

NOTICIARIO

Establecimiento y validación de procedimientos de datación por luminiscencia de material arqueológico en el laboratorio de geocronología de la Universidad de A Coruña: primeros resultados

Establishing and validating luminescence dating procedures for archaeological remains in the geochronology laboratory of the University of A Coruña: first results

Jorge Sanjurjo Sánchez (*)
Daniel Fernández Mosquera (*)
José María Bello (**)

RESUMEN

La datación mediante termoluminiscencia (TL) de material arqueológico es una técnica con unos 50 años de antigüedad, aunque no muy empleada en España. Avances metodológicos recientes han permitido aumentar la exactitud y precisión del método. La Unidad de Geocronología del Instituto Universitario de Xeoloxía "Isidro Parga Pondal" de la Universidad de A Coruña cuenta en la actualidad con un Laboratorio de Luminiscencia. Para poner a punto los procedimientos analíticos de datación, se han datado tejas medievales de una excavación cercana a la Torre de Hércules (A Coruña) en la que la columna estratigráfica fue datada por medio de ^{14}C . Las muestras fueron sometidas a dos procedimientos existentes en la literatura: uno clásico (AD-TL) y otro de reciente desarrollo (SAR-TL). Los resultados muestran concordancia entre ambos métodos e incluso mejoras considerables obtenidas con el SAR-TL.

ABSTRACT

Thermoluminescence dating (TL) of archaeological material is a technique about 50 years old, but it is not

much used in Spain. Recent methodological advances have improved the accuracy and precision of the method. The unit of Geochronology of the University Geological Institute "Isidro Parga Pondal" University of A Coruña, has set up recently a Luminescence laboratory. In order to test analytical dating procedures, medieval tiles from an archaeological site next to the Hercules Tower (A Coruña) have been dated. The stratigraphical column was previously dated by ^{14}C , so a good chronological control is available. Samples were analysed using two different analytical procedures: a classical one using a multialiquot approach (AD-TL) and a recent one using a single aliquot procedure (SAR-TL). Our results show that both methods yield comparable paleodoses, being the SAR-TL the one with smaller error.

Palabras clave: Termoluminiscencia; Datación; AD-TL; SAR-TL; Tejas; Torre de Hércules.

Key words: Thermoluminescence; Dating; AD-TL; SAR-TL; Tiles; Hercules Tower.

I. INTRODUCCIÓN

En las últimas cinco décadas, los métodos de datación absoluta mediante termoluminiscencia (TL) de material arqueológico inorgánico (fundamentalmente cerámica y otros materiales que han sido sometidos a procesos de calentamiento) se han convertido en unas de las técnicas más comu-

(*) Instituto Universitario de Xeoloxía "Isidro Parga Pondal". Edificio Servicios Centrais Investigación. 15071 Universidade da Coruña. A Coruña (España).

(**) Museo Arqueológico e Histórico da Coruña. Paseo Parrote, s/n. 15001 A Coruña (España).

Recibido: 11-III-2008; aceptado 25-VI-2008.

nes y utilizadas internacionalmente. Pese a este desarrollo, en España no es un método muy extendido debido a que hasta ahora sólo estaba en funcionamiento el laboratorio de la Universidad Autónoma de Madrid. Por otra parte, los análisis en laboratorios extranjeros suelen resultar onerosos y lentos. La Unidad de Geocronología del Instituto Universitario de Xeoloxía "*Isidro Parga Pondal*"-Servizos de Apoio á Investigación de la Universidade da Coruña cuenta en la actualidad con un Laboratorio de Luminiscencia equipado con un lector de Luminiscencia Automático RISØ D-15. En el último año se han podido datar muestras sedimentarias de diferente origen y antigüedad con excelente resultado, y se ha comenzado a trabajar con muestras arqueológicas (sedimentos y cerámicas).

La luminiscencia es la propiedad de un material de emitir luz en respuesta a una estimulación externa. En materiales cristalinos, la radiación ionizante crea defectos en la red que resultan en una acumulación de carga en pozos estables de potencial entre la banda de valencia y la banda de conducción. La estimulación del cristal mediante luz o calor resulta en la excitación de algunos de los electrones atrapados, volviendo a la banda de valencia y liberando el exceso de energía en forma de luz. Esta acumulación de carga aumenta con el paso del tiempo hasta que el cristal se satura, normalmente en el rango de las centenas de miles de años para las dosis normales de radiactividad natural. Si la acumulación de carga ha sido proporcional al tiempo de interacción con la radiación, la liberación de la misma se puede emplear como un método de datación. Además es necesario que el cristal no posea carga acumulada de etapas previas de su exposición a la radiación o, al menos, que pueda ser cuantificada.

Los métodos de datación por termoluminiscencia permiten, de esta forma, obtener la edad absoluta de materiales arqueológicos tales como cerámicas, sílex, ladrillos, tejas y otros, determinando el tiempo transcurrido desde que los minerales de ese material fueron calentados por última vez. En el caso de las cerámicas, este calentamiento corresponde a la cocción a la que son sometidas durante su proceso de elaboración. La exposición al calor fija el origen del "reloj de luminiscencia", que empieza a acumular desde cero a partir de ese momento. El cálculo de la edad de una muestra necesita la medida de dos factores fundamentales: la Paleodosis (Gy), que es la do-

sis acumulada en el cristal, y la Dosis Anual (Gy/a), que es la dosis recibida por el material debida a la interacción con la radiación ionizante ambiental. El cociente de ambas proporciona una edad en años BP:

$$\text{Edad} = \text{Paleodosis} / \text{Dosis anual.}$$

La obtención de ambos factores requiere el uso de diferentes técnicas instrumentales. La medida de la dosis anual permite obtener la dosis de radiación que recibe la muestra por unidad de tiempo (normalmente en Gy/año). Para su cálculo se pueden emplear diversas técnicas como la Espectrometría Gamma de Alta Resolución (EGAR), Análisis por Activación de Neutrones (AAN) o Espectrometría de Masas con Plasma de Acoplamiento Inductivo (ICP-MS). Cada uno de estos métodos tiene diversas ventajas e inconvenientes, aunque es importante resaltar que sólo la EGAR proporciona las actividades de todos los nuclidos de la cadena radiactiva y permite comprobar la existencia de equilibrio secular.

Por otra parte, la Paleodosis se mide en un Lector de Luminiscencia, que consta fundamentalmente de fuentes de excitación de la luminiscencia (luz y/o calor) y un fotomultiplicador que mide los fotones emitidos. Para la obtención de este dato existen diferentes protocolos de medida según el tipo de muestra considerada. Entre los métodos clásicos el Additive Dose protocol (AD-TL) (Aitken 1985) es, hasta la actualidad, la técnica más utilizada para obtener esta paleodosis a partir de materiales arqueológicos. Esta técnica presenta dos variantes según el tipo de mineral medido:

– La técnica de Inclusión de Cuarzo (Quartz Inclusion Technique).

– La técnica de Grano Fino (Fine-grain Technique).

La técnica de Inclusión de Cuarzo (Quartz Inclusion Technique) se aplica a cuarzo purificado. Esta técnica presenta el inconveniente de requerir una cantidad mayor de muestra debido a que la mayor parte de cerámicas presentan una baja proporción de cuarzo. Sin embargo, la gran ventaja de esta técnica es que permite obtener paleodosis con un menor error, lo que significa una gran ventaja a la hora de datar muestras históricas.

La técnica de Grano Fino (Fine-grain Technique) permite medir la luminiscencia a partir de alícuotas poliminerales por lo que no es necesario realizar tratamientos químicos de purifica-

ción de la muestra, y por lo tanto una pequeña cantidad de muestra es suficiente para obtener la paleodosis. Pero el hecho de emplear una fracción polimineral implica una serie de problemas. En primer lugar, es necesario considerar la efectividad de la radiación alfa en la creación de señal luminiscente. A parte de esto, las fracciones poliminerale de cerámicas suelen presentar un alto contenido en feldespatos, cuya señal presenta una importante limitación debido a un fenómeno conocido como “anomalous fading”, debido al cual se genera una señal luminiscente inestable en los feldespatos. Esta inestabilidad induce a la infraestimación de las edades absolutas obtenidas por luminiscencia, las cuales pueden ser modelizadas y corregidas con procedimientos específicos. De esta forma, esta técnica proporciona una paleodosis con un error mayor que el anterior método.

Sin embargo, en los últimos años se han realizado nuevos avances instrumentales y metodológicos que proporcionan a priori una mayor exactitud y precisión para datar material arqueológico y el sedimento que lo acoge. Una de estas técnicas es el SAR (Single Aliquot Regenerative-dose protocol), propuesto por Murray y Wintle (2000), que presenta una serie de características que, a priori, indican que podría ser un método ventajoso, al requerir menor cantidad de muestra que el AD-TL y proporcionar un menor error en la paleodosis calculada.

En este trabajo se presentan los resultados de la datación por TL a partir de cuarzo purificado de una serie de muestras de la Edad Media. Las medidas se han realizado por el método clásico (AD-TL) y un nuevo método (SAR-TL) basado en el SAR utilizado en luminiscencia ópticamente estimulada (OSL), y se han comparado las paleodosis obtenidas. El objetivo final del trabajo es validar este nuevo procedimiento de datación. Para ello, es necesario trabajar con un patrón de referencia. Sin embargo, en luminiscencia no existe ningún patrón por lo que la validación debe hacerse de otro modo, en dos pasos. El primer paso es la intercalibración de las paleodosis, que ya ha sido realizada con el Laboratorio de Luminiscencia del Instituto Tecnológico e Nuclear (Fernández Mosquera *et al.* 2008). La siguiente fase de la validación, con el fin de poner a punto los procedimientos analíticos necesarios es establecer un proceso comparativo de edades. Para ello, es necesario partir de una

muestra lo mejor caracterizada posible en cuanto a su cronología. Por ello, se ha seleccionado un grupo de muestras de tejas medievales que proceden de una excavación realizada en una edificación auxiliar de la Torre de Hércules (A Coruña).

I.1. Características del yacimiento estudiado

La excavación arqueológica tuvo lugar entre los años 1992 y 1994, dentro de los trabajos generales de restauración del monumento (Bello Dieguez *et al.* 2008). La secuencia estratigráfica documentada alcanza desde el período romano hasta el siglo XX, aunque solo se han considerado muestras correspondientes a la Edad Media. A pesar de que la secuencia estratigráfica ha sido muy estudiada y está bien caracterizada, el yacimiento, y por lo tanto las muestras, no está exento de problemas. Los niveles medievales presentan una elevada complejidad, ya que se imbrican de forma confusa, alternándose y mezclándose las unidades estratigráficas, dificultando su delimitación y registro. Son abundantes las capas con materiales muy fragmentados, carbones y restos orgánicos, lo que se interpreta como una mezcla de elementos procedentes del derrumbe de los muros de la edificación, que caen sobre capas de tejas, caídas a su vez sobre los restos de las últimas ocupaciones. Además, mientras que fuera del edificio se superponen niveles en sucesión ininterrumpida, en el interior se suceden capas de tejas que alternan con superficies de ocupación. Por lo tanto, existe un elevado riesgo potencial de desplazamiento vertical de materiales. En estos casos, es preferible datar los artefactos y objetos arqueológicos antes que el sedimento, lo que no es posible efectuar por otros métodos que no sean la luminiscencia. Por ello, el yacimiento supone una buena prueba para obtener una mayor precisión en los eventos que afectaron al yacimiento y para obtener una mejor caracterización general del mismo.

La secuencia estratigráfica fue datada en diferentes niveles por medio de ^{14}C a partir de carbones (tabla 1), por lo que cada muestra analizada posee una edad absoluta de referencia con la cual comparar las dataciones obtenidas con la luminiscencia. Para la datación por luminiscencia, las muestras estudiadas y sus características se describen a continuación:

Estrato	Edad ¹⁴ C (años BP)	Laboratorio*	N.º Identificación
1629	681±59	ITN	Sac-1729
1681	673±78	ITN	Sac-1736
1639	788,5±67,5	ITN	Sac-1731
1651	932,5±86,5	ITN	Sac-1770
1677	1.049,5±60,5	CSIC	CSIC-1638

Tabla 1. Estratos datados, edades y num. de identificación ¹⁴C, de los estratos. *Laboratorios: ITN (Instituto Tecnológico e Nuclear, Sacavém, Portugal), CSIC (Consejo Superior de Investigaciones Científicas).

– 1629: capa de tejas en exterior del edificio con tierra marrón que indica una elevada actividad antrópica.

– 1681: capa de tejas en la misma zona, justo debajo de la 1629.

– 1639: capa inferior de tejas en el interior del edificio. Coincide con la capa de carbones correspondiente al primer incendio.

– 1651: bolsa bien delimitada de restos orgánicos con tejas en el exterior del edificio a un nivel aproximadamente correspondiente con el del primer incendio.

– 1677: zona altomedieval anterior a la construcción del edificio (en el exterior de éste). Inmediatamente debajo hay una capa datada en el siglo VII.

II. MATERIAL Y MÉTODOS

Como ya se ha mencionado, estas muestras ha sido sometidas a dos procedimientos de medida para la obtención de la paleodosis: uno clásico y otro de reciente desarrollo. La gran ventaja del método clásico (AD-TL) es que proporciona medidas fiables de la paleodosis. Además de esto,

esta técnica incorpora un test que proporciona información de la estabilidad de la medida, que se conoce como Test Plateau (Aitken 1985). Sin embargo, las limitaciones e inconvenientes de esta técnica son importantes. En primer lugar es necesario medir muchas alícuotas lo que implica una cantidad importante de muestra. Además, se debe regenerar la curva de TL con el propósito de corregir la paleodosis obtenida y comprobar cambios de sensibilidad de las muestras, lo que es laborioso y requiere una cantidad de muestra adicional. Otras desventajas del método son que la paleodosis se obtiene por extrapolación, lo que proporciona un error elevado en muestras históricas. Frente a esta técnica, el SAR subsana la mayor parte de estas limitaciones, con el inconveniente de que su fiabilidad no ha sido todavía muy estudiada y está menos contrastada. Las ventajas e inconvenientes de cada uno de ellos se resumen en la tabla 2.

Para la datación por TL se dispuso de cinco muestras de tejas fragmentadas (tabla 1). Se obtuvo una muestra a partir de varios fragmentos de teja en cada muestra. En un laboratorio iluminado con luz roja, de cada fragmento de teja, se eliminó una capa superficial de 2 mm por medio de una sierra de diamante impregnada con líquido refrigerante, para evitar el calentamiento de la muestra. Las muestras se trituraron por presión en una machacadora. Del material obtenido se reservó una fracción (200 g) para obtener la dosis de radiación anual por medio de espectrometría gamma de alta resolución.

Para la medida de la paleodosis por TL, se aplicó un protocolo de preparación de cuarzo de grano grueso (Aitken 1985). Para ello, se tamizaron las muestras separando la fracción de 90-180 micras de tamaño de grano, y se trató cada fracción con HCl, H₂O₂ y HF con el propósito de carbonatos, materia orgánica y feldespatos.

Características	AD TL	SAR TL
Fiabilidad de la paleodosis	Alta	Desconocida
Incorpora pruebas de estabilidad	Si (Test Plateau)	No
Incorpora pruebas de sensibilidad	No	Si
Cantidad de muestra necesaria	Elevada	Mínima
Obtención de la paleodosis	Extrapolación	Interpolación
Error	Elevado	Bajo

Tabla 2. Características del método de AD-TL y SAR-TL.

Para la medida de la paleodosis por medio del Additive Dose (AD-TL) se midió la señal luminiscente en 16 alícuotas para cada uno de los dos diámetros de grano estudiados. La temperatura máxima alcanzada fue de 450°C en atmósfera de nitrógeno. Para cada fracción y muestra se seleccionó un intervalo de temperatura por medio del Test Plateau que fue el utilizado para integrar la señal y para obtener la medida de luminiscencia (tabla 3). Se realizaron también medidas de la paleodosis en un número menor de alícuotas (6) por medio del SAR-TL. Para ello se midió la luminiscencia de la dosis natural y se regeneró la curva de luminiscencia. Todas las medidas se realizaron en un lector automático RISØ TL/OSL-DA-15 equipado con un fotomultiplicador EMI 9635 QA, y usando una fuente interna ⁹⁰Sr/⁹⁰Y que proporciona una dosis de 0.140 ± 0.003 Gy/s.

Muestra	Diámetro de grano 90-180 µm
1681	Aceptable
1629	No aceptable
1639	Aceptable
1651	Aceptable
1677	Bueno

Tabla 3. Resultado de los test plateau.

III. RESULTADOS Y DISCUSIÓN

Para las medidas de las paleodosis por TL, los test plateau indican que todos los resultados obtenidos por AD-TL son aceptables excepto el de la muestra 1629, ya que en este caso no se ha obtenido un verdadero "plateau". Los "plateaus" obtenidos, con las temperaturas de integración y las dosis medidas a partir del "plateau" se exponen en la tabla 3.

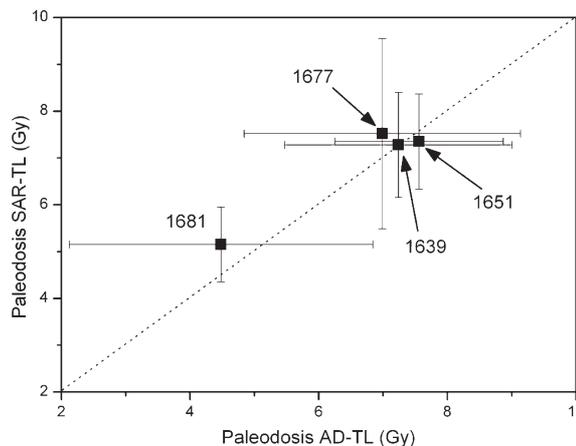


Fig. 1. Comparación de las paleodosis obtenidas por AD-TL y SAR-TL. La muestra 1629 no ha podido compararse al no haber sido satisfactorio el Plateau test.

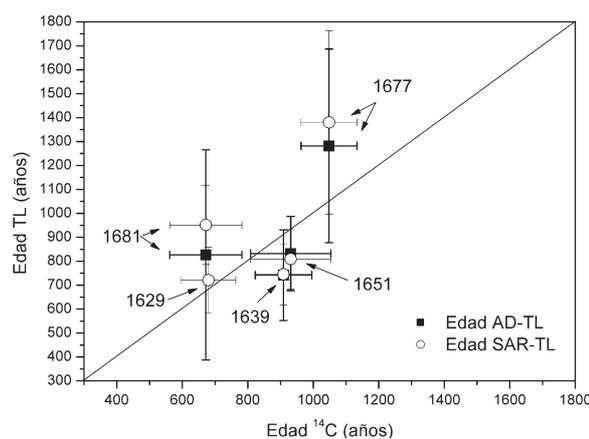


Fig. 2. Comparación de las edades obtenidas por AD-TL y SAR-TL a partir de las muestras de tejas con las edades de ¹⁴C de los sedimentos.

Muestra	Paleodosis AD-TL (Gy)	Paleodosis SAR-TL (Gy)	Dosis Anual(Gy/ka)	Edad AD-TL (años BP)	Edad SAR-TL (años BP)
1681	4,48±2,36	5,15±0,80	5,42±0,41	826,57±439,38	951,21±164,47
1629	-	5,09±0,90	7,06±0,50	-	721,19±137,27
1639	7,24±1,77	7,28±1,12	9,76±0,73	741,71±189,05	745,47±127,16
1651	7,56±1,31	7,35±1,02	9,08±0,63	832,29±155,20	808,93±125,4
1677	6,99±2,15	7,52±2,03	5,45±0,38	1.282,02±404,81	1.380,27±383,77

Tabla 4. Resultados de las paleodosis medidas y las edades obtenidas por ambos métodos.

En las muestras que si han pasado el test plateau, los resultados obtenidos de reconstruir la curva de luminiscencia proporcionan buenos ajustes lineales por lo que las paleodosis obtenidas presentan un error relativamente bajo.

Los resultados obtenidos con ambos protocolos muestran resultados muy similares para todas las muestras estudiadas excepto para la 1629, de la cual no se ha podido estimar una paleodosis por el método AD-TL. Además, se puede observar en la tabla 4 y la figura 1 que el error obtenido para las paleodosis por SAR-TL es menor que el obtenido con el AD-TL, sobre todo en el caso de la muestra 1681.

Si se comparan las paleodosis obtenidas con las edades de ^{14}C de los sedimentos, se observa que existe una correlación paleodosis-edad, es decir, las paleodosis mas bajas corresponden a las muestras mas modernas, por lo que las edades finales de luminiscencia para esas muestras serán también las mas recientes.

Las relativas diferencias observadas entre las edades de TL de las tejas y las de ^{14}C de los sedimentos, aunque pequeñas, pueden considerarse relevantes en el caso de las muestras 1681 y 1677. Sin embargo debido al mayor error de la edad TL de ambas, no se puede considerar la existencia de una diferencia real, ya que ese error se solapa con la edad ^{14}C . En cualquier caso, el hecho de que la edad TL sea ligeramente mayor en ambos casos es un hecho totalmente coherente, considerando que la edad TL corresponde al momento de fabricación (cocción) de las tejas, mientras que el sedimento será siempre de edad posterior. Por tanto, la TL está indicando, probablemente, el momento de construcción de la edificación, mientras que la edad ^{14}C del sedimento indica el momento de su destrucción.

IV. CONCLUSIONES

Las muestras de teja estudiadas para su datación por termoluminiscencia muestran ser ade-

cuadas para datación empleando cuarzo. El empleo de un protocolo clásico de datación (AD-TL) y la aplicación de nuevos protocolos de medida de la termoluminiscencia en estas mismas muestras (SAR-TL) indica que el SAR-TL es no solo un método adecuado para la datación por termoluminiscencia en este tipo de muestras, si no que además permite obtener paleodosis con un numero aproximadamente un tercio menor de alícuotas y reducir el error final de la paleodosis, y por lo tanto de la edad final obtenida.

La comparación de las edades obtenidas con las edades conocidas de los sedimentos por ^{14}C indica una buena correlación entre la edades obtenidas por TL de las tejas y la edad de los sedimentos. Las diferencias existentes entre ambas edades se debe a que la TL de las tejas indica el momento de su fabricación, mientras que la edad ^{14}C de los sedimentos es indicativa del momento en que fue destruida la construcción.

V. BIBLIOGRAFÍA

- Aitken, M.J. 1985: *Thermoluminescence dating*. Academic Press. London.
- Bello Diéguez, J.M.; Sanjurjo Sánchez, J. y Fernández Mosquera, D. 2008: "Los niveles medievales de la Torre de Hércules: caracterización arqueológica y datación mediante TL y OSL". *Férvedes* 5: 453-464.
- Fernández Mosquera, D.; Dias, M.I.; Sanjurjo Sánchez, J.; Franco, D.; Cardoso, G. y Prudêncio, M.I. 2008: "Datación absoluta por luminiscencia de material arqueológico en la Península Ibérica: una experiencia de intercalibración laboratorial". *Actas del VII Congreso de Arqueometría, Madrid* (8-10 de octubre 2007).
- Murray, A.S. y Wintle, A.G. 2000: "Luminescence dating of quartz using an improved single-aliquot regenerative-dose protocol". *Radiation Measurements* 32: 57-73.