



## ملاحظات‌ی در خصوص افزایش دقت در سالیابی به روش ترمولومینسانس

نیلوفر هاشمیان کربکندی\*، مصطفی زاهدی‌فر، احسان صادقی، فهیمه عباسی

دانشکده فیزیک دانشگاه کاشان، گروه فیزیک هسته‌ای، ۸۷۳۱۷۵۳۱۵۳، کاشان، ایران

### چکیده:

در این تحقیق، سالیابی یک نمونه سفال متعلق به یک کوزه از منطقه‌ی استلک به روش ترمولومینسانس انجام شد. روستای استلک یکی از روستاهای دهستان کوهپایه از بخش مرکزی شهرستان کاشان می‌باشد که قدمت این شهر به ۷۰۰۰ سال قبل باز می‌گردد. منحنی درخشش گرمایی ناشی از نمونه‌های طبیعی و نمونه‌های طبیعی پرتودهی شده با پرتوهای گاما با یکدیگر مقایسه و ناحیه‌ی افقی تعیین شد. دز معادل کل با استفاده از اختلاف منحنی پاسخ گرمایی نسبت به دز گاما برای نمونه‌ها ۱۸۹/۵ گری به دست آمد. میزان پرتوهای کیهانی و پرتوهای گاما در این منطقه به روش ترمولومینسانس اندازه‌گیری شد. تابکاری با دمای بالا باعث کاهش دقت در محاسبه سن نمونه گردید.

### کلیدواژه‌ها:

سالیابی، ترمولومینسانس، منحنی درخشش، دز معادل، تابکاری

## Considerations for increasing the accuracy of thermoluminescence detection

Niloofer Hashemiyan Korbekandi\*, Mostafa Zahedifar, Ehsan Sadeghi, Fahime Abbasi

Physics department, University of Kashan, 8731753153, Kashan, Iran

### Abstract:

In this research, dating of a pottery sample belonging to a jar from the estalk area was performed by thermoluminescence method. Stalk village is one of the villages in the central part of Kashan city, the city dates back to 7000 years ago. The thermal glow curve of natural specimens and natural specimens irradiated with gamma rays were compared and the horizontal region was determined. The total equivalent dose was obtained using the difference of the heat response curve with respect to the gamma dose for the sample of 189.5 gray. The amount of cosmic and gamma rays in this region were measured by thermoluminescence method. Annealing with high temperature reduced the accuracy in calculating the age of the sample.

**Keywords:** Dating, Thermoluminescence, Glow Curve, Equivalent Dose, Annealing

Email: n.hk69@grad.kashanu.ac.ir

## ۱. مقدمه

ترمولومینسانس یکی از زیرشاخه‌های لومینسانس است که طی آن مواد هنگام حرارت دهی تا ۵۰۰ درجه‌ی سانتی‌گراد از خود نور ساطع می‌کنند. جهت بکارگیری ترمولومینسانس در سالیابی از دانه‌های معدنی کوارتز و فلدسپار موجود در مواد که به عنوان دزیومتر عمل می‌کنند، استفاده می‌شود [۱]. پدیده‌ی ترمولومینسانس از قرن‌ها قبل برای دانشمندان شناخته شده بود. اولین بار رابرت بویل در سال ۱۶۶۳ گزارشی درباره‌ی بلورهای الماسی که در تاریکی می‌درخشیدند ارائه داد. در طبیعت بلورهای متعددی وجود دارند که بر اثر حرارت از خود نور ساطع می‌کنند. امروزه ثابت شده است که این نور در واقع بر اثر آزاد شدن انرژی است که درون این بلورها، طی فرایندهای مختلف ذخیره شده‌اند. از اواخر قرن نوزدهم که علم زمین‌شناسی پیشرفت‌های بسیاری کرد، دانشمندان برای تشخیص سنگ‌های معدنی از یکدیگر و طبقه‌بندی کانی‌ها، خواص ترمولومینسانس و نوع نور ساطع شده از آن‌ها را نیز مد نظر قرار می‌دادند. شدت نور ترمولومینسانس نمونه‌های سفال اولین بار در دانشگاه برن اندازه‌گیری شد. نخستین پیشنهاد در زمینه‌ی استفاده از ترمولومینسانس برای عمرسنجی نمونه‌های زمین‌شناسی و باستان‌شناسی توسط دانیلز و همکارانش (۱۹۵۳) ارائه شد که پس از آن به سرعت کارهای وسیعی در این زمینه انجام شد [۲]. سالیابی نمونه‌های سفالی با استفاده از روش ترمولومینسانس در ابتدا توسط گروگلر (۱۹۶۰)، کندی و نیف (۱۹۶۰) صورت گرفت [۳ و ۴]. طی دهه‌ی ۱۹۶۰ گروه پژوهشگران دانشگاه آکسفورد به سرپرستی (آتکین) با انجام دادن صدها مورد سالیابی و تعیین قدمت سفال، آجر، کاشی و ارائه‌ی روش‌های مختلف نمونه‌سازی، توانستند سالیابی ترمولومینسانس را به عنوان روشی دقیق و مطمئن، با درصد خطای پایین (بین ۵ تا ۱۰ درصد) و با میزان نمونه‌ی ناچیز مورد نیاز (در حد میلی‌گرم)، برای سالیابی مطلق اشیاء سفالی ارائه دهند [۵]. کوشش‌های این پژوهشگران باعث شد که سالیابی ترمولومینسانس جزئی جدایی‌ناپذیر از روش‌های پژوهشی در باستان‌شناسی و زمین‌شناسی شود [۶]. با توجه به این نکته که ساخت سفال تقریباً در تمام دنیا از چندین هزاره قبل از میلاد مسیح متداول بوده است، می‌توان به اهمیت سالیابی ترمولومینسانس برای باستان‌شناسی پی برد. سفال، آجر، کاشی، رسوبات، سنگ‌های آتشفشانی، سنگ چخماق و به‌طور کلی هر نوع خاک پخته شده درون کوره که بیش از ۴۰۰ درجه سانتی‌گراد دیده باشد، برای سالیابی با این روش مناسب هستند. یکی از مزیت‌های این روش محدوده‌ی سالیابی آن است. با روش معمول کربن ۱۴ می‌توان تا حدود ۵۰ هزار سال را سالیابی کرد، ولی روش سالیابی ترمولومینسانس محدوده‌ی زمانی تا ۲۰۰ هزار سال را دربرمی‌گیرد. از دیگر برتری‌های این روش تعیین زمان دقیق پخت سفال است؛ در صورتی که در سالیابی چوب با روش کربن ۱۴، قطع درخت ممکن است مدت‌ها قبل از واقعه‌ای باشد که باستان‌شناس قصد سالیابی آن را دارد، یا ساخت شیء و استفاده از چوب در بنا ممکن است حتی سال‌ها پس از قطع درخت واقع شده باشد. از دیگر مزایای این روش مدت زمان نسبتاً کوتاه لازم برای آزمایش سالیابی است که در حدود یک ماه می‌توان قدمت یک نمونه را مشخص کرد [۱]. لازم به ذکر است که کلیه‌ی مراحل باید زیر نور قرمز انجام شود، زیرا نور معمولی می‌تواند انرژی ذخیره شده‌ی درون بلورها را آزاد کند و در نتیجه قدمت نمونه کمتر از میزان واقعی آن به‌دست آید [۷]. برای تعیین قدمت نمونه از رابطه‌ی ۱ استفاده می‌شود [۸]:

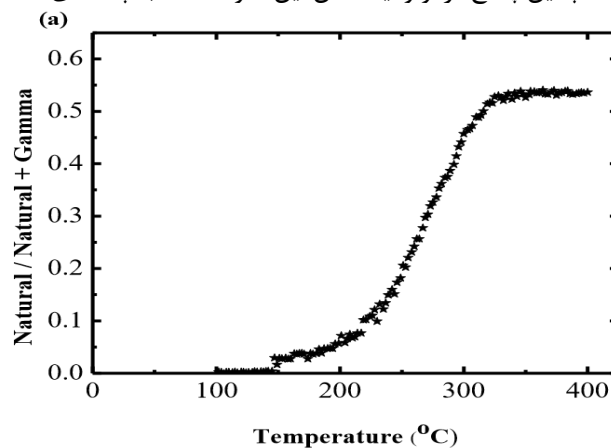
$$Age = \frac{ED}{KD_{\alpha} + C_{\beta}D_{\beta} + C_{\gamma}D_{\gamma+C}} \quad (1)$$

که در آن ED دز معادل،  $D_{\alpha}$  مقدار انرژی مؤثر پرتوهای آلفا،  $D_{\beta}$  مقدار انرژی مؤثر پرتو بتا،  $D_{\gamma}$  مقدار انرژی مؤثر پرتوهای گاما و DC مقدار انرژی پرتوهای کیهانی منتقل شده به جسم و ضرایب  $k$ ،  $C_{\beta}$  و  $C_{\gamma}$  بازدهی نسبی و ضرایب تصحیح رطوبت می‌باشند. برای به دست آوردن مقدار انرژی ذخیره شده در نمونه طی زمان دز معادل را باید محاسبه کرد. اثرات نسبی پرتوهای مختلف ممکن است باعث بروز خطای بزرگ در تخمین عمر نمونه گردد. براین اساس با استفاده از روش‌های مختلف تلاش می‌شود که این اثرات نسبی حذف گردد. به دلیل طبیعت خاص پرتوهای آلفا و چگالی یون‌زایی آنها، شدت نور ترمولومینسانس ساطع شده از نمونه‌هایی که تحت تاثیر پرتوهای آلفا قرار گرفته‌اند، در شرایط انرژی‌های یکسان، بسیار کمتر از شدت نور ترمولومینسانس ساطع شده از نمونه‌هایی است که فقط تحت تاثیر پرتوهای بتا قرار گرفته‌اند. به همین دلیل حساسیت نمونه در برابر پرتوهای آلفا جداگانه اندازه‌گیری می‌شود. با تقسیم دز

معادل بتا بر دز معادل آلفا ضریب  $k$  به دست می‌آید. برای تعیین غلظت عناصر پرتوزای موجود در سفال مانند توریم، اورانیوم و روبیدیم که برای سالیابی ترمولومینسانس دارای اهمیت اساسی هستند از روش شمارش تعداد ذرات آلفای ساطع شده از نمونه استفاده می‌شود (محاسبات  $D\alpha$  و  $D\beta$ ). با قرار دادن دزیمترهای محیطی در خاک اطراف سفال می‌توان غلظت عناصر پرتوزا در محیط اطراف نمونه را به دست آورد که حامل مقدار انرژی عناصر پرتوزای محیط و پرتوهای کیهانی موجود در محل می‌باشد (محاسبات  $D\gamma$  و  $Dc$ ). درصد تخلخل یکی از مشخصات سفال است. جذب آب نمونه موجب کاهش تاثیر پرتوهای یون زا روی نمونه می‌شود. اثر وجود رطوبت در نمونه به دلیل ناپیچ بودن دز آلفا فقط به صورت ضرایبی برای دزهای بتا و گاما نمایان می‌شود ( $C\beta$  و  $C\gamma$ ) [۱]. معادله‌ی قدمت در فصل دوم کتاب سالیابی ترمولومینسانس اثر آیتکن به طور مفصل توضیح داده شده و به اثبات رسیده است.

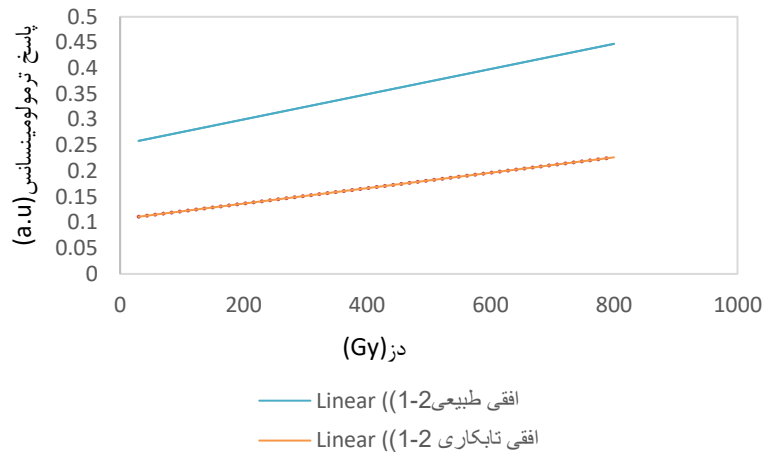
## ۲. روش کار

در این تحقیق بر اساس روش ریز دانه، نمونه‌ی کوزه از منطقه‌ی سیلک تهیه شد. در مرحله آماده‌سازی، سطح سفال را کنار گذاشته و با استفاده از مته مخصوص مقداری پودر از لایه‌های داخلی نمونه برداشته شد. این کار به دلیل زدودن آلودگی ناشی از دز بتا انجام می‌شود. سپس برای زدودن ترکیب‌های کربنات به دلیل اینکه پیک ترمولومینسانس کربنات و کوارتز باهم همپوشانی دارد و سبب ایجاد خطا می‌گردد، اسید استیک ۵٪ به پودر اضافه شد تا در هنگام رسم پاسخ ترمولومینسانس شاهد پیک کربنات نباشیم. پس از چند روز با آب یونیزه شده شستشو داده شد و در این مرحله آب مقطر به نمونه شسته شده افزوده می‌گردد تا اثر اسید از بین رفته و نمونه در محیط تاریک نگهداری شد. در مرحله بعد مخلوط را چند بار با آب یونیزه شده و اتانول شسته و محلول نهایی یک شب در کوره در دمای  $50^\circ\text{C}$  قرار گرفت. در ادامه نمونه‌ی خشک شده را با استون شست‌وشو داده تا هم اثر آب مقطر از بین برود و هم اینکه اگر مواد آلی باقی مانده است حذف شوند. سپس ته مانده‌ی مواد را با استون حل کرده و رسوب حاصل از این مرحله را کنار گذاشته و محلول باقی مانده به حال خود رها شد. پس از آن رسوب حاصل را با مقداری استون مخلوط کرده و محلول را در قالب‌های استیل ریخته و قالب‌ها به مدت یک روز در کوره در دمای  $50^\circ\text{C}$  قرار گرفتند. نمونه نهایی به صورت رسوب در کف قالب‌ها باقی می‌ماند. به مجموع رسوب و قالب الیکوت گفته می‌شود. جرم نمونه‌ها به منظور پرتودهی با استفاده از یک ترازو با دقت  $0.0001 \pm \text{g}$  ثابت نگه داشته شد. برای گرمادهی پودر بدست آمده از یک کوره الکتریکی با دقت  $0.1 \pm$  درجه سانتی‌گراد استفاده شد. پرتودهی همگی نمونه‌ها با استفاده از چشمه‌ی کبالت  $60$  در پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای تهران انجام شد. قرائت نمونه‌های پرتودهی شده با یک دستگاه TLD مدل Harshaw TLD reader ۴۵۰۰ از دمای  $50$  تا  $450$  درجه سانتی‌گراد با آهنگ دمایی  $2^\circ\text{C/S}$  انجام گرفت. جهت انجام سالیابی، در ابتدا باید پایداری گرمایی نمونه را مشخص نمود زیرا در صورت وجود قله‌های پایدار در نمونه‌ی مورد نظر، روش ترمولومینسانس برای قدمت‌سنجی قابل استفاده خواهد بود. در آزمایشگاه برای بررسی پایداری گرمایی و قبل از سنجش دز معادل، در ابتدا تست پلاتو یا افقی بودن انجام می‌شود تا ناحیه‌ی پایداری نمونه‌ها از نظر دمایی تعیین گردد. لذا باید پاسخ ترمولومینسانس نمونه‌های طبیعی و همچنین پاسخ ترمولومینسانس این نمونه‌ها که با چشمه‌ی گاما پرتودهی شده‌اند، قرائت شوند.



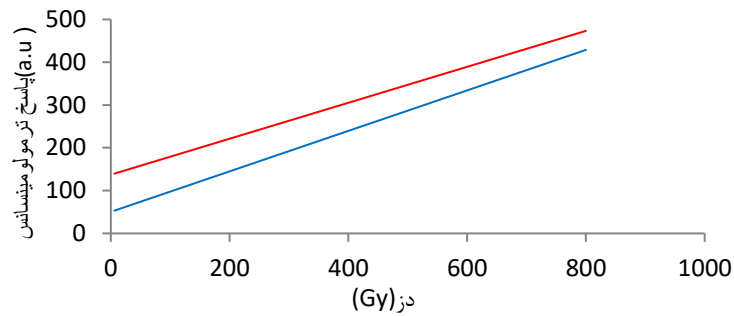
شکل (۱): منحنی نسبت پاسخ ترمولومینسانس نمونه طبیعی به پاسخ ترمولومینسانس نمونه طبیعی پرتودهی شده با دز گاما  $800$  گری

مشاهده می‌شود که در شکل ۱ ناحیه‌ی دمایی پایدار از ۳۳۰ تا ۳۹۰ درجه سانتی‌گراد است. برای محاسبه‌ی سن سفال باید طبق رابطه قدمت، میزان دز معادل به صورت دقیق تعیین گردد. به این منظور چند عدد از الیکوت‌های آماده شده (بدون تابکاری) و به همان میزان الیکوت تابکاری شده در دمای  $600^{\circ}\text{C}$  به مدت یک ساعت را با پرتوی گاما از ۰ تا ۸۰۰ گری پرتو دهی کرده، سپس منحنی پاسخ-دز نمونه‌ی آن‌ها را در یک نمودار رسم می‌کنیم که به صورت شکل ۲ می‌باشد.



شکل ۲: منحنی پاسخ ترمولومینسانس بر حسب افزایش مقدار دز از ۰ تا ۸۰۰ گری برای دمای تابکاری  $600^{\circ}\text{C}$  درجه‌ی سانتی‌گراد. خط قرمز رنگ مربوط به الیکوت‌های تابکاری شده و خط آبی رنگ متعلق به الیکوت‌های بدون تابکاری است.

به همین ترتیب دز معادل  $115/1$  گری تخمین زده شد. با انجام محاسبات و قرار دادن دز سالانه در معادله‌ی تعیین قدمت، عمر نمونه بیشتر از مقدار واقعی به دست می‌آید و این امر نشان‌دهنده‌ی مقدار دز معادل بالاست. دلیل این امر، تابکاری در دمای بالای  $500^{\circ}\text{C}$  است. وقتی که در دمای  $600^{\circ}\text{C}$  تابکاری انجام می‌شود تمامی تله‌های عمیق کریستال (رسوب) خالی از الکترون می‌شود. در صورتی که برای این که بتوانیم نمونه‌ی تابکاری شده‌ی پرتو داده شده را با نمونه‌ی طبیعی پرتو دهی شده مقایسه کنیم، باید فقط تله‌های دزیمتری خالی شود. یعنی تله‌های عمیق هر دو نمونه‌ی تابکاری و طبیعی باید دارای شرایط یکسان باشند. مثلاً زمانی که ما به رسوب تابکاری نشده مقدار ۱۰۰ گری دز می‌دهیم یک سیگنال اضافه بر حسب ۱۰۰ گری را مشاهده می‌کنیم ولی وقتی به رسوب تابکاری شده در دمای بالا که تمامی تله‌های عمیق خالی شده‌اند ۱۰۰ گری دز می‌دهیم سیگنال اضافه‌ای کمتر از ۱۰۰ گری، مثلاً در حد ۷۰ گری دریافت می‌کنیم که این باعث زیاد شدن فاصله بین دو خط (شکل ۲) و در نتیجه موجب افزایش دز معادل می‌گردد. برای محاسبه‌ی دقیق قدمت، در مرحله بعدی نمونه دمای  $500^{\circ}\text{C}$  را برای تابکاری انتخاب کردیم و تمامی مراحل بالا را به ترتیب تکرار شد. منحنی پاسخ-دز بصورت شکل ۳ می‌باشد.



— Linear (1-2) (ناحیه افقی طبیعی) — Linear (1-2) (ناحیه افقی تابکاری)

شکل ۳: پاسخ ترمولومینسانس بر حسب افزایش مقدار دز از ۰ تا ۸۰۰ گری برای دمای تابکاری ۵۰۰ درجه سانتی‌گراد. خط قرمز رنگ مربوط به الیکوت‌های تابکاری شده و خط آبی رنگ متعلق به الیکوت‌های بدون تابکاری است.

## ۵. نتیجه‌گیری

با استفاده از روش سالیابی ترمولومینسانس، سن سفال کشف شده در منطقه استلک تعیین شد که با قدمتی که از طریق گروه باستان‌شناسی دانشگاه کاشان (چیزی حدود دوهزار سال) اعلام گردید مطابقت بسیار نزدیکی داشت. به دلیل دمای بالای تابکاری ( $600^{\circ}\text{C}$ ) در نمودار پاسخ ترمولومینسانس بر حسب افزایش دز، فاصله‌ی دو خط مربوط به الیکوت‌های تابکاری شده و بدون تابکاری به صورت چشمگیری افزایش یافت که این امر باعث کاهش دقت در تعیین سن نمونه گردید (قدمت سفال ۶۹۹۱۴ سال به دست آمد). لذا انتخاب دمای تابکاری مناسب ( $500^{\circ}\text{C}$ ) نقش به‌سزایی در محاسبه‌ی دقیق سن نمونه (قدمت سفال ۱۸۱۵ سال محاسبه شد) خواهد داشت.

## ۵. علائم، نشانه‌ها و ارقام

ضرایب تصحیح رطوبت	$C_{\gamma}$ و $C_{\beta}$
انرژی پرتوهای کیهانی	$D_c$
منتقل شده به جسم	
انرژی مؤثر پرتوهای آلفا	$D_{\alpha}$
انرژی مؤثر پرتو بتا	$D_{\beta}$
انرژی مؤثر پرتوهای گاما	$D_{\gamma}$
دز معادل	ED
ضریب بازدهی نسبی	k



۶. مراجع

1. Faranak Bahrololumi Shapurabadi, Raveshhaye Salyabi Dar Bastanshenasi, Entesharat Samt, 1388. (In Persian)
2. F. Daniels, C. A. Boyd, D. F. Saunders, "Thermoluminescence as a Research Tool", Science, vol. 117, No.3040, pp. 343-349, 1953.
3. N. Grogler, F. G. Houtermans and H. staufer, "Ueber die datierung von Keramik und Ziegel durch Thermolumineszenz", Helvetica PhysicaActa, vol. 00, pp. 595-599, 1960.
4. G. C. Kennedy, and L. Knopff, "Dating by thermoluminescence", Archaeology, vol. 13, pp. 147-148, 1960.
5. M. J. Aitken, Thermoluminescence dating, Academic Press, London, 1985.
6. M. Fattahi, R. Walker, "Dating volcanic and related sediments by luminescence methods: a review", Quaternary Geochronology, vol. 2, pp.284-289, 2007.
7. S. Khasswneh, Z. Almuheisen, R. Abdallah, "Thermoluminescence dating of pottery objects from Tell Al-Husn, northern Jordan", Mediterranean Archaeology and Archaeometry, vol. 11, No.1, pp. 41-49, 2011.
8. S.W.S. McKeever, Thermoluminescence of solids, University Press, Cambridge, 1997.