

Jerzy BUTRYM

Zakład Geografii Fizycznej

Instytutu Nauk o Ziemi

Uniwersytetu Marii Curie-Skłodowskiej w Lublinie

OZNACZANIE WIEKU TERMOLUMINESCENCYJNEGO
OSADÓW CZWARTORZĘDOWYCH W LABORATORIUM TL
ZAKŁADU GEOGRAFII FIZYCZNEJ UMCS W LUBLINIE

Streszczenie. W pracy przedstawiono metodę termoluminescencyjnego datowania osadów czwartorzędowych. Szczególną uwagę zwrócono na dobór i preparatykę próbek oraz technikę pomiarów TL. Mając na uwadze unifikację metody podano parametry techniczne stosowanej aparatury. Przydatność tej metody wykazano w oparciu o doświadczenia uzyskane z około 400 datowań TL obejmujących przedział czasowy od 1000 do 1.500.000 lat.

Zjawisko termoluminescencji minerałów od szeregu lat jest wykorzystywane do datowania osadów. Jednakże w miarę postępu badań nad jego poznaniem rodzą się ciągle nowe problemy natury teoretycznej bądź też czysto technicznej. O takim stanie rzeczy świadczy obszerna literatura z tego zakresu, a śledzenie publikacji z ostatnich kilkunastu lat daje coraz bardziej skomplikowany obraz zjawiska TL. Pojawiają się też pozycje literatury dające pogląd na dotychczasowy dorobek w tej dziedzinie. Przykładowo warto wspomnieć o pracach takich autorów, jak: Aitken (1981), Szełkoplis Morozow (1918), Wintle, Huntley (1982).

Mimo że datowanie metodą TL stosuje się już w kilku krajach przy tych samych podstawach teoretycznych, to brak unifikacji metody stwarza duże trudności w porównywaniu wyników poszczególnych laboratoriów. Publikowane opisy metody zawierają zwykle zbyt mało danych technicznych, aby możliwe było odtworzenie eksperymentów w warunkach innego laboratorium.

W tej sytuacji wydaje się celowe przedstawienie techniki stosowanej przy analizach TL w laboratorium Zakładu Geografii Fizycznej UMCS w Lublinie. W roku 1980 po skompletowaniu podstawowej aparatury podjęte zostały próby datowania osadów czwartorzędowych. Otrzymano wówczas kilkadziesiąt dat TL nawiązujących do dat uzyskanych innymi metodami (Butrym, 1981). Do wyliczania dawki geologicznej nie stosowano sztucznego napromieniania wszystkich próbek, a ograniczano się jedynie do odpowiedniej kalibracji czytnika TL. Tego rodzaju modyfikacji metody zaniechano już w

1981 roku ze względu na zbyt dużą czasochłonność i małą dokładność pomiaru.

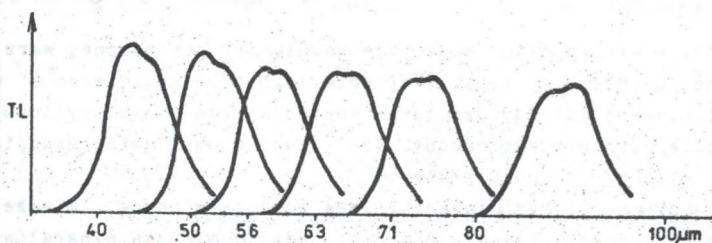
Założeniem metody stosowanej w naszym laboratorium jest stałe dążenie do uproszczenia techniki datowań. Równoległe do oznaczeń wieku prowadzone są prace eksperymentalne zmierzające do uściślenia metody i doboru optymalnych parametrów pomiarowych. Taki kierunek działania przyjęty został po dwuletnich doświadczeniach, w czasie których uzyskano około 400 dat w większości (ponad 90%) znajdujących potwierdzenie w pozycji stratygraficznej określonej metodami geologiczno-stratygraficznymi. Stwierdzono również pełną porównywalność z datami otrzymanymi metodą ^{14}C , paleomagnetyczną, kollagenową oraz oznaczeniami wieku archeologicznego (Butrym et al, 1981, Maruszczak et al, 1983). Zastosowanie uproszczonej metody addytywnej do wyliczania dawki geologicznej dało znacznie lepsze wyniki niż skomplikowane wyliczenia metodą odtworzeniową. Datowania wykonane w oparciu o dawkę geologiczną wyliczoną metodą odtworzeniową odznaczały się brakiem sekwencji dat w profilach geologicznych jak też dużymi różnicami wieku w porównaniu z wiekiem określonym innymi metodami.

Analizy TL poprzedzone są makroskopową oceną i doбором materiału przeznaczanego do datowania. Próbka o masie 0,5-1,0 kg powinna zawierać w swym składzie granulometrycznym przeważnie frakcje pyłowe. W składzie mineralnym w możliwie dużej ilości winien występować kwarc - minerał przewodni dla metody TL. Istotny a niekiedy decydujący o wynikach jest sposób pobrania i przechowywania próbek. Ważne jest przy tym, aby nie były one zbierane z powierzchni odsłoneń, gdzie są narażone na insolację i wpływy termiczne. Z doświadczeń wynika, że próby przechowywane w ciemnym pomieszczeniu, w temperaturze do 20°C , nawet po upływie kilku lat nadają się do datowania metodą TL.

Próbki przeznaczone do analiz TL poddaje się pomiarom dozymetrycznym w celu określenia rocznej dawki pochłoniętej promieniowania jonizującego. W naszym laboratorium stosuje się do tych pomiarów dawkomierze TL typu MTS-N ($\text{LiF}:\text{Mg},\text{Ti}$), w postaci spiekanych krążków o średnicy 4,5 mm i masie około 24 mg. Producentem dawkomierzy jest Instytut Fizyki Jądrowej w Krakowie. Dawkomierze w ilości 6-9 sztuk umieszcza się w próbkach na okres około 3 miesięcy. Po tym czasie mierzy się za pomocą czytnika TL dawki pochłonięte i wylicza średnią dawkę roczną wyrażoną w radach.

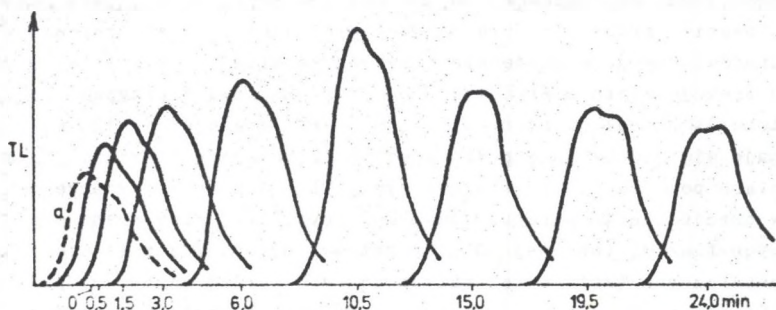
Wyniki otrzymane w tak uproszczony sposób są w pełni porównywalne z uzyskanymi drogą pomiaru stężenia pierwiastków promieniotwórczych w próbce. Również pomiar dozymetryczny dawki rocznej bezpośrednio w profilu geologicznym. Dawki roczne, zmierzone za pomocą dawkomierzy CaSO_4 umieszczanych na okres miesiąca w profilu lessowym w Paks na Węgrzech (Borsy et al, 1979), okazały się bardzo zbliżone do dawek wyliczonych w naszym laboratorium dla próbek pobranych z tych samych poziomów stratygraficznych. Różnice w uzyskanych wynikach mieszczą się w zasadzie w granicach błędu pomiaru. Nasze datowanie tych próbek okazało się nadspodziewanie zgodne z datowaniem dokonany przez Węgrów na podstawie pomiarów *in situ* (w profilu).

Pomiar dawki geologicznej napromienienia poprzedzony jest odpowiednim przygotowaniem próbek. Próbkę poddaje się wstępnie rozdrobnieniu w płuczce ultradźwiękowej, a następnie przemywa na sitach. Wydziela się w ten sposób frakcję ziarn o średnicy 50-56 mikrometrów. W przypadku zbyt małej zawartości tej frakcji można wydzielać także frakcje do 100 mikrometrów. Przyjmuje się jednak jako podstawową tę drobniejszą frakcję. Taka wielkość ziarn pozwala na uzyskanie krzywej TL o wyraźnie zaznaczającym się pikie w przedziale temperatur 230-270°C (rys. 1). Przy wysortowaniu drobniejszych frakcji (poniżej 50 mikrometrów) byłoby znacznie więcej trudności technicznych (sita o tak małych oczkach bardzo szybko ulegają zapchaniu). Stosowana do analiz wielkość ziarn ma też swoje uzasadnienie w teoretycznych podstawach zjawiska termoluminescencji (przenikliwość promieni alfa, zanik efektu TL itp.).



Rys. 1. Wpływ wielkości ziarn na kształt i wysokość krzywej TL

W celu oczyszczenia powierzchni ziarn wysortowanej frakcji poddaje się je działaniu ultradźwięków w dezintegratorze (typ UD-11 prod. Techpan). W zależności od stopnia zanieczyszczenia próbki czas dezintegracji ultradźwiękowej dobierany jest eksperymentalnie i wynosi 8-15 minut przy częstotliwości pracy 22 kHz i amplitudzie drgań 2 m/sek^{-1} . Przy tych parametrach z powierzchni ziarn skutecznie zostają usunięte otoczki węglanowe, żelaziste, manganowe itp. Rozdrobnieniu ulegają cząstki organiczne i mniej odporne minerały. Tak oczyszczoną próbkę przemywa się ponownie wodą destylowaną, a następnie suszy w temperaturze pokojowej. Wielokrotnie powtórzone doświadczenia wykazały, że dezintegracja ultradźwiękowa z powodzeniem zastępuje trawienie ziarn w kwasie solnym i fluorowodorowym oraz powoduje ponad dwukrotne zwiększenie efektu TL w porównaniu z ziarnami nie oczyszczonymi (rys. 2). Warunkiem uzyskania najlepszych wyników jest prawidłowo dobrany czas poddawania próbki ultradźwiękom, ponieważ przedłużanie dezintegracji powoduje znaczne zmniejszenie efektu TL i zanik pikie 230-270°C. Ważne przy tym jest skuteczne chłodzenie próbki zapobiegające, szkodliwemu dla analiz TL wzrostowi temperatury. W naszym laboratorium pojemnik z oczyszczoną próbką chłodzony jest za pomocą ultratermostatu utrzymującego temperaturę 12°C. Należy tu podkreślić, że zastosowanie do czyszczenia ziarn kwarcu kwasu fluorowodorowego powoduje niszczenie ich



Rys. 2. Efekt czyszczenia powierzchni ziarn metodą dezintegracji ultradźwiękowej

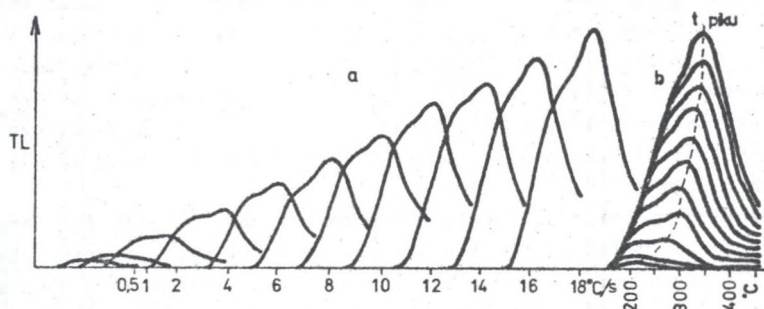
a - krzywa TL próbki nie czyszczonej

powierzchni, w wyniku czego następuje usunięcie zewnętrznej warstwy, napromienionej promieniami alfa. W efekcie tego zabiegu zmierzona wielkość dawki geologicznej może być znacznie zaniżona. Tym samym wyliczony wiek próbki będzie wyraźnie odmłodzony. Zbyt długi czas dezintegracji ultradźwiękowej wywołuje podobny skutek.

Po oczyszczeniu ultradźwiękami próbka zostaje w pewnej mierze wzbogacona w kwarc, jednakże pozostaje w niej nadal domieszka minerałów, które nie uległy rozdrobnieniu. Małe zawartości tych minerałów nie wpływają w istotny sposób na końcowy wynik, gdyż spośród krzywych TL uzyskanych dla danej próbki możemy wyeliminować te, które znacznie różnią się od przeciętnych. W przypadku próbek wyraźnie polimineralnych wskazane jest wydzielenie kwarcu przy użyciu odpowiednich cieczy, względnie separatora elektromagnetycznego.

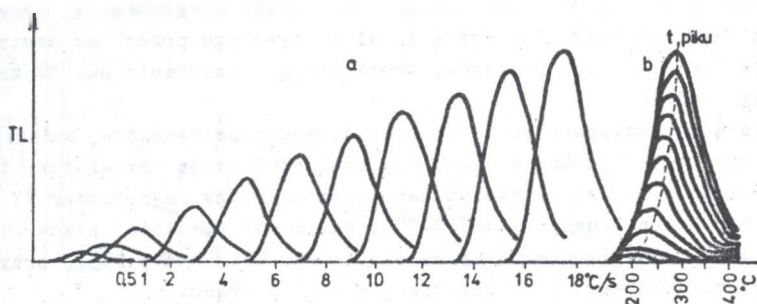
Do wszelkich pomiarów termoluminescencji zarówno dawkomierzy, jak i próbek służy laboratoryjny czytnik-analizator TL (model 770 A), wykonany w Instytucie Fizyki Jądrowej w Krakowie. W przyrządzie tym zastosowano wysokiej czułości fotopowielacz typu 9789 QA firmy EMI, umożliwiający pomiar dawek mniejszych od 1 mrad. Podgrzewanie analizowanych próbek lub dawkomierzy odbywa się w piecu mikrofalowym z szybkością wzrostu temperatury regulowaną w granicach od 0,3 do 18,7°C/sek. Jak wykazują doświadczenia, odpowiedni dobór szybkości grzania decyduje o kształcie krzywej TL, wysokości i temperaturach pików (rys. 3 i 4). Tak więc od stosowanych parametrów podgrzewania próbki w dużej mierze zależy końcowy wynik pomiarów stanowiący podstawę obliczenia daty. W naszym laboratorium szybkość wzrostu temperatury wynosi 4°C/sek, co pozwala na uzyskanie prawidłowej krzywej TL w stosunkowo krótkim czasie.

Nie bez znaczenia jest także masa analizowanej próbki, ponieważ efekt TL wzrasta w sposób wyraźny tylko do określonej wielkości (rys. 5). Ze wzrostem masy próbki zmienia się kształt krzywej TL, przy czym zanika podstawowy do datowania, pik 230-270°C. Przeprowadzanie pomiarów na krzywej



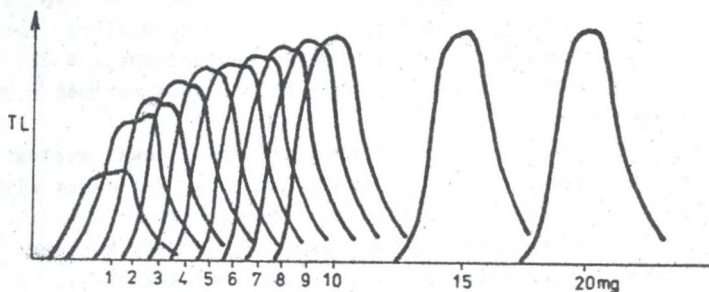
Rys. 3. Less młody z profilu Paks (Węgry)

a - efekt TL w zależności od szybkości wzrostu temperatury, b - wzrost temperatury piku



Rys. 4. Głina zwalowa z profilu Zadębcze (k. Hrubieszowa)

a - zależność kształtu i wysokości krzywej TL od szybkości wzrostu temperatury piku



Rys. 5. Wpływ masy próbki na kształt i wysokość krzywej TL

TL otrzymanej ze zbyt dużej próbki może więc prowadzić do znacznych błędów w wynikach. W używanym przez nas czytniku-analizatorze TL do otrzymania poprawnej krzywej wystarcza próbka o masie 2 mg, co odpowiada w przybliżeniu pojedynczej warstwie ziarn frakcji 50-56 mikrometrów umieszczonych w miseczce z folii aluminiowej o średnicy 5 mm. Większa próbka powoduje zniekształcenia krzywej TL, ponieważ do okienka fotopowielacza dociera część światła emitowanego przez ziarna znajdujące się w głębszych warstwach próbki.

Podgrzewanie próbki odbywa się w środowisku gazu obojętnego (argonu), zapobiegającego procesom utleniania i ewentualnemu występowaniu chemiluminescencji. Promieniowanie podczerwone grzejnika eliminowane jest za pomocą filtra optycznego, co przyczynia się do zwiększenia dokładności pomiaru. Dzięki chłodzeniu komory fotopowielacza utrzymywana jest stała czułość przyrządu nawet po kilku godzinach pracy. W zależności od właściwości termoluminescencyjnych analizowanego materiału możliwe jest regulowanie zarówno czułości fotopowielacza, jak i skali odwzorowania krzywej TL w bardzo szerokim zakresie. Jedną z zalet używanego przez nas czytnika TL jest duża powtarzalność pomiarów, umożliwiająca uzyskanie ok. 30 krzywych TL w ciągu godziny.

Podstawą do przeprowadzenia analizy termoluminescencyjnej badanej próbki jest uzyskanie wykresu krzywej TL, będącej funkcją temperatury i luminescencji. Do tego celu w naszym laboratorium służy rejestrator XY japońskiej firmy Riken Denshi, model D-8CP. Natomiast wysokości pików mierzone są za pomocą miliwoltomierza cyfrowego (prod. Unipan typ 245), przystosowanego do pomiaru wartości szczytowej napięcia prądu.

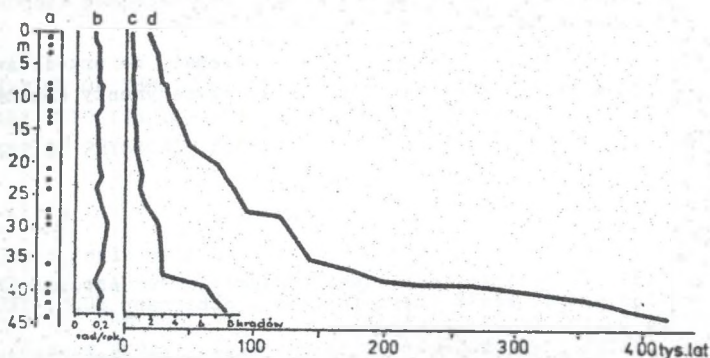
Dokładne pomiary wysokości pików TL służą do wyliczenia dawki geologicznej promieniowania, pochłoniętej przez próbkę. Aby uzyskać wartość tej dawki w jednostkach wymiernych, stosuje się dodatkowe, sztuczne napromienianie ściśle określonymi dawkami. W naszym przypadku używa się do tego celu Kobaltu ^{60}Co , otrzymując dawki ekspozycyjne 10-15 kR. Z różnicy wysokości pików próbki dodatkowo napromienionej i naturalnego pików TL z tej samej próbki wylicza się wielkość dawki geologicznej. W celu uzyskania możliwie dokładnych wyników przyjmuje się średnią wartość z 30-50 pomiarów dla każdej próbki.

Wiek bezwzględny próbki stanowi iloraz wielkości dawki geologicznej wyrażonej w radach i dawki rocznej w radach/rok. Tak zmierzony wiek próbki jest oczywiście obarczony pewnym błędem, którego całkowita wielkość jest trudna do określenia. Możliwe jest wyliczenie błędu wynikającego z niedokładności aparatury pomiarowej, rozrzutu wskazań dawkomierzy oraz dokładności dawki ekspozycyjnej sztucznego napromienienia. W sumie błąd ten mieści się w granicach 15% określonego wieku próbki. Trudno jednak stwierdzić, jaką wielkość stanowi błąd wynikający z niepełnego jak dotąd poznania zjawiska termoluminescencji. Nie jest bowiem wystarczająco zbadany mechanizm utraty właściwości TL przez ziarna mineralne w okresie poprzedza-

jącym ich sedymentację w złożu, z którego pobieramy próbkę. Trudności nastęrcza wyliczenie zarówno wielkości termoluminescencji szczątkowej, zależności liniowej od dawki napromienienia, jak i zakresu pełnego nasycenia ziarn kwarcu, co decyduje o wielkości obliczanej dawki geologicznej.

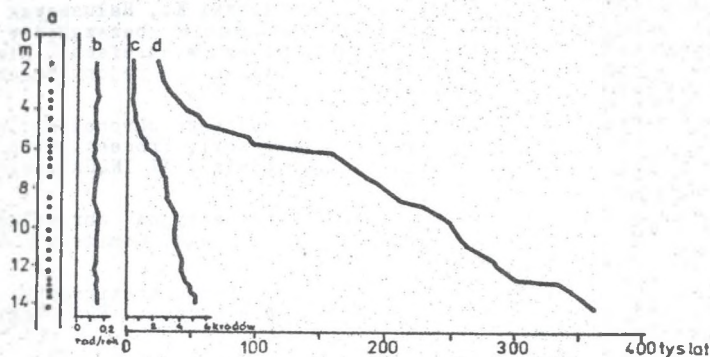
Datowania wykonane w naszym laboratorium mają odpowiedni stopień prawdopodobieństwa. Stwierdzenie to odnosi się zarówno do datowań znalezisk archeologicznych, których wiek określono na 1000 lat (datowanie potwierdzone przez archeologów), jak i osadów liczących 1,5 mln lat, opróbowanych w położeniu stratygraficznym na taki wiek wskazującym.

Poprawność i prawidłowość sekwencji uzyskanych dat daje się zauważyć zwłaszcza w profilach, dla których wykonano większą ilość analiz TL (rys. 6 i 7).



Rys. 6. Profil lessowy Paks (Węgry)

a - rozmieszczenie analizowanych próbek, b - dawka roczna, c - dawka geologiczna, d - wiek TL



Rys. 7. Profil lessowy Nieledeń (k. Hrubieszowa)

a - rozmieszczenie analizowanych próbek, b - dawka roczna, c - dawka geologiczna, d - wiek TL

Przykładowo wybrane do analiz profile lessowe Paks (Węgry) i Nieledeu (Butrym, Maruszczak 1983, a,b) potwierdzają te prawidłowości. W obu przypadkach wielkości dawki geologicznej zwiększa się w głąb profilu, a jej wzrost w stosunku do wyliczonego wieku próbek jest wyraźnie zbliżony do liniowego. Godną podkreślenia jest prawidłowa sekwencja otrzymanych dat, znajdujących potwierdzenie w stratygrafii osadów, ustalonej różnymi metodami i popartej datowaniami przy użyciu innych metod. Podobne prawidłowości stwierdzono we wszystkich datowanych profilach, nieliczne odstępstwa są raczej wynikiem zastosowania do analiz nieodpowiedniego materiału (zbyt mała zawartość kwarcu, w złych warunkach przechowywane lub źle pobrane próbki itp.). Doświadczenia wykazały, że do uzyskania poprawnych wyników konieczne jest wykonanie możliwie dużej ilości analiz TL. Ułatwia to wyeliminowanie przypadkowości i wyliczenie z mniejszym błędem wielkości średnich.

Osiągnięte dotychczas rezultaty pozwalają mniemać, że przedstawiona metoda datowania TL może być stosowana, a dalsze eksperymenty doprowadzą do jej uscislenia.

LITERATURA

- Aitken M.J., 1981, TL dating: techniques and problems: Applied Thermoluminescence Dosimetry. Eds M Oberhofer and A Scharmann ECSC, EEC, EAEC, Brussels and Luxemburg, 19, 361-381.
- Borsy Z., Féliszterfalvi J., Szabo P.P., 1980, Thermoluminescence dating of several layers of the loess sequences at Paks and Monde (Hungary); Acta Geol. Acad. Sci. Hung., 22, 451-459.
- Butrym J., 1981, Datowanie absolutne osadów czwartorzędowych zmodyfikowaną metodą termoluminescencyjną; Sprawozdania z badań nauk. Komitetu Badań Czwartorzędu PAN, Warszawa Nr 4, 161-166.
- Butrym J., Baraniecka M.D., Kasza L., Brodzikowski K., Hałaszcak A., Gotowała R., Janczyk-Kopikowa Z., 1982, Datowanie bezwzględne osadów czwartorzędowych górnego piętra strukturalnego w strefach Piaski-Buczyna-Chojny odkrywki bełchatowskiej; Czwartorzęd rejonu Bełchatowa I symposium, Wyd. Geol. Wrocław-Warszawa, 150-157.
- Butrym J., Maruszczak H., 1983 a, Thermoluminescence chronology of younger and older loesses at Paks profile (Hungary); Procees. Symp "Lithology and stratigraphy of loesses and paleosols". XI INQUA Congress (w druku).
- Butrym J., Maruszczak H., 1983. b, Termoluminescencyjna chronologia lessów z profilu Nieledeu; Sprawozdania z badań nauk. Komitetu Badań Czwartorzędu PAN, Warszawa, nr 5 (w druku).
- Maruszczak H., Košťalik J., Butrym J., 1983, Chronostratigraphy of the Vistulian and Saalian loesses in east-middle Europe; Wyd. Węgierskiej Akademii Nauk (w druku).
- Szełkoplias W.N., Morozow G.W., 1981, Primienienije termoluminescentno-go metoda dlia izuczenija antropogienowych otłożenij; Inst.Geol.Nauk. AN Ukr. SSR, Kijew, 1-41.
- Wintle A.G., Huntley D.J., 1982, Thermoluminescence dating of sediments; Quatern. Sci. Rev., 1, 31-53.

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ВОЗРАСТА ПО ТЕРМОЛЮМИНЕСЦЕНЦИИ ЧЕТВЕРТИЧНЫХ ОТЛОЖЕНИИ
В ЛАБОРАТОРИИ ТЛ КАФЕДРЫ ФИЗИЧЕСКОЙ ГЕОГРАФИИ У.М.К.С. В ЛЬВЛИНЕ

Резюме

В работе представляется метод термоллюминесцентного датирования четвертичных отложений. Особое внимание обращено на отбор и подготовку проб а также на технику измерений ТЛ. Имея в виду унификацию метода поданы технические параметры применяемой аппаратуры. Пригодность этого метода доказано опираясь на богатом статистическом материале из ок. 400 датировок ТЛ, обнимающих диапазон времени от 1000 до 1,5 миллиона лет.

DETERMINATION OF THE THERMOLUMINESCENCE AGE OF THE
QUATERNARY DEPOSITS IN THE TL LABORATORY OF THE U.M.C.S.
DEPARTMENT OF PHYSICAL GEOGRAPHY

Summary

The paper deals with the thermoluminescence method of the dating of the Quaternary deposits. Special attention has been paid to the choice and preparation of the samples as well as to the techniques of the TL measurements. Taking under consideration the unification of the method the technical parameters of the applied apparatus have been presented. The usefulness of the method has been showed on the basis of the experiments obtained from about 400 TL datings, comprising the time interval from 1000 to 1500000 years.