평균하여 자연축적선량을 결정하였다(Table 3).

Table 3. Age dating result for the archaeological sample, burnt soil from the roof-tile kiln, at Chudong-Ri cultural site using the pre-dose effect. The resultant date was in good agreement with the age derived by radiocarbon dating and archaeological assessment

Sample	Equivalent dose (Gy)	Gamma dose rate (mGy/y)	Beta dose rate (mGy/y)	Cosmic dose rate (mGy/y)	Total dose rate* corrected (mGy/y)	Age (y, 1 σ SD)	Radiocarbon age (y, 1 σ SD)	
							SNU03-873	SNU03-874
CMY-CD1 (burnt-soil)	1.28 \pm 0.12	2.41 \pm 0.06	3.48 \pm 0.09	0.15 \pm 0.01	4.92 \pm 0.08	1725 \pm 25 AD	1640(22.2%)1680AD	1660(13.8%)1690AD
							1740(38.5%)1810AD	1730(45.3%)1810AD
							1930 (7.5%)1950AD	1930 (9.1%)1950AD

*Total dose rate is corrected for water content using the formula of Zimmerman and takes account for beta attenuation through the grains by a factor of 0.9. Cosmic ray contribution was considered as 0.15 mGy/y.

4.4. 연간선량률

연간선량률은 자연축적선량과 함께 연대를 결정하기 위한 필수 요소이다. 일반적으로 시료채취 장소에서 토양을 채취한 후, 시료와 토양 각각의 방사성 핵종 ^{235}U , ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K 등의 농도를 구하고 환산인자(conversion factor)를 사용하여 계산한다.²⁰ 이는 연간선량률에 영향을 주는 방사선의 최대 비정(range) 범위에서 매질이 균일할 경우, 단위 질량 당 에너지 흡수비(absorption rate)는 에너지 보존법칙에 의해서 단위 질량 당 에너지 방출비(emission rate)와 같다는 무한매질(infinite matrix) 가정을 기초로 한다. 이 연구에서 가마 벽체시료의 방사성 핵종 농도는 감마선 분광분석을 통하여 얻어졌다. Table 3에 정리된 전체 연간선량률은 베타, 감마 연간선량률 값과 우주선에 의한 연간선량률 값을 합산한 것이다. 실험실에서 석영을 불산으로 한 시간 정도 처리하여 표층을 약 10 μm 정도 에칭시켰기 때문에 알파 입자에 의한 연간선량률은 전체 연간선량률 계산에서 고려하지 않았다. 우주선량(cosmic ray)은 0.15 mGy/y로 추정하였으며²¹ 최종적인 연간선량률은 시료의 수분 함량에 대한 보정과 불산의 에칭으로 손실된 선량을 고려하여 결정되었다.⁹

4.5. Pre-dose 연대측정

서천 추동리 문화유적 기와 가마에서 채취된 시료의 Pre-dose 연대측정 결과를 Table 3에 정리하였다. 또한 Pre-dose 연대의 정확도와 정밀도 비교를 위하여 동일한 기와 가마 내에서 채취된 목탄에 대한 방사성탄소 연대도 함께 정리하였다.

Fig. 8은 Oxcal 프로그램^{22,23}을 이용하여 서천 추동리

유적의 기와 가마 유구에 대한 절대연대측정 결과들을 종합한 그림이다. 각 연대측정치에서 실선으로 표시된 부분은 연대의 오차 범위이며 검은 부분은 통계적으로 서로 중복되는 범위이다. Radiocarbon plateau 구역에 속하는 방사성탄소 연대측정치는 모두 넓은 오차 범위로 인하여 정밀도가 낮으며 연대 값이 여러 개의 피크 형태를 이룸으로 인하여 정확도가 감소됨을 알 수 있다. Table 3에 정리된 방사성탄소 연대 결과의 퍼센트 비율은 1 σ 표준편차(68.2%)에서 이들이 갖는 통계적 면적이다. 따라서 Pre-dose 연대측정 결과는 방사성탄소 연대측정 결과와 오차 범위 내에서 서로 일치하였으며 radiocarbon plateau 구역의 방사성탄소 연대측정 결과보다 높은 정확도와 정밀도를 나타내었다.

5. 결 론

연대결정을 통한 유물과 유구에 대한 편년 설정은 고고학 연구에 있어서 기본적인 필수적인 과정이다. 고고학 및 제4기학 연구 분야에서 활용되는 대표적인 자연과학적 연대측정법인 방사성탄소 연대측정법은 주로 사용되는 목탄과 나무가 고고학 유구와의 직접적인 연관성이 존재하지 않기 때문에 발생하는 오류로 인하여 최근에는 유물과 유구에 직접적인 연대측정이 가능하며 연대 범위가 고고학의 전 관심 영역을 포함하는 루미네선스 연대측정법이 폭넓게 활용되고 있다. 또한 단일시료 재현법 및 단일입자 재현법(single grain regenerative dose method)을 통하여 정밀도와 정확도가 크게 향상된 OSL 연대측정이 활발히 시도되고 있다. 그러나 Fig. 1에서와 같이 시료의 자연 냉광이 극히 낮거나

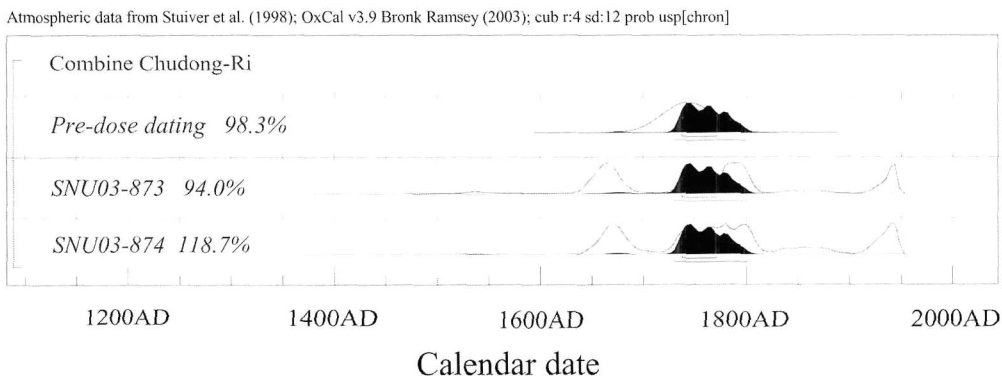


Fig. 8. Plot of the calibrated radiocarbon ages versus the age applied pre-dose dating methods from the No. 1 roof-tile kiln sample. All ages give a good agreement with each other and in the radiocarbon plateau, it was concluded that the pre-dose dating result gives the high precision compared with radiocarbon dating.

recuperation이 높을 경우 시료의 자연축적선량을 결정할 수 없으므로 일반적인 OSL 연대측정은 불가능하다. 이 연구에서는 서천 추동리 문화유적의 기와 가마로부터 시료를 채취한 후 화학적으로 분리된 석영의 pre-dose 효과를 측정하여 시료의 연대를 결정하였다.

Pre-dose 효과는 110°C TL 피크의 민감도가 매장 기간 동안 시료가 흡수한 pre-dose에 의존하는 R 중심의 농도 변화와 활성 온도까지의 열처리에 의해 변화되는 현상이며 이러한 pre-dose 효과를 이용하여 시료의 연대를 결정하는 경우 활성온도의 결정(TAC)은 매우 중요한 부분이다. Fig. 4와 5는 활성온도에 따른 시료의 민감도 변화를 나타낸 그림이며 110°C TL 피크의 민감도는 점차로 증가되다가 450°C에서 최대로 활성화되므로 이 연구에서는 활성온도를 500°C로 결정하였다. 또한 Fig. 6과 7에서 자연축적선량을 구하기 위한 TL 신호의 합산은 TL 세기의 최대점, 방사 소광, 민감도 변화의 안정성 등을 모두 고려하여 85-105°C 영역으로 선택하였다. 최종적으로 산출된 시료의 연대를 Table 3에 정리하였으며 Pre-dose 연대측정 결과는 오차 범위 내에서 방사성탄소 연대측정 결과와 정확히 일치하며 radiocarbon plateau에 포함된 방사성탄소 연대측정보다 높은 정확도와 정밀도를 가짐을 알 수 있었다 (Fig. 8).

결론적으로 pre-dose 연대측정을 통하여 산출된 연대는 정밀도와 정확도의 높은 증가로 인하여 기원 이후의 고고학적 사건들에 대한 지시자로서의 역할이 가능하리라 판단된다. 또한 이후의 연구를 통하여 역년(曆年)으로 환산된 연대가 높은 오차를 갖는 radiocarbon plateau 구간 내의 유물과 유구의 방사성탄소 연대를 효율적으로 교정할 수 있으리라 기대된다.

감사의 글

본 논문의 작성을 위해 시료를 제공 및 고고학적 조언을 해주신 (재)충청문화재연구원 유기정, 전일룡, 이동숙 선생님과 루미네선스 연대측정 실험에 도움을 준 강원대학교 물리학과 송기웅 군에게 감사드립니다.

참고문헌

1. M. J. Aitken, "Thermoluminescence dating", Academic Press, London, 1985.
2. R. Chen, S. W. S. Mckeever, "Theory of thermoluminescence and related phenomena", World Scientific Publishing, Singapore, 1997.
3. F. Daniels, C. A. Boyd and D. F. Saunders, *Science*, **117**, 343-347(1953).
4. D. J. Huntley, D. I. Godfrey-Smith and M. L. W. Thewalt, *Nature*, **313**, 105-107(1985).
5. A. S. Murray and A. G. Wintle, *Radiat. Meas.*, **32**, 57-73(2000).
6. D. G. Hong, S. B. Yi, R. B. Galloway, T. Tsuboi and T. Hashimoto, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **247**, 179-184(2001).
7. M. J. Kim and D. G. Hong, *J. Conserv. Sci.*, **16**, 5-14(2004).
8. M. J. Aitken, "An introduction to optical dating", Oxford University Press, London, 1998.
9. J. Zimmermann, *J. Phys. C: Sol. St.*, **4**, 3277-3291 (1971).
10. S. W. S. Mckeever, C. Y. Chen and L. E. Halliburton, *Nucl. Tracks*, **10**, 489-495(1985).
11. S. J. Fleming, *Archaeometry*, **15**, 13-30(1973).
12. I. K. Bailiff, *FACT*, **9**, 219-225(1983).
13. M. J. Aitken and A. S. Murray, "The Edinburgh Symposium on Archaeometry and Archaeological Prospection, Extended Abstract", HMSO, 1976.
14. (재)충청문화재연구원, "서천-공주간 고속도로 건설 공사 구간내 7-2지역 서천 추동리 유적", (재)충청문화재연구원, 2003.
15. S. J. Fleming, *Archaeometry*, **12**, 133-147(1970).
16. N. A. Spooner, M. A. Aitken, B. W. Smith, M. Franks and C. McElroy, *Radiation Protection Dosimetry*, **34**, 83-86(1990).
17. L. Botter-Jenson, E. Bulur, G. A. T. Duller and A. S. Murray, *Radiat. Meas.*, **32**, 523-528(2000).
18. E. H. Haskell and I. K. Bailiff, *Nucl. Tracks*, **10**, 503-508(1985).
19. M. David, *Ind. J. Pure Appl. Phys.*, **19**, 1048(1981).
20. K. S. V. Nambi and M. J. Aitken, *Archaeometry*, **28**, 202-205(1986).
21. J. R. Prescott and L. G. Stephan, *FACT*, **8**, 205-213 (1982).
22. C. Bronk Ramsey, *Radiocarbon*, **37**(2), 425-430 (1995).
23. C. Bronk Ramsey, "OxCal Program v3.8 manual", University of Oxford Radiocarbon Accelerator Unit, 2002.