



DATACIÓN DE CERÁMICA PREHISPÁNICA POR EL MÉTODO EMISIÓN DE LUZ TÉRMICAMENTE ESTIMULADA

Pedro Ramón González-Martínez

Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares, Carretera México-Toluca s/n, La Marquesa, Ocoyoacac, C.P. 52750, México. pedro.gonzalez@inin.gob.mx

Resumen

La emisión de luz térmicamente estimulada de una muestra arqueológica, está asociada a la exposición prolongada a la radiación ionizante emitida por los radioisótopos naturales de U, Th y K, contenidos en la misma muestra y en el suelo donde quedo sepultada, otra pequeña contribución se debe a la radiación cósmica. Este método permite la datación o simplemente la comprobación de su autenticidad, de piezas arqueológicas. En este trabajo, se presenta la metodología para la toma correcta de muestras, la preparación para tomar su lectura, las diferentes técnicas de análisis para la cuantificación de los elementos que contribuyen en la tasa de dosis anual y la estimación de su edad.

Introducción

El estudio de la cerámica revela el tipo de arcilla usada, el grado de avance en las técnicas de cocción y por lo tanto el avance cultural de cada comunidad, y lo más importante, la edad de la pieza arqueológica, esto es, el tiempo transcurrido desde que fue sometida la pieza al calor para darle forma y consistencia.

La emisión de luz térmicamente estimulada (TL) natural de las muestras arqueológicas, se debe a la acción prolongada de un flujo de radiación nuclear, tanto ambiental como emitida por las impurezas radiactivas contenidas en la misma muestra, o de los alrededores donde quedó sepultada. Los elementos radiactivos presentes son generalmente ^{40}K , ^{87}Rb , ^{232}Th y ^{238}U . Estos se encuentran en concentraciones de pocas partes por millón (ppm) y tienen una vida media muy larga (entre 10^9 y 10^{11} años) por lo que el flujo de radiación es constante. De esta forma, la intensidad TL producida por una vasija, por ejemplo, es proporcional al tiempo que ha transcurrido desde la cocción de la muestra hasta el momento de tomar su lectura TL. La elevada temperatura que se alcanza en el proceso de cocción, permite borrar completamente la TL adquirida por los minerales durante tiempos geológicos; por lo que, a partir del cocido de la vasija, se considera el cronómetro en tiempo cero [1]. La importancia del método de TL radica en el hecho de que la intensidad TL natural de la muestra, es proporcional a la dosis que ha recibido a través del tiempo.



Desarrollo experimental

La fuente utilizada para la irradiación artificial de las muestras es un emisor de radiación β de ^{90}Sr , Amersham, cuya actividad es de 3.7GBq (100 mCi), con una rapidez de dosis de 184.7 Gy/h. Para el uso de esta fuente debe tomarse en cuenta que el espesor de las muestras no afecte en forma apreciable la trayectoria de la radiación, ya que al pasar a través de la materia, las partículas beta sufren una gran variedad de interacciones; pueden cambiar de trayectoria, pueden perder energía por la producción de electrones energéticos secundarios o por la producción de rayos X. En minerales para fechamiento por TL el grado de atenuación es similar al del aluminio. Para una muestra de grano fino, cuyo tamaño de grano es entre 4 y 11 μm , la atenuación es despreciable [1].

Para la lectura TL tanto de las muestras no irradiadas, como irradiadas, se utiliza el equipo analizador TL 1100 AUTOMATED TL SYSTEM fabricado por Daybreak Nuclear and Medical System, Guilford, CT (EE UU). Tanto el emisor de radiación β como este equipo, se encuentran en el Instituto de Geofísica, en la UNAM. Este equipo cuenta con un portamuestras tipo carrusel, con capacidad para 20 discos. Mientras que la lectura de los dosímetros TL que se usaron para la medición de la radiación ambiental, en el sitio arqueológico se realizó en el TLD System Mod. 4000, de Harshaw, propiedad del ININ.

La toma de muestras se realiza durante los trabajos de campo, bajo la responsabilidad del director del proyecto ante el INAH. De preferencia las muestras deben ser tomadas antes de que salga el sol o al ocultarse, las muestras colectadas se colocan en bolsas de plástico negro, se envuelven perfectamente en papel aluminio y se trasladan al ININ para su estudio.

Para conocer la tasa de dosis anual a la que permanecieron las muestras, se determina el contenido de K, U y Th. Mediante el análisis radioquímico [2], se determina la actividad específica de acuerdo con las leyes de decaimiento radiactivo, posteriormente se determina la tasa de dosis anual en función de la energía depositada en los diferentes minerales de cada muestra [3].

La determinación de K y de los diferentes elementos presentes en las muestras estudiadas, se llevan a cabo en el microscopio electrónico de barrido de la marca PHILLIPS, modelo XL30 propiedad del ININ. Este microscopio cuenta con un filamento de tungsteno como fuente de electrones y está acoplado a una microsonda para el análisis químico elemental por el método de Espectroscopia de dispersión de energía de rayos X (EDS). En teoría este sistema puede medir todos los elementos cuya concentración esté por arriba de 100 partes por millón (ppm).



Otra parte de cada muestra se muele y se tamiza con tamaño de grano entre 60 y 80 μm , con la cual se determina el contenido de U y Th. El método utilizado en este caso es el de análisis por activación neutrónica [4, 5], usando el reactor TRIGA MARK III del ININ.

Por otro lado, para medir la contribución de radiación gamma, emitida por el suelo donde quedaron sepultadas las muestras, así como la contribución de la radiación cósmica del sitio, se colocan dosímetros termoluminiscentes de LiF:Mg,Cu,P+PTFE desarrollados en el ININ. Los dosímetros permanecen en exposición entre dos o tres meses, al término del periodo se recogen y se trasladan al laboratorio para su lectura y evaluación.

Una vez que las muestras de cerámica son descortezadas, molidas y tamizadas, se someten al proceso de digestión de toda la materia orgánica por oxidación con H_2O_2 , y a la neutralización de carbonatos con HCl 6 N. Posteriormente se procede a la separación de grano fino que consiste en separar granos con tamaño entre 4 y 11 μm . Con la muestra útil se prepara una suspensión con acetona de 2 mg/ml. Posteriormente con una micropipeta especialmente calibrada, se deposita un mililitro de la suspensión sobre una plancheta de aluminio para su lectura. Se preparan por lo menos 60 planchetas útiles de cada muestra para el análisis de la señal TL [6-10].

Para el análisis de la señal TL, se toman entre 16 y 20 lecturas de las muestras sin irradiar para conocer la intensidad TL natural (TLN). Se toma una segunda lectura para restarla de la primera y así obtener la TL neta. Estos discos con muestra, se guardan perfectamente ya que con ellas se lleva a cabo la prueba de regeneración de la señal TL, para determinar el factor de corrección por supralinealidad (I).

Para realizar la prueba de la meseta, se realiza la comparación de la forma de la curva TL natural con la curva TL artificial, observada como resultado de la irradiación de la muestra a una dosis conocida. La región continua indica que las trampas son lo suficientemente profundas como para permanecer inalteradas a lo largo del tiempo. De tal manera que, la razón constante entre la curva TL natural y la artificial, da una indicación de que en este intervalo de la meseta, ha habido una liberación despreciable de electrones desde el momento en que quedó sepultada la muestra hasta el momento de tomar las lecturas TL.

En la irradiación de las muestras se usa el método de incremento de la dosis; para lo cual se toman 16 discos con la muestra sin leer y se hacen grupos de cuatro, para ser irradiados a diferentes dosis de radiación beta (1β , 2β , 3β , etc.) y obtener la curva de calibración a partir de la cual se determina la dosis equivalente (Q).

Método de regeneración de la señal TL; se toman 16 discos que se les había tomado la TLN y se irradian a las mismas dosis de la prueba anterior, para regenerar su señal TL. Al graficar dosis versus intensidad TL, se obtiene la curva de calibración donde se determina el factor de corrección por supralinealidad (I).



En cada estudio se irradian por lo menos cuatro discos con muestra para cada dosis, el intervalo de irradiación es entre 2 y 12 Gy de radiación beta de ^{90}Sr . Una vez realizados los estudios anteriores, se determina la paleodosis (P), que es la suma de la dosis equivalente (Q) más el factor de corrección por supralinealidad (I). Conociendo la tasa de dosis anual y la paleodosis se determina la edad de cada muestra de acuerdo con la ecuación (1).

$$\text{Edad} = \frac{\text{Paleodosis (Gy)}}{\text{Tasa de dosis anual (Gy / año)}} \quad (1)$$

Considerando todas las fuentes de error, en las diferentes mediciones, se determina la incertidumbre total en la edad estimada. También se considera la influencia de la humedad en la determinación de la tasa de dosis anual [6-10].

Resultados

Se presenta un ejemplo de la datación de tres muestras de cerámica prehispánica rescatadas en la gruta Cuncubac de la Zona Zoque del Estado de Tabasco, México. El arqueólogo Eladio Terreros Espinosa, Museo del Templo Mayor/INAH, fue el responsable del proyecto.

La figura 1, presenta el difractograma de la muestra etiquetada como ZOG1, se puede apreciar la presencia de SiO_2 (cuarzo), en $2\theta = 20.9, 26.7, 50.1$ y 60.0 aproximadamente, lo cual la hace una muestra ideal para ser fechada por TL.

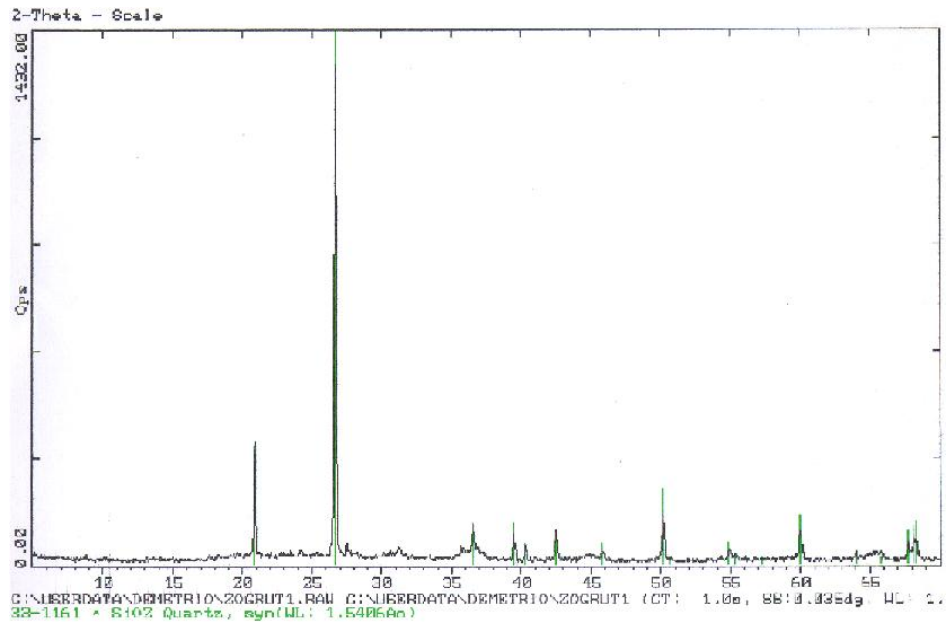


Fig.1. Difractograma de la muestra rotulada como ZOG1.

La fig. 2, presenta los elementos identificados por espectroscopia de dispersión de energía de rayos X (EDS), mientras que en la tabla 1, se resumen los resultados obtenidos.

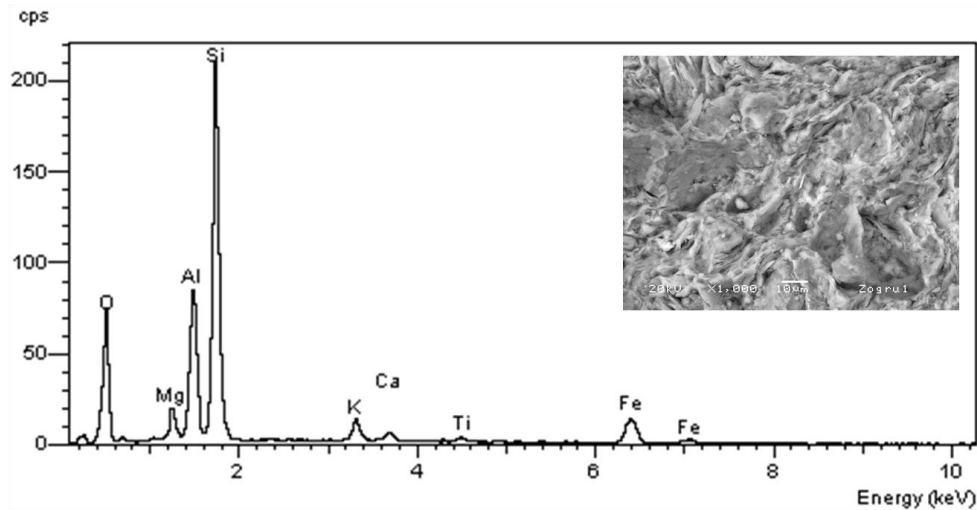


Fig. 2 . Espectro de emisión de ZOG 1 que muestra los elementos identificados. El gráfico muestra además una imagen obtenida con ayuda del microscopio electrónico de barrido sobre la muestra (a 1000 x).



Tabla1. Elementos presentes de las muestras estudiadas

Elemento	Muestra *		
	ZOG1	ZOG 2	ZOG 4
C	16.30±0.61	16.38±0.18	16.46±0.22
O	43.42±1.63	43.63±0.48	44.19±0.20
Mg	1.66±0.17	1.64±0.09	1.76±0.02
Al	7.77±0.55	7.88±0.22	8.11±0.06
Si	22.41±0.75	21.66±0.28	21.75±0.85
K	1.51±0.26	1.45±0.08	1.45±0.10
Ca	0.66±0.09	0.77±0.07	0.74±0.06
Ti	0.53±0.04	0.58±0.09	0.77±0.35
Fe	5.88±0.52	6.02±0.52	5.10±0.22

En la figura 3, se presenta la curva de la señal TL natural (N) de la muestra ZOG1, donde se aprecian dos picos TL; a 260 y 340 °C. En la figura 4, se muestra la meseta obtenida del cociente resultante de la TLN entre la intensidad TL natural más la generada por una dosis de radiación artificial (N + β), en función de la temperatura. En el gráfico, se observa que la razón (N/N + β) se incrementa desde 200 °C, formando la meseta, entre 260 y 330 °C, en dicho intervalo de temperatura se realizaron los cálculos correspondientes para la estimación de la paleodosis y posteriormente la edad de la muestra.

En la figura 5, se presenta gráficamente la intensidad TL de esta muestra una vez que esta ha sido expuesta a una fuente de radiación beta de ⁹⁰Sr, donde 1β = 3 Gy, 2β = 6 Gy, 3β = 9 Gy, 4β = 12 Gy. La figura 6 muestra la curva de calibración en la cual se graficó dosis-vs-intensidad TL (obtenida del gráfico anterior) y por extrapolación se determinó la dosis equivalente, Q (Gy). En la figura 7, se muestra la intensidad TL regenerada en las muestras leídas previamente (TLN) e irradiadas a las mismas dosis utilizadas para determinar Q. La figura 8 corresponde a la curva de calibración correspondiente, como en el caso anterior, se graficó dosis-vs-intensidad TL, en esta curva de calibración se estimó el factor de corrección por supralinealidad, I (Gy).

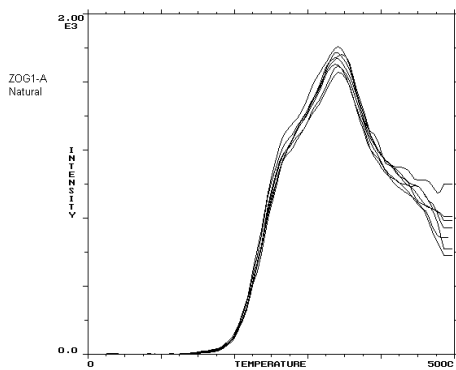


Fig. 3. señal TL natural (N) de la muestra ZOG1

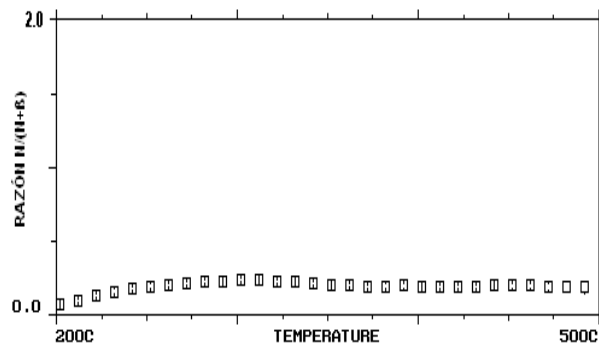


Fig. 4. Meseta de ZOG1

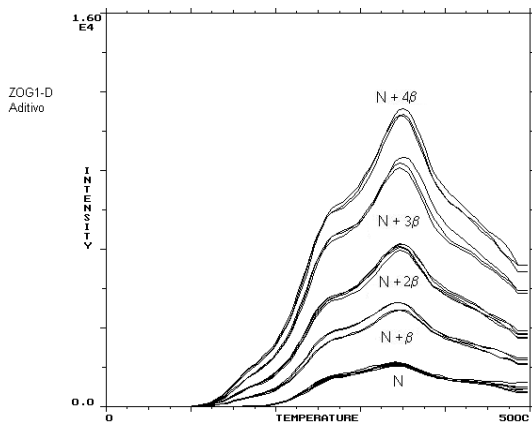


Fig. 5. Intensidad TL a diferentes dosis

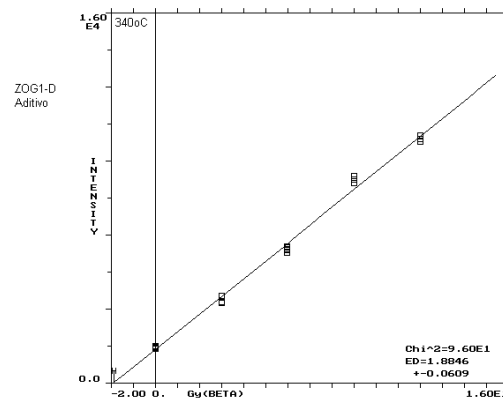


Fig. 6. Curva de calibración para determinar Q

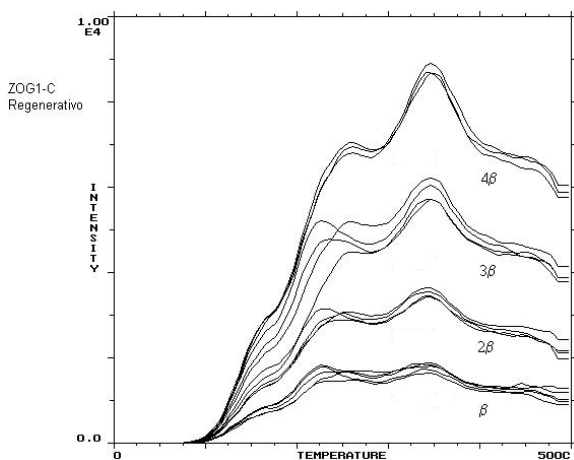


Fig. 7. Regeneración de la señal TL

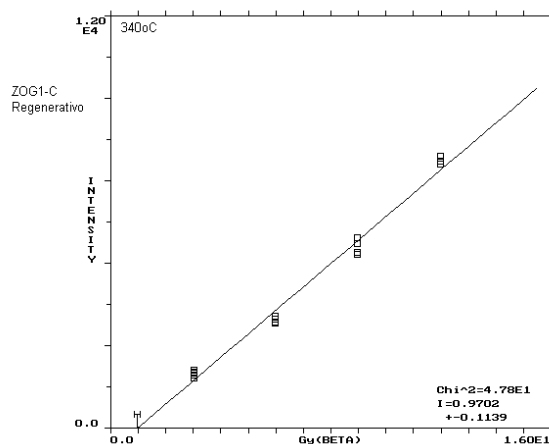


Fig. 8. Curva de calibración para determinar I

En la tabla 2, se presentan los valores de Q e I de la muestra ZOG1 estimados a tres temperaturas diferentes que corresponden a la meseta de la figura 4.

Tabla 2. Valores de Q e I entre 330, 340 y 350 °C

Muestra	Temp. (°C)	Q (Gy)	I (Gy)
ZOG1	330	1.99 ± 0.06	0.88 ± 0.12
	340	1.88 ± 0.06	0.97 ± 0.11
	350	1.78 ± 0.07	1.02 ± 0.10
		1.88 ± 0.06	0.96 ± 0.11

Tomando en cuenta los valores reportados en la tabla 2, se calculó la *paleodosis* de acuerdo a la siguiente expresión:

$$P = Q + I$$

$$P = 1.88 + 0.96 = 2.85 \pm 0.05 \text{ Gy}$$

Tasa de dosis Anual

La tasa de dosis anual, es la sumatoria de la contribución por radiación alfa, beta, gamma y cósmica, de acuerdo con la siguiente expresión:

$$TDA = D_{\alpha} + D_{\beta} + D_{\gamma} + D_C$$



donde:

D_{α} = dosis alfa

D_{β} = dosis beta

D_{γ} = dosis gama

D_c = dosis cósmica

En la tabla 3 se enlistan las muestras estudiadas pertenecientes a Gruta Cuncubac y las concentraciones en partes por millón (ppm) de uranio y torio obtenidos mediante la técnica de análisis por activación neutrónica.

Tabla 3. Concentraciones en partes por millón (ppm) de uranio y torio

Muestra	U (ppm)	Th (ppm)
ZOG1	2.47 ± 0.02	10.17 ± 0.46
ZOG2	1.36 ± 0.00	8.64 ± 0.43
ZOG4	3.26 ± 0.18	9.47 ± 0.12

La dosis natural promedio de radiación gamma proveniente del suelo y la contribución cósmica, medida con dosímetros termoluminiscentes, fue de 0.29 ± 0.01 mGy/a.

En la tabla 4 se resumen los valores obtenidos de las dosis alfa, beta y gamma totales, así como la tasa de dosis anual resultante y su respectiva desviación estándar para cada una de las muestras de la Gruta Cuncubac.

Tabla 4. Dosis anual resultante

Muestra	D_{α} (mGy/a)	D_{β} (mGy/a)	$D_{\gamma,c}$ (mGy)	DA (mGy/a)
ZOG1	1.08±0.05	1.44±0.03	0.29±0.01	2.80 ± 0.25
ZOG2	0.77±0.02	1.23±0.08	0.29±0.01	2.29 ± 0.12
ZOG4	1.20±0.06	1.46±0.08	0.29±0.01	2.94 ± 0.11

Una vez conocida la paleodosis y la tasa de dosis anual se procede a calcular la edad de las muestras de acuerdo con la ecuación (1). En la Tabla 5, se resumen los valores de la dosis equivalente, Q, el factor de corrección por supralinealidad, I, la paleodosis, P, la tasa de dosis anual, TDA y la edad de cada una de las muestras estudiadas.



Tabla 5. Edad estimada por TL expresada en años.

Muestra	Q (Gy)	I (Gy)	P (Gy)	TDA (mGy/a)	Edad (a)
ZOG1	1.88 ± 0.06	0.96 ± 0.11	2.85 ± 0.045	2.80 ± 0.25	1016 ± 26
ZOG2	4.23 ± 0.29	0.69 ± 0.21	4.92 ± 0.16	2.29 ± 0.12	2148 ± 76
ZOG4	3.36 ± 0.16	0.46 ± 0.18	3.82 ± 0.20	2.94 ± 0.11	1299 ± 65

Conclusión

La datación de cerámica prehispánica, por el método de emisión de luz térmicamente estimulada (TL) resulta ser altamente confiable y de un potencial muy elevado, si se toma en cuenta la gran riqueza arqueológica de nuestro país.

Referencias

1. Aitken, M.J.. 1985. *Thermoluminescence Dating*. London Academic Press.
2. Choppin, R. and Rydberg J., 1980. Nuclear Chemistry. Theory and Applications. Pergamon Press.
3. Adamiec G., Aitken M., 1998. *Ancient TL* 16(2) 37-50.
4. Travesi A., 1975. *Análisis por Activación Neutrónica*. Publicaciones Científicas de la Junta de Energía Nuclear, Madrid, Esp.
5. Hutton J.L., and Prescott J.R., 1992. *Field and Laboratory Measurement of Low-Level Thorium, Uranium and Potassium*. Nucl. Tracks Radiat. Meas. 20(2), 367-370.
6. Pedro Ramón González Martínez, 1999. *Fechaamiento geológico y arqueológico por termoluminiscencia*. Tesis doctoral. Universidad Autónoma Metropolitana-Iztapalapa. México, D.F.
7. González P., Azorín J., Schaaf P., Ramírez A., 1999. *Assessing the Potential of Thermoluminescence Dating of Pre-Conquest Ceramics From Calixtlahuaca, Mexico*. Rad. Prot. Dosim. 84(1-4) () 483-487.
8. González P., Chung H., Azorín J., Schaaf P. And Ramírez A. 1998. *Thermoluminescence Dating of A Pottery Sample from Edzná-Campeche, Mexico*. Nucl. Sci. J., **35(4)**, 280-284.
9. P.R. González, A. Ramírez, P. Schaaf, D. Mendoza, C. López, M.A. Mondragón and P Aguirre. 2004. *Thermoluminescence Dating of Ceramics from Teotenango-Mexico*. J. Amer. Arch., **21**; 215-225.

MEMORIAS

SECCIÓN QUÍMICA NUCLEAR

46° CONGRESO MEXICANO DE QUÍMICA

30° CONGRESO NACIONAL DE EDUCACIÓN QUÍMICA

10 al 14 de SEPTIEMBRE de 2011, QUERÉTARO QUERÉTARO



10. Heajoo Chung, Pedro Gonzalez, Angel Ramirez, Peter Schaaf, Insung Lee. 2011. *Rethinking about chronology of Chichen Itza by thermoluminescence dating of volcanic glass*. *Journal of Mediterranean Archaeology and Archaeometry*, **10(4)**, 115-120, (July 2011).