

LUMINESZCENS KORMEGHATÁROZÁST SEGÍTŐ ADATBÁZIS KIALAKÍTÁSA ÉS FEJLESZTÉSE

Sipos György – Tóth Orsolya – Földvári-Nagy Dóra – Páll Dávid Gergely – Filyó Dávid

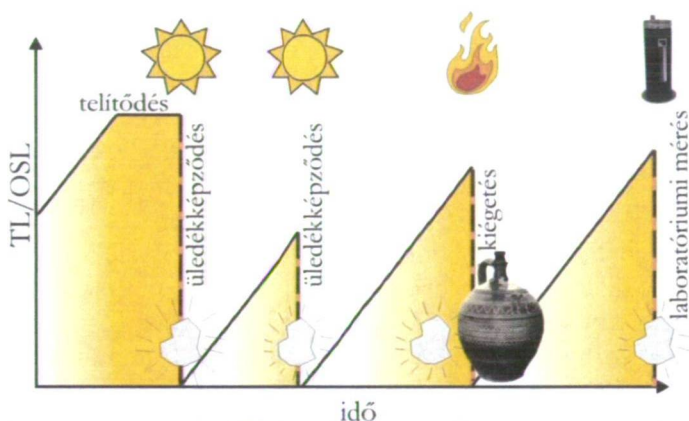
1. Bevezetés

Az elmúlt néhány évtizedben a lumineszcens kormeghatározás (TL: termolumineszcencia; OSL: optikailag stimulált lumineszcencia) az egyik legfontosabb kronometriai módszerre nőtte ki magát a negyedidőszak kutatásban és a régészetben egyaránt. A Szegedi Tudományegyetemen 2005 óta működik TL/OSL laboratórium, mely akkor tájt még elsősorban futóhomok üledékek kormeghatározására specializálódott (pl.: Kiss – Sipos 2008, Sipos et al 2009, Kiss et al. 2013). A folyamatos fejlesztéseknek köszönhetően később már nem csak a homok, de a finomabb lösz, illetve iszap frakció kormeghatározása is lehetővé vált (pl.: Dezső et al. 2009, Sümeghy et al. 2013), valamint előtérbe kerültek a folyóvízi eredetű üledékek. Emellett 2008-tól már kerámiák és téglák kormeghatározásával is foglalkozik a laboratórium (Sipos – Papp 2009, Sipos et al. 2010), s ebben a tekintetben egyedülálló Magyarországon. Az elmúlt 10 év során mintegy 800 mintán hozzávetőleg 1400 mérést hajtottunk végre. Természetes volt tehát az igény, hogy a minták, illetve mérések adatait adatbázisba rendezzük, s erre kiváló alkalmat nyújtott a TÁMOP-4.1.1.C-12/1/KONV-2012-0012 projekt. A jelen tanulmányban a lumineszcens mérések alapjait, valamint a létrehozott adatbázis felépítését kívánjuk bemutatni.

2. Fizikai alapok

A félvezető kristályráccsal rendelkező kvarcban és földpátokban a környezet radioaktív sugárzásának hatására a vegyérték pályákon elhelyezkedő elektronok gerjesztődnek, majd ezek egy része a kristályrács hibáihoz kötődve csapdázódik (Aitken 1985). A csapdázódás üteme a természetben előforduló radioaktív elemek (^{238}U , ^{235}U , ^{232}Th , ^{87}Rb , ^{40}K) koncentrációjától függ. A csapdában lévő elektronok ezt kövözően hosszú ideig tárolódhatnak, mígnem adott hullámhosszú fény, vagy hő hatására természetes, vagy mesterséges módon újra szabaddá válnak, s visszatérhetnek a vegyérték pályákra. Mivel az elektronok a folyamat során alacsonyabb energiaszintre kerülnek, foton leadás játszódik le, azaz lumineszcencia alakul ki. Minél nagyobb intenzitású lumineszcens fény mérhető, annál nagyobb volt a csapdázott elektronok száma, azaz a csapdázódás folyamata annál hosszabb ideig tartott (Aitken 1985). Végeredményben tehát a földpát és kvarc kristályok gyakorlatilag detektorként működnek, és az őket érő radioaktív sugárzás intenzitásával és időtartamával arányosan nő a bennük raktározott TL/OSL jel nagysága.

A lumineszcens módszerrel azt az időpontot lehet meghatározni, amikor az ásvány utoljára napfényre került, vagy nagyobb hőhatásnak volt kitéve, mivel ekkor a csapdák kiürülnek (1. ábra). A mérések során a minta hővel (TL), illetve fénnel (OSL) történő gerjesztésével lehet a csapdázódott elektronok mennyiségére következtetni. A módszert elsősorban üledékek, illetve hevítést elszenvedett anyagok, például kerámiák kormeghatározására lehet alkalmazni. A módszer időbeli korlátai néhány évtizedtől néhány százezer évig, egyes speciális esetekben akár egy millió évig terjednek (Wintle 2008).



1. ábra. A lumineszcens jel időbeli változása. A laboratóriumi mérések során a lumineszcens jel nagysága alapján meghatározható a legutóbbi üledékképződés, vagy a kiégetés óta eltelt idő hossza.

3. Laboratóriumi mérések

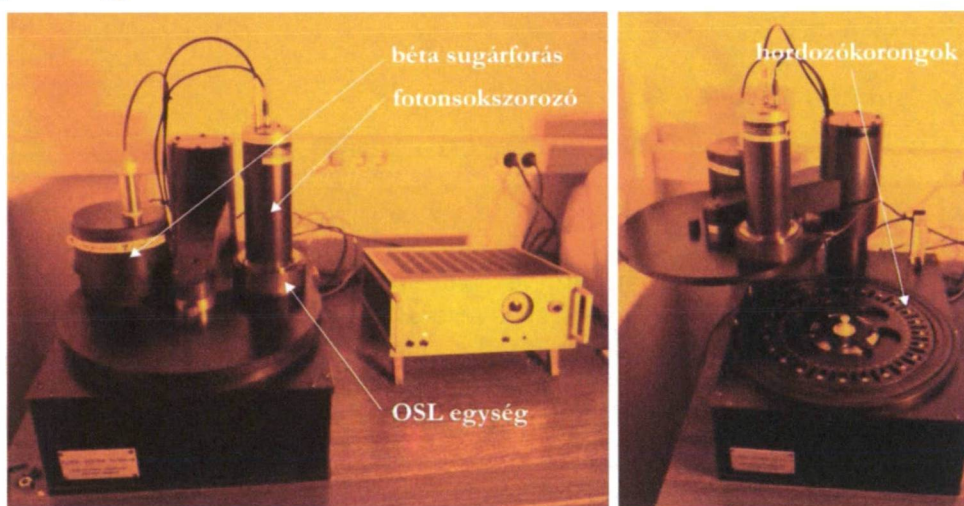
A TL/OSL vizsgálatok célja a fentieknek megfelelően kettős, meg kell határozni egyrészt az elemzett minta szemcséiben elnyelt összes dózis, másrészt az egységnyi idő alatt elnyelt dózis nagyságát. Előbbit paleodózisnak (D_p), utóbbit dózisteljesítménynek vagy dózis rátának (D^*) nevezik, segítségükkel az üledékképződés kora, illetve a kerámia kiégetésének ideje az alábbi egyenlet alapján adható meg:

$$\text{kor} = D_p/D^*$$

Az elnyelt dózis mértékegysége [Gy] a dózisteljesítményé [Gy/ka], azaz Gray/ezer év. A TL/OSL módszerrel meghatározott korokat a mérés idejétől visszaszámítva adják meg, és általában ezer évben (ka) fejezik ki.

A laboratóriumi feltárás menete és receptje attól függ, hogy a minta kvarc vagy földpát komponensét, esetleg a finomabb vályogos vagy a durvább homokos frakcióját vizsgálják. A feltárás általában a mémi kívánt szemcseméret leválasztásával kezdődik, ezt követi a minta karbonát- és szervesanyag-tartalmának eltávolítása, az ásványi komponensek nehéz folyadékkal történő szeparációja, a szemcsék külső burkának HF-os maratása, végül a minta hordozókorongokra történő felvitele.

A TL/OSL mérésekkel lényegében a minta által a természetben elnyelt radioaktív dózis (paleodózis) nagyságát lehet közvetett módon meghatározni. Ehhez különböző mérés technikai eljárásokat, ún. protokollokat alkalmaznak (pl.: Aitken 1998, Wintle – Murray 2006), melyek célja a lehetőségekhez mérten pontos összefüggés felállítása a laboratóriumban besugárzott mesterséges dózisok és a mintában így előidézett lumineszcens válaszok között. Ennek alapján ugyanis számítható, hogy a mintából kinyert természetes lumineszcens jel mekkora természetes dózis, azaz paleodózis hatására épült föl. Mivel az elnyelt dózis meghatározása közvetett módon történik, ezért a laboratóriumban mért értéket már egyenérték dózissnak (D_E) nevezik. A szegedi laboratóriumban az eddigi mérések döntő többsége RISØ TL/OSL DA-15 típusú lumineszcens kormeghatározó műszeren történt (2. ábra), 2014 óta a laboratórium kiegészült egy RISØ TL/OSL DA-20 berendezéssel.



2. ábra. RISØ TL/OSL DA-15 típusú lumineszcens mérőberendezés zárt és nyitott állapotban

A koregyenletre tekintve az egyenérték dózis lumineszcens módszerrel történő mérésén túl az egységnyi idő alatt elnyelt dózis, azaz a dózisteljesítmény meghatározása is kulcs fontosságú. A dózisteljesítményt nagyrészt a mintában, illetve annak környezetében található radioaktív elemek bomlásából származó α , β és γ sugárzás, kisebb részt a kozmikus sugárzás határozza meg. A radioaktív elemek koncentrációjának mérése különféle módszerekkel történhet. A kapott eredményekből konverziós egyenletek segítségével számítható a száraz mintára vonatkozó dózisteljesítmény. Ezt korrigálni kell a minta, illetve környezetének nedvességtartalmával, ugyanis a víz hatékonyabban nyeli el a radioaktív sugárzást, mint az üledék szemcséi. Összességében elmondható, hogy mind a minták feltárása, mind mérése és kiértékelés több lépcsőből álló, hosszú folyamat, minek eredményeként számtalan adat keletkezik minden egyes minta vizsgálata során.

4. Az adatbázis forrásadatai

Az adatbázis felállításához több féle, a laboratóriumban vezetett adatforrást használtunk fel. Ezek egy része papír alapú jegyzőkönyv, másik része különféle Excel alapú táblázatokból, harmadik része pedig a kiértékelő szoftverekben tárolt adatokból tevődött össze. Így például külön jegyzőkönyvekben rögzítettük az egyes minták gyűjtési körülményeit, valamint a feltárás során alkalmazott lépéseket, a felhasznált vegyszerek mennyiségét stb. A minták dózisteljesítményére vonatkozó adatokat Excel táblázatokban vezettük. Mindemellett a lumineszcens mérések eredményeit, valamint a koradatokat egy-egy kutatáshoz kapcsolódóan rendeztük táblázatokba, általában szöveges formátumban. Sok, a későbbi publikációkhoz felhasznált adat azonban csak a mérési fájlokból, illetve a kiértékelő szoftverekből volt kigyűjthető. A fenti források valamilyen módon történő egyesítése így igen időszerűvé vált. Az adatbázist jelenleg Excelben állítottuk össze.

5. Az adatbázis felépítése

Mivel egy-egy kutatás több mintát, illetve mérést is magában foglal, ezért a mintákat az adatbázisban kutatásonként csoportosítottuk. Az egyes kutatásokhoz kezdő dátumot, befejezési dátumot, helyszínt, illetve amennyiben szükséges volt további megjegyzést csatoltunk.

A kutatásokon belül a mintákat a laboratóriumi azonosítószám alapján rendeztük sorba. A minták adatait öt nagyobb blokkba rendeztük, amelyek egyrészt a mintagyűjtés, másrészt a minta előkészítés, harmadrészt a lumineszcens mérések, negyedrészt a dózisteljesítmény mérések, valamint ötödrészt a végeredményeket és az azokat közlő publikációk adatait foglalják magukba. A nagyobb blokkok tartalmát az alábbiakban részletezzük.

A mintagyűjtés esetében rögzítésre kerülő elsődleges adatok az alábbiak voltak: a minta terepi azonosítója, a gyűjtés időpontja, a mintagyűjtés helyének megnevezése. Utóbbi megadása üledékminták, illetve régészeti kerámiák esetében viszonylag egyértelmű, ugyanakkor műtárgyak kapcsán nem egészen, ezért ilyen esetben a mintagyűjtés helyeként a raktározó múzeumot jelöltük meg, illetve jeleztük a tárgy készítési helyét amennyiben az ismert volt. A legtöbb eddigi kutatás esetében rendelkezésre álltak a mintagyűjtés helyét jelölő földrajzi, vagy EOV koordináták, ezért ezeket is rögzítettük. A későbbi számítások szempontjából fontos további paraméter a minta felszíntől számított mélysége, valamint a mintagyűjtés tengerszint feletti magassága. A mintagyűjtési blokk esetében is lehetőség van egyéb információk megadására, melyek elsősorban a mintagyűjtő személyére, illetve a mintagyűjtés módjára (üledékek esetében pl.: szelvényből vagy fúrásból, kerámiák esetében pl.: fúróval vagy porítással) vonatkoznak.

A második adatbázis blokkban a minta előkészítéssel kapcsolatos információkat vittük fel. Elsőként a folyamat megkezdésének dátumát, ezt követően pedig a minta típusát. Utóbbit, illetve a később alkalmazandó számítások menetét az alábbi paraméterek határozzák meg: üledékről, vagy kerámiáról van-e szó, mi a felhasznált

szemcseméret frakció, illetve ásványi komponens (kvarc, földpát, esetleg poliminerális). Több esetben előfordult, hogy nemcsak egy frakción, illetve ásványi komponensen végeztünk méréseket, ezt az adatbázisban külön jelöltük. A számítások során lényeges paraméter a minta in situ nedvesség tartalma, amit a feltárás megkezdése előtt célszerű megállapítani. Az ehhez kapcsolódó adatokat így ebben a blokkban rögzítettük. Mivel a feltárás további menete igen eltérő lehet, ezért csak a legalapvetőbb lépéseket vittük fel az adatbázisba külön rekordként, úgy mint pl.: karbonát eltávolítás HCl-el, szervesanyag eltávolítás H_2O_2 -dal, kvarc maratása HF-dal. Amennyiben a jegyzőkönyvekben rögzítve volt, a felhasznált savak mennyiségét is felvittük. Emellett lehetőséget biztosítottunk a szokványos feltárási lépésektől való eltérés szöveges leírására is. Különösen kerámiák esetében fontos paraméter a feltárás végén megmaradó minta tömege, ugyanis ez alapján dönthető el, hogy mennyi mintahordozó-korong készíthető elő. Utóbbi adat felvitele mellett külön jelöltük a ténylegesen előkészített korongok számát is, amennyiben volt erre vonatkozóan információ a papír alapú jegyzőkönyvekben. Végezetül rögzítettük a feltárás befejezésének dátumát.

A harmadik blokk a lumineszcens mérések adatait tartalmazza. Mivel a mérési eredmények értékelése külön szoftverek segítségével történik, ezért ehelyütt csak a legfontosabb mérési paramétereket és a mérésekhez tartozó fájlok adatait rögzítettük. A vizsgálatok során gyakori, hogy több tesztet, illetve több mérést kell elvégezni ugyanazon a mintán, hiszen mint láttuk akár több szemcse, vagy ásványi frakció vizsgálata is elképzelhető. Egy-egy teszt és mérés esetében rögzítettük annak időpontját, a felhasznált korongok mennyiségét, a mérés hosszát, az alkalmazott mérési protokollt, a kapott egyenérték dózis értékét és annak hibáját, az alkalmazott kormodellt, valamint a mérési fájl és az eredmény fájl nevét a könnyebb kereshetőség érdekében.

Az adatbázis negyedik egysége a dózisteljesítmény számításához szükséges adatokat tartalmazza, a víztartalom, illetve a minta előkerülési helyének adatainak kivételével, ugyanis ezeket az előző blokkokban már rögzítettük. Ehelyütt a minták, illetve környezetük radioaktív elemtartalmát vittük fel. Az elemtartalom meghatározása történhet több módszerrel is (gamma spektroszkópia, ICP-MS, XRF), ezt külön jelöltük. Kerámiák esetében, ahol a kerámia és az azt befoglaló üledék elemtartalma egyaránt hozzájárul a háttérsugárzáshoz mindkét közeg adatait feltüntettük. Végezetül a számított belső és külső dózisteljesítmény, a kozmikus dózisteljesítmény, az összes dózisteljesítmény, valamint ezen értékek hibái is rögzítésre kerültek ebben a modulban.

Az ötödik, összefoglaló blokkban a kormeghatározás eredményeit, azaz a korokat és azok hibáját tüntettük fel. Amennyiben több szemcse, vagy ásványi frakción elvégzett mérés eredményeként több koradat is megállapításra kerül, ezeket külön-külön felvittük. Végezetül megadtuk, hogy az adott minta mérési eredményeit mely publikációban közöltük.

6. Összegzés

A Szegedi Tudományegyetem lumineszcens kormeghatározó laboratóriumában elvégzett vizsgálatok száma napjainkra elérte a 800-at. Ez jelentős mennyiségű mérési és egyéb adatot generált, amit korábban különféle adathordozókon, sok esetben csak

papír alapú jegyzőkönyvekben, rögzítettünk. Az egységes, Excel alapú digitális adatbázis létrehozásával a mintagyűjtés, a feltárás és a mérés paraméterei immár egy helyen, jól átlátható formában vannak tárolva. Ezáltal az adatok könnyebben hozzáférhetőek, és lehetőséget nyújtanak általánosabb összefüggések feltárására is egyrészt tudományos célzattal, másrészt a laboratórium hatékonyabb működése érdekében. A későbbiekben ugyanakkor nem jelölhető meg reális célként, hogy az adatokat csak ebben a rendszerben rögzítsük, ugyanis pl. a mintagyűjtés, vagy a laboratóriumi munka során a papír alapú jegyzőkönyvek megtartása elkerülhetetlen. Terveink szerint ezért az adatbázist fél éves időközönként frissítjük a továbbiakban.

Irodalom

- Aitken M. J. (1985): Thermoluminescence Dating. Academic Press, London.
- Aitken M. J. (1998): An Introduction to Optical Dating. Oxford University Press. London.
- Dezső J., Bertók G., Bognár A., Kaposvári F., Darányi V., Pethe M., Csabai Z., Páll-Gergely B., Sipos Gy. 2009: Pedológiai-szedimentológiai vizsgálatok lösszel borított területeken, Szemely-Hegyes későneolitikus körsáncrendszer példáján. Archeometriai Műhely 2009/3, 57-72.
- Kiss T., Györgyövcics K., Sipos Gy. (2013): Homokformák morfológiai tulajdonságainak és korának vizsgálata Belső-Somogy területén. Földrajzi Közlemények 136/4, 361-376.
- Kiss T., Sipos Gy. (2008): Holocén eolikus akkumuláció története a vegetációváltozás és emberi hatások tükrében a Dél-Nyírség féligkötött futóhomok területén. In: Kiss T., Mezősi G. (szerk.): Recens geomorfológiai folyamatok sebessége Magyarországon. SZTE Juhász Gyula Tanárképző Főiskola, Szeged, 185-195.
- Sipos Gy., Kiss T., Nyári D. (2009): Kormeghatározás optikai lumineszcenciával: homokmozgások vizsgálata a történelmi időkben Csengele területén. In: Kázmér M. (szerk.): Környezettörténet. Hantken Kiadó, Budapest, 410-420.
- Sipos Gy., Papp Sz. (2009): Terrakotta műalkotások eredetiségvizsgálata és kormeghatározása termolumineszcens módszerrel, Szépművészeti Múzeum, Budapest. Archeometriai Műhely 2009/1, 61-74.
- Sipos Gy., Kiss T., Páll D. G., Tóth O., Schubert G., Tóth M. (2010): Mintagyűjtés, mintaelőkészítés, mintaveszteség TL kormeghatározás során. Archeometriai Műhely 7/2, 131-136.
- Sümeghy B., Kiss T., Sipos Gy., Tóth O. (2013): A Maros hordalékkúp felső-pleisztocén-holocén képződményei. Földtani Közlöny 143/3, 265-278.
- Wintle A. G. (2008) Fifty years of luminescence dating. Archaeometry 50/2, 276-312.
- Wintle A.G., Murray A.S. (2006): A review of quartz optically stimulated luminescence characteristic and their relevance in single-aliquot regeneration dating protocols. Radiation Measurement 41, 369-391.