



UNIVERSITATEA BABEȘ-BOLYAI CLUJ NAPOCA
FACULTATEA DE ȘTIINȚA MEDIULUI



Teză de doctorat

REZUMAT

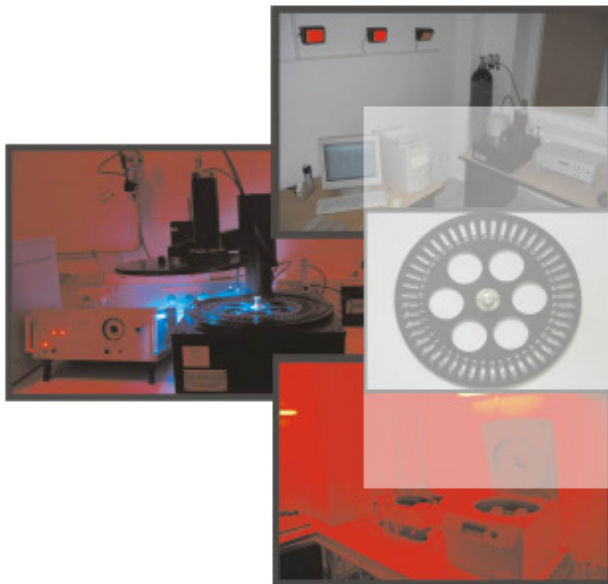
Retrospective luminescence dosimetry: applications in
archaeology, geology and environmental studies

Dozimetrie retrospectivă luminescentă cu aplicații în
arheologie, geologie și mediu

ALIDA IULIA TIMAR GABOR

Promoter (coordonator științific):
Prof. Dr. CONSTANTIN COSMA

2010



*Activitatea de cercetare prezentată în această teză
a fost desfășurată în mare parte în cadrul
Centrului de Radioactivitatea Mediului și Datăre Nucleară din cadrul
Institutului de Cercetări Interdisciplinare al Universității Babeș- Bolyai din Cluj Napoca.
În cursul studiilor doctorale Alida Timar a făcut câteva stagii de cercetare în
Laboratorul de Datăre prin Luminescență din Gent
fiind înmatriculată (în total pentru aproximativ 8 luni) ca tânăr cercetător vizitator sub coordonarea a
Prof. Dr. P. Van den haute și Dr. D. Vandenberghe în cadrul Universității Ghent.
O parte din rezultatele prezentate sunt rezultatul unor activități desfășurate în cursul acestor vizite.
Autoarea este recunoscătoare grupului din Gent
pentru suținerea logistică,
dar mai ales pentru transferul constant de cunoștințe acordat și mulțumește pentru sprijinul material
acordat prin granturile CEEEX-749 (2006) și CNCSIS TD-395.*

CUPRINS:

Abstract.....	3
1. Dozimetria retrospectivă luminescentă – scurtă definiție a termenilor.....	3
2. Scopul cercetărilor noastre.....	5
3. Structura tezei.....	7
4. Asigurarea acurateții procedurilor implementate.....	10
4.1. Controlul acurateții metodologiilor utilizate pentru determinarea dozei echivalente.....	10
4.2. Controlul acurateții metodologiilor utilizate pentru determinarea dozei anuale.....	18
5. Aplicarea metodelor de datare prin luminescență în studii cheie și contribuțiile potențiale raportate la cele mai recente realizări existente în fluxul principal de publicații.....	26
5.1. Aplicații în archaeologie Datarea prin luminescență a unor ceramici Neolitice din România.....	26
5.2. Aplicații în geologie și mediu.....	29
5.2.1. Datarea prin luminescență stimulată optic a loessului din România folosind cuarț fin.....	29
5.2.2. Un studiu comparativ al proprietăților luminescente și al vârstelor prin luminescență stimulată optic obținute pe granule de cuarț de diferite dimensiuni extrase din loess.....	37
5.2.3. Investigații suplimentare asupra proprietăților luminescente ale granulelor nisipoase (63-90 μm) și fine (4-11 μm) de cuarț.....	47
5.2.4. Testarea potențialului utilizării metodei de datare prin luminescență stimulată optic pentru obținerea de vârstse absolute asupra formării paleosolurilor din zona de silvostepă din Transilvania.....	48
6. Concluzii.....	50
7. Bibliografie.....	55

Cuvinte cheie:

- | | |
|---|----------------------------|
| ➤ dozimetri retrospectivă | ➤ datare prin luminescență |
| ➤ luminescență stimulată optic (LSO) | ➤ vârste absolute |
| ➤ termoluminescență (TL) | ➤ archeologie |
| ➤ luminescență stimulată în infraroșu
(LSIR) | ➤ ceramică |
| ➤ radioactivitate naturală | ➤ palaeoclimatologie |
| ➤ spectrometrie gama de înaltă rezoluție | ➤ loess |
| ➤ cristale naturale | ➤ paleosoluri |
| ➤ cuarț | |

ABSTRACT

Scopul acestei teze a constat în implementarea metodelor moderne de datare prin luminescență în cadrul Universității Babeș-Bolyai și aplicarea acestor tehnici pentru obținerea de vârste absolute pentru materiale relevante studiilor arheologice, geologice și de mediu. Primele trei capitole ale tezei prezintă metodele luminescente și testele procedurale și de rigoare intrinsecă aplicate. În capitolul IV este prezentată aplicarea metodelor luminescente pentru datarea de ceramică Neolitică. Acest studiu reprezintă în momentul de față una dintre puținele aplicații la nivel internațional care utilizează tehnicile SAR-OSL (LSO) și IRSL (LSIR) pentru datarea ceramicilor și demonstrează potențialul folosirii lor pentru caracterizarea evoluției cronologice a siturilor arheologice. Ultimul capitol al tezei prezintă datarea secventelor de loess-paleosol din Romania. Cercetări de natură aplicativă dar și fundamentală sunt prezentate, rezultatele obținute fiind de relevanță atât pentru specialiști în Științele Pământului cât și pentru comunitatea științifică de datare prin luminescență.

1. Dozimetria retrospectivă luminescentă – scurtă definiție a termenilor

Termenul de dozimetrie retrospectivă cuprinde tehnicile folosite pentru evaluarea expunerii din trecut la radiații ionizante a unor medii de interes

Fenomenele luminescente sunt generate de o serie vastă de procese fizice. În funcție de timpul asociat emisiilor luminescente aceste procese sunt clasificate ca fluorescență (10^{-9} - 10^{-3} secunde (Ropp, 2004) și fosforescență ($>10^{-3}$ seconds).

În scopul aplicațiilor de dozimetrie retrospectivă însă, doar procesul de termoluminescență și cel de luminescență stimulată optic sunt de interes. (Bøtter-Jensen et al., 2003). Luminescența stimulată optic și termoluminescența sunt fenomene ce constă în emisia fonică care apare în cazul stimulării termice, respectiv optice, a unui izolator sau a unui semiconductor care a fost în prealabil expus la un flux de radiații ionizante, această emisie fiind dependentă de doza absorbită. În funcție de clasificarea pe baza timpilor de emisie luminescența stimulată optic (LSO) și termoluminescența (TL) pot fi considerate procese fluorescente. Cu toate acestea, trebuie să subliniem faptul că luminescența stimulată optic (LSO) și termoluminescența (TL) sunt asociate

cu fenomene de fotoconductivitate. Semnalul luminescent emis este dependent de doza de iradiere, iar în cazul luminescenței stimulate optic lungimea de undă a radiației emise este mai scurtă decât lungimea de undă a radiației incidente. Prin urmare, materialele folosite pentru dozimetria luminescentă retrospectivă sunt fosfori anti-Stokes.

Dozimetria luminescentă retrospectivă are două aplicații importante: datarea și dozimetria de accident.

Metoda datării prin luminescență se bazează pe proprietățile anumitor minerale de a stoca energia radiațiilor nucleare. Un fond radioactiv este omniprezent în natură, și cu cât aceste minerale sunt expuse pentru un timp mai îndelungat, cu atât stochează mai multă energie. Prin stimulare (termică sau optică) o parte din această energie poate fi eliberată sub formă de emisie fonică fenomenul numindu-se luminescență. Intensitatea acestui semnal luminescent este dependent de doza de radiație acumulată și presupunând existența unui flux radioactiv constant în natură, avem implicit o funcționalitate și cu timpul de achiziție.

Există două variante ale datării prin luminescență, în funcție de agentul de stimulare : termoluminescența (TL) și luminescența stimulată optic (LSO). În literatură sunt întâlniți uneori și termeni mai specifici, în funcție de lungimea de undă a radiației folosite : IRSL (LSIR) (infrared stimulated luminescence) - stimulare cu lungime de undă în infraroșu, GLSL (green light stimulated luminescence)- stimulare cu lungime de undă în domeniul vizibil, respectiv verde, sau BLSL (blue light stimulated luminescence)- stimulare cu lungime de undă în domeniul vizibil, respectiv albastru.

În toate cazurile informația latentă este reprezentată de electronii capturați în capcane (nivele localizate în banda interzisă a mineralului semiconductor sau izolator). Acești electroni sunt eliberați în urma interacțiunii radiațiilor nucleare cu cristalul în cauză, iar numărul lor este legat de doza totală absorbită – **paleodoza** sau **arheodoza**. Determinând debitul acestei doze – **doza anuală**, o perioadă de timp care în cazul nostru reprezintă **vârsta** poate fi calculată. Paleodoza reprezintă o doză combinată provenită de la expunerea la radiații α , β și γ și nu poate fi măsurată

în mod direct. Ea este determinată în laborator ca o doză echivalentă adică doza la care trebuie iradiată în condiții artificiale proba pentru a produce un răspuns luminescent egal cu cel natural.

Momentul ce este datat este un moment de zero, cand are loc resetarea acestei informatii. In cazul ceramicii acest moment este reprezentat de arderea vasului, etapa în procesul de fabricatie. In ceea ce priveste sedimentele, evenimentul resetarii coincide cu expunerea la spectrul solar, in procesul de transport premergător depozitării.

Prin urmare, scopul practic în datarea luminescentă este determinarea dozei totale absorbite de cristale naturale în urma expunerii ambientale în timp ce în dozimetria de accident se urmărește reconstrucția dozelor absorbite ca urmare a expunerilor accidentale. Aceste doze se suprapun dozei ambientale determinate în aplicațiile de datare (*Bailiff, 1999; Bailiff et al., 2000; Göksu et al., 2002; Bailiff et al., 2004*). Metodologia de determinare pentru dozimetria de accident și datare luminescentă este însă aceeași (*Banerjee, 1999; McKeever, 2001; Bøtter-Jensen et al., 2003a; Thomsen, 2004*).

2. Scopul cercetărilor noastre

Cu toate că metodele de datare prin luminescență sunt considerate un instrument deosebit de valoros în studii de arheologie și geologie la nivel mondial (a se vedea spre exemplu monografiile și lucrările extinse *Aitken, 1985, 1998, 1999; Roberts, 1997; Stokes, 1999; Duller, 2004; Lian et al., 2006; Wintle, 2008a, b, respectively Cosma et al., 2008b,d and Timar, 2008b, 2009c în limba Română-* doar pentru a da câteva exemple), aceste tehnici nu au fost aplicate în mod constant și riguros în țara noastră până în momentul de față. Mentionăm că au existat câteva încercări de utilizare a termoluminescenței pentru datarea de material arheologic în Cluj Napoca în anii 80 (profesor V.Morariu) și pentru datarea speleothemelor in București (Labău et al 1996), dar cercetarile au fost stopate din motive pe care nu le cunoștem. Interesul grupului nostru condus de profesorul C.Cosma în acest domeniu există de mai mult de un deceniu (Văсарu, Cosma, 1999), prima aplicație fiind făcută cu ajutorul unui dispozitiv Harshaw modest, cu caracteristici tehnice specifice dozimetriei de personal prin termoluminescență, care nu sunt

satisfacătoare în cazul aplicațiilor de datare (Cosma et al, 2006, 2008).

În anul 2006, grație unui contract de finanțare (CEEX 749-2006-C.Cosma) necesitățile materiale vitale pentru dezvoltarea unui laborator modern de datare prin luminescență în cadrul Facultății de Știința Mediului, Universitatea Babeș-Bolyai Cluj Napoca au fost asigurate. Întreaga mea activitate desfășurată în cursul perioadei studiilor doctorale este indisolubil legată de dezvoltarea acestui laborator. În momentul de față laboratorul este complet funcțional și oferă consiliere și sprijin altor două laboratoare de datare prin luminescență aflate în curs de dezvoltare în Iași și București.

Principalul scop al tezei mele a fost **implementarea și dezvoltarea metodelor de preparare a probelor și analiză luminescentă pentru determinarea palodozei, a metodelor gamma spectrometrice pentru determinarea concentrației de radionuclizi din probe de mediu pentru determinarea dozei anuale și verificarea acurateții acestor proceduri**. Pentru aceasta, am aplicat teste de rigoare internă și am participat în exerciții de intercomparare cu alte laboratoare.

Al doilea deziderat a constat în **aplicarea metodelor în studii de caz cheie**. Ca aplicație în arheologie s-au datat ceramici provenite din situl Lumea Nouă. Acest sit are o importanță e majoră pentru reconstrucția perioadelor Neolitic și Eneolitic pe teritoriul României, fiind bine cunoscut în special pentru ceramica tipică pictată (Cosma et al 2006, Benea et al 2007).

Marea parte a eforturilor au fost însă direcționate pentru aplicarea metodei în geologie și paleoclimatologie prin realizarea unei cronologii de mare rezoluție a depunerilor de natură eoliană pentru secțiunea de loess din apropierea localității Mircea Vodă, Dobrogea. Am ales această aplicație deoarece în comunitatea științifică internațională este unanim acceptat faptul că secțiunile de loess reprezintă o arhivă detaliată a schimbărilor climatice din cursul Pleistocenului, depozitele din România fiind mult mai puțin studiate decât formațiunile similare din Europa de Vest (Frechen, 2003). Mai mult decât atât, aceste depozite sunt considerate a fi printre cele mai complete din Europa, presupunându-se că reprezintă legătura dintre depozitele tipice perigraciare din vest și depunerile tipic eoliene din China.

O schemă cronostratigrafică a depunerilor de loess din România bazată pe studii geomorfologice, litologice și pedostratigrafice a fost realizată anterior (Conea, 1969), iar studii recente asupra

proprietăților magnetice ale acestor roci sedimentare și ale paleosolurilor intercalate au evidențiat potențialul utilizării variației susceptibilității magnetice în corelație cu curbele de variație izotopică δO^{18} ca indicator paleoclimatic (Panaiotu et al. 2001, Buggle et al 2008). Cu toate acestea, metodele mentionate mai sus se bazează pe presupunerea că depunerile au avut loc în mod continuu, cu o rată de sedimentare constantă și ca stratele nu contin hiaturi de eroziune. Prin urmare, utilizând aceste metode, se poate obtine doar o informație indirectă asupra vârstelor stratelor în ansamblu.

Metodele de datare prin luminescență sunt în momentul de față singurele tehnici care permit determinarea de vârste absolute pentru depunerile de loess. Mai mult decât atât, datorită naturii eoliene a depunerilor de loess, aceste reprezintă un material ideal pentru metodele OSL, transportul granulelor asigurând resetarea semnalului luminescent.

O concluzie de importanță majoră rezultată în urma aplicării acestor metode este faptul că depunerile eoliene sunt în cazuri rare caracterizate prin rate de sedimentare constante, variații semnificative ale acestui parametru având loc în cursul ultimului ciclu interglaciar-glaciar.

Prin urmare, obținerea unei cronostatigrafii absolute a depunerilor eolinene din România este de importanță majoră pentru a avea informații despre: cronologia evenimentelor climatice înregistrate în loess (formarea paleosolurilor), rata proceselor de sedimentare și pedogeneză, posibile corelari între evenimentele climatice înregistrate în secțiuni din diferite zone geografice.

Precizăm de asemenea, că reconstrucția paleoclimatelor și a variațiilor climatice din trecut poate servi la verificarea modelelor climatice actuale. Influența depunerilor de praf de origine antropogenă au fost deja incluse în simulări (Tegen et al, 2006), dar impactul acestui poluant trebuie luată în considerare în strânsă corelație cu variațiile de origine naturală ale cantității de praf din atmosferă (Harrison et al, 2001). Analiza ratelor de sedimentare terestre (în speță în depunerile de loess) în relație cu evoluția paleoclimatului poate furniza date importante în acest sens. Prin urmare, realizarea unor cronologii absolute de mare rezoluție pentru secvențele de loess conduce la obținerea de parametri de input pentru verificare modelelor climatice actuale, servind nu numai în caracterizarea variațiilor din trecut cât și pentru predicțiile viitoare.

3. Structura tezei

Teza este structurată în cinci capitole.

Capitolul I prezintă principiile fenomenelor luminescente și modul în care aceste procese pot fi folosite pentru datare, incluzând o discuție asupra tipului mediu de viață al capcanelor utilizate. Modelul general de cinetică I, împreună cu un model mai complex propus de *Bailey (2001)* pentru luminescența stimulată optic în cazul cuarțului și modelul propus de *Hütt et al. (1988)* pentru LSIR a feldspaților. Spectrele de excitație și emisie ale cuarțului și feldspaților sunt de asemenea prezentate, caracteristicile semnalelor luminescente fiind comparate cu precădere în cazul celor două moduri de stimulare folosite de-a lungul acestor investigații (stimulare continuă cu putere constantă – CW OSL (continuous wave OSL), respectiv stimulare cu putere crescută liniar LM-OSL (linear modulated OSL). O prezentare a fenomenului de fading anomal al feldspaților este de asemenea inclusă, împreună cu prezentarea metodei folosite pentru corecții (*Huntley and Lamothe, 2001*). Deși acest capitol se bazează pe studiul de material bibliografic, exemplele prezentate sunt rezultate ale propriilor investigații.

Capitolul II prezintă pe scurt tehnicile și metodele disponibile pentru determinarea dozei echivalente. Accentul este pus pe protocolul uni alicotă regenerativ SAR (single aliquot regeneration). Principiile acestui protocol sunt prezentate, iar îndeplinirea acestora este exemplificată prin prezentarea comportamentului unor probe investigate de-a lungul acestui studiu. În acest capitol sunt de asemenea descrise procedurile utilizate pentru extragerea granulelor nisipoase (90-125 μ m, 63-90 μ m, 35-50 μ m) de cuarț din probe, a granulelor fine poliminerale și respective a cuarțului fin, împreună cu o scurtă prezentare a aparaturii utilizate ce include și testele de rutină efectuate pentru verificarea funcționării adecvate. Procedura utilizată în cazul calibrării surselor beta este descrisă în mai mare detaliu.

Capitolul III este structurat în două părți. Prima parte prezintă aspectele teoretice specifice legate de determinarea dozei anuale. În parte următoare sunt prezentate metodologiile implementate și utilizate în laboratorul nostru pentru determinarea radionuclizilor naturali prin spectrometrie gama de înaltă rezoluție. Aceste tehnici se bazează pe experiența dobândită în determinarea radioactivității ambientale (*Begy et al., 2007, 2009a,b; Cosma et al., 2007, 2009a,*

b, c; Timar et al., 2007, 2008a). Rezultatele unui exercițiu de intercomparare efectuat între laboratorul nostru și Laboratorul de Radiochimie din Veszprém, Ungaria, respectiv Sucursala pentru Cercetări Nucleare Mioveni, Pitești pentru validare metodelor sunt de asemenea prezentate.

Chapter IV prezintă aplicarea propriu zisă a metodelor de datare luminescente în arheologie. Acest capitol include un studiu facut asupra a patru fragmente ceramice descoperite în situl arheologic Lumea Nouă (Alba Iulia, România). Protocolul uni alicotă regenerativ SAR este aplicat atât în cazul luminescenței stimulate optic (cu lumină albastră) a cuarțului (granule nisipoase 90-125 μm) cât și în cazul luminescenței stimulate în infraroșu a feldspaților (granule fine poliminerale 4-11 μm). Pentru comparație, protocolul standard multi alicotă cu doze additive (MAAD) este aplicat semnalelor stimulate termic folosind granule poliminerale. Vârstele LSO obținute pe cuarț sunt comparate cu rezultatele TL convenționale și vârstele LSIR corectate pentru fenomenul de fading. Acest studiu se bazează pe o colaborare a grupului nostru cu Universitatea Appulum din Alba Iulia și laboratorul de datare prin luminescență din Gent (*Benea et al., 2007*) și servesc pentru a ilustra modul în care metodele de datare prin luminescență, în special folosind tehnicile ultra moderne pot contribui pentru caracterizarea evoluției cronologice a siturilor arheologice.

Capitolul V prezintă aplicarea metodei de datare prin luminescență stimulată optic pentru datarea probelor geologice. Partea principală a capitolului prezintă descrierea detaliată a folosirii cuarțului ca dozimetru pentru realizarea unei cronologii de mare rezoluție a depunerilor de natură eoliană pentru secțiunea de loess Mircea Vodă din Dobrogea (*Cosma and Timar 2008e; Timar et al. 2008c; Timar et al., 2009 a, b; Timar et al., 2010a,b,c*). Comportamentul granulelor fine (9-11 μm) și nisipoase (63-90 μm) de cuarț este prezentat în detaliu iar dozele echivalente și vârstele obținute folosind aceste doua fracțiuni sunt comparate. Proprietățile luminescente sunt analizate prin teste de stabilitate termică, analiza curbelor de creștere doză-răspuns, studierea distribuțiilor dozelor echivalente obținute etc. Dozele echivalente obținute în laboratorul nostrum sunt comparate cu dozele echivalente obținute în urma efectuării de măsurători în laboratorul din Ghent. Potențialul și limitările aplicării protocolului SAR pentru datarea loessului Românesc sunt discutate. A doua parte a capitolului prezintă un studiu asupra potențialului utilizării metodei de

datate prin luminescență stimulată optic pentru obținerea de vârtse absolute asupra formării paleosolurilor din zona de silvostepă din Transilvania (*Timar et. al., 2010d*).

Studiile prezentate ilustrează contribuțiile pe care aplicarea metodei de datate prin luminescență le poate aduce atât studiilor arheologice cât și paleoclimatice din România, în final **concluziile** fiind sumarizate.

4. Asigurarea acurateții procedurilor implementate

4.1. Controlul acurateții metodologiilor utilizate pentru determinarea dozei echivalente

Prepararea probelor și a discurilor

Toată procedura de preparare a probelor este efectuată în camera obscură cu lumină roșie de mica putere pentru a evita stimularea semnalului luminescent din mineralele de interes. *Zimmerman (1971)*, *Lang et al. (1996)*, *Frechen et al. (1996)* oferă procedurile convenționale pentru prepararea probelor în laborator.

Înainte de prepararea propriu zisă fiecare probă de sediment este cântărită (atât capetele înderărtate cât și miezul rămas pentru prelucrare). Prima etapă în prepararea probelor cuprinde un tratament chimic pentru îndepărtarea carbonaților și a materiei organice cu HCl (10%) respectiv H₂O₂ (10%, 30%). După acțiunea acidului clorhidric și a apei oxigenate probele se clătesc în apă distilată. Pentru probe cu conținut ridicat în materie organică această etapă poate dura mai multe zile. Apoi probele sunt uscate în etuvă până când nu se observă o scădere a greutateii, obținând astfel masa uscată a probelor.

Probele se cern umed pe o sita de 63μm pentru a obține granulația grosiera. Se separă cât mai multe fracțiuni (>125μm, 90-125μm, 63-90μm, <63μm etc.). Pentru fiecare dintre aceste fracțiuni se determină masa uscată.

Separarea cuarțului din fracțiunile grosiere (>60μm) obținute în urma cernerii se realizează prin centrifugare în soluții de lichide grele prin separarea densităților: 2,62 g/cm³ și 2,75 g/cm³. În

cazul feldspaților separarea se face cu soluții de 2,58 și 2,53 g/cm³. Soluțiile cu densități diferite se obțin pe bază de metatungstat de sodiu (sare anorganică grea – Na₆[H₂W₁₂O₄₀] \times H₂O).

Separarea cuarțului în funcție de densitate se face prin centrifugare la 3000 de rotații pe minut timp de 30 de minute. Pentru fiecare densitate se efectuează două centrifugări. După fiecare centrifugare, fracțiunile obținute sunt spălate de 3 ori cu apă distilată pentru recuperarea soluției de lichid greu, apoi se clătesc și se usucă în etuvă.

Amestecul de cuarț și plagioclază rezultat în urma acestei separări (2,62g/cm³< ρ <2,75g/cm³) este uscat și cântărit. Deasemeni, pentru verificare, se păstrează și celelalte minerale rezultate (uscate și cântărite).

Separarea cuarțului de plagioclază nu se poate realiza cu ajutorul lichidelor grele, ci prin tratarea cu HF(40%) timp de 40 minute. Astfel feldspații sunt îndepărtați datorită rezistenței slabe sub acțiunea acidului fluorhidric. HF acționează și asupra stratului exterior al granulelor de cuarț înlăturând astfel contribuția externă a particulelor alfa. După acțiunea acidului fluorhidric probele se spală în HCl (10%) timp de câteva minute pentru îndepărtarea fluorurilor formate sub acțiunea HF. Apoi probele trebuie uscate, cântărite și împachetate, pregătite pentru analiza luminiscentă

Obținerea granulelor fine poliminerale din fracția mai mică de 60 μ m, se realizează prin depunere în cilindri Atterberg conform legii lui Stokes. Pentru fiecare depunere de acest fel se utilizează câte 20 g de probă. După 30 de minute fracțiunea mai mică de 11 μ m rămâne în suspensie. Apoi această fracțiune se supune unei centrifugări timp de un minut la 800 rotații pe minut în urma căreia granulele mai mari de 4 μ m se depun pe fundul tubului. După uscare granulele se cântăresc și se depozitează în ambalaje corespunzătoare.

În cazul în care se dorește obținerea granulelor fine de cuarț (4-11 μ m), granulele poliminerale fine se supun unui tratament cu acid fluorosilicic (H₂ Si F₆) 35% pentru o perioadă de 5 zile.

Măsurătorile de luminiscentă s-au efectuat pe granule grosiere de cuarț depuse pe discuri de oțel, având o grosime de aproximativ 0,5 mm și aproximativ 9,8 mm diametru. Aderența granulelor pe discuri este asigurată printr-un ulei siliconic cu care se acoperă suprața discului prin pulverizare.

S-au utilizat discuri cu un singur strat de granule pentru a asigura omogenitatea distribuției granulelor pe discuri.

Granulele fine (4-11 μm) au fost depuse pe discuri de aluminiu prin suspensie în acetona.

Testarea purității extractelor de cuarț

Teoretic, înlăturarea completă a feldspaților din probe este dezirabilă. În practică însă, acest lucru nu este ușor de realizat iar ceea ce se urmărește este ca semnalul dat de aceștia să nu aibă o contribuție semnificativă la semnalul analizat pentru determinarea dozei echivalente.

O serie de teste au fost făcute pentru a verifica puritatea extractelor de cuarț de-a lungul acestui studiu.

Existența unui semnal semnificativ peste fond în cazul stimulării în IR este atribuit contaminării cu feldspați, deoarece este acceptat că componenta rapidă a semnalului LSO a cuarțului nu poate fi stimulată în acest mod (*Aitken, 1998*), în timp ce o mare parte a feldspaților răspund la acest mod de excitație emițând în UV (*Krbetschek and Rieser 1995, Krbetschek 1997*). Toate probele au fost analizate pe baza acestui criteriu. **(Figura 1)**

Raportul dintre semnalul LSO înregistrat înainte și după o expunere în IR a alicotelor (Raportul de golire IR sau IR depletion ratio) (*Duller, 2003*) a fost de asemenea investigat. Acest test se bazează pe faptul că centrii de recombinare în cazul emisiei UV a cuarțului pentru semnalul LSIR și LSO sunt aceeași (*Jain and Singhvi (2001)*). Acest test a fost aplicat pentru fiecare alicotă analizată iar valorile obținute prezentate.

O observație generală care a fost făcută este că în timpul stimulării optice CW semnalul LSO a cuarțului scade rapid la valori reziduale (*Smith and Rhodes, 1994; Bailey et al 1997*) spre deosebire de semnalul înregistrat în aceleași condiții de la feldspați (*Bailiff and Poolton, 1991*). A fost sugerat de către Duller (*Duller, 2003*) că această particularitate poate fi exploatată pentru a diferenția între cele două fracții mineralogice. Se cunoaște de asemenea că stimularea în pulsuri poate ajuta pentru discriminarea semnalelor date de feldspați (*Denby et al, 2006*). Aceasta se bazează pe faptul că centrii de recombinare utilizați de componentele rapide ale semnalului OSL dat de feldspați au un timp mediu de viață foarte scurt (de ordinul ns) în comparație cu centrii de recombinare utilizați de componentele rapide ale semnalului OSL dat de cuarț (30 μs). Prin

urmă aplicând stimulare în pulsuri de câteva zeci de microsecunde și înregistrând semnalul între aceste pulsuri vom colecta exclusive LSO emisă de cuarț. **Figura 2** prezintă acest experiment.

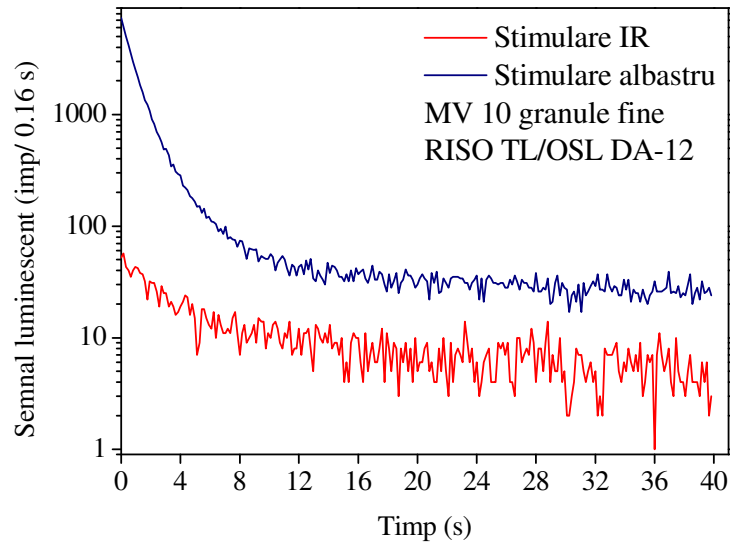


Figura 1: Semnalul luminescent detectat în UV colectat în urma stimulării CW în albastru la temperatura de 125 °C, respectiv semnalul detectat în UV colectat în urma stimulării CW în IR la temperatura de 60 °C pentru proba MV10 cuarț fin (semnal natural)

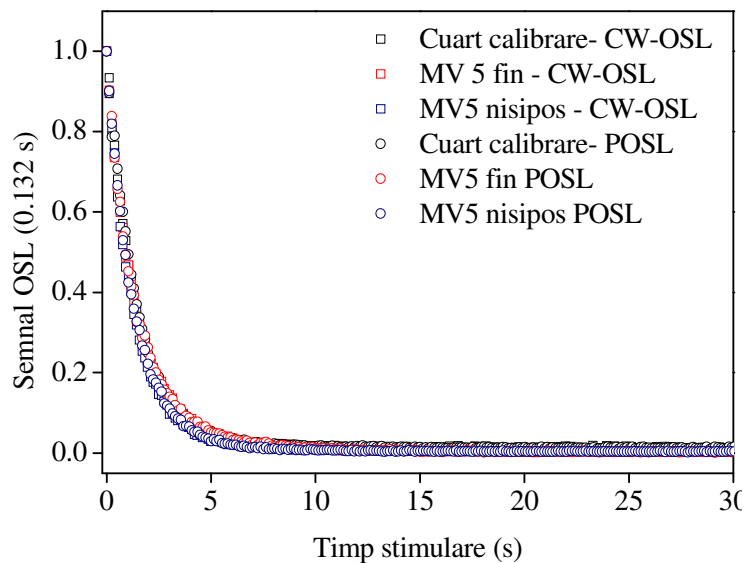


Figura 2: Comparație între curbele de evoluție ale semnalului în timp pentru proba MV5 cuarț fin (4-11 μm), respectiv nisipos (60-90 μm) și cuarț de calibrare în urma stimulării cu putere constantă în mod continuu -CW OSL, respective în pulsuri (on time: 50 μs, off time 50 μs). Semnalele au fost înregistrate după o preîncălzire de 10 s la 220 °C. Valorile prezentate sunt normalizate la numărul de impulsuri colectate în primul canal. Se observă că semnalele au aceeași formă, iar acest lucru indică faptul că semnalul înregistrat provine de la cuarț.

Teste de rigoare intrinsecă ale protocolului uni alicotă regenerativ (SAR)

Toate dozele echivalente prezentate au fost determinate aplicând protocolul regenerative uni-alicotă SAR.

Protocolul SAR (*Murray and Wintle 2000, 2003*) a revoluționat practic datarea optică și în prezent este aproape univoc recunoscut ca tehnica cea mai potrivită de abordare, cel puțin în cazul utilizării cuarțului. (*Stokes et al., 2000; Murray and Olley, 2002; Duller, 2004; Vandenberghe, 2004; Vandenberghe et al., 2004; Wintle and Murray, 2006*).

Protocolul are ca premiză ideea că o singură alicotă poate fi utilizată în mod analitic pentru determinarea unei doze echivalente, schimbările de sensibilitate putând fi monitorizate cu ajutorul răspunsului la o doză test constantă aplicată după fiecare pas în procesul de măsurare. Semnalele optice luminescente pot fi corectate pentru schimbările de sensibilitate prin normalizarea acestora la răspunsul la doza test imediat ulterioară. O secvența tipică de protocol SAR pentru cuarț este prezentată în **Tabelul 1**.

Pas	Tratament	Observă
1.	Iradiază D_i	-
2.	Preîncălzire(10 s la o temp între 160 și 300°C)	-
3.	Stimulare optică pentru 40s la 125 °C	Li
4.	Iradie cu doza test D_t	-
5.	Încălzeste la $T <$ preîncălzirea în step 2 (cutheat)	-
6.	Stimulare optică pentru 40s la 125 °C	Ti
7.	Stimulează optic pentru 40 s at $T >$ preîncălzire	-
8.	în pasul 2 (ETOSL-elevated temperature OSL)	-
	Înapoi la pasul 1	

Tabelul 1: Secvență tipică a protocolului SAR generalizat pentru cuarț.

Secvența de măsurare începe cu înregistrarea semnalului luminescent natural ($D_{i=1}=0$) (pas3). Înainte de a efectua această măsurătoare se practică o preîncălzire. Aceasta este necesară pentru a elibera sarcina care poate exista capturată în capcane puțin adânci, și care poate avea o contribuție nedorită la semnalul natural. Din aceleași considerente, se practică preîncălziri și înaintea înregistrării răspunsului la doza test. Ciclul acesta este repetat de câte ori este dorit prin

administrarea de doze regenerative diferite, parametrul doză test fiind însă păstrat constant. Reprezentând răspunsurile luminescente normalizate pentru diferite doze regenerative la răspunsul obținut în urma administrării dozei test (L_i/T_i) în funcție de doză se obține o curbă de creștere a semnalului în funcție de doză, doza echivalentă fiind determinată prin interpolare (Murray, Wintle, 2000) (*Figura 3*).

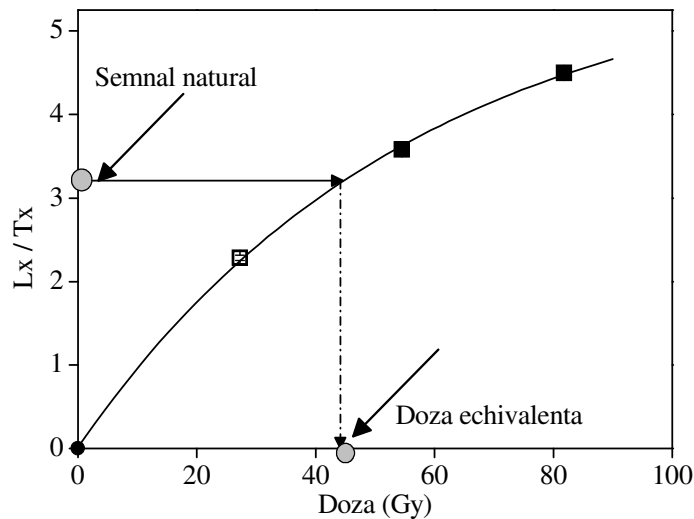


Figura 3: Curbă de creștere tipică obținută pentru cuarț sedimentar prin aplicarea protocolului SAR, (Timar A, 2006).

Cea mai importantă metodă de testare a validității protocolului este așa numitul **test de recuperare a dozei** (dose recovery test) (Murray și Wintle, 2003; Wintle și Murray, 2006). Prin acest test se verifică dacă răspunsul la doza test din reflectă în mod fidel sensibilitatea măsurării semnalului natural.

Astfel o alicotă este supusă unei stimulări optice la temperatura camerei pentru a i se șterge, într-un mod cât mai natural, semnalul luminescent natural. În continuare alicota este iradiată în laborator cu o doză cunoscută, doză care este apoi determinată utilizând protocolul SAR. Doza dată în laborator mimează doza naturală, iar protocolul ar trebui să „recupereze” (să determine) această doză cunoscută.

Pe lângă testul de recuperare a dozei, protocolul SAR conține alte două proceduri de validare a datelor obținute. Aceste teste se desfășoară utilizând datele generate în construcția curbei doză-

răspuns (Figura 5.6) și implică re-măsurarea a cel puțin un punct regenerat (**testul raportului de reciclare** – recycling ratio test) și măsurarea luminescenței pentru o doză regenerativă nulă (**testul recuperării**) (Wintle și Murray, 2006).

Testele raportului de reciclare și testul recuperării au fost efectuate pe toate alicotele analizate. Testul de recuperare al dozei a fost efectuat pentru fiecare probă investigată.

Teste de calibrare, respective funcționare a aparaturii utilizate

Măsurătorile au fost efectuate utilizând cititoare de luminescență automate Risø TL/OSL-DA-12, TL/OSL-DA-15 (în Ghent), respectiv Risø TL/OSL-DA-20 în Cluj.

Calibrarea surselor radioactive

Deoarece doza absorbită de către stratul monogranular de minerale folosite în investigațiile luminescente depinde de o suma de factori a căror influență este greu de cunatificat (dimensiunea și compoziția granulelor, tipul de disc folosit (Al sau oțel inoxidabil), distanța exacta sursa-granule etc.) (*Armitage and Bailey 2005; Chen S. et al 2009*), în practică se obișnuiește calibrarea empirica a surselor beta prin utilizarea unor fracțiuni granulare bine determinate care au fost preincalzite la temperatura de 500°C și iradiate gama cu ajutorul unei surse bine calibrate. Doza cunoscută absorbită în aceste granule de calibrare este determinată experimental ca o doză echivalentă exprimată în secunde de iradiere. Prin urmare se obține o corespondență liniară între timpii de iradiere și doza absorbită în granule minerale de o anumită dimensiune depozitate pe un anumit tip de disc pentru aparatul utilizat. Doza absorbită în cuarțul de calibrare este de 4.81 Gy în cazul setului Risø 17, respectiv 4.00 Gy în cazul setului Risø nr 25 de care dispune Laboratorul de Datare prin Luminescență al Universitatii Babeș Bolyai. Ambele seturi de cuarț de calibrare conțin granule de cuarț grosier (180-250 μm) extrase dintr-un sediment nisipos din Iutlanda pentru care a fost dovedit în prealabil ca sunt potrivite pentru datarea LSO pe baza protocolului SAR. Iradierea a fost facuta cu o sursa gamma calibrata in Risø National Laboratory.

Pentru a avea o valoarea cât mai precisă a debitului dozei sursei beta montate pe reader-ul Riso TL/OSL DA-20 Facultatea de Știința Mediului, Universitatea Babeș-Bolyai, s-au efectuat

măsuratori repetate in perioada Iunie-Septembrie 2009. În total au fost masurate 40 de alicote de cuarț de calibrare grosier din ambele seturi obtinandu-se o valoare medie de 0.1734 Gy/s. Valorile individuale obtinute in urma celor 40 de masuratori individuale prezinta o distributie Gauss cu deviatia standard relativa de 2.6%.

Trebuie subliniat faptul că acest debit al dozei poate fi folosit in cazul efectuării de masuratori pentru fractiuni de orice dimensiune mai mare decat 60 μm in cazul in care acestea sunt depuse pe discuri de otel inoxidabil deoarece a fost aratat ca doza beta absorbita in granule este independenta de dimensiunea acestora pentru intervalul 50-200 μm (Armitage si Bailey 2005). Acest lucru nu mai este însă valabil in cazul utilizării unei fractiuni minerale fine (spre exemplu 4-11 μm) si/ sau al altui substat (spre exemplu aluminiu).

Amintim că pentru sursa radioactivă montată pe reader-ul Riso TL/OSL DA-20 Facultatea de Știința Mediului, Universitatea Babeș- Bolyai, în cazul utilizării substratelor de aluminiu și a granulelor fine un debit al dozei cu valoarea de 0.135 Gy/s a fost obtinut. Diferența relativă dintre cele doua debite (30%) coincide cu datele din literatură (Armitage si Bailey 2005) si cu valorile obtinute de către alte laboratoare (Gent Luminescence Laboratory, Risø National Laboratory), lucru care ne face să fim încrezători în procedura utilizată pentru calibrare.

Valorile prezentate trebuie corectate periodic tinând cont de timpul de înjumătățire al izotopului radioactiv ^{90}Sr ($T_{1/2} = 28.74 \text{ y}$).

Tesarea stabilității termice a mecanismului de încălzire

Stabilitatea termică a placuței de încălzire și stabilitatea ratei de încălzire (5 $^{\circ}\text{C/s}$) a fost testată în mod continuu prin analiza semnalului TL al cuarțului deoarece se știe că prin natura fenomenului fizi, în cazul aplicării unor viteze mai mari de încălzire semnalul TL de la 110 este șifrat.

Testarea stabilității fotomultiplicatorului

Înainte de efectuarea oricărui experiment fondul fotomultiplicatorului a fost înregistrat (10s). Filtrele au fost verificate cu ajutorul LED-urilor de calibrare.

Intercomparare cu rezultate obținute în Laboratorul de Datare prin Luminescență din Ghent.

Probe de cuarț sedimentar fin (secțiunea de loess Mircea Vodă) au fost măsurate folosind același protocol atât în cadrul Centrului de Radioactivitatea Mediului și Datare Nucleară din cadrul Institutului de Cercetări Interdisciplinare al Universității Babeș- Bolyai din Cluj Napoca (Risø TL/OSL DA-20 reader) cât și în Laboratorul de Datare prin Luminescență din Gent Risø TL/OSL DA-12.

Proba	Doza echivalentă (Gy)	Repetare	Recuperare doză zero (%)	Raport IR	Doza echivalenta UBB/ DE Gent
MV1	25.5 ± 0.4	0.98 ± 0.02	0.07 ± 0.03	0.97 ± 0.01	1.02 ± 0.02
MV3	67.2 ± 0.7	1.00 ± 0.01	0.05 ± 0.01	1.00 ± 0.01	1.04 ± 0.03
MV7	203 ± 2	1.00 ± 0.01	0.03 ± 0.01	0.99 ± 0.01	1.03 ± 0.02
MV9	224 ± 2	0.98 ± 0.01	0.07 ± 0.01	0.99 ± 0.01	1.01 ± 0.02
MV10	314 ± 4	1.00 ± 0.01	0.04 ± 0.01	1.00 ± 0.01	1.01 ± 0.03
MV12	433 ± 18	1.00 ± 0.01	0.01 ± 0.01	0.99 ± 0.01	1.01 ± 0.05

Tabelul 2: O comparație între dozele echivalente obținute în Laboratoarele de datare prin Luminescență din Cluj și Ghent. Se observă o foarte bună corespondență între rezultatele obținute.

4. 2. Controlul acurateții metodologiilor utilizate pentru determinarea dozei anuale

Măsurarea activității specifice a radionuclizilor din soluri, un studiu comparativ între metode diferite pentru estimarea dozei anuale

În datarea luminescență determinarea precisă a dozei anuale constituie un pas de egala importanță cu determinarea paleodozei. Premiza de determinare a acestei valori este cunoscuta sub denumirea de ipoteza matricii infinite și constă în faptul că într-o cantitate suficientă (mai mare decât parcursul radiațiilor ionizante) de material omogen și izotrop pe baza principiului conservării energiei se poate aproxima existența unei egalități între energia emisă de radionuclizi pe unitate de masă și energia absorbită.

Datorita eficienței reduse în inducerea semnalului luminescent a particulelor alfa, a influenței diferențiate a umidității în atenuarea particulelor alfa, beta și radiațiilor gamma precum și datorită atenuării radiațiilor beta în interiorul granulelor minerale de interes, doza anuală este cuantificată ca o sumă a contribuțiilor acestor tipuri de radiații. În practica determinarea acestei valori se face utilizând factori de conversie (Adamic, Aitken 1998) pe baza concentrațiilor de radionuclizi determinate experimental.

Precizăm că acestor componente trebuie să li se adauge doza datorată componentei cosmice. Aceasta se calculează în funcție de coordonatele locației și adâncimea de recoltare (Prescott, Hutton 1994).

Concentrațiile de radionuclizi din probele geologice și arheologice se determină prin metodele consacrate din care amintim: spectrometria gamma, spectrometria alfa, numărarea alfa, activarea cu neutroni, flamfotometria pentru K.

Doza anuală se calculează practic pe baza formulei:

$$Doza\ anuală = a \cdot \frac{D_{\alpha(U,Th)}}{1+1.5WF} + \frac{D_{\beta(U,Th,K,Rb)}}{1+1.25WF} + \frac{D_{\gamma(U,Th,K)}}{1+1.14WF} + D_{cos}$$

Unde:

- a reprezintă eficacitatea radiațiilor alfa de inducere a semnalului luminescent
- D_{α} , D_{β} , D_{γ} reprezintă contribuțiile diferitelor tipuri de radiații la doza anuală
- D_{cos} reprezintă componenta cosmică a debitului dozei
- factorii prezenți în numitor reprezintă corecțiile pentru umiditate (F- factor ce cuantifică perioada relativă de timp în care proba a fost saturată cu apa iar W și W_1 reprezintă fracțiunea masică de apă pentru probele de ceramică respectiv sol saturate. Considerând ca aplicație tehnică incluziunilor de cuarț contribuția alfa este înlăturată prin înlăturarea stratului exterior a granulelor afectat prin tratament acid.

În cadrul Centrului de Radioactivitatea Mediului și Datăre Nucleară din cadrul Institutului de Cercetări Interdisciplinare al Universității Babeș- Bolyai din Cluj Napoca activitățile specifice ale radionuclizilor sunt determinate prin spectrometrie gamma de înaltă rezoluție.

Calibrarea în energie a detectorului de germaniu hiperpur GMX 30 P4-ST (1.92 keV FWHM și 34.2% eficiență relativă la 1.33MeV) din dotarea laboratorului de Radioactivitatea Mediului, a fost efectuată folosind o sursă standard de Eu. În ceea ce privește calibrarea în eficiență am testat un cod Monte Carlo în comparație cu efectuarea unei calibrări relative folosind standarde certificate de Agenția Internațională pentru Energie Atomică Viena (IAEA-312, IAEA RG-U, IAEA RG-Th, IAEA RG-K).

În urma analizei spectrelor s-au determinat în mod curent : Th-234, Ra-226, Bi-214, Pb-214, Pb-210 (din familia U-238), Ac-228 și Tl-208 (din familia Th-232) alături de K-40. The linia de la 609 keV a ^{214}Bi a fost exclusă ulterior din calcule deoarece s-a constatat că sunt pierdute impulsuri în peakuri de sumare (*Garcia-Talavera et al 2001*)

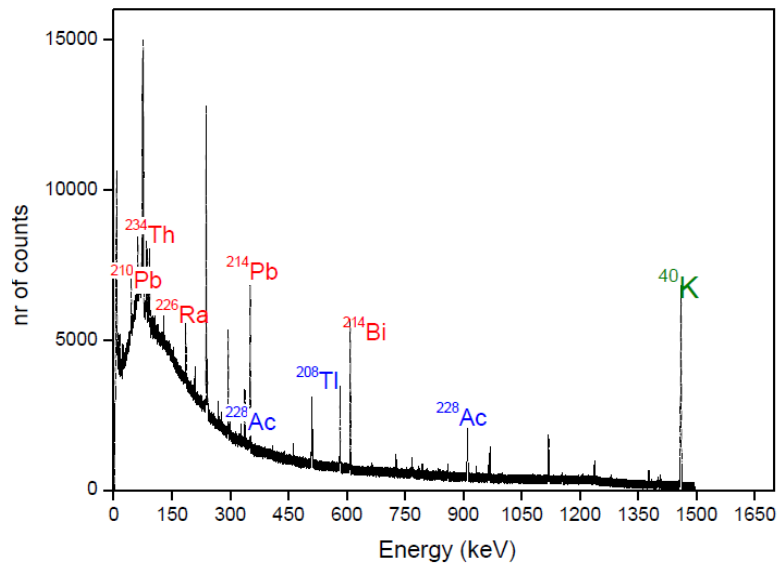


Figura 4: Spectru tipic al unei probe de sol (proba 5). Timpul de achiziție din exemplu a fost de 500000 secunde.

Activitatea fiecărui radionuclid a fost determinată pe baza ecuației:

$$\Lambda = \frac{N}{t_m \cdot \epsilon \cdot y}$$

N reprezintă numărul net de impulsuri sub peak

t_m reprezintă timpul de achiziție al spectrului

y reprezintă probabilitatea de emisie a liniei gama

ε este eficacitatea de detecție obținută folosind codul Monte Carlo GES-Gamma Electron Efficiency Simulator version 2.7 (Fulea, 2009).

S-a implementat și testat o metodă de măsurare directă a concentrației de Ra-226 utilizând peak-ul interferat de U-235 la 186 keV (**Figura 5**) (Hossain, 2002, De Corte et al 2005). Aceasta, alături de determinarea concentrației de Pb-210 ne permite să identificăm situațiile de dezechilibru radioactiv (îmbogațire sau pierdere de Ra și/sau pierdere de radon). În cazul existenței de echilibru secular în seria uraniului peakul de la 186 keV a Ra-226 este un peak interferat cu o contribuție de 43 % din partea U-235. Deoarece tocmai existența sau nu a echilibrului secular trebuie testată este necesară corectarea empirică. Aceasta se face determinând contribuția U-235 din peakul de 63.3 keV a Th-234 (presupus în echilibru secular cu U-238) considerând o abundență izotopică naturală a uraniului. În mod suplimentar trebuie ținut cont și de faptul că emisia de la 63.3 keV a Th-234 este la rândul său interferată de peakul la 63.8 keV a Th-232. Corecția se face în acest caz pe baza considerării echilibrului secular în seria Th-232 și utilizarea unui peak curat, spre exemplu emisia de la 338.3 keV a Ac-228.

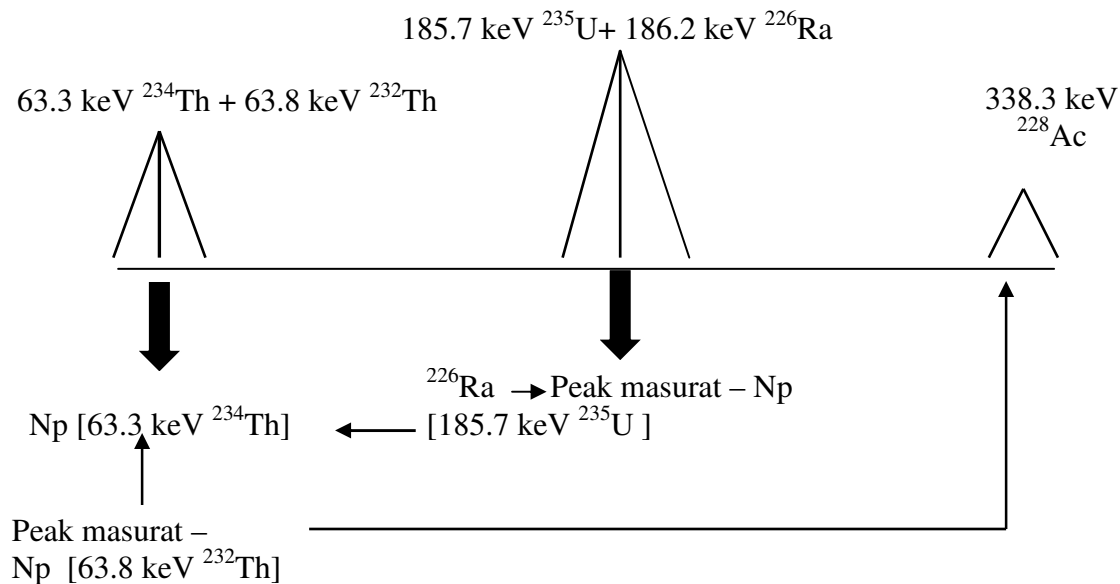


Figura 5: Reprezentarea schematică a metodei de determinare a activității specifice a Ra-226 prin măsurători gamma spectrometrice.

Procedura a fost testată prin măsurarea etalonului IAEA-312- radionuclizi in sol. În **Figura 6** se observă o bună concordanță (in limita erorilor metodei) între valorile determinate experimental și valorile recomandate de Agentia Internationala pentru Energie Atomica Viena.

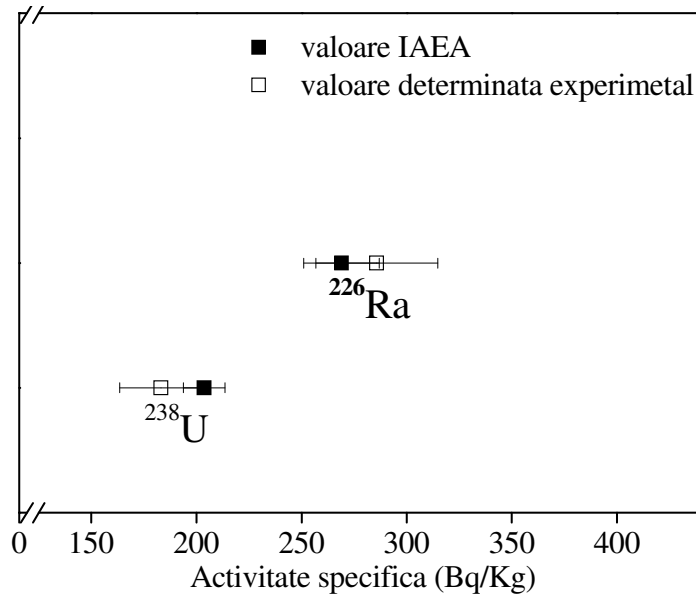


Figura 6: Comparație între valorile recomandate de IAEA și valorile obținute prin măsurarea spectrometrică directă pentru Ra-226.

Toate spectrele au fost achiziționate pentru cel puțin 150 000s. Pierderile de radon inerente preparării probelor (uscare, pulverizare, impachetare) au fost cuantificate prin analizarea mai multor probe de interes. S-a constatat o pierdere de aproximativ 15%. Prin urmare stocarea probelor pentru trei săptămâni pentru restabilirea echilibrului secular este considerată procedură standard.

În continuare vom prezenta rezultatele unui exercitiu de intercomparare efectuat între Universitatea Babeș-Bolyai Cluj-Napoca, Universitatea Veszprém, departamentul de Radiochimie și Sucursala pentru Cercetari Nucleare Mioveni Pitești în scopul evaluării activităților specifice a radionuclizilor naturali din probe de sol colectate din situl arheologic Lumea Nouă, Alba Iulia.

Rezultatele obtinute sunt sintetizate in **Figura 7**.

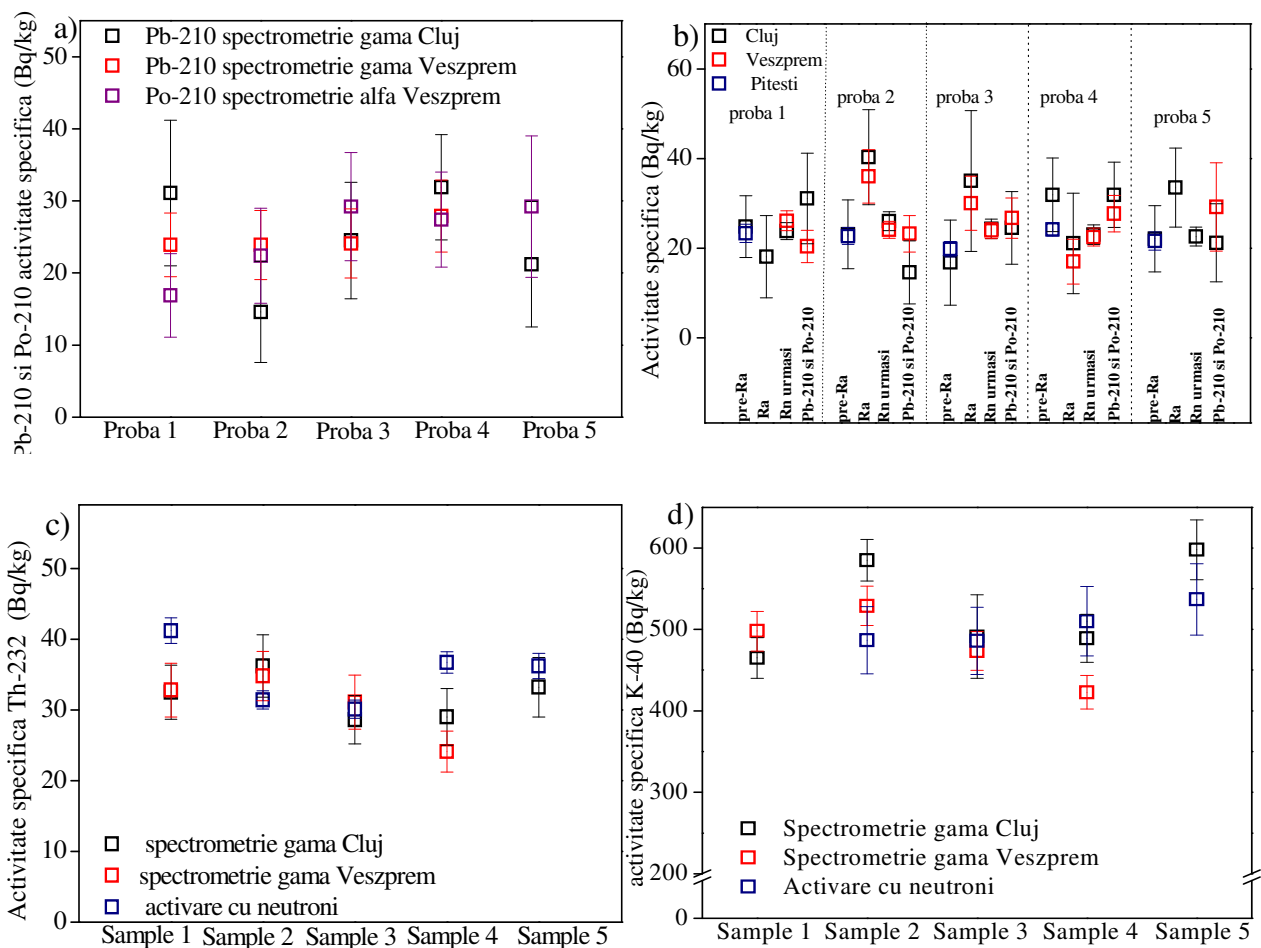


Figura 7: Sinteza rezultatelor obținute pentru activitățile specifice ale radionuclizilor naturali din cinci probe de sol ce au semnificație în contextul datării luminescente de material ceramic arheologic.

Se observă o bună concordanță în limitele de eroare între cele trei laboratoare. Prin urmare s-a cuantificat valoarea dozei anuale pe baza valorilor obținute de către fiecare laborator.

Avantajul spectrometriei gamma constă în posibilitatea detectării cazurilor de dezechilibru. Măsurătorile spectrometrice alfa au fost practic efectuate pentru a verifica acurătatea determinărilor de Ra-226 și Pb-210. Activitatea specifică a nuclidului Po-210 este determinată

prin spectrometrie alfa cu usurinta. In probe naturale de sol colectate de la o adancime suficienta este de asteptat a exista echilibru secular intre acest nuclid si Pb-210, prin urmare valorile acestor activitati sunt mediate.

Se observa o buna corespondenta intre rezultatele finale. Mai mult decat atat, deoarece metoda activarii cu neutroni are ca avantaj o precizie sporita, in timp ce spectrometria gamma de inalta rezolutie are ca avantaj capacitatea de detectare a dezechilibrelor am incercat sa cunatificam diferentele produse in utilizarea acestor doua metode in o varsta luminescenta. Pentru proba 2 de sol (in care se observa un grad redus de dezechilibru) s-a considerat o proba arheologica ceramica cu paleodoza cunoscuta de si concentratia interna de radionuclizi determinata prin activare cu neutroni (Benea et al 2007). Mai mult decat atat, datorita faptului ca materialul analizat este solul care a inconjurat materialul arheologic, avem doar o contributie gamma, contributia beta fiind derivata din concentratia radionuclizilor din ciobul ceramic. Varstele obtinute sunt reprezentate in **figura 8**. În limita totală de eroare a metodei se observă o concordanta foarte bună.

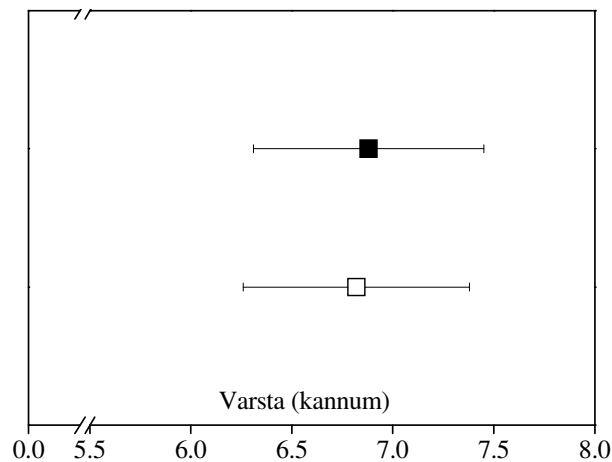


Figura 8: Vârstele calculate pentru o ceramica eneolitică colectată din situl Lumea Noua luând în considerare informațiile dosimetrice pentru proba de sol numărul 2 obținute prin spectrometrie gama (considerând îmbogățire cu Radium) (□) și prin metoda activării cu neutroni (■). Toate informațiile legate de proba și ceilalți factori implicați în determinarea vârstei pot fi găsite în Benea et al 2007.

Metoda de determinare a dozei anuale în datarea luminescenta prin măsurarea radionuclizilor naturali din probe arheologice și geologice prin implementarea spectrometriei gamma de înaltă

rezoluție a fost dezvoltată. Metodologia de măsurare a fost verificată prin analizarea de etaloane certificate de Agenția Atomică Internațională Viena. În cazul iradierii gama datorită solului înconjurător pentru materiale arheologice metodele au fost validate prin rezultatele pozitive obținute prin compararea cu alte metode (spectrometrie alfa- Departamentul de Radiochimie Universitatea Veszprém și activare cu neutroni- Sucursala Pentru Cercetări Nucleare, Pitești).

Rezultatele prezentate mai sus reprezintă un studiu preliminar efectuat pentru validarea metodelor folosite în determinarea dozei anuale. Aceste măsurători au fost efectuate în anul 2007 și publicate într-o revistă BDI. În momentul de față determinările prin spectrometrie gama în cadrul centrului de Radioactivitatea Mediului și Datăre Nucleară sunt efectuate în prezența unui fond radioactiv mult mai scăzut datorită îmbunătățirii ecranajului detectorului. În acest mod precizia determinărilor precum și limita de detecție au fost mult îmbunătățite. Alte aplicații gama spectrometrice în determinarea radioactivității ambientale sunt prezentate în Begz 2009a,b, Cosma 2007.

5. Aplicarea metodelor de datare prin luminescență în studii cheie și contribuțiile potențiale raportate la cele mai recente realizări existente în fluxul principal de publicații

5.1 Aplicații în arheologie

Datarea prin luminescență a unor ceramici Neolitice din România

Ceramica este unul dintre cele mai importante și frecvent descoperite artefacte arheologice descoperite în siturile Neolitice, în special în Europa de Sud-Est.

Posibilitatea datării ceramicilor prin termoluminescență a fost propusă în anii 60 de *Grogler et al. (1960) and Kennedy and Knopff (1960)* și metodele TL au fost studiate și aplicate din acel moment intensiv (*Aitken, 1985 and Roberts, 1997*). În anii 2000, dezvoltarea tehnicilor LSO și a protocolului uni alicotă SAR a condus la o creștere semnificativă a preciziei datării prin luminescență. Cu toate acestea există foarte puține studii care au aplicat aceste tehnici pentru datarea materialelor arheologice arse (*Hong et al. (2001), Takano et al. (2003) and Lamothe (2004)*).

În acest studiu metodele de datare prin luminescență au fost aplicate pentru patru fragmente de ceramică neolitică provenite din cultura Lumea Nouă, Alba Iulia, scopul acestui studiu fiind îmbunătățirea cronologiei acestui sit. Protocolul unialicotă SAR (single aliquot regeneration) a fost aplicat atât pentru emisia UV a cuarțului grosier (90-125 μm) prin stimulare în albastru (OSL) cât și pentru emisia în domeniul albastru al granulelor fine (4-11 μm) poliminerale extrase din probe în urma stimulării în infraroșu (IRSL). Pentru comparare, tehnica convențională a dozelor aditive folosind mai multe alicote (MAAD) a fost de asemenea aplicată pentru semnalul luminescent obținut în urma stimulării termice (TL).

Procedura Termoluminescența utilizând granule fine

La determinarea dozei echivalente (D_e) s-a utilizat procedura dozei-aditive multi-alicotă. Pentru fiecare probă au fost folosite câte 48 de alicote, dintre care 24 au fost folosite pentru determinarea semnalului TL natural, restul 24 de alicote rămase s-au folosit la ridicarea curbei de creștere, în acest scop fiind împărțite în 4 grupe a câte 6 alicote. La fiecare grup a fost administrată o doză aditivă. După administrarea dozei aditive toate alicotele au fost păstrate timp de 4 săptămâni la temperatura camerei. Corecția de supraliniaritate s-a făcut ridicând a doua curbă de creștere după prima citire și prin administrarea acelor doze aditive ca și în primul caz.

Doza echivalentă a fost determinată utilizând intervalul de pe testul platou. Pentru fitarea curbelor de creștere s-a folosit o funcție exponențială. Doza echivalentă și corecția de supraliniaritate s-au determinat prin extrapolare.

Procedura LSO utilizând granule de cuarț

Granulele de cuarț au fost stimulate cu lumina albastră timp de 40s la 125°C și pentru determinarea dozei echivalente s-a utilizat protocolul uni-alicota SAR. Toate probele s-au comportat bine în protocolul SAR-OSL, unde testul de reciclare este aproape de unitate, iar testul de recuperare este mai mic decât câteva procente din semnalul natural corectat. Curba de creștere a semnalului OSL față de doză a fost aproximată cu o singură funcție exponențială de saturatie.

Pentru proba V3, dependența dozei măsurate de temperatura de preîncălzire a fost studiată complet aplicând testul de recuperare a dozei. Ștergerea informației de pe alicote (bleaching) s-a făcut de două ori utilizând lumina albastră timp de 250s, la temperatura camerei, cu un interval de 10ks între cele două proceduri. Doza administrată a fost aproape de doza echivalentă așteptată, iar pentru determinarea ei s-a aplicat protocolul SAR cu temperatura de preîncălzire de 240°C timp de 10s.

Procedura LSIR utilizând granule fine poliminerale Alicotele de granule fine poliminerale au fost stimulate în infrarosu timp de 100s la 40°C, iar măsurătorile au urmat secvențele protocolului SAR dezvoltat pentru cuarț. Tratamentele aplicate au constat într-o preîncălzire de 10 sa la 220 °C.

În cazul emisiei TL în albastru a granulelor fine poliminerale atât cât și în cazul emisiei LSIR cu lungimea de undă de 410 nm au fost efectuate teste de fading anomal (**Figura 9**).

Vârstele obținute în cazul procedurii LSIR SAR au fost corectate pe baza modelului *Huntley and Lamothe (2001)*.

Vârstele obținute prin aceste tehnici diferite au fost în bună concordanță dar s-a concluzionat că tehnica SAR OSL este mai robustă, și are o precizie mai bună. Vârsta OSL medie obținută plasează tranziția de la Cultura Foeni la Cultura Petrești în situl Lumea Nouă la 6.2 ± 0.5 ka, interval ce este în bună concordanță cu așteptările arheologilor. Pentru stabilirea unei cronologii complete a evoluției culturale a sitului Lumea Nouă continuare investigațiilor se impune, dar cu toate acestea studiul nostru reprezintă o primă confirmare a faptului că metodele luminescente pot contribui semnificativ la realizarea acestui deziderat.

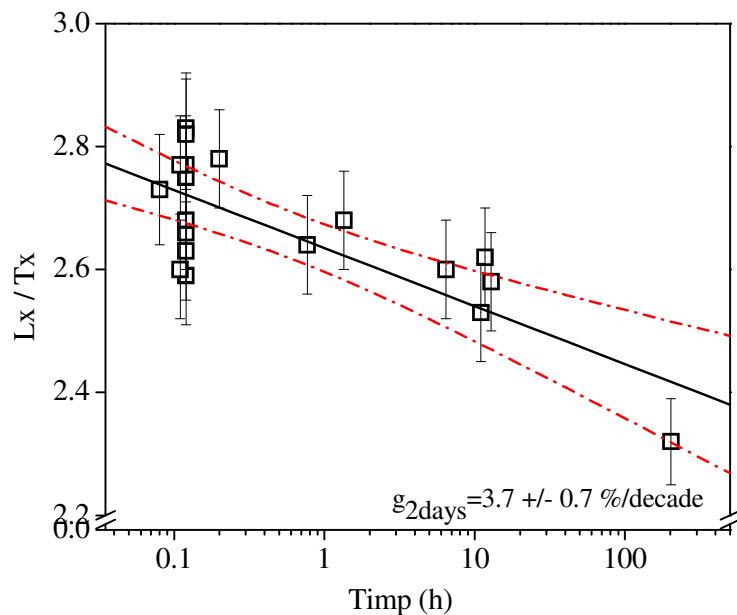


Figure 9: Testarea fadingului. Datele prezintă o alicotă semnificativă a probei A1. Se observă o scădere logaritmică a semnalului luminescent în funcție de timpul trecut de la momentul iradierii (acest tip de scădere indică pierderi de semnal prin efect tunel)

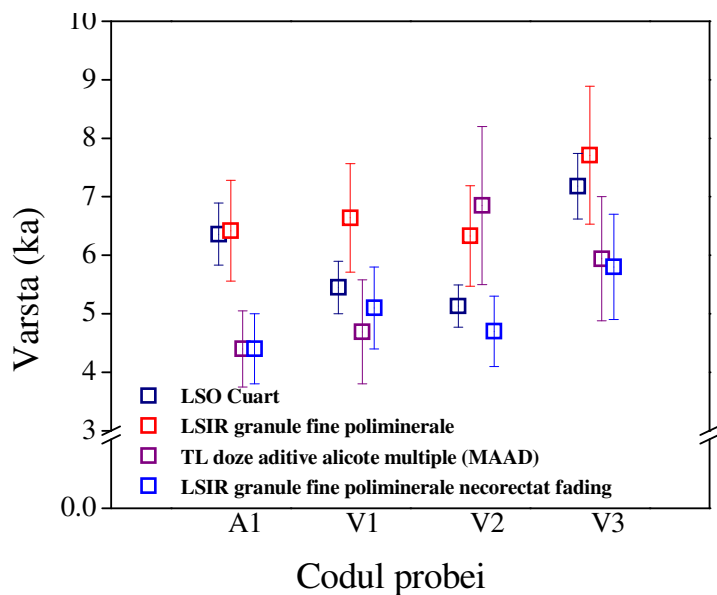


Figure 10: Ilustrare comparativă a vârstelor obținute pe baza celor trei metode aplicate.

Măsurătorile au fost efectuate în Gent Luminescence Dating Laboratory; în momentul efectuării acestui studiu corecțiile pentru fading erau proaspăt dezvoltate. Rezultatele au fost disseminate printr-o publicație ISI (Benea et al, 2007).

5.2. Aplicații în geologie și mediu

5.2.1. Datarea prin luminescență stimulată optic a loessului din România folosind cuarț fin

Depozitele de loess acoperă suprafețe semnificative în Europa, întinzându-se din Nord-Vestul Franței până în Europa Centrală, Ucraina și Vestul Rusiei. Aceste depozite păstrează o importantă și detaliată arhivă a schimbărilor climatice ce au avut loc în Pleistocen, însă adevărata lor semnificație nu poate fi înțeleasă fără a avea o cronologie absolută (*Frechen et al., 2003; Roberts, 2008*). Pentru depozitele europene de loess, un astfel de cadru cronologic are lipsuri majore. Informațiile asupra vârstelor loessului european se bazează în principal pe metode relative (cum ar fi pedostratigrafia și susceptibilitatea magnetică) sau corelarea secvențelor cu caracteristici similare. Dezavantajul major al acestor abordări este presupunerea că aceste depozite terestre sunt complete (adică nu prezintă hiatusuri) și/sau că depozitele de loess s-au format într-un ritm constant.

Aplicarea metodelor noi de datare absolută (în principal datarea luminescentă), a demonstrat existența atât a vitezei diferite de acumulare, cât și a hiatusurilor erozive. Acest fapt contestă unele idei fundamentale legate de natura, formarea și semnificația depozitelor de loess, și pun la îndoială poziția stratigrafică a unor paleosoluri și a modului în care aceste ar trebui corelate. În consecință, vârstele absolute sunt esențiale pentru determinarea (i) timpului în care au avut loc evenimente climatice reflectate în loess, (ii) viteza proceselor precum sedimentarea și pedogeneza și (iii) corelarea între secvențele de loess răspândite în toată Europa.

Datarea luminescentă este, în prezent, singura metodă care permite stabilirea unei cronologii absolute pentru depozitele de loess. Totodată, caracteristicile loessului fac acest material ideal pentru dezvoltarea, testarea și aplicarea tehnicilor luminescente. Într-adevăr, datarea luminescentă utilizează granule de cuarț și/sau feldspat, minerale care se găsesc în abundență în loess, iar natura eoliană a loessului asigură fixarea ceasului luminescent la zero înainte de depunere. Noi descoperiri în datarea luminescentă oferă, în mod intrinsec, posibilitatea stabilirii unei cronologii absolute noi, precise și exacte pentru o parte considerabilă a depozitelor stratigrafice de loess din Europa. Totuși, până în acest moment acestea nu au fost aplicate pentru loessul din Europa. Există astfel o necesitate pentru investigații cronometrice detaliate în care tehnicile luminescente moderne sunt aplicate și dezvoltate pentru stabilirea unui cadru cronologic al acestor depozite semnificative pentru de schimbările climatice.

Secvențele de loess și paleosolurile intercalate din Dobrogea reprezintă în detaliu schimbările climatice din ultimii 650 ka fiind unele dintre cele mai complete secvențe de acest tip din Europa. Se consideră că aceste depozite reprezintă o verigă între depunerile tipic eoliene din China și loessurile de origine periglaciara din Europa de Vest iar importanța investigării depozitelor de loess din Europa de Est, cu precădere România și Serbia este subliniată în lucrările din domeniu. (*Frechen et al., 2003*).

Secțiunea de loess din apropierea comunei Mircea Vodă (N 44°19'12", E 28°11'30") a fost aleasă pentru efectuarea unui studiu de caz. Depunerile de loess din această regiune depășesc 20 m, cinci paleosoluri fiind intercalate.

Probele de loess au fost colectate din secțiunea de loess proaspăt curățată utilizând tuburi de oțel inoxidabil. Studiul nostru a fost efectuat pe 9 probe din primul strat de loess (L1), deasupra primului palaeosol (S1), și trei probe colectate de sub primele paleosoluri (MV10- sub S1, MV12 –sub S2, MV13- sub S3).

Toate măsurătorile au fost efectuate folosind aparatura standard Risø TL/OSL, echipamente special concepute pentru efectuarea de măsurători de termoluminescență și luminescență stimulată optic. Pentru stimularea optică a granulelor de cuarț s-au folosit diode albastre (NISHIA LED type NSPB-500s) cu emisie centrată la 470nm (FWHM =20nm). Avantajul utilizării acestui gen de stimulare este reprezentat de golirea rapidă a capcanelor OSL (stabile în timp geologic) datorită lungimii de undă scurte. Semnalul luminescent a fost detectat printr-un filtru Hoya U-340 7.5 mm cu transmisia centrată la 340 nm (FWHM =80nm) cu ajutorul unui fotomultiplicator de tip bialcalin EMI 9235QA cu o eficacitate de detecție maximă la aproximativ 400 nm. O curbă tipică a semnalului OSL în funcție de timpul de stimulare (decay curve) este prezentată în **Figura 11**. S-a observat că granulele fine de cuarț au semnalul OSL dominat de o componentă rapidă.

Doza echivalentă a probelor de cuarț a fost determinată în cadrul unui protocol SAR.

Vârstele luminescente cu în formațiile paleomagnetice existente pentru Secțiunea Mircea Voda (*E.C Panaiotu & C.G. Panaiotu <http://ns.geo.edu.ro/~paleomag/loess-MV.htm>*). **Figura 12** reprezintă datele OSL și modelul adâncime vârsta bazat pe corelarea variației valorilor susceptibilității magnetice cu δO-18 în foraminifere.

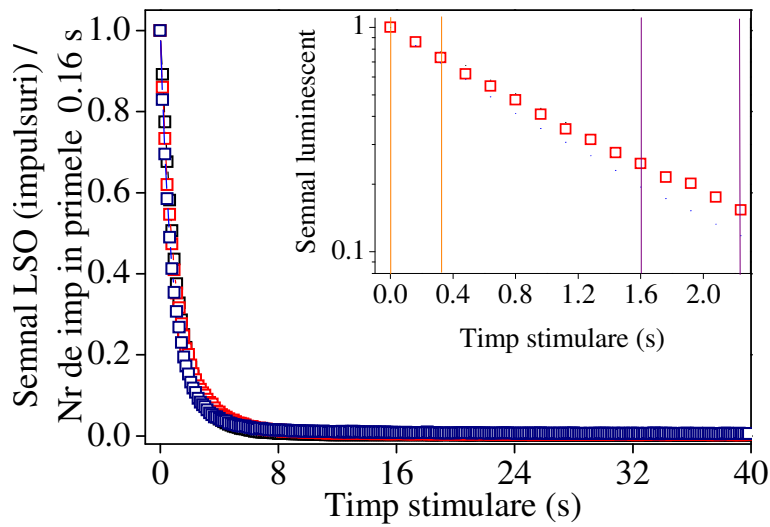


Figura 11: Semnalul LSO natural și obținut în urma iradierii cu o doză artificială al probei MV10 înregistrat în funcție de timpul de stimulare, comparat cu semnalul LSO al cuarțului de calibrare. Se observă o scădere rapidă a semnalului luminescent în funcție de timpul de stimulare tipică semnalului LSO dominat de componentă rapidă a cuarțului.

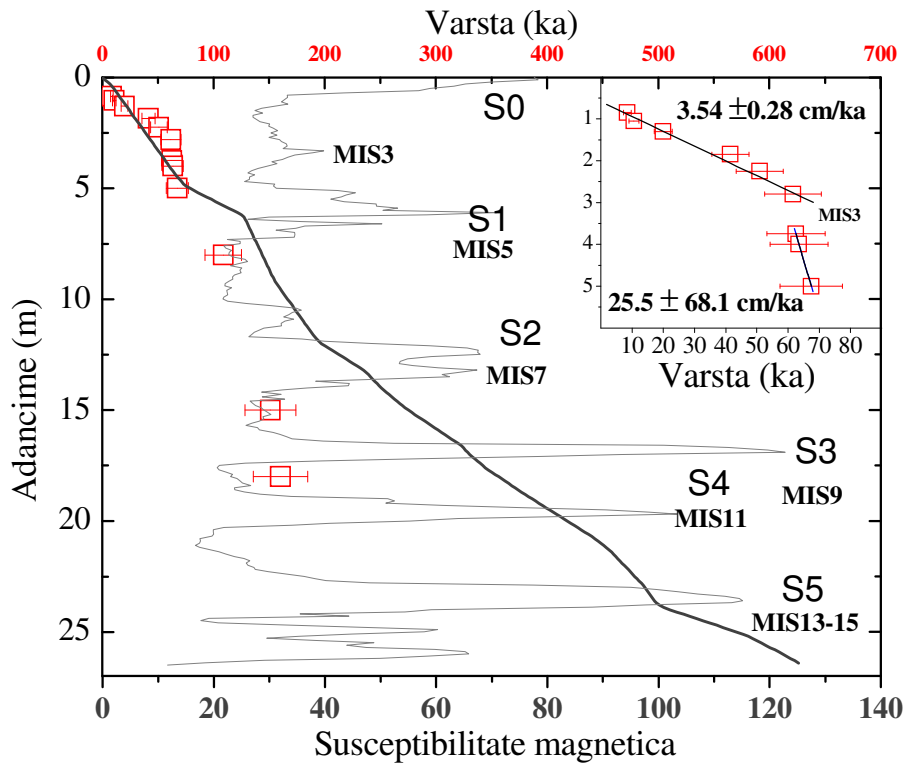


Figura 12: Vârstele OSL și modelul timp adâncime bazat pe corelarea variației valorilor susceptibilității magnetice cu $\delta O18$ (C. Panaiotu)

Accentuând asupra faptului că pentru modelul magnetic vârstă adancime nu pot fi atribuite limite de eroare, putem concluziona ca pentru primele 9 probe (L1) cele două metode conduc la rezultate similare. Schimbările de sensibilitate au putut fi controlate în cazul protocolului de regenerare, lucru demonstrat prin valorile obținute în cazul testului de repetare/reciclare (0.98 ± 0.02 –valoare medie pentru 99 alicote (11 alicote utilizate pentru fiecare probă)) și recuperare ($0.1 \pm 0.02\%$ –valoare medie pentru 99 alicote (11 alicote utilizate pentru fiecare probă)). Prin ștergerea semnalului natural și iradiere controlată abilitatea de a măsura o doză cunoscută a fost testată, folosind un tratament termic constând într-o preîncalzire de 10 s la $220\text{ }^{\circ}\text{C}$ pentru semnalele naturale și regenerative și o preîncalzire cu viteză controlată până la $180\text{ }^{\circ}\text{C}$ pentru semnalul test. S-a concluzionat ca doze variind în domeniul 20-200 Gy pot fi măsurate cu acuratețe, obținându-se un raport doză de iradiere/doză măsurată de 1.03 ± 0.02 (nivel de încredere 95%) pentru cele 9 doze investigate (doze ce aproximează dozele echivalente). Valorile obținute pentru primul palaeosol se observa că utilizarea unor metode absolute poate evidenția modificări în ratele de sedimentare, o creștere drastică fiind sesizată în perioada premergătoare MIS 3, încălzirea moderată din cursul ultimei ere glaciare, lucru ce poate avea importanța în interpretările paleoclimatice. Aceste rezultate confirmă concluziile studiului realizat de Singhvi, *Singhvi et al. (2001)*, și sunt în acord cu date noi obținute în datarea loessului din China. (*Stevens et al. 2007; Buylaert et al., 2008*).

Deși datele confirmă faptul că primul sol bine dezvoltat corespunde la MIS 5, în ceea ce privește probele MV10, M12, MV13 vârstele OSL subestimează valorile așteptate. În mod interesant însă, caracteristicile semnalului luminescent nu indică acest lucru: (i) semnalul OSL nu este în saturație și continuă să crească (**Figura 13 a,b**), (ii) dozele echivalente naturale și recuperate sunt independente de tratamentul termic aplicat (sugerând că semnalul analizat este stabil termic (**Figura 14 a, b**)) (iii) testele de rigoare intrinsecă a protocolului, în speță testul de recuperare a dozei este trecut cu succes (**Figura 15**), și (iv) vârstele obținute cresc cu adâncimea.

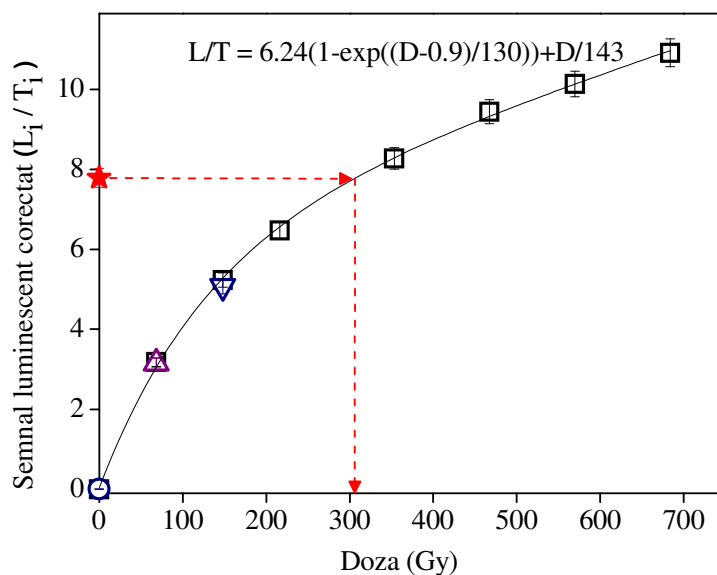


Figura 13a: Curbă de creștere doză răspuns reprezentativă pentru granulele de cuarț fin extras din proba MV10. Punctele de repetare sunt reprezentate ca triunghiuri. Semnalul natural este reprezentat sub formă de stea.

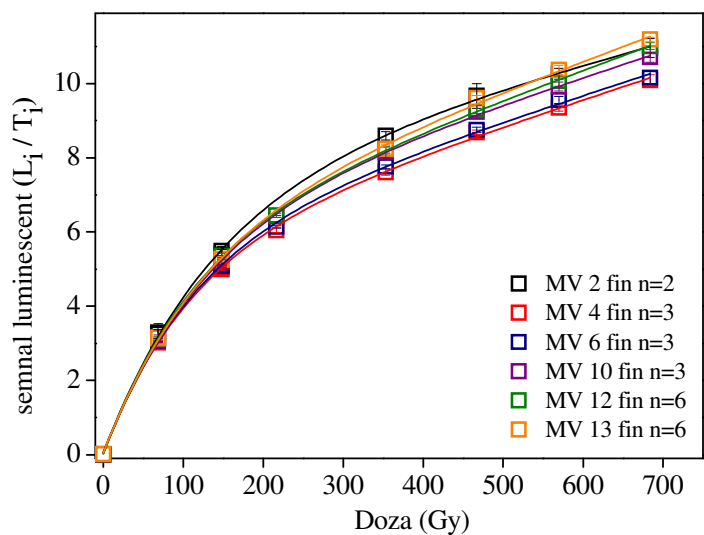


Figura 13b: Curbele de creștere doză răspuns (SAR OSL) medii pentru granule fine în cazul a șase probe cu vârste diferite.

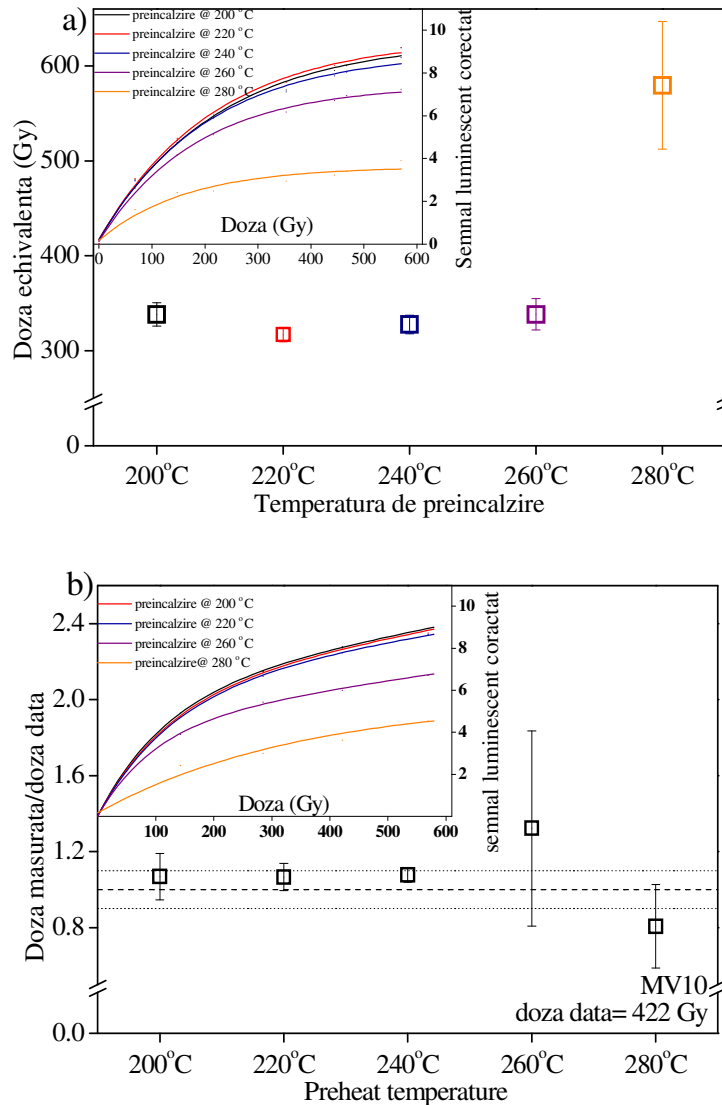


Figure V.14: *Dependența dozei echivalente naturale, respective a raportului doză măsurată-doză dată în funcție de temperatură de preîncălzire pentru proba MV10. Fiecare punct reprezintă media a cel puțin trei măsurători. Barele de eroare reprezintă 1x eroare standard a mediei celor trei măsuraători. Liniile punctuate indică o deviație de 10%.*

Testul de recuperare a unei doze date indică că cu ajutorul protocolului de măsurare indicat se pot determina cu acuratețe doze de iradiere artificiale de până la 500 Gy (**Figura 15**). Accentuăm asupra faptului că testul de recuperare al dozei dă rezultate satisfăcătoare și în cazul dozelor mari, aflate în regiunea liniară, supra exponențială a curbei de creștere (**Tabelul 2**). Deși aceste rezultate indică faptul că protocolul de măsurare este robust, nu garantează faptul că semnalul natural este măsurat cu acuratețe.

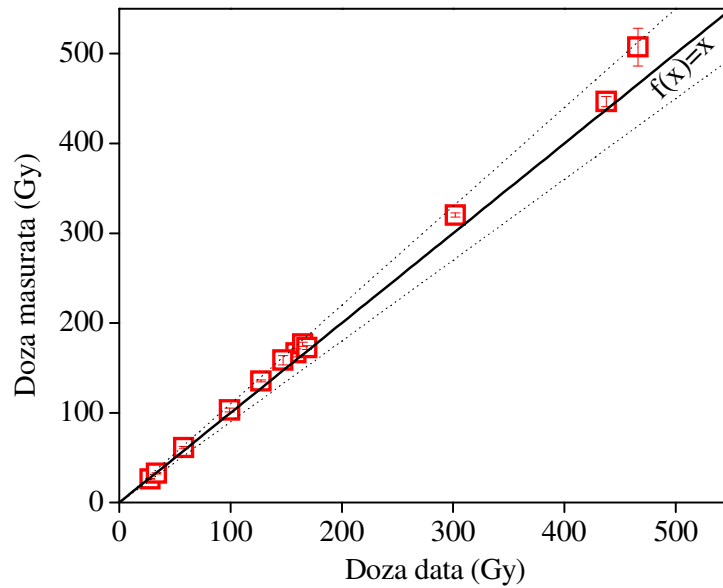


Figura V.15: Prezintă dozele măsurate în funcție de dozele de iradiere artificială din laborator pentru toate probele investigate. Măsurătorile au fost făcute folosind protocolul SAR. Tratamentul termic utilizat a constat într-o preîncălzire de 10 secunde la 220 °C. Doza dată a fost aleasă aproximativ egală cu doza naturală. Linia solidă reprezintă 1-1, liniile punctuate reprezentând deviații de 10% de la această relație.

Proba	χ^2 / DOF (fitare exponentiala)	D_0 (Gy)	Eroare D_0 (Gy)	“Limita practică” (Gy)	χ^2 / DOF (fitare exponentiala + f. liniara)	D_0^* (Gy)	D_0^* error (Gy)
MV2	0.085	225	25	426	0.011	126	12
MV4	0.092	235	27	446	0.014	108	13
MV6	0.091	238	27	452	0.010	110	11
MV10	0.101	241	28	457	0.010	112	10
MV12	0.096	255	29	448	0.017	113	9
MV13	0.134	255	38	484	0.027	116	18

Tabelul 2: Valorile testului de fitare pentru curbele de creștere și valorile dozelor caracteristice (D_0 și D_0^*) pentru granule fine de cuarț extase din probe de vârste diferite. Curbele de creștere au fost construite într-un protocol SAR până la doze de 700 Gy, doza test aplicată în toate cazurile fiind de 17.1 Gy. Funcțiile folosite pentru fitare au fost o exponențială de saturație $I = I_{\max}(1 - \exp(-(D + D_i)/D_0))$ și o funcție exponențială de saturație plus un termen liniar $I = I_{\max}^*(1 - \exp(-(D + D_i^*)/D_0^*)) + D \cdot a$. “Limita practică”, reprezintă 85% din nivelul de saturație al funcției exponențiale.

În concluzie vârstele luminescente obținute confirmă corelarea primului paleosol bine dezvoltat (notat cu S1 în nomenclatura stratigrafică) cu ultimul Interglaciuar. În cazul probelor colectate însă din statele L2, L3 și L4 s-a constatat că vârstele SAR-OSL obținute prin metode luminescente subestimează timpul trecut din momentul depunerii. În mod interesant însă, caracteristicile semnalului luminescent reprodus în laborator nu indică faptul că acest fenomen ar trebui să aibă loc. Aceste rezultate sunt în concordanță cu observațiile raportate pentru cuarțul extras din loess din China cu vârste de peste 70ka (Buylaert et al. 2007, 2008) și cu sugestia mai generală că protocolul SAR ar conduce la obținerea de doze echivalente care subestimează într-o oarecare măsură paleodozele pentru vârste mari (Murray et al., 2007). Rezultatele sunt însă în dezacord cu concluziile unui studiu efectuat pe cristale de cuarț extrase din un depozit din zona râului Seyda din nordul Rusiei. În acest studiu (Murray et al., 2008), doze naturale de aproximativ 350 Gy au fost obținute folosind regiunea liniară supra-exponențială a curbei de creștere a semnalului luminescent în funcție de doză, rezultând vârste OSL în bună concordanță cu informația geologică.

Studiul nostru a concluzionat că metodele SAR OSL pot fi aplicate pe cuarț fin extras din loessul de origine dobrogeană pentru a obține o cronologie de mare acuratețe până la vârste de 70ka, vârstă ce corespunde unei doze echivalente de 200Gy. Cel puțin în acest caz, se pare că folosirea regiunii liniare supra-exponențiale a curbei de creștere a semnalului luminescent nu conduce la obținerea de vârste de mare acuratețe, iar în cazul dozelor mari posibilele influențe a debitului folosit în laborator trebuie luate în vedere.

O parte considerabilă din măsurătorile efectuate pe cuarț fin au fost efectuate în Gent Luminescence Dating Laboratory; rezultatele au fost publicate într-o revistă ISI de mare vizibilitate internațională, studiul fiind deja citat de alte lucrări (Timar et al. 2010a).

5.2.2. Un studiu comparativ al proprietăților luminescente și al vârstelor prin prin luminescență stimulată optic obținute pe granule de cuarț de diferite dimensiuni extrase din loess

Introducere

Loessul este considerat un material ideal pentru datarea prin luminescență. Primele vârste au fost obținute aplicând metodele TL pe granule fine (4-11 μm) poliminerale (Wintle 1981, Van den haute et al. 1998, 2003), urmate de utilizarea luminescenței stimulate în infrarosu (LSIR) (Forman, 1991; Frechen and Dodonov, 1998; Frechen, 1999; Tsukamoto et al., 2001).

În ultimii ani, cuarțul a ocupat poziția de dozimetru preferat pentru datarea prin luminescență a depozitelor de loess. Diverse aplicații au fost facute folosind diferite mărimi ale granulelor minerale: cuarț fin (4-11 μm) (Watanuki et al. 2003; Wang et al. 2006; Timar et al., 2010), mediu (35-63 μm) (Roberts, 2006; Stevens et al. 2007; Lai et al., 2007) sau nisipos (63-90 μm) (Buylaert et al., 2007; 2008), presupunându-se ca pentru un depozit de natură eoliana oricare dintre aceste fracțiuni este potrivită pentru a obține momentul depunerii. Nu există însă nici un studiu care să demonstreze explicit acest lucru, prezentând o comparație între vârste obținute folosind diferite fracțiuni.

În cele ce urmează vom prezenta un asemenea studiu pentru secțiunea Mircea Vodă.

Caracterizarea semnalelor luminescente

Investigațiile au fost facute pe probele prezentate în secțiunea anterioară. Probele MV1 -MV9 au fost colectate din primul strat de loess (L1), în timp ce probele MV10, -12 și -13 provin din stratele L2, L3 și respectiv L4.

Semnalele CW-OSL sunt luminoase și dominate de o componentă rapidă. Acest lucru a fost confirmat și prin efectuarea de stimulare modulată liniar. Componenta rapidă a semnalului LSO se observă în curbele LM ca un peak, cu maximum după aproximativ 30 de secunde de stimulare. Semnalele LSO naturale și regenerate au aceeași formă cu semnalul dat de cuarțul de calibrare (**Figura 16**) care este considerat a fi dominat de o componentă rapidă și ideal pentru aplicarea protocolului regenerativ uni alicotă SAR. Poziția peakului nu este afectată nici de tratamentul

termic aplicat între 180°C și 360°C (**Figura 17**). Observația aceasta a fost făcută pe mai multe probe.

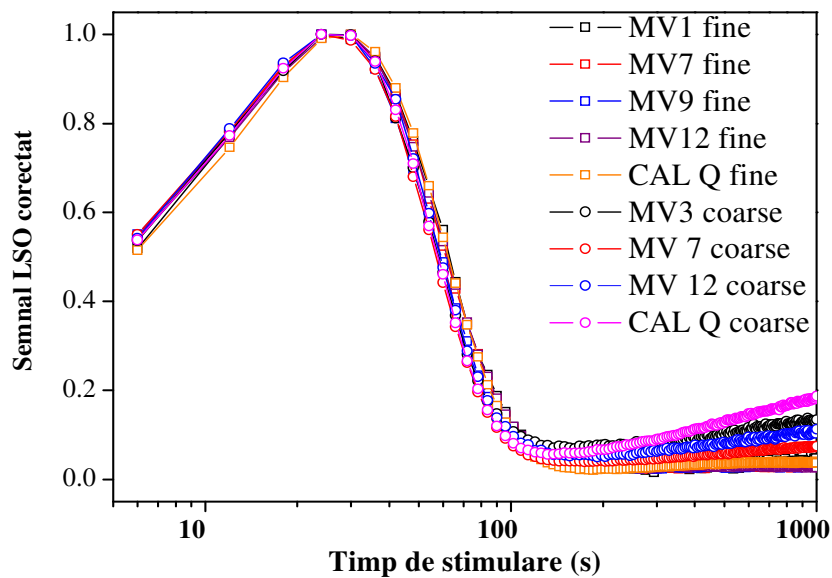


Figura 16: *Comparație între semnalele LM-OSL a cuarțului de calibrare, respectiv cuarțului fin (4-11 μ m) și nisipos (63-90 μ m) sedimentar provenit din secțiunea Mircea Vodă. Stimularea optică a fost făcută la temperatura de 125 °C puterea fiind crescută liniar de la 0 la 100% (aprox 40 mW) în 3000s. Un canal reprezintă 6 secunde de stimulare. Pentru o mai bună vizualizare valorile înregistrate în fiecare canal au fost normalizate la numărul maxim de impulsuri înregistrate.*

În secțiunea precedentă s-a arătat că protocolul SAR este aplicabil în cazul granulelor fine (4-11 μ m), schimbările de sensibilitate putând fi corectate cu succes, lucru indicat de rapoartele de reciclare –repetare- egale cu unitatea, recuperarea – răspunsul la doză nulă- neglijabilă (< 0.2% din semnalul natural) și posibilitatea de a măsura o doză dată în laborator cu mare acuratețe.

Granulele de cuarț nisipos au aceleași proprietăți. Răspunsul la o doză nulă este <0.3% din semnalul natural, iar schimbările de sensibilitate care au loc de-a lungul ciclurilor de măsurare pot fi corectate prin normalizarea la răspunsul la o doză test. Acest lucru este exemplificat și în figura **Figura 18** în care este prezentat răspunsul pentru cuarț fin și cuarț nisipos în urma repetării unei doze regenerative de 220 Gy. Se poate observa că răspunsul luminescent corectat rămâne practic același de-a lungul ciclurilor de măsurare.

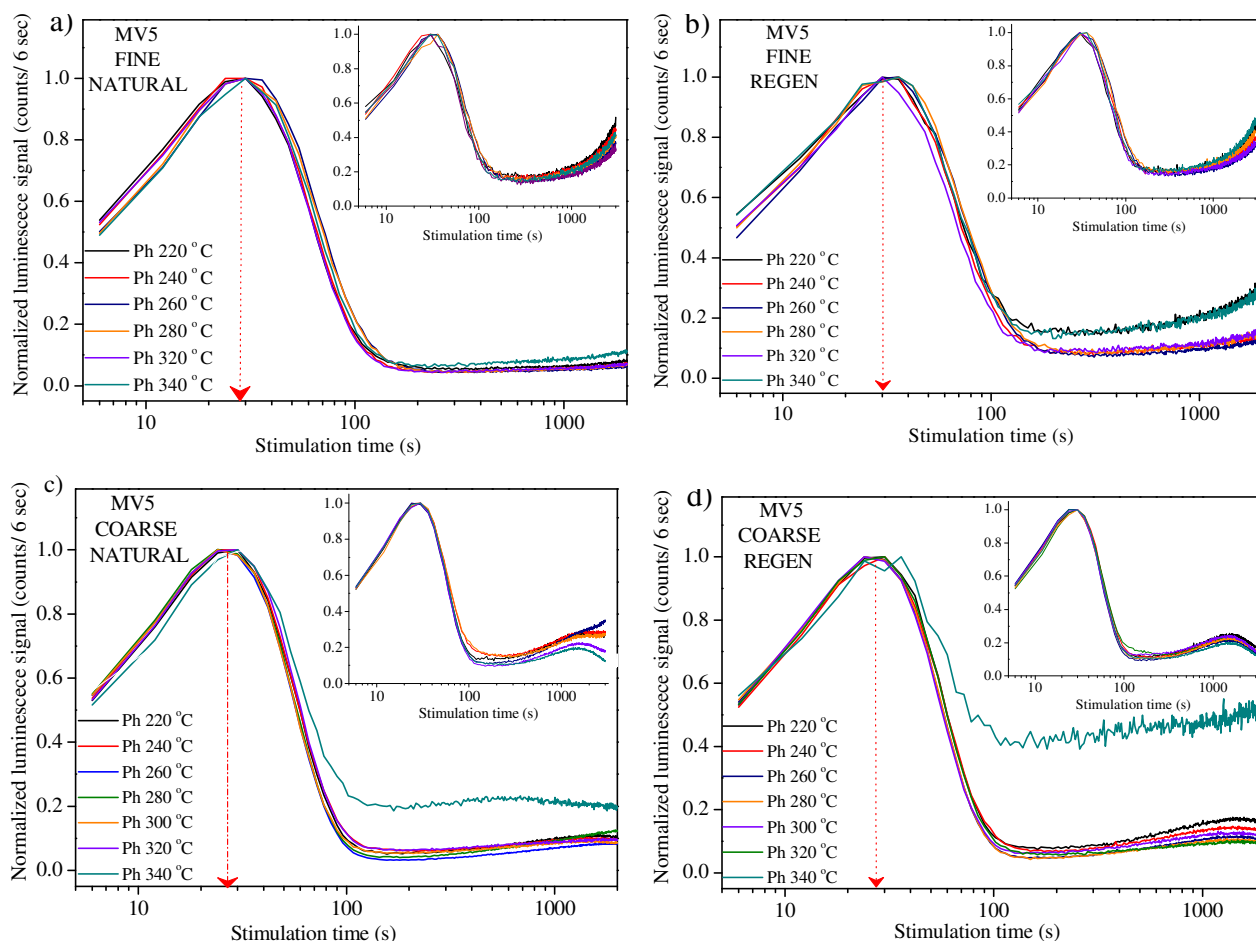


Figura 17: Semnalele LM-OSL naturale și regenerate ale probelor de cuarț sedimentar fin și nisipos Mircea Vodă înregistrate după aplicarea de tratamente termice diferite (2 secunde la temperaturi variind între 220 ° C și 360 ° C. În inset sunt prezentate răspunsurile la dozele test (înregistrate după o încălzire liniară până la 180 ° C.

LM-OSL natural signals of fine and coarse sedimentary quartz extracted from Mircea Vodă section following preheats of 2 seconds at temperature ranging from 220 ° C to 360 °. The inserts present the corresponding test dose signals (recorded after a cutheat to 180 ° C). Pentru o mai bună vizualizare valorile înregistrate în fiecare canal au fost normalizate la numărul maxim de impulsuri înregistrate.

Rigurozitatea aplicării protocolului de măsurare a fost făcută și prin aplicarea unui test de recuperare a dozei, la fel ca și în cazul granulelor fine. Rezultatele sunt prezentate în **Figura 19**, alături de valorile obținute în secvența anterioară.

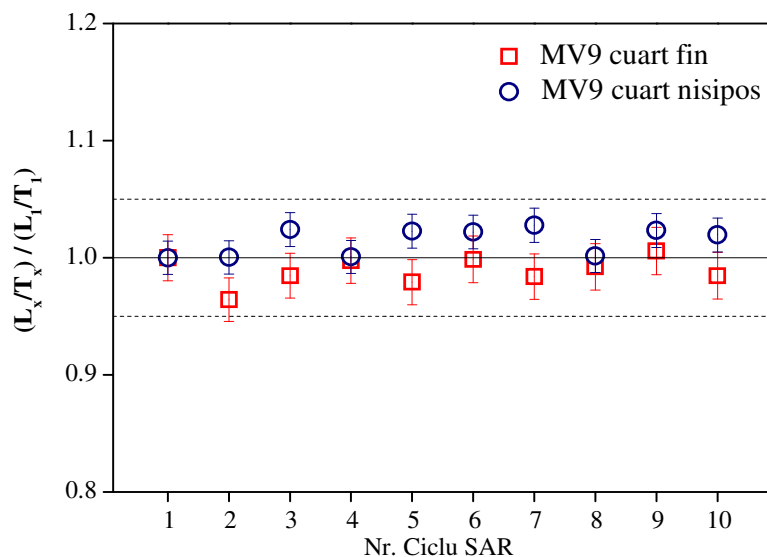


Figura 18: Răspunsul luminescent corectat pentru schimbări de sensibilitate prin normalizarea la răspunsul la o doză test obținut în urma repetării unei doze regenerative de 220 Gy. Valorile obținute au fost normalizate la valoarea măsurată în primul ciclu.

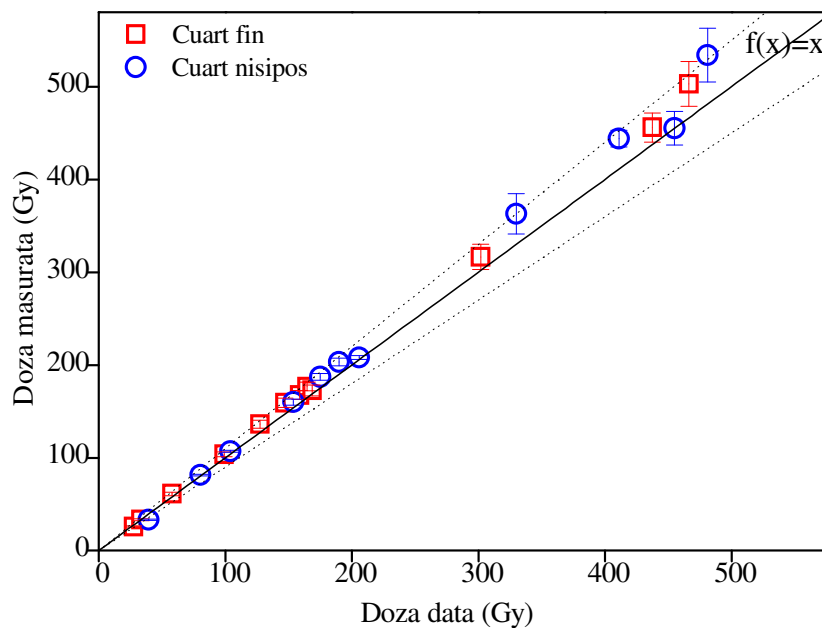


Figura 19: Comparație între rezultatele obținute pentru testul de recuperare al dozei în cazul granulelor fine și a celor nisipoase. Linia solidă reprezintă 1-1, liniile punctuate reprezentând deviații de 10% de la această relație.

Stabilitatea termică a semnalelor LSO

Deși marea majoritate a studiilor legate de componentele semnalului stimulat optic a cuarțului atribuie componentei medii a acestui semnal o stabilitate termică foarte mare, (*Singarayer and Bailey 2003, Jain 2003*), cu un timp de viață mediu de ordinal 10^5 MA la temperature camerei, recent câteva studii au arătat ca aceste valori nu se aplică pentru toate tipurile de cuarț natural. *Choi et al 2003, Li and Li 2006, Steffen et al 2009* au arătat că pentru anumite probe semnalul LSO poate folosit pentru datare poate fi contaminat de o componentă medie instabilă. Existența unei astfel de componente duce la o subestimare a vârstelor obținute în raport cu vârstele adevărate.

În cursul acestui studiu nu s-a recurs în mod uzual la deconvoluția semnalelor CW OSL, deoarece s-a concluzionat că rezultatele depind sever de alegerea valorilor fondului și a numărului de componente folosite. Așa cum este arătat de *Istratov and Vyvenko 1999*, deconvoluția unui semnal compus din mai multe dependențe exponențiale este o chestiune deosebit de complicată datorită faptului că reprezintă o problemă bolnavă matematic.

Cu toate acestea, nu avem îndoieli legate de stabilitatea termică a semnalelor utilizate pentru datare datorită:

- i) Formei identice a semnalelor CW atât cât și LM LSO pentru granulele fine, nisipoase și cuarț de calibrare.
- ii) Platoului care există în dependența de temperatură a dozelor echivalente obținute.
- iii) Pentru a putea compara rezultatele noastre cu comportamentele prezentate de *Choi et al 2003, Li and Li, 2006, Steffen et al 2009* s-a recurs la analiza dependenței dozei echivalente obținute de intervalul de integrare a semnalului util (ploturi De in funcție de timp). Spre deosebire de studiile menționate mai sus în cazul probelor noastre nu a fost sesizată o dependență descrescătoare, ci doar o împrăștiere datorată considerentelor statistice.
- iv) A fost efectuat un experiment de încălzire în pulsuri (pulse anneal). Rezultatele sunt prezentate în **Figura 20**. Dependența de temperatura de încălzire este aceeași în cazul granulelor fine și a celor nisipoase și coincide cu cea prezentată de cuarțul de calibrare. În toate cazurile pierderea de semnal este nesemnificativă în cazul încălzirii la 250°C pentru 10s. Derivata

prezintă un minim în intervalul 300-330°C, lucru care poate fi datorat golirii capcanei de electroni corespunzătoare peakului TL de la 325 °C (Wintle and Murray, 1998).

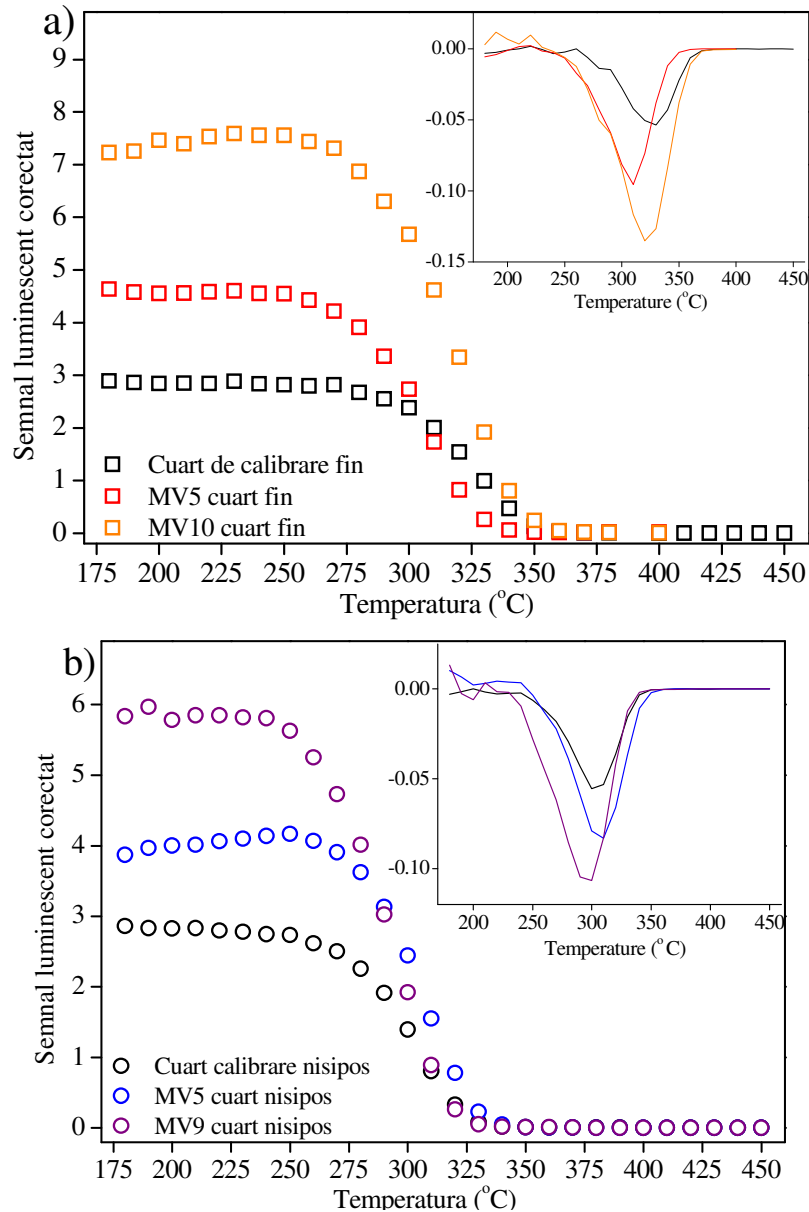


Figure 20: Curbe “pulse anneal” pentru semnalul LSO în cazul granulelor de cuarț fin (a), respective nisipos (b). Alicotele au fost analizate în felul următor: semnalul natural a fost șters prin expunere la lumină, după care probele au fost iradiate cu o doză aproximativ egală cu doza naturală, iar semnalul LSO corespunzător a fost măsurat într-un protocol SAR în care s-au aplicat tratamente termice crescătoare. Toate valorile au fost normalizate la răspunsul la o doză test cu valoarea de 17Gy. Tratamentul termic premergător citirii răspunsului la doza test a constat într-o încălzire cu viteză controlată până la temperatura de 180°C.

Caracteristicile curbelor doză răspuns

Atât în cazul granulelor fine cât și a celor nisipoase s-a studiat dependența creșterii semnalului luminescent în funcție de doza de iradiere până la doze de ~ 700Gy. Deși nu există o dependență cu vârsta probelor s-a observat că caracteristicile de creștere a celor două fracțiuni (fină și grosieră diferă semnificativ). În cazul unei dependențe monomoleculare ($I=I_{\max}^* (1-\exp(-(D+D_i^*)/D_0^*))$), caracteristicile de saturație ale granulelor fine ($D_0 \sim 250$ Gy) sunt mult mai mari decât a celor nisipoase ($D_0 \sim 155$ Gy). Deși curbele doză răspuns ridicate până la această doză pot fi fitate satisfăcător cu această funcție, adăugarea unui termen liniar ($I=I_{\max}^* (1-\exp(-(D+D_i^*)/D_0^*)) + D \cdot a$) îmbunătățește parametrii de fitare. În acest caz valorile parametrului D_0^* mediu obținut în cazul granulelor fine este 120 Gy în cazul granulelor fine, respectiv 80 Gy în cazul granulelor grosiere.

Determinarea dozelor echivalente

Dozele echivalente au fost determinate aplicând protocolul SAR cu o preîncălzire de 10 s la 220°C, respectiv 180°C pentru doza test. Nu au fost respinse discuri pe baza testelor de reciclare, repetare și IR.

Vârste LSO

Tabelul 3 prezintă informațiile relevante în calcularea vârstelor luminescente. Erorile vârstelor au fost determinate ca cuadratură din erorile sistematice și statistice aferente pe baza sistemului propus de *Aitken and Alldred (1972) and Aitken (1976)*. Se poate observa că contribuția majoră este datorată erorilor sistematice.

Adâncime probă (m)	Cod	Dimensiunea granulelor (μm)	Doza echivalentă (Gy)	Raport reciclare	Recup. (%)	Test IR	Debitul dozei total (Gy/ka)	Doza cosmică (Gy/ka)	Vârsta (ka)	Err statistic (%)	Err sistem (%)
0.85	MV 1	4-11	24.9 ± 0.4 $n=11$	0.95 ± 0.01	0.06 ± 0.02	0.94 ± 0.01	2.84 ± 0.05	0.19 ± 0.03	8.7 ± 1.3	2.2	14.2
		63-90	37 ± 2 $n=11$	1.01 ± 0.01	0.27 ± 0.07	0.98 ± 0.01	2.40 ± 0.04		16 ± 2	7.1	12.4
105	MV 2	4-11	32.3 ± 0.9 $n=11$	0.94 ± 0.01	0.05 ± 0.02	0.95 ± 0.01	2.86 ± 0.05	0.19 ± 0.03	11.3 ± 1.6	3.3	14.2
		63-90	46 ± 4 $n=8$	1.03 ± 0.01	0.06 ± 0.02	0.99 ± 0.01	2.42 ± 0.04		20 ± 3	8.5	12.5
130	MV 3	4-11	64 ± 2 $n=11$	0.96 ± 0.01	0.05 ± 0.02	0.96 ± 0.01	3.07 ± 0.05	0.19 ± 0.03	21 ± 3	2.7	14.3
		63-90	87 ± 4 $n=12$	1.00 ± 0.01	0.15 ± 0.03	1.00 ± 0.01	2.58 ± 0.04		32 ± 4	4.4	12.5
185	MV 4	4-11	114 ± 2 $n=11$	0.99 ± 0.01	0.04 ± 0.01	1.00 ± 0.01	2.78 ± 0.04	0.17 ± 0.03	41 ± 6	2.0	14.4
		63-90	118 ± 3 $n=10$	0.99 ± 0.01	0.09 ± 0.02	1.01 ± 0.01	2.33 ± 0.03		51 ± 7	2.8	12.6
225	MV 5	4-11	156 ± 3 $n=11$	1.00 ± 0.01	0.07 ± 0.03	0.98 ± 0.01	3.00 ± 0.06	0.17 ± 0.03	52 ± 8	2.6	14.5
		63-90	157 ± 5 $n=11$	1.02 ± 0.01	0.08 ± 0.01	1.01 ± 0.01	2.51 ± 0.05		63 ± 8	3.5	12.6
280	MV 6	4-11	190 ± 3 $n=11$	0.98 ± 0.01	0.05 ± 0.02	0.99 ± 0.01	3.09 ± 0.04	0.16 ± 0.03	61 ± 9	2.0	14.6
		63-90	210 ± 4 $n=40$	1.01 ± 0.01	0.08 ± 0.01	1.01 ± 0.01	2.58 ± 0.03		82 ± 11	2.5	12.6
375	MV 7	4-11	197 ± 0.4 $n=11$	1.01 ± 0.01	0.05 ± 0.01	1.01 ± 0.01	3.15 ± 0.05	0.15 ± 0.02	62 ± 9	2.1	14.7
		63-90	217 ± 3 $n=61$	1.00 ± 0.01	0.09 ± 0.01	1.00 ± 0.01	2.62 ± 0.04		83 ± 11	2.1	12.7
400	MV 8	4-11	209 ± 3 $n=11$	1.00 ± 0.01	0.06 ± 0.01	0.97 ± 0.01	3.30 ± 0.05	0.14 ± 0.02	63 ± 9	2.0	14.6
		63-90	247 ± 8 $n=20$	1.01 ± 0.01	0.07 ± 0.01	1.01 ± 0.01	2.76 ± 0.04		89 ± 12	3.4	12.8
500	MV 9	4-11	221 ± 5 $n=11$	0.97 ± 0.01	0.06 ± 0.01	0.91 ± 0.01	3.27 ± 0.03	0.13 ± 0.02	68 ± 10	2.4	14.5
		63-90	237 ± 6 $n=30$	0.99 ± 0.01	0.14 ± 0.01	1.00 ± 0.01	2.74 ± 0.03		86 ± 11	2.5	12.8
800	MV 10	4-11	310 ± 9 $n=11$	0.98 ± 0.02	0.05 ± 0.01	1.00 ± 0.01	2.91 ± 0.04	0.10 ± 0.02	106 ± 16	3.1	14.7
		63-90	319 ± 15 $n=12$	0.98 ± 0.01	0.12 ± 0.02	0.98 ± 0.01	2.44 ± 0.03		132 ± 18	4.9	12.9
1500	MV 12	4-11	430 ± 13 $n=6$	1.00 ± 0.01	0.07 ± 0.01	1.01 ± 0.02	2.91 ± 0.05	0.06 ± 0.01	147 ± 23	3.3	14.8
		63-90	438 ± 6 $n=5$	1.00 ± 0.01	0.17 ± 0.05	1.02 ± 0.01	2.43 ± 0.04		200 ± 27	2.1	13.6
1800	MV 13	4-11	467 ± 11 $n=6$	1.01 ± 0.02	0.06 ± 0.02	1.01 ± 0.01	2.91 ± 0.03	0.05 ± 0.01	159 ± 24	2.6	14.9
		63-90	554 ± 11 $n=4$	0.99 ± 0.01	0.11 ± 0.01	1.00 ± 0.01	2.43 ± 0.03		230 ± 31	2.3	13.2

Tabel 3: Conține informațiile relevante în calcularea vârstelor LSO. n reprezintă numărul de alicote analizate. În calcularea dozei anuale totale s-a considerat o contribuție a radioactivității interne de 0.010 ± 0.002 Gy/ka (Vandenberghe, 2008). Factorul de atenuare a radiațiilor beta în granulele grosiere a fost considerat 0.94 ± 0.045 . Factorul a, caracteristic eficienței de inducere a luminescenței de către radiațiile alfa a fost considerat 0.04 ± 0.02 . O concentrație medie de apă de $20 \pm 5\%$ a fost considerată de-a lungul timpului geologic. Erorile date reprezintă 1 sigma.

Discuții

Figura 21 prezintă o comparație între vârstele obținute pe cele două fracțiuni. Având în vedere că modelului paleomagnetic adâncime vârstă nu i se pot atribui limite de eroare, se poate concluziona că pentru stratul L1, vârstele obținute pe ambele tipuri de granule sunt în concordanță cu acest model. În inset sunt prezentate rezultatele obținute pentru acest strat în mai mare detaliu. Vârstele optice indică existența unor rate de acumulare diferite a materialului eolian de-a lungul ultimului ciclu interglaciar-glaciar.

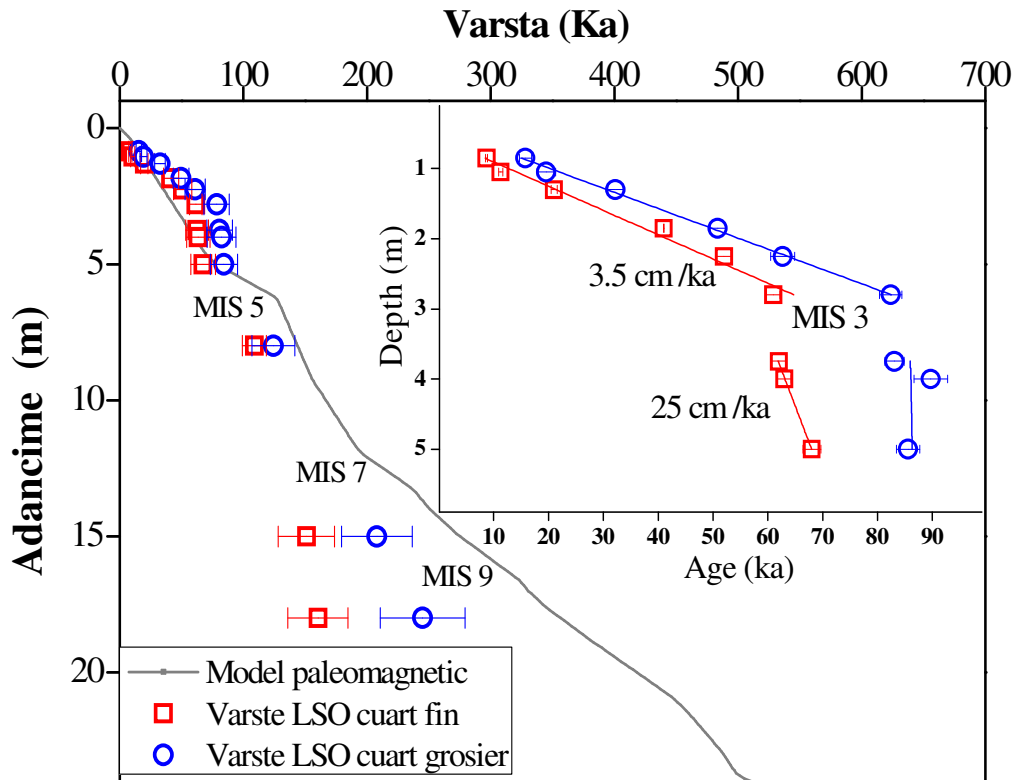


Figure 21: Comparație între vârstele OSL obținute pe cele două fracțiuni și modelul timp adâncime bazat pe corelarea variației valorilor susceptibilității magnetice cu $\delta O18$ (C. Panaiotu)

Deși ratele de sedimentare obținute în cazul celor două fracțiuni sunt asemănătoare, vârstele obținute sunt mult diferite, obținându-se astfel rezultate contradictorii cu privire la momentul schimbării ratei de acumulare. Vârstele obținute folosind granulele fine arată că schimbarea în rata de sedimentare ar fi avut loc acum ~60 ka, perioadă ce coresunde la MIS 3. Aceste vârste plasează temporal paleosolul slab dezvoltat intercalate în L1 în MIS 3, în concordanță cu modelul

paleomagnetic. Vârstele obținute pe granulele fine subestimează vârstele așteptate pentru probele colectate de sub primul paleosol bine dezvoltat (S1), dar confirmă formarea acestuia în cursul MIS5.

Vârstele obținute folosind cuarțul nisipos pe de altă parte, sunt între 20 și 70% mai mari decât cele obținute pe cuarț fin și sugerează că loessul s-a depus în mod continuu în cursul ultimului glaciatic (MIS 4-2) alocând paleosolul slab dezvoltat complexului S1- MIS5.

Deoarece cuarțul din ambele fracțiuni se comportă procedural satisfăcător, testele de recuperare, repetare (reciclare), recuperare a dozei etc., fiind satisfăcute, se consideră că semnalele LSO pot fi folosite pentru determinarea dozei echivalente. De asemenea toate semnalele sunt dominate de o componentă rapidă care este stabilă termic în timp geologic. Prin urmare, diferențele observate nu sunt înțelese.

În studiile de LSO o cauză frecventă de supraestimare a vârstelor o constituie resetarea incompletă a semnalului (partial bleaching). Nu considerăm aceasta o cauză probabilă în cazul probelor noastre datorită naturii eoliene a sedimentelor investigate. Doze reziduale de cel puțin câteva zeci de Gy ar fi necesare pentru a justifica diferența. Asemenea valori nu sunt întâlnite nici în cazul sedimentelor de natură fluvială (*Jain, 2004*). O altă sursă de eroare poate fi valoarea adoptată pentru eficiența de inducere a luminescenței de către particulele alfa, în studiul nostru valoarea de 0.04 ± 0.02 Gy fiind adoptată. Aceasta nu este considerată a fi cauza discrepanței deoarece nici considerarea unei valori nule nu ar face ca diferența să fie compensată. Mai mult decât atât, a fost arătat de către *Mauz et al., 2006* că în cazul probelor vârstnice valori mai mari trebuie considerate, iar acest lucru ar duce la accentuarea diferenței.

Concluzii

Pentru secțiunea Mircea Vodă, vârstele LSO obținute pe granule fine diferă semnificativ de cele obținute folosind cuarț nisipos (63-90 μm). Caracteristicile semnalului OSL pentru ambele categorii de granule au fost analizate în detaliu, trecând toate testele de rigoare intrinsecă specifice metodei și indicând astfel faptul că datarea secțiunii utilizând oricare dintre cele două fracțiuni și protocolul SAR ar conduce la rezultate de bună acuratețe. Rezultatele obținute conduc însă la o controversă logică cu relevanță pentru studiile viitoare. Deși studiul nostru reprezintă un caz individual se pare că observații similare au mai fost făcute foarte recent

(Vandenberghet al., 2009). Studiul nostru arată faptul ca datarea loessului ramâne o temă de cercetare dificilă iar rezultatele obținute sunt de relevanță atât pentru specialiști în Științele Pământului cât și pentru comunitatea științifică de datare prin luminescență.

Cercetările prezentate au fost prezentate la diverse conferințe internaționale de specialitate. (Timar et al. 2009b, 2010b) și trimise spre publicare (Timar et al. 2010a)

5.2.3. Investigații suplimentare asupra proprietăților luminescente ale granulelor nisipoase (63-90 μm) și fine (4-11 μm) de cuarț

Investigațiile suplimentare au inclus:

Analiza distribuțiilor dozelor echivalente obținute pe granule fine și nisipoase

- în cazul granulelor grosiere observându-se o împrăștiere semnificativă care nu poate fi justificată pe baza procedurilor experimentale aplicate. Ipoteza resetării incomplete a semnalului nu poate fi respinsă, dar rămâne improbabilă.

Testarea posibilității existenței unor centrii de recombinare instabili termici în cazul granulelor nisipoase (63-90 μm)

- a fost testat efectul iradierii la temperatură înaltă și a iradierii în pulsuri cu tratamente termice intercalate (Bailey 2004, 2005; Wallinga, 2002).

Investigații suplimentare asupra curbelor de creștere doză răspuns

- a fost investigat comportamentul semnalelor LSO în cazul iradierii cu doze de până la 10000Gy.

5.2.4. Testarea potentialului utilizării metodei de datare prin luminescență stimulată optic pentru obținerea de vârtse absolute asupra formării paleosolurilor din zona de silvostepă din Transilvania

Perioada aridă și rece din timpul Holocenului, cunoscută drept Subboreală, a favorizat extinderea păturilor și a silvostepelor în Eurasia vestică. În timpul Holocenului târziu a avut loc o tranziție de la acest climat la unul mai moderat (Subatlantic).

În zona silvostepii expoziționale din Bazinul Transilvaniei există numeroase insule mai mici sau mai mari de cernoziomuri (numite „soluri negre clinohidromorfe” de către pedologii români) acoperite de luvisoluri. Acestea dispar gradual o dată cu creșterea precipitațiilor până la stadiul de soluri actuale.

Prin datarea cu ^{14}C a solurilor negre de silvostepă din aceste zone s-au obținut vârste cuprinse între 14.000 și 20.000 ka BP dovedind că în astfel de zone aride peisajul de silvostepă și solurile asociate (nu neapărat cele strict legate de vegetație) sunt structuri permanente încă din timpul Pleistocenului Superior (*Pendea et al., 2002; Pendea, 2005*).

Din păcate nici o structură pedologică de acest tip nu a fost datată până acum în Transilvania deși acestea sunt intuitive plasate în strânsă legătură cu schimbările climatice asociate tranziției climatice Subboreal-Subatlantic (*Badarau, 2005*).

S-au efectuat analize luminescente pe o probă de luvisol albic – COD DE LABORATOR: 3A (LU) și pe o probă de feoziom clinostagnic - COD DE LABORATOR: 4B (PHZ). Măsurătorile efectuate prin modulare liniară a luminescenței stimulate optic (LM-OSL) (*Bulur et al 2001*) au indicat ca semnalul luminescent este dominat de o componentă rapidă (**Figura 24**), fiind astfel potrivită analiza acestuia cu protocolul alicotă unica-doză regenerată (*Murray and Wintle 2003, Wintle and Murray 2006*).

S-au determinat doze echivalente, pentru ambele probe repetându-se 30 de măsurători.

S-a obținut o valoare medie de 28,3 Gy pentru proba 4B, feoziom clinostagnic, în timp ce pentru proba 3A, luvisol albic, am obținut valoarea medie de 12,6 Gy. Datele obținute sunt

caracterizate de împrăștiere. Acest fapt nu reprezintă un artefact experimental sau un efect al caracteristicilor intrinseci ale semnalului OSL întrucât s-a demonstrat robustețea protocolului de măsurare. Din graficele radiale se poate observa că precizia fiecărei doze echivalente obținute este mai mică decât 3%. Împrăștierea observată este probabil un efect al amestecului granulelor de cuarț în stratul de sol determinată de pedo sau bioturbare. Împrăștierea mai poate fi cauzată și de rezoluția joasă de recoltare a probelor de sol (7 cm în acest caz).

Pentru a obține cea mai bună estimare a valorii paleodozei măsurătorile trebuie repetate utilizând un număr mai mic de granule și aplicând analiza statistică a datelor. **Tabelul 4** prezintă vârstele minime și maxime pe baza unui număr restrâns de alicote.

PROBA	De medie (Gy)	De minimă (Gy)	De maximă (Gy)	VÂRSTA MEDIE (ka)	VÂRSTA MINIMĂ (ka)	VÂRSTA MAXIMĂ (ka)
4B (PHZ)	28.8 ± 0.8 (n=30)	24.0 ± 0.8 (n=6)	35.1 ± 0.8 (n=7)	10.9 ± 1.4	9.2 ± 1.2	13.4 ± 1.8
3A (LUV)	12.6 ± 0.3 (n=30)	11.8 ± 0.2 (n=20)	14.4 ± 0.3 (n=10)	4.3 ± 0.6	4.0 ± 0.5	4.9 ± 0.5

Tabelul 4: Doza echivalentă medie, respective maximă și minimă calculată pe baza alicotelor selectate în număr restrâns notat cu n. Incertitudinile date reprezintă doar erorile aleatorii. În calculul vârstelor s-a presupus un conținut de umiditate de $20 \pm 5\%$ și un factor de atenuare a radiației beta de 0.94 ± 0.45 . Erori sistematice de 5% reprezintă calibrarea spectrometrului gama, respectiv 3% pentru calibrarea sursei radioactive. Ultimele coloane prezintă vârstele și erorile totale calculate utilizând sistemul lui Aitken (1976).

Varstele obținute pot fi interpretate ca dovadă a faptului ca pătura de sol negru a fost o caracteristică constantă în Subboreal în cea mai mare parte a Transilvaniei și înlocuirea lui cu luvisoluri reflectă o tranziție climatică de la un climat uscat (Subboreal), care a favorizat extinderea pădurilor boreale și a câmpurilor de iarba de tip stepa, spre un climat moderat mai umed (Subatlantic), care a favorizat extinderea pădurilor de tip nemoral și subtropical din perioada Holocenului. Astfel aceste structuri paleo-pedologice din Transilvania și probabil din alte zone ale României, care au în componență un orizont fosil feoziom acoperit de un orizont albic al unui Luvisol prezent, poate fi considerat ca un marcator climatic care indică schimbările

climatice care sunt asociate cu tranziția Subboreal - Subatlantic care a început aproximativ 4 ka BP.

Aceste rezultate stau la bazele unei publicații ISI (Timar et al., 2010d).

Concluzii

Fenomenele de luminescență includ o largă varietate de fenomene. În ceea ce privește dozimetria retrospectivă de interes sunt procesele de luminescență stimulată optic (LSO) și de termoluminescență. LSO și TL sunt fenomene de emisie optică de către un izolator sau semiconductor atunci când acestea sunt expuse la lumină și, respectiv, încălzite; astfel LSO și TL sunt procese stimulate optic sau termic. Semnalul luminescent emis este totodată dependent de istoria iradierii probei.

Cu toate că procesele implicate în fenomenul de luminescență a cristalelor naturale cu bandă interzisă largă, precum cuarțul sau feldspatii, nu sunt pe deplin înțelese, datorită complexității acestora, acest fenomen poate fi exploatat pentru datare.

În ultimii zece ani tehnica de datare luminescentă a suferit progrese tehnologice și metodologice extrem de importante. În momentul de față aceasta fiind caracterizată printr-un grad de ridicat de control al calității, rar întâlnit în cadrul altor tehnici de datare. Cu toate acestea, până în momentul de față tehnici moderne de datare luminescentă nu au fost aplicate în laboratoarele din România. În cadrul acestei teze s-au prezentat proceduri de control al calității în ceea ce privește prepararea probelor precum și a estimării dozei și paleodozei. De asemenea, tehnici moderne de datare luminescentă au fost utilizate pentru aplicații cheie. Activitatea experimentală a fost desfășurată în cea mai mare măsură în Laboratorul de Datare Luminescentă, Radioactivitate a Mediului și Datăre Nucleară, din cadrul Universității “Babeș-Bolyai” din Cluj-Napoca.

Pentru determinarea dozei echivalente, în cadrul laboratorului nostru au fost implementate tehnici convenționale de extragere și preparare a granulelor fine de cuarț și poliminerale. Puritya semnalelor LSO emise de granulele de cuarț a fost testată și confirmată prin absența unui semnal semnificativ în IR după iradiere, prin înregistrarea curbelor de strălucire TL și prin

realizarea de măsurători LSO în pulsuri. Debitul dozei livrate de sursa $^{90}\text{Sr-Y}$ beta montata pe dispozitivul Risø TL/OSL DA-20 pentru substrate și pentru granule de dimensiuni diferite a fost determinat cu ajutorul etalonului de cuarț furnizat de către Institut Risø NL din Danemarca. Procedurile de măsurare a dozei echivalente au fost validate printr-un exercițiu de intercomparare cu Laboratorul de Datare Luminescentă din Ghent, Belgia.

Doza anuală a fost determinată folosind concentrația de radionuclizi determinată în cadrul laboratorului din Cluj-Napoca prin spectrometrie gama de înaltă rezoluție folosind un detector ORTEC de germaniu hiperpur (volum activ de 181 cm^3 , rezoluție de 0.878 keV FWHM la 5.9 keV și 1.92 keV FWHM și eficiență relativă de 34.2% la 1332.5 keV). Sistemul a fost calibrat în energie folosind o sursă de europiu iar eficiența a fost calibrată cu ajutorul unei rutine Monte Carlo validată folosind un standard IAEA. De asemenea a fost implementată o metodă de determinare a concentrației de ^{226}Ra direct folosind linia interferată la 186.2 keV . Folosind rutina precedentă radiunuclizii ^{234}Th , ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{214}Bi , ^{210}Pb , ^{228}Ac , ^{208}Tl și ^{40}K se măsoară în mod curent în probe de mediu. Validarea procedurii a fost efectuată printr-un exercițiu de intercomparare cu alte două metode complementare: spectrometrie alfa (Laboratorul de Radiochimie din Veszprem, Ungaria) și activare cu neutroni (Institutul de Cercetări Nucleare din Pitești, România); precum și cu rezultatele obținute printr-o metodă similară (spectrometrie gama de înaltă rezoluție calibrată relativ în eficiență) de către Laboratorul de Datare Luminescentă din Ghent.

Datarea luminescentă a fost aplicată pe patru fragmente ceramice excavate la Lumea Nouă (Alba Iulia, România). Scopul acestui studiu l-a constituit îmbunătățirea cadrului cronologic al sitului Lumea Nouă folosind datarea luminescentă. În acest sens s-a aplicat protocolul SAR pentru semnalele de luminescență stimulată în albastru (LSO) și în infraroșu (LSIR) pentru cuarțul de granulație $90\text{-}125\text{ }\mu\text{m}$ și, respectiv, pentru granule poliminerale fine ($4\text{-}11\text{ }\mu\text{m}$). Pentru comparare s-a aplicat protocolul MAAD pentru semnalele termoluminescente emise de granulele fine poliminerale. Fading-ul anomal prezent în emisia LSIR 410 nm precum și în emisia LSO a indicat ca vârstele obținute subestimează vârstele reale. Datele LSIR-SAR au fost corectate de fading folosind procedeul dezvoltat de Huntley și Lamothe. Pentru semnalul TL nu s-au realizat proceduri de corecție deoarece semnale provenite de la mixturi de granule fine nu se pot corecta

folosind fading-ul înregistrat pentru semnalele provenite numai de la părți ale mixturii. S-a concluzionat ca relativ la TL metodele LSIR și LSO sunt mai adecvate pentru datarea acestor ceramici. Tehnica SAR-LSO s-a dovedit a fi tehnica optima deoarece a generat cele mai precise estimări ale vârstelor. Vârstele obținute prin SAR-LSO situează tranziția între culturile Foeni și Petrești în situl Lumea Nouă la 6.2 ± 0.5 ka, extrem de plauzibil ținând cont de informațiile arheologice. Investigații ulterioare sunt necesare pentru determinarea unui cadru cronologic complet al sitului Lumea Nouă. Cu toate acestea, studiul demonstrează posibilitatea folosirii tehnicilor moderne de datare luminescentă pentru pentru îndeplinirea acestu deziderat.

Secvențele de loess și paleosolurile intercalate din Dobrogea reprezintă în detaliu schimbările climatice din ultimii 650 ka, fiind unele dintre cele mai complete secvențe de acest tip din Europa. În cadrul acestei teze se raportează primul sudiu de datare prin luminescență de înaltă rezoluție stimulată optic aplicată secvenței de loess de lângă localitatea Mircea Vodă din Dobrogea. Studiul este focalizat pe secvența de loess originată din ultimele patru perioade glaciare și folosește granule fine (4-11 μ m) ca dozimetru.

În urma studiului a fost obținut un set de vârste, acestea fiind comparate cu un model timp-adâncime bazat pe măsurători de susceptibilitate magnetică, elaborat de dr. Cristian Panaiotu și dr. Cristina Panaiotu de la Universitatea din București. Folosind vârstele determinate prin LSO s-a determinat rata de acumulare a loessului în ultima eră glaciară. S-a demonstrat că rata de acumulare nu ramane constantă, aceasta scăzând semnificativ în ultimii ~ 50ka. Studiul a demonstrat de asemenea limitările metodelor relative (ex. bazate pe cuantificarea susceptibilității magnetice) în determinarea cronologiei acestor depozite.

Vârstele obținute prin SAR-LSO pentru cele trei probe colectate sub solul S1 au fost interpretate ca prezentând subestimări ale vârstelor corecte, cu un grad de subestimare crescător cu adâncimea. În mod surprinzător caracteristica luminescentă nu a indicat un asemenea comportament: semnalul luminescent crește continuu spre doze înalte, procedura de măsurare rămâne precisă și vârstele cresc cu adâncimea.

Concluzia noastră a fost că datarea luminescentă stimulată optic poate fi folosită pentru a stabili o cronologie precisă pentru loessul din România până la vârste de ~70ka. Această vârstă corespunde unei doze echivalente de ~200Gy. Până la această valoare o funcție exponențială și o funcție exponențială plus un termen liniar fitează la fel de bine datele experimentale. Pentru probele noastre rezultatele obținute din regiunea liniară coresunzătoare dozelor ridicate nu par a fi precise. Procedura subestimează vârsta precisă în momentul aplicării acesteia loessului depus înaintea ultimului ciclu climatic; studii adiționale sunt necesare pentru determinarea cauzei subestimării vârstei. Rezultatele noastre ilustrează că o procedură de măsurare aparent fiabilă în urma testelor de laborator nu garantează în mod neapărat o determinare precisă a vârstei.

În ultimii ani cuarțul a devenit dozimetrul preferat în datarea stimulată optic sau termic iar tehnicile moderne de datare sunt aplicate granulelor de cuarț de dimensiuni diferite extrase din loess. Cu toate că pare logic să presupui că pentru un material precum loessul granulele din diferite fracțiuni se pretează pentru datare optică, acest fapt nu a fost explicit demonstrat încă. După știința noastră, nu există studii în literatură care să compare caracteristicile luminescente și vârsta în funcție de dimensiunea granulelor de cuarț extrase din loess. Ca o consecință am efectuat un astfel de studiu.

Rezultatele noastre indică complexitate datării luminescente a loessului. Pentru probele colectate din secvențele de loess de lângă Mircea Vodă s-a observat că vârstele obținute pentru granulele cu dimensiuni de 63-90 μm sunt cu 20, până la 70% mai mari decât cele obținute pe fracțiunile fine 4-11 μm. Vârstele obținute pentru câteva probe de vârste diferite folosind fracțiuni de 35-50 μm sunt în concordanță cu cele obținute pentru fracțiunile de 63-90 μm. Această aparentă controversă este de importanță atât pentru studii trecute cât și viitoare.

S-a observat că dozele echivalente obținute pentru cuarțul de 63-90 μm sunt întotdeauna mai mari decât dozele obținute pentru cuarțul de 4-11 μm, cu diferența o diferență relativă mai importantă pentru probele mai tinere. Deoarece nici chiar considerarea unei valori nule pentru eficiența de inducere a luminescenței de către particulele alfa nu duce la eliminarea discrepantei dintre vârstele obținute, în determinarea cauzelor acestei aparente controversă ne-am axat studiul pe emisia luminescentă.

Bazându-ne pe analize de luminescență stimulată optic modulată liniar am concluzionat că toate probele analizate au semnalul dominat de componenta rapidă, în consecință pretându-se pentru determinarea dozei echivalente folosind protocolul SAR. A fost de asemenea demonstrat că semnalul folosit pentru datarea optică este stabil din punct de vedere termic. Semnalul LSO al tuturor fracțiilor s-au comportat bine în protocolul SAR, indicând că protocolul SAR ar trebui să fie indicat pentru determinarea dozei echivalente. Astfel nu ar trebui să fie nici o îndoială în ceea ce privește datele generate de analiza unei monofracțiuni de cuarț (cel puțin din perspectiva metodologiei de laborator asociată tehnicii LSO).

Ambele fracțiuni grosiere (35-50 μm și 63-90 μm) prezintă o dispersie relativ ridicată a dozei echivalente. Resetarea incompletă a semnalului poate fi considerat o cauză posibilă deoarece distribuțiile granulelor în loessul investigat sunt bi-modale sau chiar tri-modale, indicând surse multiple de material clastic, granulele grosiere putând avea o sursă apropiată.

Cu toate acestea resetarea incompletă nu poate explica discrepanța în ceea ce privește vârstele observate pentru probele mai vechi în cazul cărora doze reziduale de cel puțin zeci de Gy ar fi necesare. În consecință trebuie să mai existe și un al doilea mecanism, cel puțin pentru probele mai vechi. Construind curbe de răspuns la doză până la doze înalte (până la 700Gy) un model similar de creștere s-a observat pentru probe de vârste diferite în cazul ambelor fracțiuni. De asemenea s-a observat că aceste curbe sunt fitate cel mai bine printr-o funcție exponențială plus un termen liniar. Caracteristica curbelor de creștere a celor două fracțiuni investigate s-a observat a fi foarte diferită, fracțiunile de 63-90 μm saturând la doze mult mai mici. Doza caracteristică medie (D_0^* ; obținută folosind funcție exponențială plus un termen liniar) a fost de 120 Gy pentru fracțiunea de 4-11 μm și 80 Gy pentru fracțiunea de 63-90 μm .

Trebuie precizat că existența unui termen liniar în curba de răspuns la doză construită pentru doze mari a fost identificată și în alte studii. Cu toate acestea mecanismul fizic al acestui comportament nu a fost clarificat iar acuratețea folosirii acestei părți a curbei nu a fost verificată. Pentru probele investigate în studiul nostru posibilitatea existenței unui efect al dozei și/sau al debitului dozei nu poate fi exclus, iar un mecanism speculativ a fost propus presupunând că

cerința fundamentală a datării luminescente ca iradierea naturală (doze cu debite mici) și cea artificială (doze cu debite foarte mari) sunt echivalente în termenii de producere a luminescenței s-ar putea să nu fie îndeplinită pentru doze mari, cel puțin în cazul anumitor probe.

Rezultatele obținute arată ca datarea prin luminescență nu este o procedură trivială iar rezultatele obținute sunt relevanță atât pentru specialiști în Științele Pământului cât și pentru comunitatea științifică de datare prin luminescență.

Bibliografie selectivă:

Adamiec G. and Aitken M. (1998)
Dose-rate conversion factors: update.
Ancient TL 16, 37-50.

Aitken M.J. and Alldred J.C. (1972)
The assessment of error limits in thermoluminescent dating.
Archaeometry 14, 257-267.

Aitken M.J. (1976)
Thermoluminescent age evaluation and assessment of error limits: revised system.
Archaeometry 18, 233-238.

Aitken M.J. (1985)
Thermoluminescent Dating.
Academic Press, London, 359p. ISBN: 0-12-046380-6.

Aitken M.J. (1998)
An introduction to optical dating. The dating of Quaternary Sediments by the use of Photon-Stimulated Luminescence.
Oxford University Press, Oxford, 267p, ISBN: 0-19-854092.

Aitken M.J. (1999)
Archaeological dating using physical phenomena.
Rep. Prog. Phys. 62, 1333-1376.

Armitage S.J., Bailey R.M. (2005)
The measured dependence of laboratory beta dose rates on sample grain size.
Radiation Measurements 39, 123-127.

Bădăraș Al. S. (2005)
Landscape Transformation in the Transylvanian Basin, with special focus upon the biogeographical aspects.
Phd. Thesis, Babeș-Bolyai University Cluj Napoca .

Bailey R.M., Smith B.W., Rhodes E.J. (1997)
Partial bleaching and the decay form characteristics of quartz OSL.
Radiation Measurements 27, 123-126.

- Bailey R.M. (2001)
Towards a general kinetic model for optically and thermally stimulated luminescence of quartz.
Radiation Measurements 33, 17-45.
- Bailey R.M. (2004)
Paper I- simulation of dose absorption in quartz over geological timescales and its implications for the precision and accuracy of optical dating.
Radiation Measurements 38, 299-310.
- Bailey R.M., Armitage S.J., Stokes S. (2005)
An investigation of pulsed irradiation regeneration of quartz OSL and its implications for the precision and accuracy of optical dating. (Paper II)
Radiation Measurements 39, 347-359.
- Bailiff I.K., and Poolton, N.R.J. (1991)
Studies of charge transfer mechanisms in feldspars.
Nuclear tracks and radiation measurements 18, 111-118.
- Bailiff I.K. (1999)
The Development of Retrospective Luminescence Dosimetry for Dose Reconstruction in Areas Downwind of Chernobyl.
Radiation Protection Dosimetry 84 (1-4), 411-419.
- Bailiff I.K., Bøtter-Jensen L., Correcher V., Delgado A., Göksu H.Y., Jungner H., Petrov A.S. (2000)
Absorbed dose evaluations in retrospective dosimetry: methodological developments using quartz.
Radiation Measurements, 32, 609-613.
- Bailiff I K., Stepanenko V F., Göksu H Y., Jungner H., Balmukhanov S B., Balmukhanov T. S., Khamidova L. G., Kisilev V. I., Kolyado I. B., Kolizshenkov T.V., Shoikhet Y. N., Tsyb A F. (2004)
The Application of Retrospective Luminescence Dosimetry in Areas Affected By Fallout from the Semipalatinsk Nuclear Test Site: An Evaluation of Potential.
Health Physics, 87 (6), 625-641
- Banerjee D., Bøtter-Jensen L., Murray A.S. (1999)
Retrospective Dosimetry: Preliminary Use of the Single Aliquot Regeneration (SAR) Protocol for the Measurement of Quartz Dose in Young House Bricks.
Radiation Protection Dosimetry 84 (1-4), 421-426.
- Begy R., Cosma C., **Timar A.**, Fulea D. (2007)
A study on Cs-137 contamination of soils from certain regions of Transylvania
Environment and Progress 9, 73-76.
- Begy R.C., Cosma C., **Timar A.**, Fulea D. (2009a)
The Determination of Absolute Intensity of ^{234m}Pa 's 1001 keV Gamma Emission Using Monte Carlo Simulation.
Journal of Radiation Research 50, 277-279.
- Begy R., Cosma C., **Timar A.**, (2009b)
Recent changes in Red Lake (Romania) sedimentation rate determined from depth profiles of ^{210}Pb and ^{137}Cs radioisotopes"
Journal of Environmental Radioactivity 100, 644-648.
- Benea V., Vandenberghe D., **Timar A.**, Van den Haute P., Cosma C., Gligor M., Florescu C. (2007)
Luminescent dating of Neolithic ceramics from Lumea Nouă, Romania.
Geochronometria 28, 9-16.

- Bøtter-Jensen L, McKeever S.W.S, Wintle A. G. (2003)
Optically Stimulated Luminescence Dosimetry
Elsevier, 355 p, ISBN 0 444 50684 5
- Bulur E., Bøtter-Jensen L. and Murray A.S. (2001)
Optically stimulated luminescence from quartz measured using the linear modulation technique.
Radiation Measurements 32, 407-411.
- Buylaert J.P., Vandenberghe D., Murray A.S., Huot S., De Corte F. and Van den Haute P. (2007)
Luminescence dating of old (>70ka) Chinese loess: a comparison of single aliquot OSL and IRSL techniques.
Quaternary Geochronology 2, 9-14.
- Buylaert, J.P., Murray, A.S., Vandenberghe, D., Vried, M., De Corte, F., Van den haute, P., (2008)
Optical dating of Chinese loess using sand-sized quartz: Establishing a time frame for Late Pleistocene climate changes in the western part of the Chinese Loess Plateau.
Quaternary Geochronology 3, 99-113.
- Chen S., Liu X., Zhang C., Tang Q. (2009)
The Monte Carlo simulation of the absorbed dose in quartz.
Radiation Measurements 44, 626-628.
- Choi J.H., Murray A.S., Cheong C.S., Hong D.G., Chang H.W. (2003)
The resolution of stratigraphic inconsistency in the luminescence ages of marine terraces sediments from Korea.
Quaternary Science Reviews 22, 1201-1206.
- Cosma C., Benea V., **Timar A.**, Barbos D., Paunoiu C. (2006)
Preliminary dating results on ancient ceramics from Romania by means of thermoluminescence.
Radiation Measurements 41, 987-990.
- Cosma C., Petrescu I, Meilescu C., **Timar A.** (2007)
Properties of lignite from Oltenia and their influence on the environment
Studia Universitatis Babeş-Bolyai, Ambientum, I, 1—2, 65-75.
- Cosma C. **Timar A.**, Benea V., Pop I., Jurcut T., Ciorba D. (2008a)
Using natural luminescent materials and highly sensitive sintered dosimeters MCP-N (LiF: Mg, Cu, P) in radiation dosimetry.
Journal of optoelectronics and advanced materials vol. 10, nr 3, 573-577.
- Cosma C., **Timar A.**, Benea V., Somlai J. (2008b)
Applications of nuclear dating methods in archaeology, geology and environmental science” *ECOTERRA, nr 19, an V, p.: 28-30.*
- Cosma C., Benea V., **Timar A.**, Gligor M., Varvara S. (2008c)
Datarea prin luminescenta stimulate termic (TL) si optic (OSL). Aplicatii in arheologie.
ACTA MVSEI APVLENSIS, Apulum, XLV, 579-598
- Cosma, C., **Timar, A.**, Benea, V., Begy, R., (2008d)
Nuclear and Seminuclear Dating Methods: Application in Archeology, Geology and Environmental Science.
Terrestrial radionuclides in the Environment, Environmental Conferences Veszprem, ISBN 978 963 9696 488, pp. 23-35.
- Cosma C., **Timar A.**, (2008e)
Testarea potentialului metodelor luminescente in datarea unei sectiuni de loess din Dobrogea, *MENER, Universitatea Politehnica - Bucuresti, 643-650.*

- Cosma C., Ciorba D., **Timar A.**, Szacsvai K., Dinu A. (2009a)
Radon exposure and lung cancer risk in Romania.
Journal of Environmental Protection and Ecology, nr 1-2009, 94-104.
- Cosma C., Petrescu I., Meilescu C., **Timar A.** (2009b)
Studies on the radioactivity of lignite from the area between the Danube and Motru (South-West Romania) and the incidence on the environment.
Journal of Environmental Protection and Ecology, nr 1-2009, 192-201.
- Cosma C., **Timar A.**, Benea V., Pop I., Moldovan M. (2009c)
Carbon Molecular Sieve for Radon and Thoron Monitoring”
Romanian Journal of Physics, nr. 3-4, vol. 54, 401-405.
- De Corte F., Umans H., Vandenberghe D., De Wispelaere A. and Van den Haute P. (2005)
Direct gamma-spectrometric measurement of the Ra-226 186.2 keV line for detecting U-238/Ra-226 disequilibrium in determining the environmental dose rate for the luminescence dating of sediments.
Applied Radiation and Isotopes 63, 589-598.
- Denby, P.M., Bøtter-Jensen L., Murray A.S., Thomsen K.J., Moska P. (2006)
Application of pulsed OSL to the separation of the luminescence components from a mixet quartz/ feldspar sample.
Radiation Measurements 41, 774-779.
- Duller, G.A.T. (2003)
Distinguishing quartz and feldspar in single grain luminescence measurements.
Radiation Measurements 37, 161-165.
- Duller G.A.T. (2004)
Luminescence dating of Quaternary sediments: recent advances.
Journal of Quaternary Science 19, 183-192.
- Frechen M., Schweitzer U. and Zander A (1996)
Improvements in sample preparation for fine grain technique.
Ancient TL 14, 15-17.
- Frechen M., Dodonov A.E., (1998)
Loess chronology of the Middle and Upper Pleistocene in Tadjikistan.
Geologische Rundschau 87, 2-20.
- Frechen M. (1999)
Luminescence dating of loessic sediments from the Loess plateau, China.
International Journal of Earth Sciences 87, 4, 675-684.
- Frechen, M., Oches, E.A., Kohfeld, K.E., (2003)
Loess in Europe – mass accumulation rates during the Last Glacial Period.
Quaternary Science Reviews 22, 1835-1857.
- Forman S. (1991)
Late Pleistocene Chronology of loess Deposition near Louchuan, China.
Quaternary Research 36, 19-28.
- Fulea D. Cosma C. (2009)
Monte Carlo sampling for gamma and beta detectors using a general purpose PC program.
Radiation Measurements 44, 278–282.

- Garcia-Talavera M, Laedermann J.P., Decombas M., Daza M.J., Quintana B. (2001)
Coincidence summing corrections for the natural decay series in γ ray spectrometry.
Journal of Radiation and Isotopes 54, 769-776.
- Göksu, H. Y.; Degteva, M. O.; Bougrov, G.; Meckbach, R.; Haskell, E. H.; Bailiff, I. K.; Bøtter-Jensen, L.; Jungner, H.; Jacob, P. (2002)
First International Intercomparison of Luminescence Techniques Using Samples From the Techa River Valley.
Health Physics, 82, 94-101
- Grogler N, Houtermans FG and Stauffer H. (1960).
Ueber die datierung von Keramik und Ziegel durch Thermolumineszenz.
Helvetica Physica Acta 33, 595-596.
- Harrison S., Kohfeld K., Roelandt C., Claquin T. (2001)
The role of dust in climate changes today, at the last glacial maximum and in the future.
Earth Science Reviews 54, 43-48.
- Hong DG, Yi SB, Galloway RB and Tsuboi T. (2001).
Optical dating of archaeological samples using a single aliquot of quartz stimulated by blue light.
Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 247, 179-184.
- Hossain S.M., De Corte F., Vandenberghe D., Van den Haute P. (2002)
A comparison of methods for annual radiation dose determination in the luminescence dating of loess sediments.
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 490, 598-613.
- Huntley D.J. and Lamothe M. (2001)
Ubiquity of anomalous fading in K-feldspars and the measurement and correction for it in optical dating.
Canadian Journal of Earth Science 38, 1093-1106.
- Hütt G., Jaek I. and Tchonka J. (1988)
Optical dating: K-feldspars optical response stimulation spectra.
Quaternary Science Reviews 7, 381-385.
- Istratov A.A., Vyvenko O.F. (1999)
Exponential analysis in physical phenomena.
Review of scientific instruments, vol 70, no 2, 1233-1257.
- Jain M. and Singhvi A. (2001)
Limits of depletion of blue-green light stimulated luminescence in feldspars: implications for quartz dating.
Radiation Measurements 24, 883-892.
- Jain M., Murray A.S., Bøtter-Jensen L. (2003)
Characterization of blue-light stimulated luminescence components in different quartz samples: implications for dose measurement.
Radiation Measurements 37, 441-449.
- Jain M., Murray A.S., Bøtter-Jensen L. (2004)
Optically stimulated luminescence dating: How significant is incomplete light exposure in fluvial environments?
Quaternaire 15 (1-2), 143-157.
- Kennedy GC and Knopff L. (1960)
Dating by thermoluminescence.
Archaeology 13, 147-148.

- Krbetschek M.R. and Reiser U. (1995)
Luminescence spectra of alkali feldspars and plagioclase.
Radiation Measurements 24, 473-477.
- Krbetschek M.R., Götze J., Dietrich A. and Trautman T. (1997)
Spectral information for minerals relevant to luminescent dating.
Radiation Measurements 27, 695-748.
- Labau, V., Gaspar, E., Paunica, T. (1996)
Speleothems dating using the thermoluminescence method.
Theoret. Appl. Karstology 9, 29-34.
- Lai ZP, Wintle A.G., Thomas S. G. (2007)
Rates of dust deposition between 50 ka and 20 ka revealed by OSL dating at Yuanbao on the Chinese Loess Plateau.
Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology 248, 431-439.
- Lamothe M. (2004)
Optical dating of pottery, burnt stones, and sediments from selected Quebec archaeological sites.
Canadian Journal of Earth Sciences 41, 659-667.
- Lang A., Lindauer S., Kuhn R. and Wagner G.A.T (1996)
Procedures used for Optically and Infrared Stimulated Luminescence Dating of Sediments in Heidelberg.
Ancient TL 14, 7-11.
- Li B, Li S-H. (2006)
Comparison of De estimates using the fast component and the medium component of quartz OSL.
Radiation Measurements 41, 125-136.
- Lian O.B., Roberts R., G., (2006)
Dating the Quaternary: progress in luminescence dating of sediments.
Quaternary Science Reviews 25, 2449-2468.
- Mauz B., Packman S., Lang A. (2006)
The alfa effectiveness in silt size quartz: New data obtained by single and multiple aliquot protocols.
Ancient TL, vol 24, No 2, 47-52.
- McKeever S.W.S. (2001)
Optically stimulated luminescence dosimetry.
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 184, 29-54.
- Murray A.S. and Wintle A.G. (1999)
Isothermal decay of optically stimulated luminescence in quartz.
Radiation Measurements 30, 119-125.
- Murray A.S. and Wintle A.G. (2000)
Luminescence dating using an improved single-aliquot regenerative dose protocol.
Radiation Measurements 32, 57-73.
- Murray A.S. and Olley J.M. (2002)
Precision and accuracy in the optically stimulated luminescent dating of sedimentary quartz: a status review.
Geochronometria 21, 1-16.
- Murray A.S. and Wintle A.G. (2003)
The single aliquot regenerative dose protocol: potentials for improvement in reliability.
Radiation Measurements 37, 377-381.

- Murray A.S., Svendsen J.I., Mangerud J., Astakhov V.I. (2007)
Testing the accuracy of quartz OSL dating using a known-age Eemian site on the river Sula, northern Russia.
Quaternary Geochronology 2, 102-109.
- Murray, A.S., Buylaert, J.-P., Henriksen, M., Svendsen, J.-I., Mangerud, J. (2008)
Testing the reliability of quartz OSL ages beyond the Eemian.
Radiation Measurements 43, 776-780.
- Pendea, I.F., Szanto, Zs, Badarau, Al. S., Dezsi, S. (2002)
Age and pedogenic reconstruction of a paleo-relict chernozem soil from Central Transylvanian Basin.
Geologica Carpathica, 53, 37-38.
- Pendea, F. (2005)
Late Quaternary geomorphic paleoenvironments in the Transylvanian Basin, Romania.
Phd Thesis, Babeş-Bolyai University Cluj Napoca.
- Prescott J.R. and Hutton J.T. (1994)
Cosmic ray contributions to dose rates for luminescence and ESR dating: large depths and long –term variations.
Radiation Measurements 23, 497-500.
- Rees-Jones, J, Tite, M.S. (1995)
Optical dating results for British archaeological sediments.
Archaeometry 36, 177-187.
- Roberts R.G. (1997)
Luminescence dating in archaeology: from origins to optical.
Radiation Measurements 27, 819-892.
- Roberts H.M. (2006)
Optical dating of coarse-silt quartz from loess: Evaluation of equivalent dose determination and SAR procedural checks.
Radiation Measurements 41, 923-929.
- Roberts H.M. (2008)
The development and application of luminescence dating to loess deposits: a perspective on the past, present and future.
Boreas, 37, 483–507.
- Ropp R.C. (2004)
Luminescence and the solid state.
Elsevier 2004, 711p. ISBN: 0-444-51661-1.
- Singarayer J.S. and Bailey R.M. (2003)
Further investigations of the quartz optically stimulated luminescent components using linear modulation.
Radiation Measurements 37, 451-458.
- Singhvi, A.K., Bluszcz, A., Bateman, M.D., Someshwar Rao, M. (2001)
Luminescence dating of loess- palaeosol sequences and coversands: methodological aspects and palaeoclimatic implications.
Earth-Science Reviews 54, 193-211.
- Smith B.W. and Rhodes E.J. (1994)
Charge movements in quartz and their relevance to optical dating.
Radiation Measurements 23, 329-333.

Stevens, T., Armitage, S.J., Huayu, L., Thomas, D.S.G. (2007)
Examining the potential of high resolution OSL dating of Chinese loess.
Quaternary Geochronology 2, 15-22.

Steffen D., Preusser F., Schlunegger F. (2009)
OSL quartz age underestimation due to unstable signal components.
Quaternary Geochronology 4, 353-362.

Stokes S. (1999)
Luminescence dating applications in geomorphological research.
Geomorphology 29, 153-171.

Takano M, Yawata T and Hahimoto T. (2003)
Luminescence dosimetry of archaeological and ceramic samples using a single- aliquot regenerative dose method.
Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 255, 365-368.

Tegen, I., Laciş A.A., Fung I. (1996)
The influence of climate forcing of mineral aerosols from disturbed soils.
Nature 280, 419-422.

Timar A. (2006)
Comparing quartz OSL and polymineral IRSL ages for Chinese loess: a case study.
MsD Thesis, Universitatea Babeş-Bolyai -Gent University.

Timar A., Cosma C., Benea V., Begy R., Jobagy V., Szeiler G., Barbos D., Fulea D. (2007)
Estimation of environmental radionuclide concentration in soils, a comparison of methods for the annual radiation dose determination in luminescence dating.
Studia Universitatis, Babeş-Bolyai, Geologia, 52 (1), 80-81.

Timar A., Cosma C., Benea V., Begy R.C., Jobagy V., Szeiler G., Fulea D. (2008a)
A comparison of methods for external dose rate determination in luminescence dating of archaeological materials
Foldkergei Radioizotopok a Kornyezetunnkben, Pannon Egyetemi Kiado, Egyhazy Tiborne- Editor, p. 35-44.

Timar A. (2008b)
Fenomenul de termoluminescenta si luminescenta stimulata optic si aplicatiile sale in datare, Varste absolute prin metode nucleare cu aplicatii in arheologie, geologie si mediu.
Masa Rotunda. Alba-Iulia, Quantum, Editor: Cosma C., Varvara S., Gligor, M., p.: 33-43.

Timar A., Cosma C, van den Haute P., Vandenberghe D. (2008c)
Datarea secventelor de loess-palaeosol prin luminescenta stimulata optic.
Varste absolute prin metode nucleare cu aplicatii in arheologie, geologie si mediu. *Masa Rotunda. Alba-Iulia, Quantum*, Editor: Cosma C, Varvara S., Gligor, M., p.: 66-78

Timar A., Vandenberghe D., Vasiliniuc S., Cosma C. (2009a)
Optical dating of Romanian loess: A comparison between sand-sized and silt-sized quartz.
Book of Abstracts Loessfest '09 – International conference on loess research, 31st August – 1st September 2009, Novi Sad, Serbia, p. 77-78

Timar A., Vandenberghe D., Vasiliniuc S., Cosma C. (2009b)
On the optical age of sand-sized and silt-sized quartz grains extracted from Romanian loess.
Book of Abstracts - UK Luminescence and ESR Meeting, Royal Holloway, University of London, 26th-28th August 2009.

- Timar A.**, Vasiliniuc S., Vandenberghe D., Cosma C. (2009c)
Absolute dating of Romanian loess using luminescence techniques: palaeoclimatic implications.
Ecoterra 22-23, 45-47.
- Timar A.**, Vandenberghe D., Panaiotu E.C., Panaiotu C.G., Necula C., Cosma C. and Van den haute P. (2010a)
Optical dating of Romanian loess using fine-grained quartz.
Quaternary Geochronology, 5, 143-148.
- Timar Gabor A.**, Vandenberghe D.A.G., Vasiliniuc S., Panaiotu, C. E., Panaiotu, C. G., Dimofte, D., Cosma, C. (2010b)
Optical dating of Romanian Loess a comparison between silt-sized and sand-sized quartz. *Quaternary International* (QUATINT - S-10- 00155).
- Timar Gabor A.**, Vandenberghe D.A.G., Vasiliniuc S., Panaiotu, C. E., Panaiotu, C. G., Cosma, C. (2010c)
Further investigations on the optical age of fine silt (4-11 μm), coarse silt (35-50 μm) and fine sand (63-90 μm) quartz grains extracted from Romanian loess.
Xth international conference “*Methods of Absolute Chronology*”-*Book of abstracts*, page 29.
- Timar Gabor, A.**, Vasiliniuc, Ș., Bădăraș, A.S., Begy, R., Cosma C. (2010d)
Testing the potential of optically stimulated luminescence dating methods for dating soil covers from the forest steppe zone in Transylvanian basin.
Carpathian Journal of Earth and Environmental Sciences- in press.
- Thomsen K. (2004)
Optically Stimulated Luminescence Techniques in Retrospective Dosimetry using Single Grains of Quartz extracted from Unheated Materials
PhD thesis Risø National Laboratory, Roskilde, Denmark, 176p.
- Tsukamoto S., Fukuasawa H., Ono Y. and Fang X. (2001)
Infrared Stimulated Luminescence and Thermoluminescence Dating of loess from Lanzhou, China.
Quaternary Research 40, 385-392.
- Vandenberghe D. (2004)
Investigation of the optically stimulated luminescence dating method for applications to young geological sediments.
PhD thesis, Gent University, Gent, Belgium, 289p.
- Vandenberghe D., De Corte F., Buylaert J-P., Kučera J., Van den haute P. (2008)
On the internal radioactivity in quartz.
Radiation Measurements 43, 771-775.
- Vandenberghe D.A.G., De Meester E., Velghe G., Zöllner L., Van den haute P. (2009)
A chronological study of the loess deposits over- and underlying the Eltville tephra using the newest luminescence techniques applied to sand-sized quartz: results from two Late-Weichselian type localities.
Abstract book Loessfest '09 – International Conference on Loess Research, 31 August – 1 September, 2009, Novi Sad, Serbia, 31.
- Van den haute P., Vanraeynest L. and de Corte F. (1998)
The Late Pleistocene loess deposits of eastern Belgium New TL age determinations.
Journal of Quaternary Science 13, 487-497.

- Van den haute P., Frechen M., Buylaert J.-P., Vandenberghe D. and De Corte F. (2003)
The last Interglacial palaeosol in the Belgian loess belt: TL age record.
Quaternary Science Reviews 22, 985-990.
- Văşaru G, Cosma C (1998)
Geocronologie Nucleară.
Editura Dacia, Cluj Napoca, 346p, ISBN:973-35-0650-8.
- Wallinga J., Murray A.S. and Wintle A.G. (2000)
The single-aliquot regenerative –dose (SAR) protocol applied to coarse-grain feldspar.
Radiation Measurements 32, 691-695.
- Wallinga J., Murray A.S., Wintle A.G., Bøtter-Jensen L (2002)
Electron trapping probability in natural dosimeters as function of irradiation temperature.
Radiation Protection Dosimetry 101, 339-344.
- Wang X, Lu Y and Zhao H. (2006)
On the performance of single-aliquot regenerative –dose (SAR) protocol for Chinese loess: fine quartz and polymineral grains.
Radiation Measurements 41, 1-8.
- Watanuki T., Murray A.S., Tsukamoto S. (2003)
A comparison of OSL ages derived from silt- sized quartz and polymineral grains from Chinese loess.
Quaternary Science Reviews 22, 991-997
- Wintle, A. G. (1981)
Thermoluminescence dating of Late Devensian loesses in southern England.
Nature 289, 479–480.
- Wintle A.G. and Murray A.S. (1999)
Luminescence sensitivity changes in quartz.
Radiation Measurements 30, 107-118.
- Wintle A.G. and Murray A.S. (2006)
A review of quartz optically stimulated luminescence characteristics and their relevance in single-aliquot regeneration dating protocols.
Radiation Measurements 41, 369-391.
- Wintle A.G. (2008a)
Luminescence dating: where it has been and where it is going
Boreas, 37, 471–482.
- Wintle A.G. (2008b)
Fifty years of luminescence dating.
Archaeometry 50, 2, 276–312
- Zimmerman D.W. (1967)
Thermoluminescence from fine grains from ancient pottery.
Archaeometry 10, 26-28.