

γ 선측정법에 기초한 $^{231}\text{Pa}/^{235}\text{U}$ 년대결정방법

리명혁, 림봉식

위대한 령도자 김정일동지께서는 다음과 같이 교시하시였다.

《발굴자료에 대한 정리와 분석종합은 력사유적발굴사업을 결속하는 중요한 공정이며 유적유물의 진가를 밝혀내는 진지한 탐구과정입니다.》(《김정일전집》 제3권 124페이지)

우라늄계렬년대결정에서는 주로 α 선측정법에 기초하여 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 년대를 결정하고 있는데 이 방법은 력사유물들이 시료의 화학적처리과정에 루실되는 제한성이 있다.

론문에서는 시료의 화학적처리과정이 요구되지 않는 γ 선측정법에 기초하여 $^{231}\text{Pa}/^{235}\text{U}$ 년대를 결정하는 방법을 고찰하였다.

1. α 선측정법과 γ 선측정법의 비교

자연방사성붕괴계렬은 방사평형상태에 있지만 자연계에서 일어나는 화학적풍화작용, 유기 및 무기적작용에 의한 광물들의 침전, 용암의 분출과 재결정화와 같은 여러가지 지질작용으로 하여 일정한 물질들에서는 방사평형이 파괴될수 있다.

이로부터 방사비평형현상을 년대결정에 리용하기 위한 연구가 활발히 진행되고 그 과정에 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 년대를 결정하는 α 선측정법이 확립되었다.[4]

α 선측정방법은 크게 U 및 Th의 화학분리, 방사성시편제작, α 선스펙트르측정공정으로 되어있다. 여기서는 분해능이 27~65keV/1.15~5.50MeV인 금-규소면 반도체검출기를 결합한 α 선스펙트르메터로 결정한 U 및 Th의 함량이 약 0.01~0.1ppm 범위안에 있는 시료에서 상대오차 2~5%의 정확도를 가지고 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$, $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 의 방사능비를 측정한다.[6]

α 선측정방법의 결함은 시료의 화학적처리가 복잡하고 분석시간이 오랜것이다.

화학분리에서는 공침, 이온교환 및 용매추출에 의한 각종 불순물들의 제거를 진행하여야 하며 전기침적법에 의한 방사성시편제작에서는 전해액을 합리적으로 선정하고 산도조건을 엄격히 보장하여야 하는 등의 문제가 제기된다. 특히 시료가 화학적처리과정에 루실되는것으로 하여 이 측정체계는 력사유물의 년대측정에서 제한성을 가지고있다.

이로부터 분석공정이 간단하면서도 시료를 파괴하지 않는 측정방법을 세우기 위한 연구가 심화되고 그 과정에 γ 선측정법이 확립되었다.[1, 3]

γ 선측정방법에서는 초기에 NaI(TL)섬광검출기를 결합한 γ 선스펙트르메터를 리용하였는데 분해능이 낮아서 일부 제한된 종류의 동위원소들만을 측정하는데 불과하였다.

최근에 분해능이 0.25~0.40keV/20~80keV인 고순도게르마늄검출기를 리용함으로써 ^{231}Th , ^{231}Pa , ^{227}Th , $^{234}\text{U} + ^{214}\text{Pb}$, ^{234}Th , ^{230}Th 의 γ 선들을 정밀히 측정하고있다.[1-5]

γ 선측정법은 α 선측정법에 비해 시료의 화학적처리공정이 없고 시료가공이 간단하며 측정을 신속하게 진행할수 있는 우점을 가지고있다.

2. $^{231}\text{Pa}/^{235}\text{U}$ 년대결정방법

$^{231}\text{Pa}/^{235}\text{U}$ 년대결정방법은 우라늄계열년대결정에 속하는 방법들중의 하나이다. 이 방법을 리용하면 뼈화석과 그리고 유물과 관련이 있는 탄산염침전물 등의 년대를 측정할 수 있다.

살아있는 동물의 뼈, 이발 등 굳은 조직에는 U이 없지만 일단 죽어서 땅에 묻히면 화석화되는 기간에 주변의 지하수속에 용해되어있는 U이 뼈와의 접촉과정에 흡착되지만 Pa은 불용성이므로 흡착되지 않으며 뼈에서 생긴 ^{235}U 의 후손원소인 ^{231}Pa 은 뼈화석에 그대로 남아있게 된다.[2]

뼈의 화석화과정에 U만 포함되고 ^{231}Pa 이 포함되지 않았다고 하면 뼈화석의 년대는 $^{231}\text{Pa}/^{235}\text{U}$ 의 비평형에 의해 다음과 같이 표시된다.

$$\frac{A(^{231}\text{Pa})}{A(^{235}\text{U})} = 1 - e^{-\lambda_{231}T} \quad (1)$$

여기서 $A(^{235}\text{U})$ 는 ^{235}U 의 163, 205keV의 γ 선봉우리로 결정한 ^{235}U 의 방사능이고 $A(^{231}\text{Pa})$ 는 ^{227}Th 의 236keV의 γ 선봉우리로 결정한 ^{231}Pa 의 방사능, λ_{231} 은 ^{231}Pa 의 붕괴상수($2.134 \cdot 10^{-5} \text{y}^{-1}$)이다.

그러므로 뼈화석에서 $^{231}\text{Pa}/^{235}\text{U}$ 의 방사비평형을 측정하면 유물의 년대 T 를 계산할 수 있다.

뼈화석에서 $^{231}\text{Pa}/^{235}\text{U}$ 의 방사비평형을 측정하기 위한 실험방법은 다음과 같다.

^{235}U 에는 163.3, 185.5, 205.3keV의 γ 선들이 있다. 여기서 185.5keV는 ^{226}Ra 의 186.1keV와 겹쳐있기때문에 ^{235}U 의 방사능을 측정하는데서 163.3keV(0.21%)와 205.3keV(0.21%)를 리용한다.

^{231}Pa 의 방사능은 ^{231}Pa 과 반감기가 짧은 후손핵 $^{227}\text{Th}(T_{1/2}=18.2\text{d})$ 이 방사평형에 있다고 보고 ^{227}Th 의 236keV γ 선을 측정하여 간접적으로 결정한다. 이때 ^{231}Pa 과 ^{227}Th 의 방사능관계는 $^{227}\text{Th} = 0.988^{231}\text{Pa}$ 이다.

^{227}Th 의 236keV 방사선을 측정할 때 현대적인 고순도게르마늄검출기(분해능이 0.7keV/60keV)를 리용하면 ^{212}Pb 의 238keV 방사선의 간섭을 극복할수 있다.

일반적으로 뼈화석이나 탄산염침전물에서 U의 방사능이 매우 작기때문에 다음과 같은 실험방법을 선택하는것이 합리적이다.

^{235}U 의 방사능이 아주 작을 때에는 자연시료에서 ^{238}U 과의 호상관계로부터 ^{235}U 의 방사능을 간접적으로 결정한다. 이때 ^{238}U 의 방사능은 반감기가 짧은 후손핵인 ^{234}Th 의 1 001keV γ 선을 가지고 결정한다. ^{234}Th 는 반감기가 24.1d이며 그것이 모체핵인 ^{238}U 과 방사평형을 이루는데 걸리는 시간은 120d이다.

^{234}Th 의 1 001keV γ 선은 방출률(0.82%)이 작지만 에너르기가 크고 다른 γ 선들과의 간섭이 전혀 없다.

IGC-10형 고순도게르마늄검출기를 리용하여 측정 한 룡곡동굴유적 뼈화석의 γ 선스펙트르는 그림과 같다. 그림에서 n 은 γ 립자의 수이다.

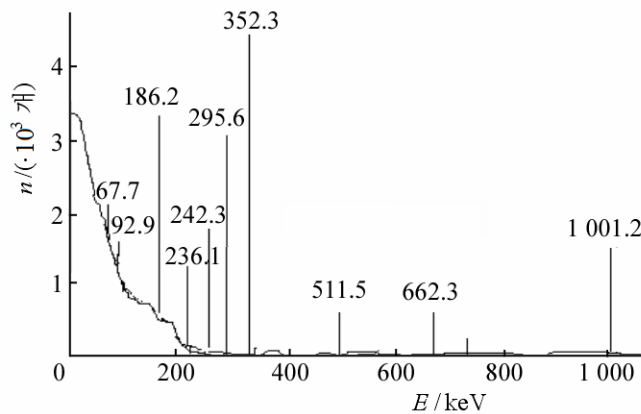


그림. 뼈화석의 γ 선스펙트르

IGC-10형 고순도게르마늄검출기의 γ 선측정의 아래대역은 100keV정도이다. 따라서 이 검출기를 리용하면 ^{227}Th 의 236keV γ 선을 측정할수 있다.

IGC-10형고순도게르마늄검출기의 기술적특성을 보면 분해능이 1.95keV/1.33MeV, 체적이 60cm^3 , 상대기록효율이 10, 동작전압이 4 500V이다.

γ 선스펙트르를 처리하여 방사능을 측정하는 경우 광전흡수봉우리의 면적 S 는 다음과 같이 표시된다.

$$S = \Sigma - N \left(\frac{B_L}{n_L} + \frac{B_R}{n_R} \right) / 2 \quad (2)$$

여기서 Σ 는 광전흡수봉우리의 총면적, N 은 적분하려는 통로수, n_L 과 n_R 는 각각 봉우리의 왼쪽과 오른쪽 경계근방의 통로수, B_L 과 B_R 는 각각 n_L 과 n_R 에 해당하는 폰의 면적이다.

광전흡수봉우리의 면적오차는 다음과 같다.

$$\sigma_{(s)} = \sqrt{\Sigma + \left(\frac{N}{2n} \right)^2 + (B_L + B_R)} \quad (3)$$

한편 뼈화석의 방사능측정에서 감도를 높게 하려면 시료의 계수률을 크게 하여야 하는데 이때 시료의 량이 많이 요구된다. 그렇게 되면 시료에서 γ 선의 투과률이 자체흡수에 의해 작아질수 있다.

시료에서 γ 선의 투과률 F 는 시료의 두께 t 와 γ 선의 질량흡수결수 μ_m 에 의하여 다음과 같이 표시된다.

$$F = \frac{1 - e^{-\mu_m t}}{\mu_m t} \quad (4)$$

여기서 μ_m 은 γ 선의 에네르기에 따라 각이한 값을 가진다.

3. α 선측정법과 γ 선측정법으로 결정한 룡곡제 1 호동굴유적 뼈화석의 우라늄계렬년대

γ 선측정법으로 룡곡제1호동굴유적 뼈화석의 년대를 측정하고 그것을 α 선측정법으로 얻은 년대와 비교하였다.(표)

표. 룡곡제1호동굴유적 뼈화석의 우라늄계렬년대측정결과		
측정방법	시료 ㄱ-8/($\cdot 10^4$ y)	시료 ㄱ-9/($\cdot 10^4$ y)
α 선측정법	4.4 \pm 0.2	3.8 \pm 0.01
γ 선측정법	4.26 \pm 0.64	3.23 \pm 0.55

표에서 보는것처럼 룡곡제1호동굴유적에서 나온 뼈화석의 년대는 α 선측정법으로 얻은 결과와 실험오차범위에서 잘 일치하였다.

맺 는 글

시료의 화학적처리과정이 요구되지 않는 γ 선측정법으로 룡곡제1호동굴유적에서 나온 뼈화석의 년대를 측정한 결과 α 선측정법에 비하여 측정공정이 간단하며 실험결과도 거의 일치하였다.

참 고 문 헌

- [1] B. Shriwaswa et al.; Appl. Radiat. Isot., **54**, 941, 2001.
- [2] A. Berzero et al.; Archaeometry, **39**, 189, 1988.
- [3] J. S. John et al.; Rainer Grun; Quaternary Geochronology, **17**, 1009, 1998.
- [4] Mild Shoji et al.; Appl. Radiat. Isot., **55**, 221, 2001.
- [5] Yehia H. Dawood; Appl. Radiat. Isot., **55**, 881, 2001.
- [6] Cong Tam Nguyen et al.; Proceedings of the 7th Conference on Nuclear and Particle Physics, **11**, 2009.

주체107(2018)년 3월 5일 원고접수

Dating Method of $^{231}\text{Pa}/^{235}\text{U}$ Based on γ -Ray Determination

Ri Myong Hyok, Rim Pong Sik

In this paper we studied the age of the bone fossils from the Ryonggok cave No.1 with γ -ray determination. Dating result is agreed with α -ray determination result in margin of error.

Key words: dating, bone fossil