

UNIVERSIDAD AUTÓNOMA METROPOLITANA-IZTAPALAPA
DIVISIÓN DE CIENCIAS BÁSICAS E INGENIERÍA

FECHAMIENTO GEOLÓGICO Y ARQUEOLÓGICO POR
TERMOLUMINISCENCIA

T E S I S

QUE PARA OBTENER EL GRADO DE :
DOCTOR EN CIENCIAS
P R E S E N T A:
PEDRO RAMÓN GONZÁLEZ MARTÍNEZ

DIRECTOR DE TESIS:
DR. JUAN AZORINÍN NIETO

MÉXICO, D.F.

1999

Esta tesis se realizó en el Laboratorio de Termoluminiscencia de la Universidad Autónoma Metropolitana, Unidad Iztapalapa, bajo la asesoría del Dr. Juan Azorín Nieto. La parte experimental se llevó a cabo en colaboración con el Instituto de Geofísica de la Universidad Nacional Autónoma de México y el Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares.

A mis queridos padres y hermanos

*Con amor a mi esposa
Por su apoyo y comprensión*

*A mis hijas
Alicia y Karen
Motivo de superación*

Agradecimientos:

Al Dr. Juan Azorín Nieto, por el interés mostrado en la dirección de esta tesis y por su amistad de siempre.

Al Dr. Peter Schaaf, por su valiosa colaboración en la realización de la parte experimental de esta tesis.

Al I.Q. Ángel Ramírez Luna, por su apoyo en la preparación de las muestras.

Al personal del Microscopio Electrónico de Barrido del ININ.

Al personal del Laboratorio de Análisis por Activación Neutrónica del ININ.

Al Honorable Jurado, por sus sugerencias en la revisión de esta tesis.

INDICE

ABSTRACT	i
RESUMEN	ii
INTRODUCCION	iv
1. RADIATIVIDAD	
1.1. Introducción	1
1.2. Constitución de la materia	3
1.3. Isótopos	4
1.4. Radiactividad	5
1.4.1. Decaimiento radiactivo	5
1.4.2. Actividad	6
1.4.3. Actividad específica	7
1.4.4. Vida media	8
1.4.5. Vida promedio	8
1.5. Tipos de decaimiento	9
1.5.1. Decaimiento alfa	9
1.5.2. Decaimiento beta	10
1.5.3. Emisión de positrones	10
1.5.4. Captura electrónica	11
1.5.5. Transiciones isoméricas	11
1.5.6. Conversión interna	12
1.6. Series de decaimiento	12
1.6.1. Equilibrio radiactivo	17
1.6.2. El radón y otras causas de desequilibrio	17
1.7. Producción de radioisótopos	18
1.8. Análisis por Activación	24
2. TERMOLUMINISCENCIA	
2.1. Aspectos teóricos	22
2.2. Diagrama de niveles de energía	25
2.3. Formación de la curva TL	27
2.4. Desvanecimiento de la señal TL	27
2.5. TL espuria	29
2.6. Respuesta TL en función de la dosis	30
2.7. Cinética del fenómeno TL	31
2.8. Deconvolución	35
3. FECHAMIENTO POR TL	
3.1. Antecedentes	38
3.2. Medición de la TL	39
3.3. Estudio de la meseta	42
3.4. Técnicas de fechado por TL	47
3.4.1. Técnica de inclusión de cuarzo	47
3.4.2. Técnica de borrado parcial	54
3.4.3. Técnica de grano fino	56

3.5. Eficiencia a las partículas alfa	58
3.6. Efecto de la humedad	59
3.7. Efecto del radón en la dosis anual	61
3.8. Límites de error	64
3.8.1. Error en la medición de la TL	64
3.8.2. Error en la evaluación de la dosis anual	65
3.7.3. Error sistemático	65
 4. DESARROLLO EXPERIMENTAL	
4.1. Toma de muestras	67
4.2. Determinación del contenido de humedad en las cerámicas	69
4.3. Determinación de los elementos	69
4.3.1. Descortezado	69
4.3.2. Determinación de potasio	70
4.3.3. Determinación de uranio y torio	70
4.4. Dosis anual	70
4.5. Aplicación de la técnica de grano fino	71
4.5.1. Tratamiento de la materia orgánica	71
4.5.2. Eliminación de carbonatos	71
4.5.3. Obtención de grano fino	72
4.5.4. Preparación de los discos con muestra	73
4.6. Análisis de las curvas TL	73
4.6.1. Método de incremento de la dosis	74
4.6.2. Método de regeneración de la señal TL	74
4.7. Irradiación de las muestras	74
4.8. Equipo lector de TL	75
4.9. Muestras geológicas	76
4.9.1. Determinación del contenido de humedad en las dunas	76
4.9.2. Aplicación de la técnica de inclusión de cuarzo	76
4.9.3. Separación de minerales	77
4.9.4. Teñido de minerales	77
4.9.5. Selección de granos entre 105 y 125 μm	77
4.9.6. Preparación de los discos con muestra	77
4.9.7. Blanqueo parcial	78
4.9.8. Irradiación de las muestras	78
 5. RESULTADOS	
5.1. Cerámica de Edzná	80
5.2. Cerámica de Calixtlahuaca	86
5.3. Cerámica de Teotihuacán	94
5.4. Paleodunas del desierto de Sonora	101
 CONCLUSIONES	110
 REFERENCIAS	

NOTA: La numeración pudo haber sufrido algún cambio al converti a formato PDF

ARCHAEOLOGICAL AND GEOLOGICAL DATING BY MEANS OF THERMOLUMINESCENCE

ABSTRACT

In this thesis an especific method for dating local archaeological and geological samples based on the phenomenon of thermoluminescence (TL) using the fine grain and quartz inclusion techniques is developed.

Taking into account that this work is interesting for profesionales working in the fields of Physics, Chemistry, Archaeology, Antropology and related sciences, some basic concepts are described to have a better comprehension. Chapter 1 describes the concept of radioactivity, remarking the importance of the different decay types as well as the main radioactive series and the energy liberated in the process. The causes of radioactive disequilibrium are also considered in the case for radon. Another important aspect taken into account in this chapter is the radioisotope production and its relationship with the neutron activation analysis used for the determination of the Uranium and Thorium concentrations in the samples. The TL phenomenon is described in Chapter 2, emphasizing the importance of the process of thermally stimulated luminescence best known as TL and its application for dating minerals of different origin. Chapter 3 shows some important antecedents remarking some aspects of the techniques commonly used for dating purposes.

Chapter 4 shows the different methods used for the sample preparation. The techniques used for the ^{40}K , ^{238}U and ^{232}Th determination as well as for the cosmic radiation measurement using locally made TLD, are also described. The methods used for the determination of the paleodosis as a function of the TL intensity of each sample are described; special emphasis is taken on the moisture effects as well as in the error limits in the age estimation. Results and conclusions of this study are presented in Chapter 5. These results gave an age of 980 ± 90 years for the Edzná ceramic and 1520 ± 90 years for the Calixtlahuaca ceramic. The age of the Teotihuacán ceramic was not estimated due to the lack of a stable region of the traps. In the case of paleodunes from the Sonora desert the age estimated was 3810 ± 110 years. The results of this study are shown as they were obtained from the reader.

In conclusion, it can be said, looking at the results of this study, that the TL dating method is a promising method compared with the other techniques traditionally used for dating. This method could be used in the future to date samples from other archaeological sites in which its inhabitants did not leave any "written" testimony of their presence. On the other hand, the dating of the paleodunes offers the possibility to study the geological phenomena provoked by the climatic changes in the past. The results showed here are the first obtained in Mexico in this field.

FECHAMIENTO GEOLÓGICO Y ARQUEOLÓGICO POR TERMOLUMINISCENCIA

RESUMEN

En esta tesis se desarrolló un método específico para fechar muestras geológicas y arqueológicas locales, basado en el fenómeno de termoluminiscencia (TL) y en las técnicas de grano fino y de inclusiones de cuarzo.

Considerando que este trabajo es de interés para profesionales en el campo de la Física, la Química, la Arqueología, la Antropología y ciencias afines, se describen algunos conceptos básicos para una mejor comprensión. En el Capítulo 1, se muestran los conceptos de radiactividad haciendo énfasis en la importancia de los diferentes tipos de decaimiento, así como de las principales series radiactivas y la energía que liberan. Se consideran también las causas de desequilibrio radiactivo, como es el caso del radón. Otro aspecto importante que se considera en este capítulo es la producción de radioisótopos y su relación con la técnica de análisis por activación neutrónica para la determinación de uranio y torio en las diferentes muestras. En el Capítulo 2, se describe el fenómeno de TL haciendo énfasis en la importancia de la luminiscencia térmicamente estimulada, mejor conocida como TL, así como en su aplicación al fechamiento de minerales de diferentes procedencias. En el Capítulo 3, se muestran algunos antecedentes importantes y se hace énfasis en las técnicas más comunes de TL para fechamiento.

En el Capítulo 4, se presentan los diferentes métodos para la preparación de las muestras, se describen también las técnicas usadas para la determinación de ^{40}K , ^{238}U y ^{232}Th , así como de la medición de la radiación cósmica, usando dosímetros TL elaborados en el propio laboratorio. Se describen los métodos usados para la determinación de la paleodosis en función de la intensidad TL de cada muestra. Se pone especial énfasis en el efecto de la humedad así como en

los límites de error para la estimación de la edad. En el Capítulo 5, se muestran los resultados y las conclusiones de este estudio. Se obtuvo una edad de 980 ± 90 años para la cerámica de Edzná, la edad de la cerámica de Calixtlahuaca fue de 1520 ± 90 años, mientras que la cerámica de Teotihuacán no se estimó su edad ya que no se identificó la región estable de trampas. Mientras que para las paleodunas del desierto de Sonora se estimó la edad de 3810 ± 110 años. Los resultados del estudio TL se muestran tal como se obtuvieron del equipo lector.

En conclusión, el método de fechado por TL resulta ser promisorio respecto a otras técnicas tradicionales y podrá ser utilizado en lo sucesivo para fechar muestras de otros sitios arqueológicos, donde sus pobladores no hayan dejado testimonio *escrito* de su presencia. Mientras que el fechamiento de las paleodunas, permitirá el estudio de los fenómenos geológicos que provocaron cambios climáticos en el pasado. Los resultados aquí mostrados son los primeros en su tipo que se realizan en México.

INTRODUCCIÓN

La Geología de México posee una gran cantidad de rocas cuaternarias que requieren la utilización de diferentes métodos de fechamiento, como el ^{14}C , U-Th, hidratación de obsidianas, o la termoluminiscencia (TL).

En la Geoquímica isotópica son bien conocidos métodos como los de Rb-Sr, Sm-Nd o U-Pb, sin embargo, a causa de las vidas medias tan altas de los isótopos involucrados no son útiles para fechar rocas con edades menores a un millón de años.

En México, solamente algunos investigadores extranjeros han podido fechar algunos sedimentos por la técnica de ^{14}C . En el caso de las lavas de la Sierra de Chichinautzin, existen fechamientos por ^{14}C del derrame del Pedregal de San Angel emitidas por el Volcán Xitle, que dan una edad de 2422 ± 250 años⁽¹⁾. También existen fechamientos con esta técnica de las capas de ceniza de este mismo volcán de 15088 ± 150 , 11420 ± 120 , 8143 ± 83 y 2065 ± 80 años⁽²⁾. Los mismos autores reportaron también fechamientos de 27190 ± 930 y 25077 ± 680 años para dos horizontes de depósitos glaciales del Ajusco. En la parte occidental de la Sierra de Chichinautzin se determinaron también edades de 9400 y 3500 años⁽³⁾.

En sedimentos de la cuenca de México, en Chalco, se ha establecido una escala de tiempo para los últimos 45000 años, a partir de doce fechamientos por ^{14}C que abarcan edades entre 5400 y 34000 años⁽⁴⁾. En el complejo volcánico de Colima, cuyas edades fueron calculadas en 18520 años⁽⁵⁾, 9370 años⁽⁶⁾, 4280 años⁽⁷⁾ y 2690 años⁽⁸⁾, esta discrepancia dificulta la interpretación de los eventos.

Para el empleo del método de ^{14}C es necesario la presencia de materia orgánica, lo que representa una fuerte limitación para este tipo de muestras. Además este método representa errores sistemáticos con respecto a las edades verdaderas obtenidas en los registros históricos, de dendrocronología, paleomagnetismo y las obtenidas por otros métodos isotópicos de fechamiento^(9,10).

Las investigaciones que se plantea realizar en este trabajo con TL, son las primeras en México que están enfocadas a la resolución de problemas geológicos.

La Antropología y la Arqueología, estudian la evolución de las culturas antiguas por medio de los restos de utensilios o instrumentos rudimentarios. Así por ejemplo, cuando se excava un sitio que tuvo diferentes niveles de ocupación, en los niveles inferiores aparecerán los utensilios toscos de la edad de piedra y a medida que ascienden se encontrarán instrumentos de mejor acabado.

Las tumbas son una importante fuente de información, ya que en los pueblos antiguos se acostumbraba enterrar a los muertos con artefactos principalmente de cerámica, joyas y alimentos. En el caso de la cerámica, cada región tenía su forma peculiar de fabricarla, por lo que era muy diferente de un lugar a otro. Por tal motivo, la alfarería es de interés particular para el estudio arqueológico de culturas prehistóricas que no dejaron testimonio *escrito* de su presencia en determinado lugar. Siendo que los cacharros de los utensilios de cerámica que se rompían, no tenían ninguna utilidad se dejaban esparcidos en el sitio como basura, por lo que es común que aparezcan en las diferentes excavaciones arqueológicas. El estudio de esta cerámica revela el tipo de arcilla usada, el grado de avance en las técnicas de cocción y por ende el avance cultural de cada comunidad, y lo mas importante, la edad de la pieza arqueológica, esto es,

el tiempo que ha transcurrido desde que fue sometida al calor para darle forma y dureza.

Considerando la gran riqueza de joyas arqueológicas con las que cuenta el país, así como del riesgo que corren éstas de ser sacadas al extranjero como cualquier vasija común, en este trabajo se presenta también la bondad del método de TL para comprobar primero su autenticidad y posteriormente su edad. Actualmente los pocos fechamientos de este tipo de muestras, que se han realizado por el método de ^{14}C , se atribuyen también a investigadores extranjeros⁽¹¹⁾.

La termoluminiscencia (TL) natural de las muestras geológicas y arqueológicas se debe a la acción prolongada de un flujo de radiación nuclear tanto ambiental, como emitida por impurezas radiactivas contenidas en la misma muestra o de los alrededores del sitio donde quedó sepultada. Los elementos radiactivos presentes son generalmente ^{40}K , ^{87}Rb , ^{232}Th y ^{238}U . Estos se encuentran en concentraciones de pocas partes por millón (ppm) y tienen una vida media muy larga (entre 10^9 y 10^{11} años) por lo que el flujo de radiación es constante. De esta forma, la intensidad de la TL producida por una lava o vasija por ejemplo, es proporcional al tiempo que ha transcurrido desde la erupción del volcán o del cocimiento de la vasija. Las elevadas temperaturas de estos procesos borra completamente la TL adquirida por los minerales contenidos en las muestras durante tiempos geológicos o arqueológicos; por lo que, a partir de la erupción del volcán o cocido de la vasija, se considera el cronómetro en tiempo cero⁽¹²⁾.

La importancia del método de TL radica en el hecho de que la intensidad de la TL natural es proporcional a la dosis que han recibido los diferentes minerales de una muestra, ya sea geológica o arqueológica a través del tiempo.

Los mecanismos por medio de los cuales se lleva a cabo el fenómeno de TL en los minerales no son del todo conocidos, en general solo algunos laboratorios muy avanzados en esta técnica han podido estudiar el fenómeno en cristales sintéticos, ejerciendo un estricto control en la incorporación de las impurezas al momento de su preparación⁽¹³⁻²¹⁾. Esto se debe a que la respuesta TL depende muy marcadamente de la concentración de estas impurezas, así como también del tratamiento térmico. Los diversos minerales tienen diferente mecanismo; por lo que, para el mismo mineral, cada muestra debe ser calibrada individualmente ya que ésta puede ser influenciada por su contenido de impurezas.

El fechamiento por ^{14}C es muy diferente al fechamiento por TL, ya que aquel se lleva a cabo mediante el decaimiento radiactivo de los núcleos de ^{14}C , mientras que en el fechamiento por TL, la condición principal es que existan defectos en la estructura de la red cristalina para que se produzcan trampas de electrones y huecos o agujeros. Los electrones y huecos que se están generando durante la exposición del cristal a la radiación son retenidos en trampas, donde permanecen en un estado metaestable de energía durante un tiempo geológico. La cantidad de trampas ocupadas aumenta en relación lineal con la edad de la muestra durante la exposición a una tasa de dosis de radiación constante⁽¹²⁾.

El propósito de este trabajo consiste en establecer la termoluminiscencia como un método sencillo y confiable para el fechamiento de muestras arqueológicas y geológicas, a partir de los efectos causados por la radiación ionizante en los minerales presentes en cada muestra. El método se aplicó específicamente a los sitios arqueológicos de Edzná, Campeche, Calixtlahuaca y Teotihuacán en el Estado de México, así como en paleodunas del desierto de Sonora. Debido a las características específicas de los minerales presentes en las diferentes muestras fue necesario el establecimiento de técnicas especiales en la preparación de cada muestra para poder estimar su edad.

La cerámica de Edzná, presentó un pico TL bien definido y por lo tanto la razón de la TL natural (TLN) entre la TL natural más la artificial (TLA) sí mostró meseta entre 320 y 340 °C, considerándose este intervalo de temperatura para la determinación de la paleodosis, necesaria para la estimación de la edad.

Las muestras de Calixtlahuaca y Teotihuacán, no mostraron un pico TL bien definido por lo que la razón TLN/TLA tampoco mostró meseta. Por tal motivo se estableció un método para determinar la paleodosis cada 10°C, en el intervalo de temperatura entre 250 y 370°C; posteriormente graficar temperatura contra paleodosis. Con este método solamente la muestra de Calixtlahuaca mostró meseta, entre 340 y 360°C, con lo cual se pudo determinar también su edad. Mientras que la muestra de Teotihuacán tampoco mostró meseta mediante esta técnica y por lo tanto no fue posible estimar su edad.

Para el fechamiento de las paleodunas, mediante la técnica de inclusión de cuarzos, se requiere una pureza de estos minerales >98%, por lo que se separó el resto de los minerales con el uso del separador magnético tipo Frantz. Posteriormente se separó el resto de minerales mediante la técnica de líquidos pesados. Para esta separación se estableció una técnica específica consistente en tomar una alícuota de la muestra y adicionar ácido rodizónico, con el cual se tiñen de rojo las plagioclasas; la separación se realizó en varias ocasiones hasta que la muestra ya no tomaba coloración, indicando con esto que los cristales eran cuarzos con la pureza deseada. Con estos cuarzos fue posible realizar el estudio completo para la estimación de la edad de la muestra. Un aspecto novedoso propuesto en este trabajo es el uso del teñido de las plagioclasas para separarlas completamente de los cuarzos y poder ser usados éstos para propósitos de fechamiento.

Los resultados mostraron que las edades estimadas por el método de TL, concuerdan con los datos históricos, por lo que, con este método se podrán fechar en lo sucesivo, muestras de cerámica de otros sitios arqueológicos, donde sus pobladores no hayan dejado testimonio escrito de su presencia. Por otro lado, el fechamiento de las paleodunas, permitirá el estudio de fenómenos geológicos que provocaron cambios climáticos en el pasado. Parte de los resultados de este trabajo ya han sido reportados en revistas especializadas^(22,23).

1. RADIATIVIDAD

1.1. Introducción

En los últimos cinco años del siglo XIX, se llevaron a cabo descubrimientos que tuvieron efectos profundos sobre el progreso y el sentimiento científico. Estos descubrimientos fueron el de los rayos X, por Roentgen, en 1895; el de la radiactividad, por Becquerel, en 1896, y el descubrimiento o postulación de la naturaleza de los rayos catódicos, por J.J. Thomson, en 1897, y el concepto fundamental del cuanto introducido en 1900, por, Planck⁽²⁴⁾.

El descubrimiento de la radiactividad fue consecuencia directa del descubrimiento de los rayos X. Estos rayos habían sido producidos en un tubo de descarga por la acción de los rayos catódicos que incidían sobre las paredes del tubo de vidrio. Así la producción de estos rayos iba acompañada de una fuerte luminiscencia del vidrio, se especuló mucho sobre si esta luminiscencia, o fluorescencia, podría estar asociada necesariamente con la producción de rayos X. Esta inquietud condujo a una intensa investigación sobre la emisión de rayos X por sustancias que se volvían fluorescentes o fosforescentes por la luz visible.

En la sesión del 24 de febrero de 1896 de la Academia de Ciencias de París, Antoine Henri Becquerel presentó una breve nota en la que anunciaba los resultados de su experimento realizado con un sulfato doble de uranio y potasio en forma de una delgada *película* transparente. En estos experimentos había tomado una placa fotográfica envuelta en papel negro, de tal grueso que la luz del sol durante el día no la veló. Luego colocó la sal fluorescente por fuera del papel negro y la expuso nuevamente a la luz del sol durante varias horas. Al revelar la placa aparecía sobre ella, en negro, la silueta del cristal fluorescente. Además al interponer entre el cristal y la placa una moneda o una placa de metal

en la cual se había perforado un diseño, también aparecía su contorno en la placa. Becquerel interpuso una fina lámina de vidrio entre la sal fluorescente y la placa envuelta en el papel negro, para evitar la posibilidad de la acción química de los vapores que se pudieran producir al calentarse la sal por los rayos solares. (Ahora se sabe que el efecto observado por Becquerel, fue causado principalmente por las partículas beta, ya que las partículas alfa no pudieron haber atravesado el papel negro que envolvía la placa).

En la sesión del 2 de marzo de 1896, Becquerel informó sobre los experimentos que había iniciado en esa semana en la que el sol solo salía de manera intermitente, por lo que tuvo que guardar en un cajón sus placas fotográficas en su envoltura de papel, dejando en su lugar las capitas cristalinas de la sal de uranio. Como el sol no salió en los días que siguieron, reveló las placas el 1 de marzo, esperando hallar imágenes muy débiles. “Por el contrario las siluetas aparecieron con gran intensidad”. Becquerel había descubierto que el efecto sobre la placa fotográfica era independiente del fenómeno de fluorescencia. En esta comunicación hizo referencia a las *radiaciones activas (radiations actives)* adelantándose al término de radiactividad usado más tarde por Marie Curie, quien confirmara posteriormente que todos los compuestos de uranio producían *radiación ionizante*. Los descubrimientos más importantes de esta investigadora, junto con su esposo Pierre Curie, fueron los de la identificación del polonio y del radio^(24,25).

Actualmente se conocen más de 300 isótopos radiactivos de los elementos naturales, de los cuales aproximadamente 70 se pueden clasificar en tres categorías: los radioisótopos primarios, los secundarios y los inducidos. Los primeros son aquellos que tienen una vida media ($T_{1/2}$) extremadamente grande, se formaron desde la creación de la Tierra (~ 4600 millones de años) y aún existen. Los segundos tienen una $T_{1/2}$ tan pequeña comparada con la edad de la

Tierra que su existencia solo se explica porque se están formando continuamente por la desintegración de los isótopos primarios. Finalmente la tercera categoría, los radioisótopos inducidos son aquellos que se generan continuamente por la interacción de la radiación cósmica con los elementos existentes en la atmósfera.

Radiación Cósmica. La mayor parte de la radiación cósmica está formada de partículas con energía extraordinariamente elevada; el 70% esta constituida por protones, 20% de partículas alfa, 0.7% de iones de litio, berilio y boro, 1.7% de iones de carbono, nitrógeno y oxígeno, el 0.6% residual de iones de $Z > 10$. Las partículas de la radiación cósmica se dividen en dos principales grupos; el primero tiene energías cercanas a 1GeV y consiste principalmente de protones, siendo su principal fuente el Sol. El segundo grupo tiene energías que rebasan los $10^{10}\text{GeV}^{(25)}$. La radiación cósmica interactúa con los átomos de nitrógeno, oxígeno, etc., originando radiación gamma, electrones, neutrones, mesones y otras partículas energéticas, cuyo conjunto constituye la radiación cósmica secundaria.

Radiactividad en la corteza terrestre. Los elementos radiactivos naturales se encuentran distribuidos en forma bastante uniforme en las rocas y los suelos de la corteza terrestre, la cual está constituida en México, por una gran parte de rocas ígneas de granito y basalto. La contribución primordial de la radiactividad en la corteza proviene de las series radiactivas naturales: la del ^{232}Th , la del ^{235}U y la del ^{238}U , isótopos que se denominan cabezas de serie, y una contribución menor proviene de ^{40}K , ^{87}Rb y ^{147}Sm .

1.2. Constitución de la materia

Antes de hablar de radiactividad, recordemos brevemente como está constituida la materia desde su nivel elemental.

El átomo es la unidad más pequeña de un elemento, la cual puede existir sola, conservando sus propiedades químicas. Cada átomo está constituido por el núcleo y varios electrones; el núcleo a su vez está formado por protones y neutrones, tiene carga positiva y los electrones que giran alrededor del núcleo carga negativa. El número de protones (número atómico Z) indica de que elemento se trata. Los neutrones no tienen carga eléctrica pero su presencia en el núcleo en número N contribuye a la masa nuclear, protones y neutrones se llaman comúnmente nucleones. Los núcleos atraen a los electrones necesarios para balancear su carga, siendo éstas de igual magnitud pero de signo contrario. Así que el átomo es neutro por tener igual cantidad de electrones que de protones.

1.3. Isótopos

Los átomos de un elemento particular, que tienen el mismo número de protones pero diferente número de neutrones, se conocen como isótopos del elemento en cuestión y son químicamente idénticos, por lo que no se pueden separar por medios químicos. Su significado *en el mismo lugar* nos indica que comparte el mismo sitio en la tabla periódica.

A un isótopo, se le llama núclido y a un isótopo radiactivo se le llama radionúclido. Así el ^{12}C es un núclido mientras que el ^{14}C es un radionúclido y ambos son isótopos del carbono. El ^{14}C se le puede llamar también radioisótopo del carbono. Para identificar un núclido se le asigna el número de masa (o número másico) A como superíndice del lado izquierdo del símbolo elemental y el número atómico Z como subíndice también a la izquierda; sin embargo el número atómico es generalmente omitido, ya que el símbolo por si solo indica el número atómico⁽²⁵⁾.

Los isótopos radiactivos sufren cambios siempre con emisión de radiaciones, este tipo de isótopos también se obtienen artificialmente en aceleradores o reactores nucleares, donde un núcleo estable se bombardea con partículas subatómicas. El primer isótopo radiactivo producido en el laboratorio fue el ^{30}P , en 1934 por F. Joliot e Irene Curie⁽²⁶⁾.

1.4. Radiactividad

La radiactividad se puede definir como los cambios espontáneos que dan lugar a la formación de nuevos núcleos. Estos cambios se llevan a cabo por diferentes mecanismos que involucran la emisión de partículas o la captura de electrones orbitales. Cada una de estas reacciones puede ir acompañada o no por la emisión de radiación gamma. La radiactividad y las propiedades radiactivas de los núclidos están únicamente determinadas por consideraciones nucleares por lo que son independientes de los estados químicos y físicos del elemento. Además, estas propiedades no se pueden cambiar por ningún medio y son características de cada material radiactivo. El modo de decaimiento depende de factores tales como la estabilidad nuclear; es decir, si la razón neutrón/protón es demasiado alta o demasiado baja; y la relación masa-energía entre el núcleo padre y el núcleo hijo y el tipo de radiación emitida.

Entonces, la radiactividad es un fenómeno esencialmente probabilístico, ya que no es posible predecir con exactitud en que momento se desintegrará un núcleo y además la muestra por muy pequeña que sea a nivel macroscópico, siempre contendrá un número muy grande de núcleos^(25, 27-29).

1.4.1. Decaimiento radiactivo

El decaimiento radiactivo se rige bajo la hipótesis básica de que cualquiera que sea la edad del núcleo, su probabilidad de desintegración por unidad de tiempo

es constante. Este es el principio conocido como decaimiento radiactivo de un núcleo determinado y se expresa como:

$$l = -\frac{(dN / dt)}{N} \quad (1.1)$$

$$dN / dt = -lN \quad (1.2)$$

La ecuación (1.2) indica el número de átomos que se están desintegrando por unidad de tiempo, donde N es el número total de átomos en el tiempo, t . El signo negativo indica que se trata de una desintegración; por lo tanto, esta ecuación muestra el número de núcleos radiactivos que desaparecen en un tiempo dt .

La disminución del número de núcleos es proporcional a una variación determinada de tiempo y al número de núcleos presentes; siendo l el factor de proporcionalidad. Esta relación se indica con la siguiente ecuación diferencial:

$$\frac{dN}{N} = -l dt \quad (1.3)$$

Integrando entre N_0 , el número de núcleos presentes en el tiempo $t=0$ y N , el número de núcleos presentes en el tiempo t , se tiene:

$$\int_{N_0}^N \frac{dN}{N} = -l \int_0^t dt \quad (1.4)$$

$$\ln \frac{N}{N_0} = -lt \quad \therefore N = N_0 e^{-lt} \quad (1.5)$$

1.4.2. Actividad

En la práctica, es de uso más común el concepto de actividad que el de número de núcleos desintegrados. La actividad se define como la disminución del número de núcleos por unidad de tiempo y se indica con la siguiente ecuación:

$$A = -\frac{dN}{dt} = lN = lN_0 e^{-lt} = A_0 e^{-lt} \quad (1.6)$$

donde: A_0 es la actividad al tiempo $t=0$.

La unidad de actividad en el Sistema Internacional de Unidades (SI) es el becquerel (Bq) que es igual a una desintegración por segundo. La unidad tradicional de actividad es el curie (Ci) el cual, por definición, corresponde a la actividad de un gramo de radio y equivale a 37×10^9 desintegraciones por segundo; es decir 37×10^9 Bq.

1.4.3. Actividad específica

Las unidades antes mencionadas, Bq y Ci, no hacen referencia a la masa o volumen del material radiactivo en que está ocurriendo un número determinado de desintegraciones por segundo. La concentración de radiactividad o la relación entre la masa o el volumen del material radiactivo y su actividad se conoce como actividad específica. Por consiguiente indica la actividad por unidad de masa o volumen, es común expresarla como becquerels por kilogramo (Bq/kg) o becquerels por litro (Bq/l).

La actividad específica correspondiente a una concentración dada del isótopo padre puede ser calculada como se ilustra en el caso del ^{232}Th . Considerando una $T_{1/2}$ de 1.4×10^{10} años, la probabilidad de decaimiento sería de $\ln 2 / 1.4 \times 10^{10} = 4.95 \times 10^{-11}$ años $^{-1}$. Para una concentración de 1ppm por peso, que es 1mg de ^{232}Th por kilogramo de muestra, hay $(6.02 \times 10^{23} / 232) = 2.6 \times 10^{18}$ átomos de ^{232}Th por kg. Por lo que la actividad específica del padre conteniendo 1ppm de ^{232}Th es:

$$\frac{4.95 \times 10^{-11} \times 2.6 \times 10^{18}}{365 \times 24 \times 3600} = 4.08 \text{ Bq / kg}$$

Para el uranio natural, los padres de las dos series están en la siguiente proporción atómica; 99.28% de ^{238}U y 0.72% de ^{235}U . De la misma forma que el ejemplo anterior, 1ppm de uranio natural corresponde a una actividad específica de 13.0 Bq/kg, de los cuales 4.4% corresponden a la contribución del ^{235}U (este valor tan pequeño se debe a que la $T_{1/2}$ del ^{235}U es más pequeña). Para el caso del potasio natural, 1% por peso del metal corresponde a una actividad

específica de ^{40}K de 317 Bq/kg, de los cuales 89.5% corresponden a radiación beta y 10.5% a radiación gamma. Para el Rb natural una concentración de 1ppm por peso corresponde a una actividad específica de ^{87}Rb de 0.88 Bq/kg, de radiación beta⁽¹²⁾.

1.4.4. Vida media

Debido a que los diversos radioisótopos se desintegran a diferentes velocidades y que cada radioisótopo tiene su velocidad característica de decaimiento es conveniente determinar el tiempo requerido para que cualquier radioisótopo decaiga a la mitad de su actividad original, el cual se denomina vida media ($T_{1/2}$); ya que este periodo es una medida de la velocidad a la cual el núcleo decae. Cada radioisótopo tiene una velocidad de decaimiento única y no se conoce actualmente ningún procedimiento químico o físico que cambie esta propiedad. La vida media tiene valores desde microsegundos hasta millones de años. La vida media se expresa como:

$$A = \frac{A_0}{2} = A_0 e^{-\lambda T_{1/2}} \quad \therefore \frac{1}{2} = e^{-\lambda T_{1/2}} \quad (1.7)$$

$$-\ln 2 = -\lambda T_{1/2} \quad \therefore T_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} \quad (1.8)$$

1.4.5. Vida promedio

Cualquier átomo en particular de un radioisótopo se puede desintegrar en cualquier instante de tiempo desde cero hasta infinito después de ser observado, por lo que es conveniente definir la vida promedio de un radioisótopo como la suma de las vidas medias de los átomos individuales dividida entre el número total de átomos presentes originalmente.

La rapidez instantánea de desintegración de una cantidad de radioisótopos conteniendo N átomos es λN . Durante el intervalo de tiempo comprendido entre t

y $t+dt$, el número de desintegraciones es $lNdt$. Cada uno de los átomos que ha decaído durante este intervalo ha existido por un tiempo de vida total t desde el comienzo de la operación. La suma de los tiempos de vida de todos los átomos que decayeron durante el intervalo comprendido entre t y $t+dt$, después de haber sobrevivido desde el tiempo $t=0$ es $t lNdt$. La vida media promedio de las especies radiactivas, t , es:

$$t = \frac{1}{N_0} \int_0^{\infty} t l N dt \quad (1.9)$$

N_0 es el número de átomos que existen al tiempo $t=0$

Entonces se tiene:

$$t = \frac{1}{N_0} \int_0^{\infty} t l N_0 e^{-lt} dt \quad (1.10)$$

Integrando esta expresión se obtiene la vida promedio o periodo de semidesintegración de un radioisótopo como:

$$t = \frac{1}{l} \quad (1.11)$$

Usando la expresión para la constante de decaimiento en términos de la vida media,

$$l = \frac{0.693}{T_{1/2}} \quad (1.12)$$

obtenemos la relación entre la vida promedio y la vida media como:

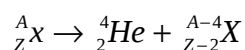
$$t = \frac{T_{1/2}}{0.693} = 1.45 T_{1/2} \quad (1.13)$$

1.5. Tipos de decaimiento

Los cambios nucleares que se manifiestan en un núcleo radiactivo se llevan a cabo mediante diferentes mecanismos tales como: emisión de partículas alfa, beta o positrones y captura de electrones orbitales, dando lugar a los diferentes tipos de decaimiento.

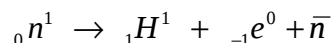
1.5.1. Decaimiento alfa

Una partícula alfa es un núcleo de helio muy energético el cual es emitido desde el núcleo de un isótopo radiactivo. La partícula alfa posee masa y carga, está constituida por dos protones y dos neutrones. Al ocurrir una transición alfa, se conservan el número atómico Z y el número másico A , por lo que el núcleo hijo tendrá el número atómico del padre menos dos ($Z-2$), mientras que el número másico se verá disminuido en cuatro unidades ($A-4$). Esta reacción se indica como:

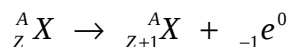


1.5.2. Decaimiento beta

Una partícula beta es un electrón expulsado del núcleo de un átomo inestable. Esta partícula tiene una carga unitaria de $1.60217733 \times 10^{-19}$ C y una masa de $0.00055 \text{ uma} = 9.1093897 \times 10^{-31}$ kg. Puesto que las consideraciones teóricas impiden la existencia independiente de electrones en el núcleo, se postula que una partícula beta se forma al instante de la emisión por el decaimiento de un neutrón en un protón y un electrón



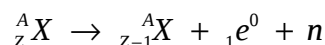
Esta transformación muestra que el decaimiento beta ocurre entre aquellos isótopos que tienen un exceso de neutrones. Debido a que durante el decaimiento beta se pierde una carga negativa, y a que la masa de la partícula beta es mucho menor que 1 uma, el núcleo hijo tiene un número atómico con una unidad mayor que el del padre ($Z + 1$), pero el mismo número másico (A).



1.5.3. Emisión de positrones

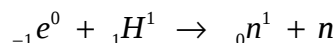
En los casos en que la razón neutrón/protón es baja y no es energéticamente posible la emisión alfa, el núcleo puede, bajo ciertas condiciones, alcanzar la

estabilidad emitiendo un positrón o partícula beta positiva (β^+) que es igual a una partícula beta negativa (β^-) en todos los demás aspectos. Debido a que el núcleo pierde una carga positiva cuando emite un positrón, el núcleo hijo tiene un número igual al del padre menos una unidad ($Z-1$); mientras que el número másico permanece sin cambio (A) como en las transformaciones nucleares que involucran electrones negativos.



1.5.4. Captura electrónica

Para que un átomo con deficiencia de neutrones alcance la estabilidad por emisión de positrones, su masa deberá exceder a la del hijo en al menos dos unidades de masa. Si no se cumple este requisito, entonces la deficiencia de neutrones es superada por el proceso conocido como captura electrónica o captura K. En esta transformación radiactiva, uno de los electrones orbitales es capturado por el núcleo para unirse con un protón y formar un neutrón de acuerdo con la siguiente reacción:

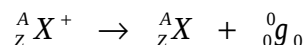


Puesto que los electrones de la capa K son los más cercanos al núcleo, la probabilidad de que un electrón capturado pertenezca a la capa K es mucho mayor que para cualquier otra capa; de aquí que el proceso se le denomine captura K. En la captura electrónica como en el caso de emisión de positrones, el número atómico del hijo es una unidad menor que el del padre ($Z-1$), mientras que el número másico no cambia.

1.5.5. Transiciones isoméricas

Los isómeros son núcleos de igual número atómico (Z) y del mismo número másico (A) y por consiguiente con el mismo número de neutrones y de protones. De hecho son dos estados diferentes de energía de un mismo núcleo; uno con exceso de energía con respecto al otro. Así, el núcleo excitado se puede deshacer de su energía de excitación ya sea emitiendo un fotón gamma para

decaer al estado base o mediante la conversión interna. A la transición isomérica que provoca la emisión del fotón gamma se le conoce como desintegración gamma. Esta se representa como:



Los rayos gamma son radiaciones electromagnéticas y son emitidos por los núcleos en estado excitado después de una desintegración radiactiva. Estos rayos proporcionan el mecanismo para que el núcleo excitado se libere de su energía de excitación.

1.5.6. Conversión interna

La conversión interna es un mecanismo alternativo por medio del cual un núcleo excitado puede liberarse de su energía de excitación. Este proceso compite con la emisión gamma y en ocasiones puede predominar. Consiste en una interacción en la cual un electrón fuertemente ligado absorbe la energía de excitación del núcleo, resultando expulsado del átomo. Estos electrones convertidos internamente aparecen en grupos monoenergéticos cuya energía cinética es siempre igual a la diferencia entre la energía del fotón gamma emitido y la energía de enlace del electrón convertido del elemento hijo. Puesto que los electrones L de los elementos de número atómico alto están fuertemente ligados, la conversión interna en estos elementos produce dos grupos de electrones los cuales difieren en energía por la diferencia entre las dos energías de enlace de los niveles K y L.

Puesto que los electrones de conversión interna son monoenergéticos, aparecen como una línea superpuesta sobre el espectro continuo de partículas beta de un isótopo.

Un ejemplo interesante de conversión interna es el del ^{137}Cs . Este isótopo decae por emisión beta a un estado excitado del ^{137}Ba . Este emite un fotón de 0.66

MeV el cual sufre conversión interna el 11% de sus transformaciones; por lo tanto, el coeficiente de conversión interna es 0.11^(27,28).

1.6. Series de decaimiento

Como se comentó antes, la contribución más importante de la radiactividad en la corteza terrestre proviene de las series radiactivas naturales: la del ^{232}Th , la del ^{235}U y la del ^{238}U , consideradas estas como cabezas de serie. La desintegración radiactiva de estos isótopos puede dar origen a un isótopo del mismo elemento o a otro totalmente distinto; si este último es radiactivo producirá un tercero y así sucesivamente hasta llegar a un isótopo estable. Los isótopos generados por desintegraciones sucesivas son los descendientes o hijos. La $T_{1/2}$ de las cabezas de serie son del orden de la edad de la Tierra, lo cual explica la existencia de cantidades apreciables de ellos y de sus descendientes.

El Th y U naturales son cabezas o padres de las series o cadenas de decaimiento; así el padre de la serie del Th es el ^{232}Th y cuando este núcleo decae, con la emisión de una partícula alfa, el núcleo hijo formado es el ^{228}Ra , que también es radiactivo. Este proceso continúa generando más hijos radiactivos hasta llegar finalmente al ^{208}Pb , que es estable. Por otro lado el uranio natural consiste de dos series radiactivas; el padre de la serie principal es el ^{238}U y el de la menor es el ^{235}U , esta última representa solamente el 0.72% de los átomos de uranio natural. Los diferentes miembros de las series del Th y U (Tablas 1.1, 1.2 y 1.3) emiten una gran variedad de partículas alfa y beta, así como de radiación gamma.

En el estudio de las series de decaimiento se puede apreciar que todos los isótopos conservan su mismo nombre, por ejemplo, los del radio, son químicamente idénticos pero de diferente radiactividad; siendo así que para el primer hijo del ^{228}Ra , el primer hijo de la serie del Th, tiene una $T_{1/2}$ de 5.75 años

y es un emisor de radiación beta; el ^{224}Ra el siguiente hijo de esta serie tiene una $T_{1/2}$ de 3.6 días y es un emisor de partículas alfa, mientras que el ^{226}Ra de la serie del ^{238}U , también es un emisor de partículas alfa pero tiene una $T_{1/2}$ de 1600 años.

Además de los radioisótopos considerados anteriormente como cabezas de serie, existen otros como el ^{40}K , el ^{87}Rb , el ^{147}Sm y el ^{176}Lu . El primero contribuye en gran medida a la radiactividad de la corteza, mientras que los tres últimos, su influencia es considerable solo en el fechamiento de rocas y minerales con más de 10 millones de años. Otro ejemplo de radiactividad natural es el ^{14}C formado por el bombardeo de la radiación cósmica sobre el nitrógeno atmosférico.

Tabla 1.1. Serie de decaimiento del ^{232}Th .

Isótopo y radiación emitida	Vida media	α (MeV)	β_{max} (MeV)	γ (MeV)
^{232}Th				
$\downarrow \alpha$	$1.40 \times 10^{10} \text{a}$	4.01		
^{228}Ra				
$\downarrow \beta$	5.75a		0.055	
^{228}Ac				
$\downarrow \beta$	6.13a		1.205	0.8750
^{228}Th				
$\downarrow \alpha$	1.91a	5.38		0.0024
^{224}Ra				
$\downarrow \alpha$	3.64d	5.67		0.0099
^{220}Rn				
$\downarrow \alpha$	55.3s	6.29		0.0002
^{216}Po				
$\downarrow \alpha$	0.15s	6.78		
^{212}Pb				
$\downarrow \beta$	10.64h		0.371	0.1055
^{212}Bi				
64% $\downarrow \beta$	36% $\downarrow$			
^{212}Po	$\downarrow$		1.336	0.1013
$\downarrow \alpha$	$\downarrow$			
^{208}Pb	$\downarrow$	3.0 $\times 10^{-7} \text{s}$	5.63	
	$\downarrow \alpha$		(64% de 8.78 MeV)	
	$\downarrow \alpha$	60.6min	2.18	0.0039
	^{208}Tl		(36% de 6.06 MeV)	
	$\downarrow \beta$	3.07min	0.580	1.2070
^{208}Pb				

Contribución de rayos X: 0.1197MeV.

Total de energía α : 35.94MeV

Total de energía β : 1.41MeV (Contribución por conversión interna de 0.18MeV)

Total de energía γ : 2.43MeV

Tabla 1.2. Serie de decaimiento del ^{238}U .

Isótopo y radiación emitida	Vida media	α (MeV)	β_{max} (MeV)	γ (MeV)
^{238}U				
$\downarrow \alpha$	$4.49 \times 10^9 \text{a}$	4.16		0.0111
^{234}Th				
$\downarrow \beta$	24.1d		0.162	0.0305
^{234}Pa				
$\downarrow \beta$	1.17min		2.265	0.0177
^{234}U				
$\downarrow \alpha$	$2.48 \times 10^5 \text{a}$	4.76		0.0150
^{230}Th				
$\downarrow \alpha$	$7.7 \times 10^4 \text{a}$	4.66		0.0006
^{226}Ra				
$\downarrow \alpha$	1620 a	4.77		0.0009
^{222}Rn				
$\downarrow \alpha$	3.82d	5.49		0.0004
^{218}Po				
$\downarrow \alpha$	3.05min	6.00		0.0001
^{214}Pb				
$\downarrow \beta$	26.8min		0.724	0.2430
^{214}Bi				
$\downarrow \beta$	19.8min		1.783	1.5088
^{214}Po				
$\downarrow \alpha$	$1.62 \times 10^{-4} \text{s}$	7.69		0.0001
^{210}Pb				
$\downarrow \beta$	21.3 a		0.024	0.0019
^{210}Bi				
$\downarrow \beta$	5.01d		1.161	
^{210}Po				
$\downarrow \alpha$	138.4d	5.31		
^{206}Pb				

Contribución de rayos X: 0.0252MeV.

Total de energía α : 42.87MeV

Total de energía β : 2.30MeV (Contribución por conversión interna de 0.13MeV)

Total de energía γ : 1.86MeV

Tabla 1.3. Serie de decaimiento del ^{235}U .

Isótopo y radiación emitida	Vida media	α (MeV)	β_{max} (MeV)	γ (MeV)
^{235}U				
$\downarrow \alpha$	$7.1 \times 10^8 \text{a}$	4.39		0.1485
^{231}Th				
$\downarrow \beta$	25.5h		0.219	0.0151
^{231}Pa				
$\downarrow \alpha$	$3.25 \times 10^4 \text{a}$	4.92		0.0287
^{227}Ac				
$\downarrow \beta$	21.8 a	0.069	0.040	0.0099
^{227}Th				
$\downarrow \alpha$	18.2d	5.84		0.0988
^{223}Ra				
$\downarrow \alpha$	11.43d	5.82		0.0865
^{219}Rn				
$\downarrow \alpha$	3.96s	6.76		0.0576
^{215}Po				
$\downarrow \alpha$	$1.78 \times 10^{-3} \text{s}$	7.39		0.0003
^{211}Pb				
$\downarrow \beta$	36.1min		1.323	0.0764
^{211}Bi				
$\downarrow \alpha$	2.15min	6.57	0.002	0.0491
^{207}Tl				
$\downarrow \beta$	4.79min		1.434	0.0024
^{207}Pb				

Contribución de rayos X: despreciable.

Total de energía α : 41.78MeV

Total de energía β : 1.20MeV (Contribución por conversión interna de 0.16MeV)

Total de energía γ : 0.57MeV

1.6.1. Equilibrio radiactivo

Si algún núcleo del padre se separa por algún proceso químico, entonces se considera en ese momento el tiempo inicial para la generación de los hijos, los cuales se incrementan en forma exponencial, determinados por su propia $T_{1/2}$ hasta que su rapidez de decaimiento es exactamente balanceada por su rapidez de producción que es ($\lambda_2 N_2 = \lambda_1 N_1$). Por otro lado, si por algún proceso se incrementa el número de hijos, la rapidez de decaimiento puede exceder la rapidez de producción y la cantidad puede disminuir hasta que las condiciones de equilibrio ($\lambda_2 N_2 = \lambda_1 N_1$) son otra vez alcanzadas. La producción del hijo permanece constante mientras el padre se encuentre presente, si por algún motivo el padre desaparece de la muestra, el hijo empieza a decaer exponencialmente con el tiempo en función de su $T_{1/2}$.

Las mismas consideraciones se aplican entre miembros sucesivos de la cadena, considerando el equilibrio:

$$\lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2 = \lambda_3 N_3 = \dots$$

La cantidad presente de un miembro está dada por $N_i = (\lambda_1 / \lambda_i) N_1$. Si el padre de cada serie ha tenido una $T_{1/2}$ muy grande, la cantidad de cada hijo presente permanece efectivamente constante. Para un hijo de $T_{1/2}$ corta la cantidad, que es proporcional a su $T_{1/2}$, es muy pequeña; para el ^{226}Ra con una $T_{1/2}$ de 1600 años, la cantidad en equilibrio con 1g de su padre, el ^{238}U es solamente de $1600 / (4.5 \times 10^9) = 0.36 \mu\text{g}$. De este modo la actividad específica de los diferentes miembros presentes es pequeña. Para una serie en equilibrio la actividad de todos los miembros es la misma^(25,28).

1.6.2. El radón y otras causas de desequilibrio

Hacia la mitad de cada una de las series de decaimiento se presentan isótopos del radón. Estos isótopos son el ^{220}Rn en la serie del Th, llamado antiguamente torón, el ^{222}Rn (radón) y el ^{219}Rn (actinón) en las dos series del uranio. Debido a

que estos elementos son gaseosos, se pueden liberar fácilmente de la muestra o del suelo. Este escape se ve favorecido en materiales porosos. Si por ejemplo, escapa el 25% de radón, entonces no solamente la actividad del radón baja sino también la actividad de todos sus descendientes en la misma proporción. Es más probable que el ^{222}Rn se libere de la muestra ya que los otros dos isótopos por tener $T_{1/2}$ muy corta de 55 y 4 segundos respectivamente, tienen mayor probabilidad de quedar dentro de la muestra.

Otro isótopo que puede generar el desequilibrio en las series es el radio, el cual es soluble y puede ser arrastrado por el agua presente en el suelo. El uranio también puede migrar, incorporándose al carbonato de calcio de una calcita⁽¹²⁾.

1.7. Producción de radioisótopos

Cuando la producción de un radioisótopo es continua, la acumulación del isótopo está dada como la diferencia entre la rapidez de producción y la rapidez de decaimiento del mismo, como lo indica la siguiente expresión:

$$\frac{dN}{dt} = P - \lambda N \quad (1.14)$$

donde P , es la rapidez de producción de núcleos radiactivos y se considera constante. La solución de la ecuación (1.14) es:

$$N = \frac{P}{\lambda}(1 - e^{-\lambda t}) + N_0 e^{-\lambda t} \quad (1.15)$$

Es común que el número inicial de átomos radiactivos N_0 sea cero, por lo que:

$$N = \frac{P}{\lambda}(1 - e^{-\lambda t}) \quad (1.16)$$

La rapidez de desintegración de los átomos radiactivos a cualquier tiempo está dada por:

$$A = \lambda N = P(1 - e^{-\lambda t}) \quad (1.17)$$

La saturación de la actividad ocurre después de un tiempo finito de irradiación y alcanza el 99% de saturación después de siete vidas medias de irradiación. De la ecuación (1.17):

$$A_T = P \left(1 - \left[\frac{1}{2} \right]^{t/T_{1/2}} \right) \quad (1.18)$$

y cuando: $t = T_{1/2}$

$$A_{T_{1/2}} = P \left(1 - \frac{1}{2} \right) = \frac{1}{2} P \quad (1.19)$$

Por lo que, solamente que sea necesario alcanzar la máxima actividad, resulta innecesario irradiar al material por más de una vida media. Para tiempos de irradiación más cortos que una vida media, la relación entre la actividad inducida y el tiempo de irradiación es aproximadamente lineal.

En el caso de las cadenas de decaimiento, algunas veces es más conveniente medir la actividad del hijo, que medir la actividad del padre; en estas circunstancias, la producción del hijo (P_h) está dada por la rapidez de decaimiento del padre:

$$P_h = \lambda_p N_p = P_p \left(1 - e^{-\lambda_p t} \right) \quad (1.20)$$

Así, durante la activación del padre, la rapidez de acumulación del hijo está dada por la diferencia entre la rapidez de producción del padre y la rapidez de decaimiento del hijo:

$$\frac{dN_h}{dt} = P_p \left(1 - e^{-\lambda_p t} \right) - \lambda_h N_h \quad (1.21)$$

La solución de la ecuación anterior considerando $N_h = 0$, cuando $t = 0$ es:

$$N_h = \frac{P_p}{\lambda_h} \left(1 - e^{-\lambda_h t} \right) + \frac{P_p}{\lambda_h - \lambda_p} \left(e^{-\lambda_h t} - e^{-\lambda_p t} \right) \quad (1.22)$$

la actividad del hijo (A_h), es:

$$A_h = \lambda_h N_h = P_p \left(1 - e^{-\lambda_h t} \right) + \frac{\lambda_h P_p}{\lambda_h - \lambda_p} \left(e^{-\lambda_h t} - e^{-\lambda_p t} \right) \quad (1.23)$$

Cuando la vida media del hijo es mucho más corta que la del padre,

$$I_h \gg I_p \quad (1.24)$$

entonces:

$$A_h = P_p (1 - e^{-I_p t}) \quad (1.25)$$

y cuando la vida media del hijo es mucho más grande que la del padre

$$I_p \gg I_h \quad (1.26)$$

entonces:

$$A_h = P_p (1 - e^{-I_h t}) \quad (1.27)$$

En la ecuación (1.25), la actividad del hijo puede llegar a la mitad en una vida media del padre, mientras que en la ecuación (1.27), ésta puede llegar a la mitad en una vida media del hijo^(25,28,29).

1.8. Análisis por activación

Cuando los materiales son irradiados para su análisis por activación, la rapidez de producción es constante, independientemente de la naturaleza de las partículas incidentes (sujetas, por supuesto, a que el flujo de éstas sea constante). El número de átomos activados debe ser una pequeña fracción del total ya que de no ser así, esta producción constante no se verificaría en vista de que cada vez habría menos átomos inactivos. En general esta condición siempre se cumple, por lo que la rapidez de producción es:

$$P = f s N_i \quad (1.28)$$

donde N_i es el número de átomos presentes, f es el flujo de partículas incidentes (partículas/cm² seg) y s es la sección eficaz de activación para la reacción (cm²) y es la probabilidad de que los átomos inactivos interaccionen con las partículas incidentes. Por lo tanto la rapidez de desintegración o actividad de los radioisótopos producidos está dada por:

$$A = f s N_i (1 - e^{-I t}) \quad (1.29)$$

Puesto que algunos elementos tienen más de un isótopo, solo la fracción r de estos puede tomar parte en la reacción, donde r es la abundancia fraccional del

isótopo en cuestión. También el número de átomos se puede obtener del peso W del elemento presente, con peso másico M , y el número de Avogadro A_{vo} . Por lo que:

$$A = f s \frac{Wr}{M} (1 - e^{-\lambda t}) A_{vo} \quad (1.30)$$

En general la actividad puede ser determinada sólo después de un tiempo T de haber finalizado el bombardeo, por lo que los átomos radiactivos habrán decaído por un factor $e^{-\lambda T}$; por lo que

$$A = f s (1 - e^{-\lambda t}) (e^{-\lambda T}) \frac{Wr}{M} A_{vo} \quad (1.31)$$

Despejando W se tiene:

$$W = \frac{MA}{f s r} \frac{e^{\lambda T}}{(1 - e^{-\lambda t}) A_{vo}} \quad (1.32)$$

en principio todos los factores de la derecha son conocidos o pueden ser calculados. Así puede ser posible calcular el peso del elemento presente. En la práctica, algunas veces s no se conoce con exactitud, f no puede ser determinada exactamente, y no es fácil determinar la rapidez absoluta de desintegración A . En consecuencia, es conveniente usar un método de comparación, donde el aumento de actividad de una muestra se compare con el aumento de la actividad de un estándar del elemento por determinar⁽³⁰⁾. Resulta sencillo entonces calcular el peso del elemento en la muestra a partir de la relación:

$$\text{Peso del elemento en la muestra} = \text{Peso del elemento en el estandar} \times \frac{C_x}{C_s} \quad (1.33)$$

donde

C_x es el número de cuentas observadas en la muestra
 C_s es el número de cuentas en el estándar, bajo las mismas condiciones

2. TERMOLUMINISCENCIA

2.1. Aspectos teóricos

La luminiscencia se presenta en materiales inorgánicos y orgánicos. En los primeros la luminiscencia se debe principalmente a la formación de electrones libres y agujeros, mientras que en los orgánicos a la formación de radicales libres. En algunos casos se emite luz solamente mientras se mantiene la excitación, fenómeno que se conoce como fluorescencia, con una duración aproximada de 10^{-8} segundos; y en otros, la luz persiste cuando se elimina la excitación, fenómeno que se conoce como fosforescencia, con una duración mucho mayor. Estos dos fenómenos tienen similitud con el fenómeno de termoluminiscencia (TL); ya que tienen el mismo origen y solo difieren en la manera en que se libera la energía que les fue impartida⁽²¹⁾.

Los detalles del mecanismo por medio del cual se lleva a cabo el fenómeno de termoluminiscencia (TL) en algún mineral dado no son del todo conocidos, en general se tiene conocimiento de esto solamente para cristales crecidos en el laboratorio con un estricto control en la adición de las impurezas⁽¹³⁻²¹⁾. Esto se debe a que la TL es fuertemente dependiente de la mínima variación del contenido de éstas, así como del historial térmico al que son sometidos los minerales.

En fechado por TL los minerales tienen diferente comportamiento ante la radiación, por lo que para el mismo mineral, cada muestra debe ser calibrada individualmente en función de su sensibilidad ya que ésta puede ser influenciada por el contenido real de impurezas de cada muestra. El fenómeno de TL puede ser discutido ampliamente en términos de un modelo simple, el cual se basa en el modelo del cristal iónico como se muestra en la Fig. 2.1.

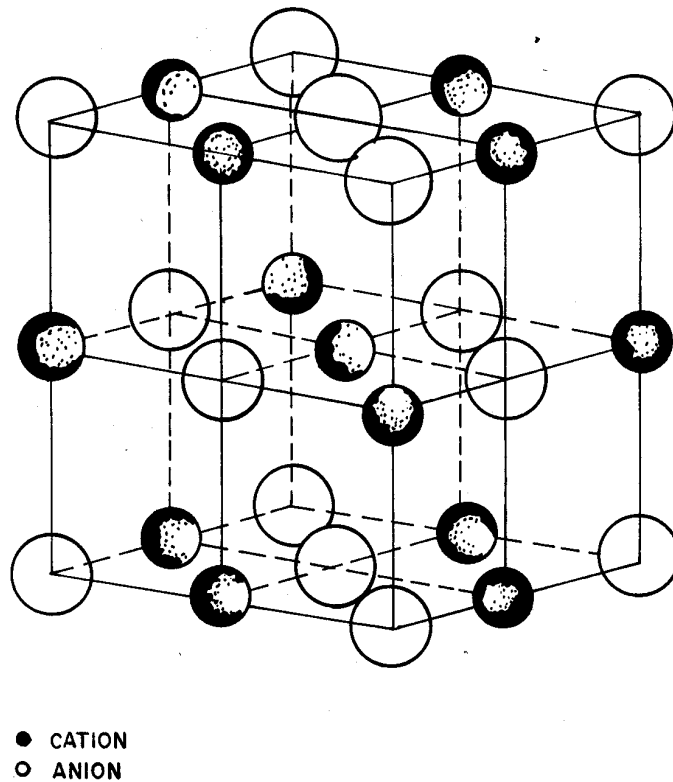


Fig. 2.1. Representación tridimensional de un cristal perfecto

El fenómeno de TL también se manifiesta en otros materiales tales como sólidos covalentes, vidrios, etc., mientras que en los metales no se presenta. Un cristal iónico, como el carbonato de calcio o el cloruro de sodio por ejemplo, consiste de una red cristalina de iones positivos y negativos. En un sólido cristalino perfecto, los átomos ocupan posiciones ordenadas en una estructura reticular periódica, sin embargo pueden tener defectos en su orden regular causados por impurezas o por efectos de la radiación nuclear. Existen muchos tipos de defectos de los cuales, los más comunes se deben a la ausencia de un ion negativo, llamada vacancia. Esta actúa como una trampa de un electrón debido al déficit local de carga negativa o exceso de carga positiva, atrayendo a un electrón que pase cerca de dicha trampa. Generalmente los electrones que pueden pasar cerca de las trampas y ser atrapados por éstas son aquellos que

han sido sacados de su átomo por efectos de la radiación nuclear, este proceso incrementa la señal TL.

Una vez que el electrón se encuentra dentro de la trampa, permanece dentro de ella hasta que es expulsado por la vibración de la red. Cuando se incrementa la temperatura estas vibraciones son muy fuertes y la probabilidad de expulsión se incrementa rápidamente en un intervalo corto de temperatura. Un electrón expulsado puede tener diferentes destinos; puede ser atrapado otra vez y expulsado, puede ser atrapado en diferentes tipos de trampas más profundas de donde difícilmente podrá salir con pequeñas vibraciones de la red, o bien puede combinarse con un ion que haya perdido previamente un electrón. Esta recombinación puede ser de dos formas: radiativa, es decir con emisión de luz o no radiativa. Estos iones o imperfecciones son lo que se conoce como centros luminiscentes y la luz emitida por éstos se conoce como termoluminiscencia. En su mayoría los centros luminiscentes son un tipo particular de defectos causados por impurezas tales como Ag^{2+} o Mn^{2+} , por ejemplo.

Los electrones expulsados tienen la posibilidad de encontrar todo tipo de defectos o centros luminiscentes presentes en el cristal. Normalmente la luz emitida es característica del tipo de impureza, así por ejemplo la plata emite luz azul/violeta, el manganeso emite luz naranja, etc. Sin embargo, cuando las impurezas forman diferentes arreglos dentro de la red cristalina el color de la luz puede ser modificado.

Existe un tiempo de vida finito para un electrón que ha sido capturado en una trampa. A temperatura ambiente también existe la posibilidad de escape del electrón (desvanecimiento). La vida puede ser tan pequeña o tan grande como millones de años. En un cristal hay diferentes tipos de trampas cada una con su temperatura característica, las más profundas requerirán de mayor temperatura para ser desocupadas por los electrones. Para las de menor profundidad el

tiempo de vida del electrón dentro de la trampa puede ser de solo una hora o menos, con un pico TL por debajo de los 100°C. Obviamente para fechado las trampas que nos interesan son aquellas cuyos tiempos de vida a temperatura ambiente son de decenas de miles de años o más.

2.2. Diagrama de niveles de energía

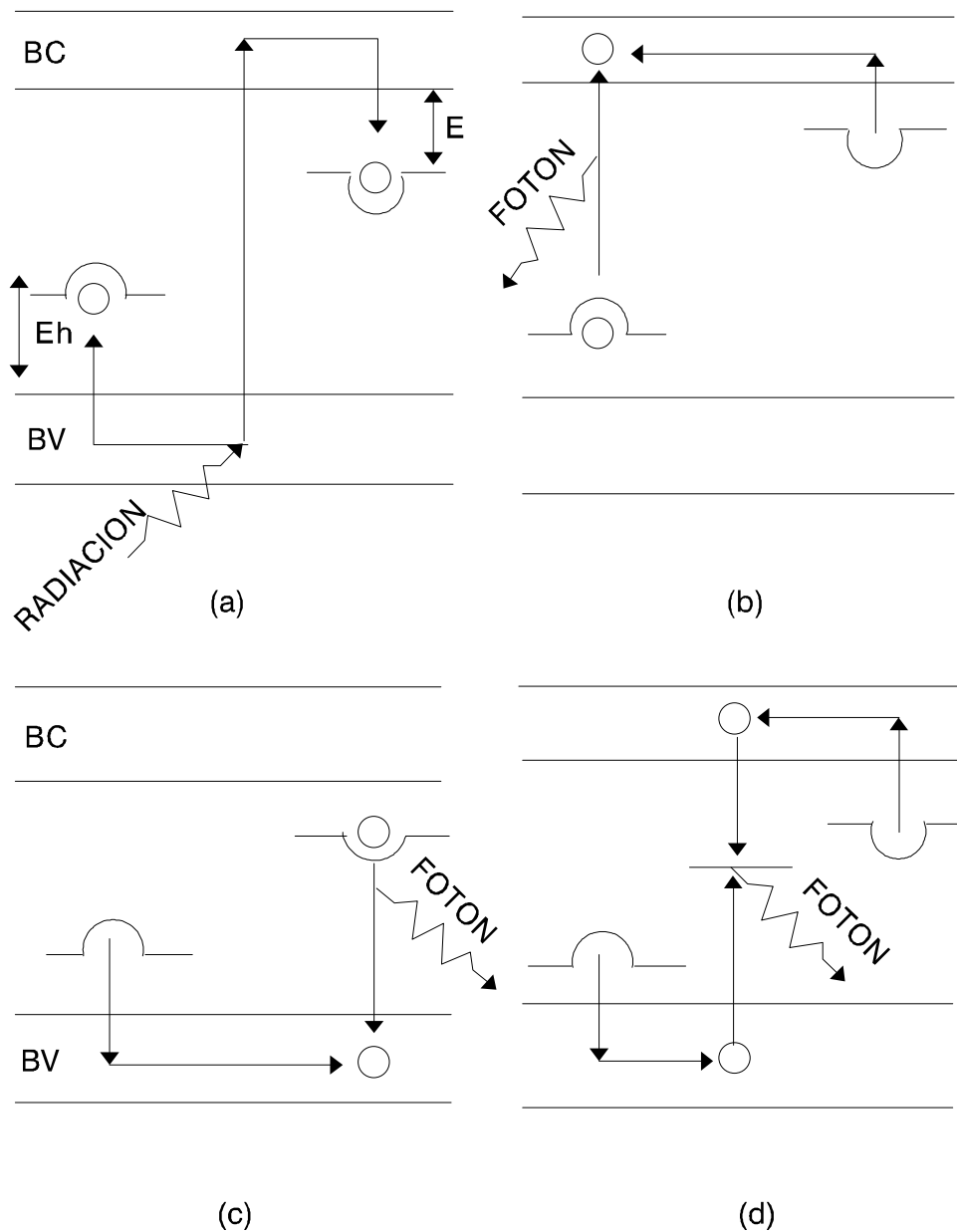
A la fecha, no hay teoría que explique completamente el fenómeno de TL. Sin embargo, varios modelos tratan de explicarlo a partir de tres elementos principales: los centros de recombinación, los entes móviles o portadores de carga y las trampas⁽³¹⁾. Además se usa el modelo de bandas del sólido respecto a sus estados electrónicos de energía. Se supone que en la banda prohibida existen estados excitados de energía que tienen una vida media relativamente grande (estados metaestables) y que son producidos por los defectos de la red cristalina del material, dichos estados pueden funcionar como trampas o centros de color.

Al interaccionar la radiación nuclear con el sólido, se puede proporcionar la energía suficiente para crear los entes móviles; es decir, los electrones y los agujeros. Los primeros son transferidos de la banda de valencia (BV) a la banda de conducción (BC), mientras que los agujeros quedan en la banda de valencia al ocurrir la transferencia de los electrones.

Estos portadores de carga (electrones y agujeros) viajan por el cristal hasta que se recombinan o bien son atrapados en estados metaestables de energía, asociados con los defectos del material, tal como se muestran en la Fig. 2.2a.

Posteriormente, durante el calentamiento del sólido irradiado, los electrones y los agujeros son liberados de sus trampas para viajar por el cristal, hasta que se

recombinan emitiendo un fotón de luz visible como se muestra en las Figs. 2.2b, 2.2c y 2.2d.



BV banda de valencia
BC banda de conducción

Fig. 2.2. Diagrama de bandas de energía

- a) Exposición del cristal a la radiación*
b), c) y d) Calentamiento del cristal

2.3. Formación de la curva TL

El proceso de emisión luminosa durante el calentamiento del cristal implica la desocupación de las trampas en éste, por lo que la probabilidad de desocupación de las trampas a temperaturas bajas es despreciable, ya que los portadores de carga no tienen la energía cinética suficiente para escapar del pozo de potencial.

Por lo tanto a medida que aumenta la temperatura, la probabilidad de desocupación de las trampas es mayor. Durante cierto intervalo de temperatura, una fracción de los portadores de carga liberados se dirige hacia los centros de recombinación haciendo que disminuya la población de portadores de carga atrapados, por lo que la intensidad de luz emitida alcanza un máximo dando origen a un patrón de luminiscencia en función de la temperatura llamado curva TL.

Es común que un cristal tenga más de un tipo de trampas, por lo que este proceso se repite para cada grupo de ellas, dando lugar a varios puntos de máxima intensidad de emisión luminosa en la curva TL, los cuales se conocen comúnmente como picos TL. En la Fig. 2.3. se muestran algunas curvas TL del LiF:Mg,Cu,P preparado en el Laboratorio de Desarrollo de Dosímetros TL del ININ⁽²¹⁾. Cada pico está caracterizado por la temperatura a la cual se presenta la máxima intensidad de la emisión, por la energía de activación o profundidad de la trampa (E) y por el factor preesponencial o factor de frecuencia (s)⁽¹⁷⁾.

2.4. Desvanecimiento de la señal TL

La relación establecida entre las energías de activación o profundidades de las trampas, la estabilidad de las mismas y la temperatura de liberación, involucra

consideraciones de carácter vibracional entre los entes móviles y la red cristalina, esto se basa en el hecho de que los minerales una vez excitados no permanecen en tal estado, sino que tienden a perder cierta cantidad de información TL con el transcurso del tiempo, sin que haya necesidad de aplicarles algún tipo de energía. A la información perdida de esta forma se le conoce como desvanecimiento TL (*fading*), es característico de cada material y esta relacionado con el tiempo de vida media de los picos TL⁽³²⁾.

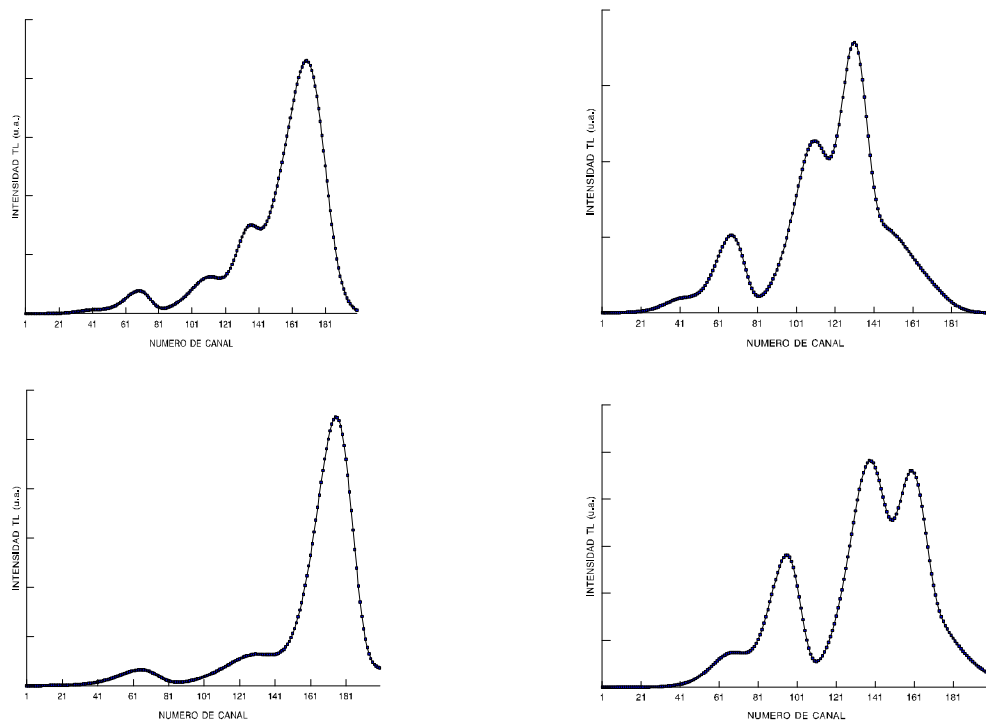


Fig. 2.3. Curvas TL de LiF:Mg,Cu,P tratado a diferentes temperaturas⁽²¹⁾

Una curva TL es normalmente una prolongación continua, aunque en realidad está compuesta de varios picos sobrepuestos. Para un tipo dado de trampas de electrones, la curva TL presenta varios picos que van a depender de la forma en que los electrones fueron atrapados, así por ejemplo, para trampas profundas el grado de vibración térmica de la red cristalina requerida para la liberación de los electrones es mayor que para las trampas poco profundas. Similarmente, durante

el periodo en que la muestra ha estado sepultada, el tiempo de vida de los electrones en trampas profundas es mayor que para los electrones capturados en trampas superficiales. Esto explica la ausencia de picos TL por debajo de 200°C en muestras geológicas y arqueológicas. Para propósitos de fechado, las trampas de interés son aquellas que han acumulado una gran cantidad de electrones a lo largo del tiempo, o sea las trampas cuyos picos aparecen a 300°C o más.

2.5. TL espuria

Este tipo de TL se presenta en muestras que no han sido irradiadas con ninguna fuente, una de las posibles causas es la quimioluminiscencia, al ocurrir algunos cambios térmicamente estimulados o algunos cambios de fase, por ejemplo cuando la aragonita pasa a calcita. Otra causa es la llamada tribo-termoluminiscencia, al ocurrir agitación o vibración entre los granos de la muestra. Para suprimir la TL de muestras no irradiadas (TL espuria), es esencialmente importante realizar las lecturas de las muestras en atmósfera inerte. Esto se logra con un flujo de nitrógeno o argón, con un contenido de impurezas como oxígeno y agua en pocas partes por millón (ppm). La presencia de trazas de aire en la cámara de calentamiento de la muestra puede incrementar fuertemente la señal TL, dicha contribución no corresponderá a la TL verdadera inducida por la radiación. Por lo tanto, conviene evacuar completamente la cámara de calentamiento antes de alimentar el flujo de gas inerte. Esto se logra con presiones bajas, del orden entre 0.02 y 0.10 Torr (2.7 y 13.5Pa). También en condiciones severas de humedad, es conveniente contar con un buen desecante tal como el pentóxido de fósforo.

De no suprimir totalmente la TL espuria, la edad de la muestra puede ser substancialmente sobrestimada y una imitación artística de cerámica puede ser considerada erróneamente como auténtica. Afortunadamente el estudio de la

meseta es un buen indicador para comprobar si la TL espuria ha sido suprimida adecuadamente⁽³³⁾.

2.6. Respuesta TL en función de la dosis

La respuesta TL de cualquier mineral que presente este fenómeno, comprende por lo general cuatro regiones: supralineal, lineal, sublineal y de saturación, como se muestra en la Fig. 2.4. La región lineal es la más importante ya que en ella se realizan las mediciones con la máxima precisión. Esta zona está limitada por los fenómenos generadores de señales espurias mencionadas anteriormente, los cuales alteran las mediciones reales. Para fines prácticos, se recomienda utilizar la región lineal de respuesta TL del material en cuestión.

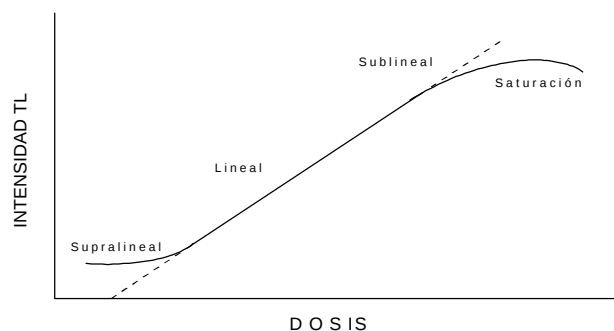


Fig. 2.4. Respuesta TL en función de la dosis

En la región de supralinealidad, la sensibilidad de muchos materiales se incrementa con la dosis, el origen de este fenómeno aún no está bien determinado y puede ser diferente según el material considerado. Si bien la sensibilidad del material es mayor en la zona de supralinealidad, la precisión de las mediciones es menor a la que se obtiene en la zona lineal. Esto se debe a la necesidad de introducir algún factor de corrección, el cual genera errores

suplementarios y que varían considerablemente con la transferencia lineal de energía de la radiación^(13,21,31).

La zona de sublinealidad se presenta por la inversión de la sensibilidad, ésta antecede a la zona de saturación, donde todas las trampas están ocupadas. En la zona de saturación se presenta coloración de los cristales y ocurre la destrucción de ciertos elementos de la estructura cristalina por efecto de la radiación. Generalmente los materiales que se han irradiado hasta los niveles de saturación son dañados irreversiblemente en la mayoría de sus propiedades TL⁽³⁴⁾.

2.7. Cinética del fenómeno

Como se comentó con anterioridad, el proceso físico que da lugar a la emisión termoluminiscente (TL) de un sólido, está relacionado con el movimiento de portadores de carga (electrones y agujeros) entre diferentes estados de energía debidos a las imperfecciones en la red cristalina del sólido. El estudio de la cinética del proceso TL implica entonces, la investigación de las transiciones electrón-agujero entre estados de energía relacionados con las diferentes imperfecciones (impurezas y defectos), tanto durante la irradiación de la muestra como durante el proceso de lectura.

Los diversos fenómenos relativos a la excitación TL y al proceso de lectura se describen con referencia a las transiciones de electrones y agujeros entre la banda de valencia y la de conducción del material TL y los estados localizados de los centros de atrapamiento y recombinación. La descripción de estos procesos se lleva a cabo mediante parámetros relacionados con las imperfecciones, tales como energía de activación o profundidad de la trampa (E), probabilidades de recombinación (p), factor de frecuencia o factor preexponencial (s).

Dichos parámetros determinan el tipo de cinética que se puede esperar; por ejemplo, linealidad de la respuesta TL en función de la dosis, dependencia de la rapidez de dosis durante la irradiación y primer orden, segundo orden o cualquier otro tipo de cinética durante la lectura⁽³¹⁾.

Asumiendo trampas para electrones y centros de recombinación para agujeros, y suponiendo que a una temperatura constante (T) se tienen n electrones excitados, existen dos mecanismos de transición radiativa posibles:

Cinética de primer orden. La recombinación es el proceso dominante sobre el reatrapamiento, por lo tanto, existe una probabilidad constante de que el número de electrones excitados disminuya; entonces, si, p denota la probabilidad de que un portador de carga escape de su trampa, y n , la concentración de portadores de carga retenidos en las trampas, se tiene:

$$p = \frac{-dn/dt}{n} \quad \text{o sea} \quad \frac{dn}{n} = -pdt \quad (2.1)$$

entonces n decae exponencialmente:

$$n = n_0 e^{-pt} \quad (2.2)$$

La intensidad de la TL (I , no confundir con el factor de corrección por supralinealidad) está relacionada con la razón de cambio de la concentración de electrones en sus estados excitados, porque es la recombinación de los electrones la que provoca la emisión de luz. Además la eficiencia en la emisión de luz es menor que la unidad; así

$$I = -c \frac{dn}{dt} \quad \text{donde} \quad c < 1 \quad (2.3)$$

Entonces I también decae en forma exponencial; por lo que tomando $c = 1$, para simplificar se tiene:

$$I = n_0 p e^{-pt} \quad (2.4)$$

Las condiciones iniciales $I=I_0$ para $t=0$, implican $I_0=n_0 p$; entonces, para una cinética de primer orden se tiene:

$$I = I_0 e^{-pt} \quad (2.5)$$

Cinética de segundo orden: En este caso la probabilidad de recombinación es proporcional al número de centros disponibles y se supone que existe un fuerte *re atrapamiento*.

$$p = -\frac{\left(\frac{dn}{dt}\right)}{n^2} \quad o \quad \frac{dn}{n^2} = -p dt \quad (2.6)$$

Por lo tanto, n decae en forma hiperbólica

$$n = \frac{n_0}{1 + n_0 p t} \quad (2.7)$$

La ecuación de decaimiento de la luminiscencia está dada entonces por:

$$I = -c \frac{dn}{dt} = c p n^2 \quad (2.8)$$

Tomando las condiciones iniciales $I=I_0$ para n_0 y $c=1$ se obtiene:

$$I = \frac{I_0}{(1 + a t)^2} \quad donde \quad a = (I_0 p)^{1/2} \quad (2.9)$$

La distribución estadística de los electrones atrapados en estados metaestables se puede considerar como una distribución en equilibrio; es decir, como una distribución de Boltzmann. Por tanto, la probabilidad p , de que un portador de carga escape de la trampa está dado por:

$$p = s \cdot e^{-E/kT} \quad (2.10)$$

donde:

s factor de frecuencia
 E energía de activación
 T temperatura (K)
 k constante de Boltzmann
 $1.38 \times 10^{-23} \text{ J} \cdot \text{K}^{-1}$
 $8.617 \times 10^{-5} \text{ eV} \cdot \text{K}^{-1}$

la rapidez con que se liberan los electrones es:

$$\frac{dn}{dt} = -np \quad \text{es decir} \quad \frac{dn}{dt} = -nse^{-E/kT} \quad (2.11)$$

donde:

n concentración de portadores de carga retenidos en las trampas

La intensidad de la luz emitida I , es proporcional a la rapidez de recombinación radiativa, es decir:

$$I = -c \frac{dn}{dt} = csne^{-E/kT} \quad (2.12)$$

de (2.11) se tiene:

$$\frac{dn}{n} = -se^{-E/kT} dt \quad (2.13)$$

Si se eleva la temperatura de obtención de la señal TL a una velocidad lineal, β , se tiene:

$$T = T_0 + bt \quad \text{o} \quad b = \frac{dT}{dt} \quad (2.14)$$

Despejando dt y sustituyendo en la ecuación (2.13) e integrando, se tiene:

$$\ln \frac{n}{n_0} = \int_{T_0}^T \frac{s}{b} e^{-E/kT} dT \quad (2.15)$$

$$n = n_0 \exp \left[- \int_{T_0}^T \frac{s}{b} e^{-E/kT} dT \right] \quad (2.16)$$

Esta expresión representa la variación de la densidad de portadores de carga atrapados en función de la temperatura. Si se sustituye en la ecuación (2.12) se obtiene una representación de la curva TL para un nivel único de atrapamiento (un pico en la curva TL).

$$I = c n_0 s e^{(-E/kT)} \left[\exp \left(- \frac{s}{b} \int_{T_0}^T e^{(-E/kT)} dT \right) \right] \quad (2.17)$$

Para segundo orden, se supone que existe un fuerte *re atrapamiento*, entonces:

$$I = - \frac{dn}{dt} = s' n^2 e^{-E/kT} \quad (2.18)$$

$$s' = \frac{s}{n_0} (cm^3 \cdot s^{-1}) \quad (2.19)$$

$$I(t) = s n_0 e^{-E/kT} \left[1 + \frac{s}{b} \int_{T_0}^T e^{-E/k'T} dT' \right] \quad (2.20)$$

Considerando una cinética de orden general se obtiene:

$$I = -\frac{dn}{dt} = s' n^b e^{-E/kT} \quad (2.21)$$

$$s' = \frac{s}{n_0^{b-1}} (cm^{3(b-1)} \cdot s^{-1}) \quad (2.22)$$

entonces:

$$I = s n_0 e^{-E/kT} \left[(b-1) \int_{T_0}^T e^{-E/k'T} dT' + 1 \right]^{-\frac{b}{b-1}} \quad (2.23)$$

La primera exponencial es responsable del crecimiento de la señal y representa la aceleración en la rapidez de liberación de portadores de carga a medida que aumenta la temperatura.

La segunda exponencial se origina del decrecimiento de la señal a consecuencia de la disminución en la densidad de portadores de carga en las trampas.

2.7. Deconvolución

Se han propuesto diferentes métodos de análisis de las curvas TL para la determinación de la energía de activación en este fenómeno^(35,36), sin embargo, la mayoría de ellos se basan en la presencia de un solo pico para su análisis, cosa que es muy difícil por la variedad de trampas con diferente energía, presentes en la mayoría de los sólidos cristalinos.

La deconvolución, es un método general que permite el ajuste de una curva compleja, como la suma de componentes elementales. Este método puede aplicarse en particular a curvas TL de varios picos.

Para este estudio Chen⁽³⁷⁾, nos muestra la ecuación (2.23) para una cinética de orden general de la siguiente forma:

$$I(T) = \frac{s^* n_0^b \exp\left(-\frac{e}{kT}\right)}{\left[1 + \frac{s^*(b-1)n_0^{(b-1)}}{q} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{e}{ku}\right) du\right]^{\frac{b}{(b-1)}}} \quad (2.24)$$

donde:

- T_0 es la temperatura inicial en kelvin
- T es la temperatura en kelvin (variable independiente)
- k es la constante de Boltzmann
- q es la rapidez de calentamiento en kelvin/segundo

Los parámetros a determinar son:

- s^* factor preexponencial ($\text{cm}^{3(b-1)}/\text{segundo}$)
- n_0 población de electrones atrapados (cm^{-3})
- b orden cinético
- e energía de activación (eV)

Es importante observar que cada uno de los parámetros a determinar en la expresión analítica de Chen para un pico, no están relacionados en forma explícita con la posición y la altura del pico. Por lo que López⁽³⁸⁾, optó por las siguientes expresiones:

$$I(T) = \frac{sn_0 \exp\left(-\frac{e}{kT}\right)}{\left[1 + \frac{s(b-1)}{q} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{e}{ku}\right) du\right]^{\frac{b}{(b-1)}}} \quad (2.25)$$

aquí

$$s = s^* n_0^{(b-1)}$$

La expresión anterior está en términos de: el factor de frecuencia s , el número de electrones atrapados inicialmente n_0 , el orden cinético b y la energía de activación e .

$$I(T) = \frac{I_m \exp\left(\frac{e}{kT_m} - \frac{e}{kT}\right)}{\left[1 + \left(1 - \frac{1}{b}\right)\left(\frac{e}{kT_m^2}\right) \int_{T_0}^T \exp\left(\frac{e}{kT_m} - \frac{e}{ku}\right) du\right]^{\frac{b}{(b-1)}}} \quad (2.26)$$

La expresión (2.26) está en términos de: la temperatura donde el pico alcanza su máxima intensidad T_m , la máxima intensidad TL I_m , el orden cinético b y la energía de activación e .

$$I(T) = \frac{I_m \exp(W(T - T_m))}{\left[\frac{1}{b} + \left(1 - \frac{1}{b}\right) \exp(W(T - T_m))\right]^{\frac{b}{(b-1)}}} \quad (2.27)$$

donde:

$$W = \frac{e}{kT_m^2}$$

Como se aprecia en la ecuación (2.27), es una expresión aproximada a la (2.26), se obtiene al aproximar el integrando con su serie de Taylor truncada hasta el término de primer orden⁽³⁸⁾.

También se observa en la ecuación (2.27) que es más fácil de evaluar ya que no aparece ninguna integral a calcular numéricamente, además ya se tiene relación gráfica con dos de los parámetros, T_m e I_m , así se podrán dar buenas estimaciones iniciales de estos parámetros a partir de la curva TL de los resultados experimentales.

Con respecto a los parámetros b y e se conocen los rangos para éstos, b gobierna los semianchos izquierdo y derecho de los picos en la curva TL, sus variables están entre 1 y 2, se puede iniciar con 1.5; e gobierna el ancho total de cada pico, sus valores están entre 0.5 y 3.0, se puede iniciar con 1.0 si el pico es ancho, con 1.7 o más si el pico es estrecho.

A partir de los parámetros: T_m , I_m , b y e ; se pueden obtener los parámetros: s , s^* y n_0 , es decir, existen funciones para calcular los tres últimos parámetros cuyas reglas de correspondencia dependen de los cuatro primeros.

La deconvolución de la curva TL de las muestras geológicas y arqueológicas se puede llevar a cabo mediante el *Software* matemático para la optimización no-lineal con restricciones de desigualdad y de caja, de *Fortran 77*, basado en el algoritmo de Programación Cuadrática Secuencial modelo Aproximado, de *Microsoft 77* llamado "PCSDTLA.FOR"⁽³⁷⁾. Después se procesan los datos obtenidos con el paquete *Lotus 123*, finalmente se obtienen las gráficas en *Harvard Graphics*, todo esto en una microcomputadora personal.

3. FECHAMIENTO POR TL

3.1. Antecedentes

La luminiscencia ha sido estudiada por muchos científicos a través de los años. En un artículo registrado ante la Royal Society el 28 de octubre de 1663, Robert Boyle relata las observaciones que realizó la noche anterior acerca del resplandor de un diamante en la oscuridad. Este fue el primer reporte de la termoluminiscencia, la cual es exhibida por muchos minerales y su intensidad varía en función de la composición de cada uno. La emisión de la luz ocurre esencialmente cuando una sustancia se calienta. Esta emisión de luz representa la energía liberada que ha sido retenida en la red cristalina del mineral, dicha energía es emitida por los electrones que habían sido atrapados en los defectos de la red cristalina por efecto de la radiación. Al calentar el material, por ejemplo, los electrones atrapados en los defectos son excitados y expulsados de las trampas o defectos de la red para después recombinarse con agujeros emitiendo luz.

No fue sino hasta principios de los años 40 en que, con la llegada del tubo fotomultiplicador (TFM), la TL fue considerada como la única herramienta para la identificación de minerales para usos geológicos, siendo por lo tanto el estudio del fenómeno, de interés en Física y Química. Después, a principios de los años 50, este método se usó para dosimetría de la radiación ionizante, a partir de los trabajos de Farrington Daniels en la Universidad de Wisconsin, donde este fenómeno fue sugerido para la determinación de la edad de muestras arqueológicas⁽³⁹⁾. En los inicios de los años 60, la TL fue aplicada por primera vez para fechar muestras de alfarería antigua en la Universidad de Berna⁽⁴⁰⁾ y en California⁽⁴¹⁾. Subsecuentemente durante esta década se incrementó el uso de esta técnica para fechamiento arqueológico^(12,42-46).

Actualmente diferentes laboratorios en el mundo consideran el uso de la TL como un método promisorio para fechar muestras geológicas del cuaternario y arqueológicas o para comprobar la autenticidad de cerámicas de arte⁽⁴⁷⁻⁵⁰⁾.

Una aplicación del fechado por TL realizada por Göksu en Birmingham⁽⁵¹⁾, permitió estimar edades del periodo paleolítico, más allá del intervalo del ^{14}C . La lava volcánica es obviamente otro material de interés geológico, aunque para este tipo de muestras ha habido dificultades inesperadas para su fechamiento^(52,53). El estudio de varios tipos de sedimentos en la antigua URSS, fueron importantes para la geología y la arqueología⁽⁵⁴⁻⁵⁶⁾. En todas las aplicaciones, los límites de fechamiento son dependientes de las características propias de cada material. La termoluminiscencia es también usada para el estudio de muestras de meteoritos y material lunar⁽⁵⁷⁻⁵⁹⁾.

Algunas otras técnicas para fechado mediante la liberación de electrones o vaciado de trampas son: la resonancia del spin electrónico (ESR), la emisión electrónica térmicamente estimulada (TSEE) y la luminiscencia fotoestimulada (PSL); esta última técnica tiene grandes ventajas, particularmente para sedimentos⁽⁶⁰⁻⁶⁴⁾.

3.2. Medición de la TL

Existen algunos minerales geológicos con una señal TL natural tan alta que es posible apreciar la emisión de la luz a simple vista, pero para propósitos de fechado generalmente se trabaja con niveles muy bajos de intensidad TL. Solamente con el uso del tubo fotomultiplicador (TFM) ha sido posible hacer de la TL un método atractivo para fechamiento. Cuando la luz incide en el fotocátodo (Fig. 3.1), se genera una emisión de electrones en el material fotoeléctrico (por ejemplo del tipo bialcalino tal como SbKCs) con el cual el fotocátodo ha sido recubierto. Estos electrones son atraídos por el polo positivo

en el primer dínodo y a causa del recubrimiento que posee éste (por ejemplo Sb-Cs), dos o tres electrones son emitidos por cada fotoelectrón que incide. Estos electrones son atraídos hacia el segundo dínodo, donde se incrementa la multiplicación. Con un buen TFM, digamos con diez dínodos, varios millones de electrones alcanzan al ánodo por cada electrón que sale del fotocátodo. De este modo hay una sucesión de pulsos eléctricos hacia el ánodo. Cada uno corresponde a la liberación de un fotoelectrón del fotocátodo debido a la llegada de un fotón de luz. Sin embargo, no todos los fotones liberan un fotoelectrón; la proporción del éxito o “eficiencia cuántica” es entre 0 y 25% dependiendo de la longitud de onda. Los pulsos del ánodo son amplificados y enviados a un contador, la cantidad de pulsos registrados es proporcional a la intensidad TL. Esta información llega finalmente a una PC donde es digitalizada y guardada para su análisis.

En un sistema convencional, se calienta la muestra eléctricamente por medio de un contacto de níquel-cromo (o tantalio); la muestra se encuentra generalmente en forma de polvo y se usan discos de 0.5mm de espesor y 1cm de diámetro, estos discos pueden ser de aluminio, acero inoxidable o plata. La temperatura se mide por medio de un termopar, comúnmente de “Cromel-alumel” el cual se conecta debajo de la plancheta o disco. Este termopar proporciona los valores de temperatura que se requieren para estudiar el comportamiento de la intensidad TL. El termopar también está acoplado a un sistema que permite el control sobre el calentamiento de la plancheta. Comúnmente se usan velocidades de calentamiento arriba de 20°C/s. Es de vital importancia que la velocidad de calentamiento sea reproducible de una lectura a otra. Desde principios de los años 80 existen métodos muy precisos de calentamiento directo, por ejemplo, de rayos láser, con los que se alcanzan altas velocidades de calentamiento del orden de 10^5 °C/s⁽⁶⁵⁾.

Otro aspecto muy importante para la medición de la TL es la selección de un buen filtro que permita la visualización de fotones de cierta energía de emisión. Generalmente un filtro óptimo proporciona una curva TL con los picos bien definidos para un determinado tipo de muestra.

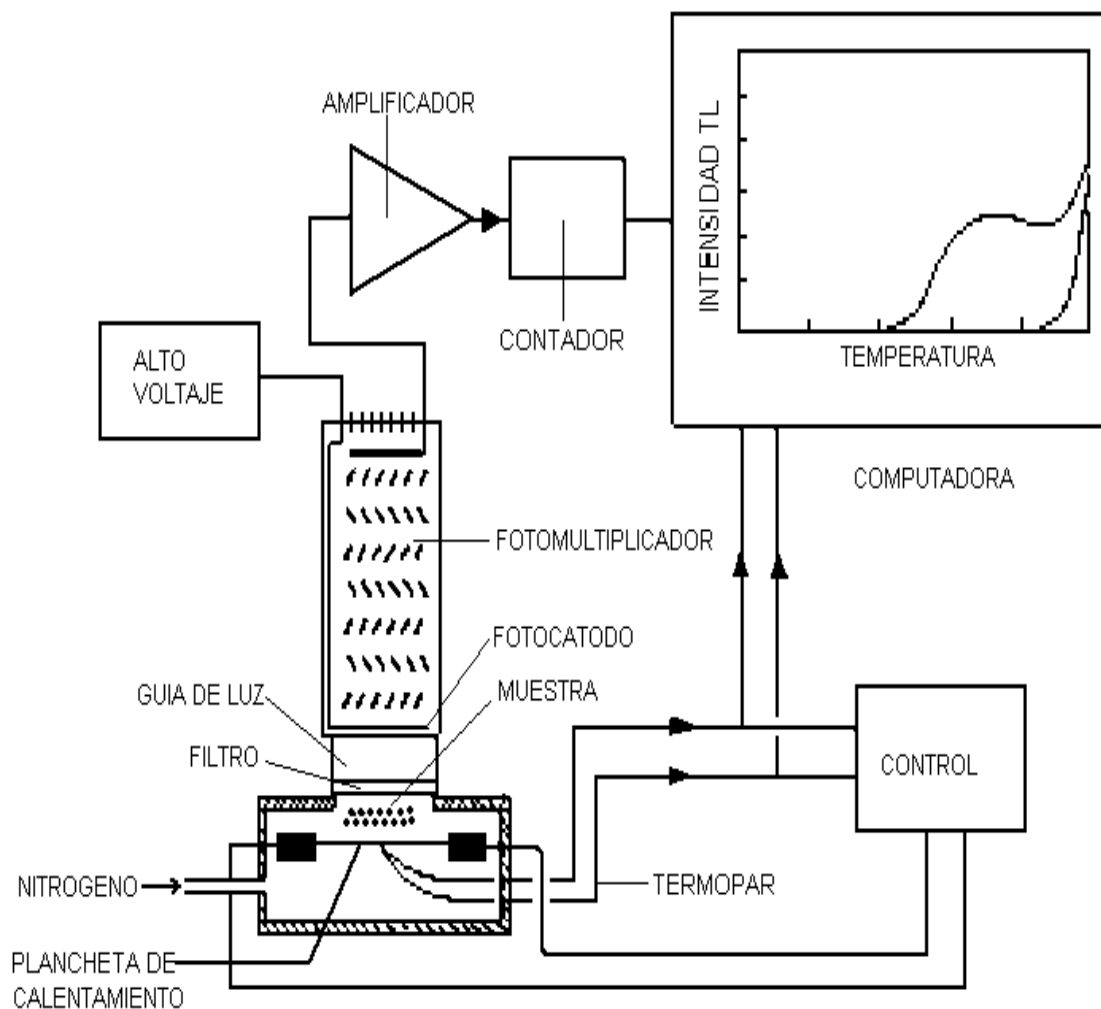


Fig. 3.1. Equipo lector de TL convencional.

En alfarería antigua es común la presencia de una gran variedad de minerales, cada uno a su vez con una gran variedad de trampas; como resultado de esto los picos TL individuales se superponen entre sí para formar un espectro continuo llamado comúnmente curva TL, como se muestra en la Fig. 3.2.

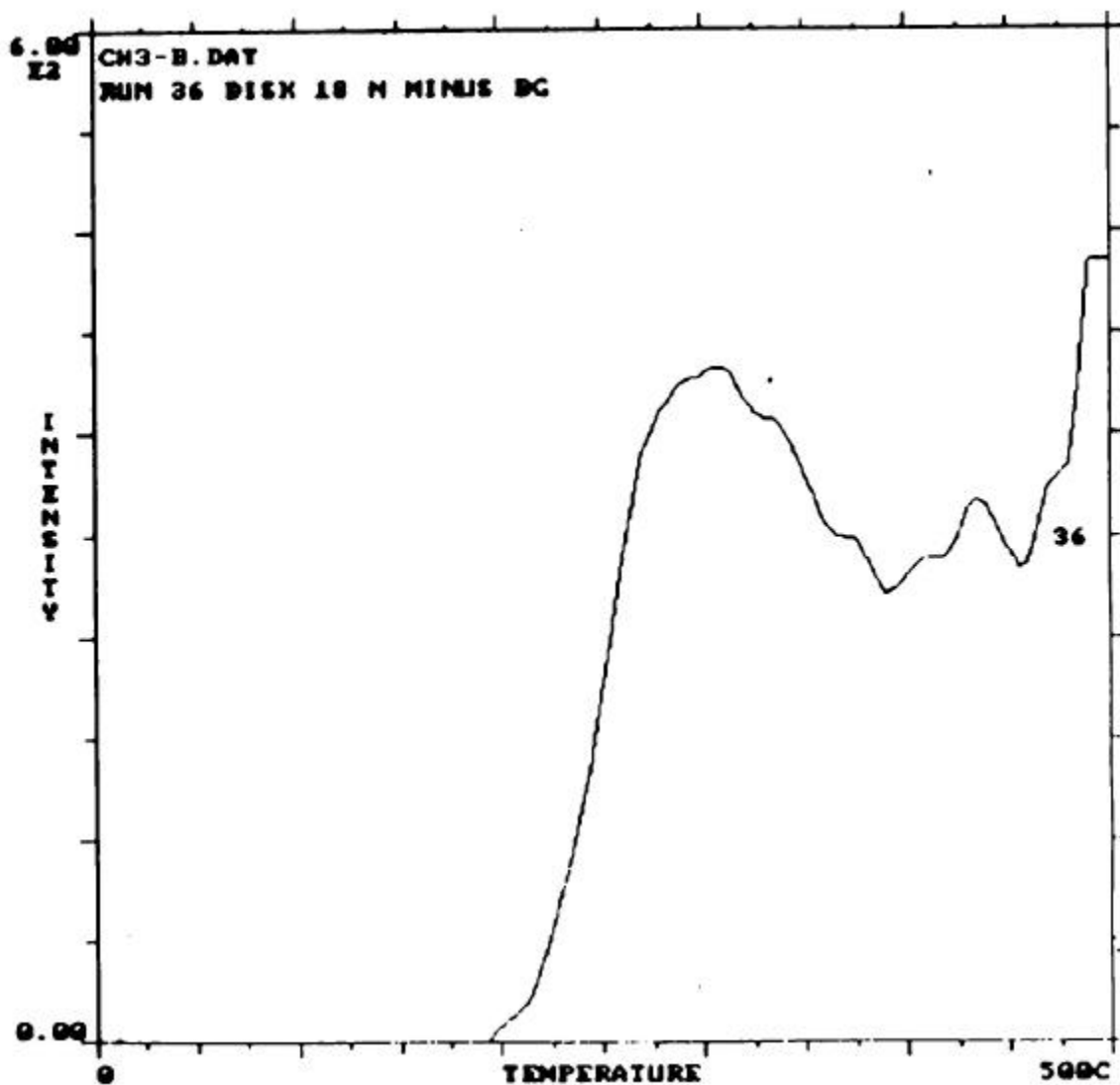


Fig. 3.2. Curva TL de una cerámica mostrando diferentes picos.

3.3. Estudio de la meseta

Como se mencionó anteriormente, la intensidad de la TL natural es proporcional a la dosis que han recibido los minerales presentes en la muestra de interés a lo largo de los años, por lo que la edad se puede expresar como:

$$Edad (años) = \frac{TL \text{ natural de los minerales}}{TL \text{ adquirida/año}} \quad (3.1)$$

Sin embargo, considerando la contribución de las partículas alfa (α), de las partículas beta (β), de la radiación gamma (γ), de la radiación cósmica (c), así como del factor de corrección por supralinealidad (I), de cada muestra a la radiación, la expresión anterior toma la forma siguiente:

$$Edad (años) = \frac{DN + I}{D_a + D_b + D_g + D_c} \quad (3.2)$$

donde:

DN = dosis natural (paleodosis)

I = factor de corrección por supralinealidad

D_a, D_b, D_g, D_c = tasa de dosis anual de radiación α , β , γ y cósmica respectivamente.

En la ecuación (3.1), solamente se considera la TL que corresponde a la región estable, con el estudio de la meseta se identifica claramente esta región. En el estudio de la meseta, la forma de la curva TL natural (la curva TL observada de una muestra que no ha recibido ninguna irradiación artificial en el laboratorio, Fig. 3.3a), se compara con la curva TL artificial, Fig. 3.3b, observada como resultado de la irradiación de la muestra por medio de una fuente artificial. En esta última se aprecia que una buena parte de la curva TL artificial está por debajo de los 200°C, y por arriba de esta temperatura se incrementa la razón de la TL natural respecto a la TL artificial de cero hasta una meseta por arriba de los 300°C. La región continua (Fig. 3.3c), indica claramente que las trampas son lo suficientemente profundas como para permanecer inalteradas a lo largo del tiempo. La estabilidad correspondiente de un pico, en una posición dada de la curva TL se incrementa muy marcadamente con el aumento de la temperatura; puesto que a 200°C puede corresponder a un tiempo de vida de pocos años, 300°C corresponden a un tiempo de vida de varios miles de años y 400°C a varios millones de años. De tal manera que la razón constante entre la curva TL natural y la artificial da una indicación de que, en el intervalo de esta región de la

meseta, ha habido una liberación despreciable de electrones desde el momento en que quedó sepultada la muestra hasta el momento de tomar las lecturas TL.

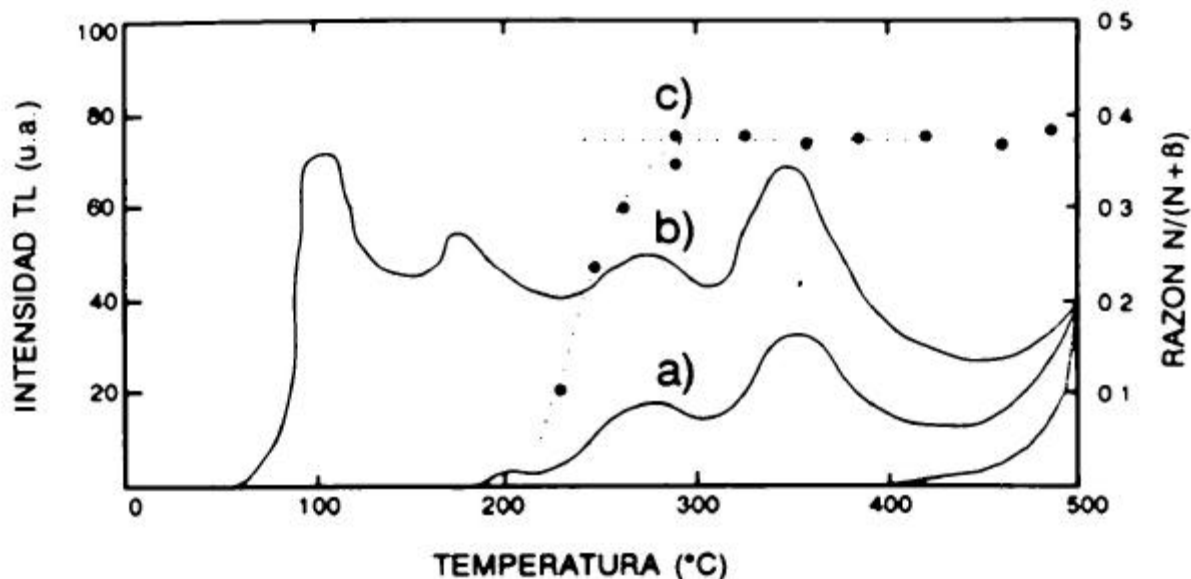


Fig. 3.3. Curvas termoluminiscentes
a) natural (TLN), b) natural + artificial (TLA), c) razón TLN/TLA.

El valor obtenido de la razón TLN/TLA, permite estimar el nivel de la TL natural. Sin embargo, dicho valor no es necesariamente el valor correcto de la dosis que la muestra recibió durante su exposición a lo largo del tiempo, la paleodosis, porque puede ser modificada por el efecto de supralinealidad. Por lo que en términos de paleodosis la ecuación básica de la edad (3.1) puede ser escrita como:

$$Edad = \frac{\text{paleodosis (Gy)}}{\text{tasa de dosis anual (Gy / a)}} \quad (3.3)$$

Donde la paleodosis suele ser representada en la literatura especializada por la letra *P*, otros términos usados para la paleodosis son; dosis acumulada, arqueodosis o dosis total. Es común usar el término de dosis equivalente “DE”

para una evaluación donde no ha sido considerada la corrección por supralinealidad. Sin embargo, para indicar la dosis equivalente se usa la letra Q , mientras que para indicar la corrección de supralinealidad se usa comúnmente la letra I . Por lo que la paleodosis estará finalmente indicada como:

$$P = Q + I \quad (3.4)$$

En vista de que los tiempos de vida de los electrones en las trampas han sido considerados a diferentes temperaturas de la curva TL, este tiempo de vida puede ser determinado en algún punto de la meseta. Puede ser adecuado utilizar los niveles de TL en la región arriba de 300 °C de la curva. Sin embargo, no se puede aplicar para todos los casos por las siguientes razones:

Las trampas de algunos minerales pueden verse afectadas por el fenómeno de desvanecimiento TL anómalo, que implica que la estabilidad observada es mucho menor a la predicha por métodos cinéticos. Una muestra que presenta un alto desvanecimiento TL anómalo no presenta una meseta bien definida. Por lo que se tendrá que realizar un estudio completo de almacenamiento para poder cuantificar la pérdida de la información por este fenómeno. En la práctica, se puede afirmar que aquellas muestras que presentan la meseta, son candidatas para un fechamiento por TL^(12,41).

Si la muestra no fue bien cocida de origen, la TL en el tiempo inicial no era necesariamente nula (cero tiempo - cero TL), esto es, que las trampas más profundas todavía contenían electrones acumulados durante tiempos geológicos. Esto puede causar un incremento de la meseta a altas temperaturas. Si la muestra fue cocida en forma muy rudimentaria o no fue cocida totalmente, entonces la TL geológica puede permanecer intacta. Excepto para minerales que han sufrido calentamientos geológicos relativamente recientes, en estos casos puede ser que no se presente bien definida la meseta o que se presente a temperaturas más altas.

Si la curva TL natural tiene una contribución de TL espuria, entonces elimina la meseta ya que esta contribución impide que la meseta se presente en el mismo intervalo de temperatura en la curva TL artificial.

La importancia de la TL espuria se debe a que al incrementarse la señal en un posible intervalo de la meseta, la razón TLN/TLA se incrementa, como es el caso de las muestras pobremente cocidas. La TL espuria tiende a variar de una porción a otra de la misma cerámica.

Finalmente existe la posibilidad de que las muestras hayan sido contaminadas en el momento de su preparación. Esto puede ser con algún material TL de alta sensibilidad tal como el sulfato de calcio o el fluoruro de litio, comúnmente presentes en el laboratorio para fines dosimétricos, o en el caso de estudios de autenticidad, con suelo o incrustaciones en la superficie del objeto a estudiar. La meseta puede ser anulada cuando la curva TL del contaminante no tiene la misma forma que la de la muestra verdadera. La interferencia puede también incrementarse por la presencia de residuos de otra muestra en los discos como algunos granos residuales en la misma plancheta.

Existen dos razones que no se pueden descartar por las cuales la meseta es mala. Estas razones son que el factor de corrección por supralinealidad y la eficiencia de las partículas alfa en relación con la radiación beta puede ser diferente para temperaturas diferentes de la curva TL. Sin embargo, las indicaciones anómalas de la meseta en estas condiciones se pueden evitar por la generación de la *meseta de edad*; para esto se calcula la edad a intervalos de 25°C de la curva TL, por ejemplo, haciendo las correcciones apropiadas para los dos efectos de intervalo en intervalo. Si la *meseta de edad* es mala, entonces

alguna de las causas antes mencionadas puede estar interfiriendo considerablemente por lo que la muestra debe ser descartada.

3.4. Técnicas de fechado por TL

Las dos técnicas básicas usadas para fechar piezas de cerámica, ladrillos, y tejas; son la técnica de inclusiones de cuarzo y la técnica de grano fino. La técnica de borrado parcial (blanqueo), se deriva de la técnica de inclusiones de cuarzo. En seguida se dan los principios básicos de estas técnicas y se describe el porqué éstas han sido las más apropiadas tanto para la comprobación de la autenticidad de una cerámica, ya sea utilitaria o artística como de su fechamiento⁽⁶⁶⁻⁶⁸⁾

3.4.1. Técnica de inclusiones de cuarzo⁽⁶⁹⁾

En esta técnica, la TL medida corresponde únicamente a los granos de cuarzo que se separaron del resto de la muestra, a los cuales se les ha retirado la parte que pudo haber sido irradiada por las partículas alfa de los alrededores donde quedó sepultada la muestra, teniendo la certeza de que las partículas alfa no han interaccionado con los núcleos del cuarzo por el corto alcance de éstas (el cual no excede de 0.05mm). El cuarzo puro está relativamente libre de radiactividad por lo que la dosis recibida en los centros de los cuarzoes se debe únicamente a la radiación beta, gamma y cósmica. Se separan los granos de aproximadamente 0.1mm de diámetro, donde se supone que solamente una capa muy delgada ha sido irradiada por las partículas beta. Haciendo una corrección por esta contribución del 10%, la ecuación de la edad para esta técnica se puede escribir como:

$$Edad = \frac{Paleodosis}{0.90D_b + D_g + D_c} \quad (3.5)$$

donde D es la dosis anual de la radiación incidente, c corresponde a la contribución de la radiación cósmica⁽¹²⁾.

3.4.1.1. Preparación de la muestra

Después de rebajarle por lo menos 2mm a la superficie de la muestra con la ayuda de discos recubiertos de diamante, los fragmentos de la cerámica son triturados a vacío. La capa exterior se desecha debido a que la señal TL de ésta corresponde a la contribución de la radiactividad del suelo. También porque esta señal TL no es constante por la posible exposición de la muestra a la luz del sol o porque el suelo en el que quedó sepultada la cerámica puede contener residuos de alguna muestra que contenga elevados niveles de TL geológica. El material obtenido después de la trituración es posteriormente molido en un crisol de ágata con mucho cuidado para no obtener granos demasiado pequeños, ya que el tamaño de grano apropiado para esta técnica es entre 90 y 120 μm . Los granos con el tamaño deseado son seleccionados por medio de tamices y posteriormente son separados por métodos magnéticos. Deben eliminarse las impurezas de calcita de la fracción cristalina con HCl diluido y los feldespatos son eliminados con HF concentrado. En todos los casos, la preparación de las muestras para fechamiento por TL, se debe hacer en ausencia de luz y solamente se podrá trabajar con la ayuda de luz roja, para evitar efectos de borrado de la señal TL en la muestra en cuestión.

3.4.1.2. Evaluación de la dosis geológica

El método más sencillo para la evaluación de la paleodosis, es por la medición precisa de la TL natural de una porción de granos de cuarzo de la muestra y comparando con la TL artificial de los mismos granos después de exponerlos a una dosis conocida (por ejemplo de partículas beta de ^{90}Sr , o radiación gamma de ^{60}Co o ^{137}Cs). Sin embargo, este procedimiento comúnmente proporciona solamente un valor aproximado a causa de que la sensibilidad puede sufrir algún cambio después de obtener la primera curva TL. Este cambio en la sensibilidad ocurre en casi todos los minerales, por lo que es conveniente el método del

incremento de la dosis. Una de las causas de este cambio es simplemente que la transparencia del material se ve afectada por el calentamiento.

3.4.1.3. Método del incremento de la dosis

Mediante el incremento de la dosis, se realizan las mediciones de cierto número de porciones de las muestras previamente pesadas. Varias de estas porciones se utilizan para la medición de la TL natural (TLN) y otras para medir la TL natural más la TL artificial (TLA). Después se realiza una normalización de acuerdo con la masa de la muestra. La intensidad TL se grafica en función de la dosis (Fig. 3.4), de donde se obtiene la dosis equivalente Q . La Q obtenida de este modo no necesariamente es igual a la paleodosis; esto es debido a que a bajas dosis, el crecimiento de la señal TL con la dosis es supralineal^(70,71).

El efecto de supralinealidad indica que la respuesta TL de ciertos minerales, no es proporcional a la dosis recibida, en este caso la señal emitida es mayor, mientras que en el efecto de sublinealidad la señal disminuye, como se muestra en la Fig.2.4. La explicación más aceptada para el fenómeno de supralinealidad esta dada en términos de la competencia entre electrones y trampas causadas por la radiación, pero que no generan TL, estas trampas se saturan más rápidamente que las trampas responsables de la TL, las cuales se saturan gradualmente con una sensibilidad TL constante. La competencia puede ocurrir durante la excitación (irradiación) o desexcitación (calentamiento) de los cristales^(13, 72-76).

Los minerales que presentan el efecto de supralinealidad, generalmente conservan esta propiedad después de varios ciclos de calentamiento, esto es,

después de haber obtenido varias lecturas. Esto permite medir experimentalmente dicho fenómeno al regenerar la señal TL en las muestras que fueron previamente leídas. La condición es que las dosis artificiales deben ser las mismas que se dieron para la determinación de la dosis equivalente Q (1β , 2β , 3β , etc.). Además en ningún caso se deben tomar en cuenta para esta prueba, muestras que hayan recibido con anterioridad alguna dosis artificial, para evitar la contribución de alguna señal remanente en la muestra causada por la radiación. Con las lecturas obtenidas en la regeneración de la señal TL a diferentes dosis, se grafica nuevamente dosis contra intensidad TL y mediante un ajuste por mínimos cuadrados se obtiene una curva de calibración como la de la Fig. 3.5, donde por extrapolación se determina la dosis que le corresponde a una intensidad $y=0$, esta dosis comúnmente se conoce como factor de corrección por supralinealidad I . Usando la intersección I , la paleodosis P , sería $Q+I$. La validez de esta consideración se debe a que el valor de I no ha sido cambiado con el calentamiento de la primera lectura^(12,68).

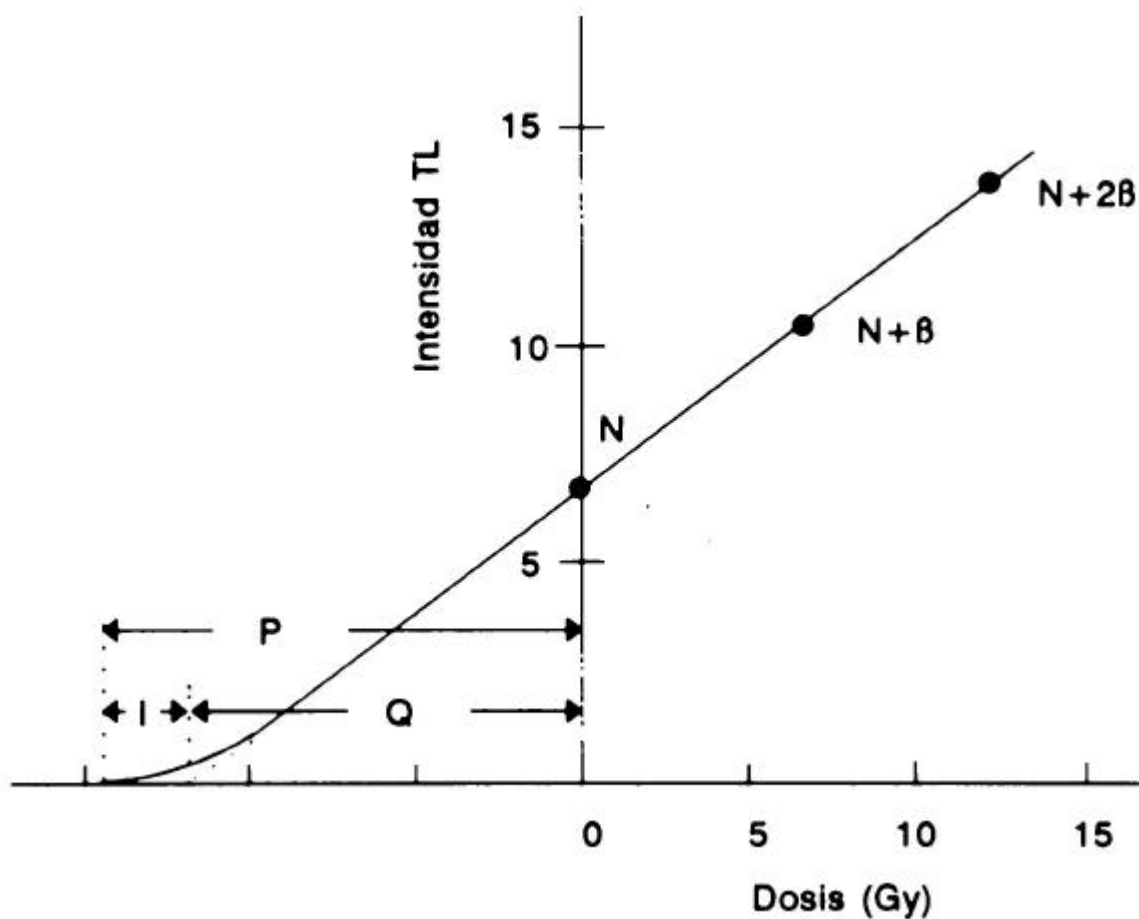


Fig. 3.4. Método de incremento de la dosis
 N es la TL natural (TLN), $N+nb$ es TL natural más la artificial (TLA), I es el factor de corrección por supralinealidad, Q es la dosis equivalente y P es la paleodosis,

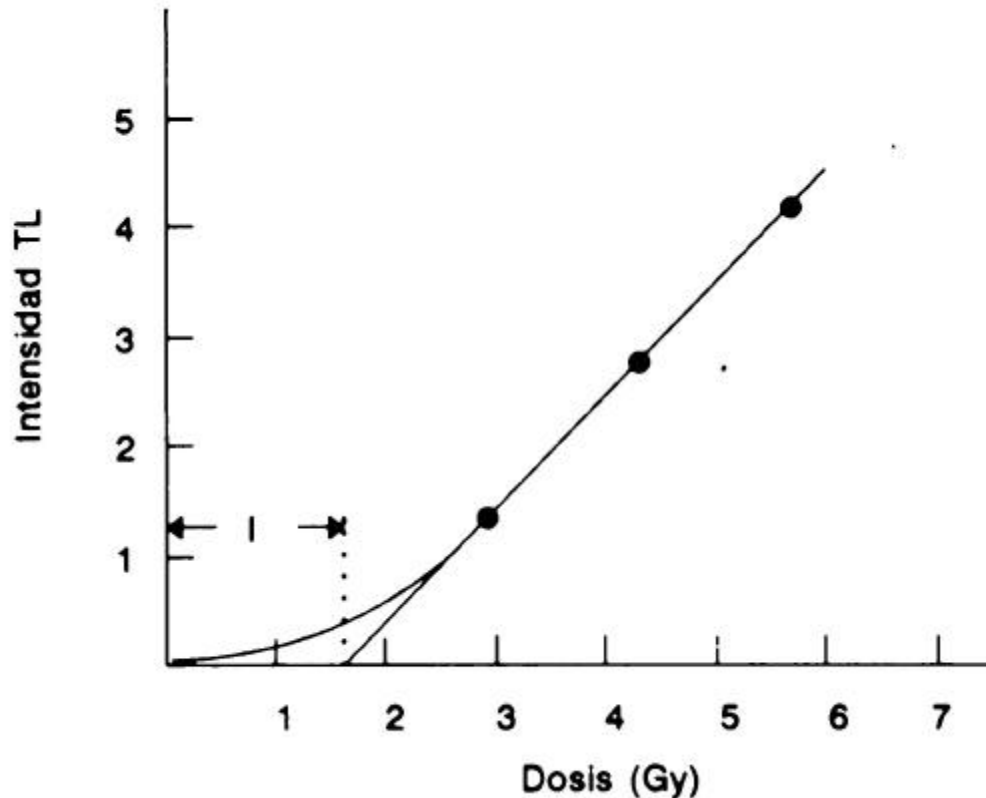


Fig. 3.5. Regeneración de la señal TL.

3.4.1.4. Tasa de dosis anual

Se usan una gran variedad de técnicas para la determinación de la dosis anual. Sin embargo, casi en todas existen serias complicaciones, por lo que solamente comentaremos las más comúnmente usadas. En el método TL, se han usado dos tipos de materiales TL de alta sensibilidad, el fluoruro de calcio natural y el sulfato de calcio artificial (dopado con disprosio). Estos materiales en pocas semanas de exposición muestran una intensidad TL que se puede medir correctamente. Un método desarrollado por Bailiff⁽⁷⁷⁾, para medir la dosis anual de radiación beta con un material TL se muestra en la Fig. 3.6.

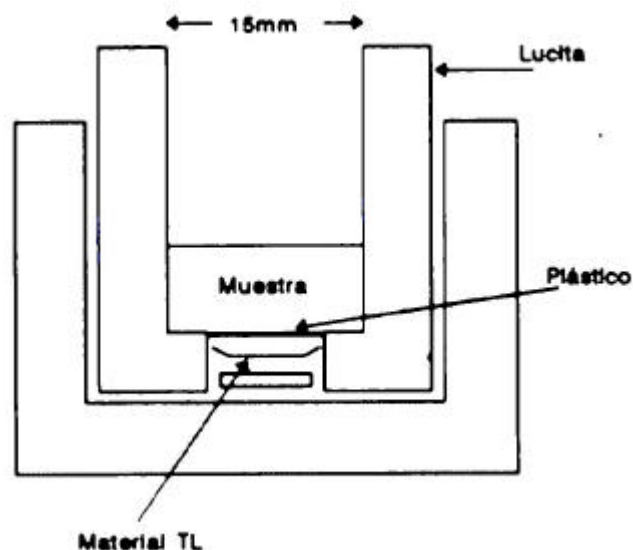


Fig. 3.6. Sistema para medir la dosis de radiación beta.

Se coloca aproximadamente 1mg de la cerámica en el contenedor de plástico; en el fondo de este contenedor hay una ventana de plástico muy delgada (de 0.18mm de espesor) por la que pueden pasar únicamente las partículas beta, evitando el paso de las partículas alfa. El dosímetro TL en forma de polvo se coloca lo más cercano posible debajo de la ventana, dicho material está contenido en un disco de cobre con un diámetro de 10mm, y se ha fijado en el disco con silicón. Con un equipo lector convencional se mide la TL adquirida durante varias semanas de exposición, colocando el disco que contiene el material TL directamente a contacto con la plancheta de calentamiento del equipo lector. La dosis medida por el material TL es menor que la del centro de la cerámica, debido a que las partículas llegan al dosímetro solamente de un solo lado y porque hay alguna absorción en la ventana. Por medio de muestras con concentraciones conocidas de potasio, torio y uranio se puede evaluar comparativamente entre la muestra problema y la muestra testigo.

El alcance de las partículas beta en la cerámica es de sólo unos milímetros por lo tanto un diámetro de la muestra de 1cm o más es efectivamente infinito; por lo que, aunque se incremente el diámetro de la muestra, la dosis recibida por el dosímetro permanece constante. Con radiación gamma la situación es completamente diferente, debido al largo alcance de este tipo de radiación, el cual es mayor que 30cm en el suelo. Por lo que la dosis que reciben los granos de cuarzo en una muestra de pocos centímetros, proviene completamente del suelo donde se tomó la muestra.

La tasa de dosis dentro de la muestra, es afectada por el contenido de humedad ya que parte de la radiación es absorbida por el agua presente en la muestra. Por conveniencia se evalúa la dosis en condiciones secas y posteriormente se aplica el factor de corrección por efecto de la humedad, por lo que se debe estimar el contenido de agua durante el tiempo que permaneció sepultada la muestra, así como el grado de saturación de la humedad.

La incertidumbre en la determinación de la humedad repercute en la exactitud de la edad que se puede obtener con el fechado por TL; también afecta el grado de pérdida de humedad durante el tiempo que la muestra ha estado sepultada, por lo que tanto el contenido de agua como el grado de saturación deben determinarse antes de la trituration de la muestra.

Para la medición de la tasa de dosis de radiación gamma, es más práctico hacer las mediciones en el sitio arqueológico con dosímetros TL, que llevar grandes cantidades de suelo al laboratorio. Para determinado sitio de interés, el material TL se coloca en cápsulas de cobre y se cierra perfectamente, se fija a la cápsula una cuerda para su recuperación y se introduce en una fosa con una profundidad de por lo menos 30cm, donde permanecerá durante varios meses o años. Esta cápsula después del periodo de exposición, se lleva al laboratorio

donde se extrae el material TL para tomar las lecturas correspondientes y con el promedio de éstas se determina la dosis en una curva de calibración previamente elaborada. Esta dosis también incluye la contribución de los rayos cósmicos.

3.4.2. Técnica de borrado parcial

Uno de los problemas para el fechamiento es que se desconoce la señal TL geológica que tenían los minerales al momento en que se depositaron, en el caso de que la cerámica no hubiera sido bien cocida. La técnica de borrado parcial nos permite evaluar la TL remanente en el momento que fueron depositados los cristales. En cerámicas casi no se usa esta técnica, pero en el fechamiento de sedimentos o dunas, ésta resulta casi imprescindible para la obtención de buenos resultados. Con esta técnica, mediante el estudio de la meseta se llega a determinar eficientemente la edad de cualquier muestra.

La preparación de las muestras es enteramente igual a la técnica anterior. En este método, un buen número de discos con muestra son expuestos directamente a la luz del sol por diferentes periodos de tiempo, para obtener un intervalo de intensidad TL residual. Con los valores obtenidos se obtiene la gráfica de la misma forma que con el método de incremento de la dosis o la técnica de regeneración, obteniéndose de esta forma una serie de paleodosis (Figs. 3.7a y 3.7b). Con los valores obtenidos de las paleodosis, se vuelve a graficar, sólo que ahora en función de la temperatura. A cada muestra con diferente periodo de exposición a la luz del sol, le corresponderá una curva característica, como se muestra en la Fig. 3.8. De esta gráfica se determinará la paleodosis verdadera en la curva que presente la meseta mejor definida y más extensa, como la Fig. 3.8b⁽⁷⁸⁾.

La base de este método es que la señal residual que se grafica como una función de la temperatura, varía en forma sistemática con el grado de borrado por la luz

del sol. Sin embargo, una larga meseta extendiéndose hasta cerca de los 500°C, se puede obtener solamente cuando el nivel residual, es semejante al que estuvo presente en el momento en que se depositó el sedimento o duna^(78,79).

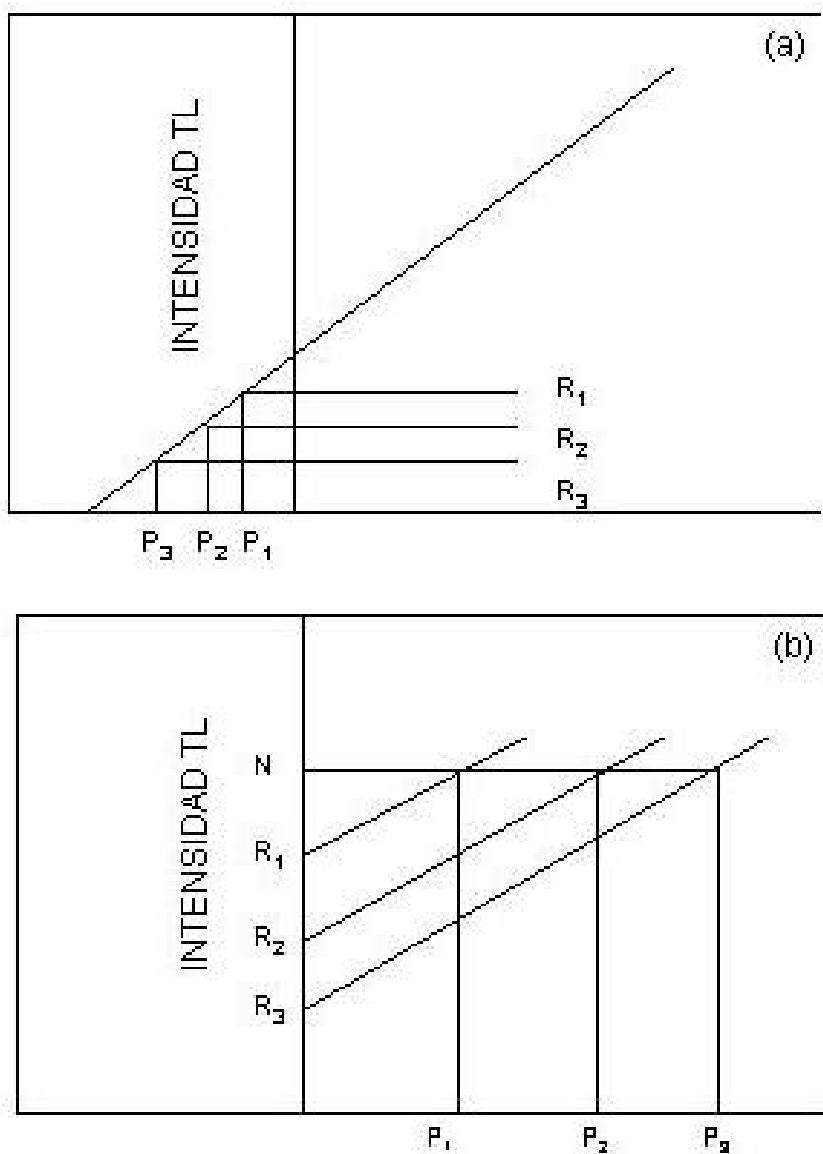


Fig. 3.7. Determinación de diferentes paleodosis
 (a) Método del incremento de la dosis
 (b) Método de regeneración de la señal TL

R_n es la intensidad TL residual al tiempo n
 P_n es la paleodosis correspondiente

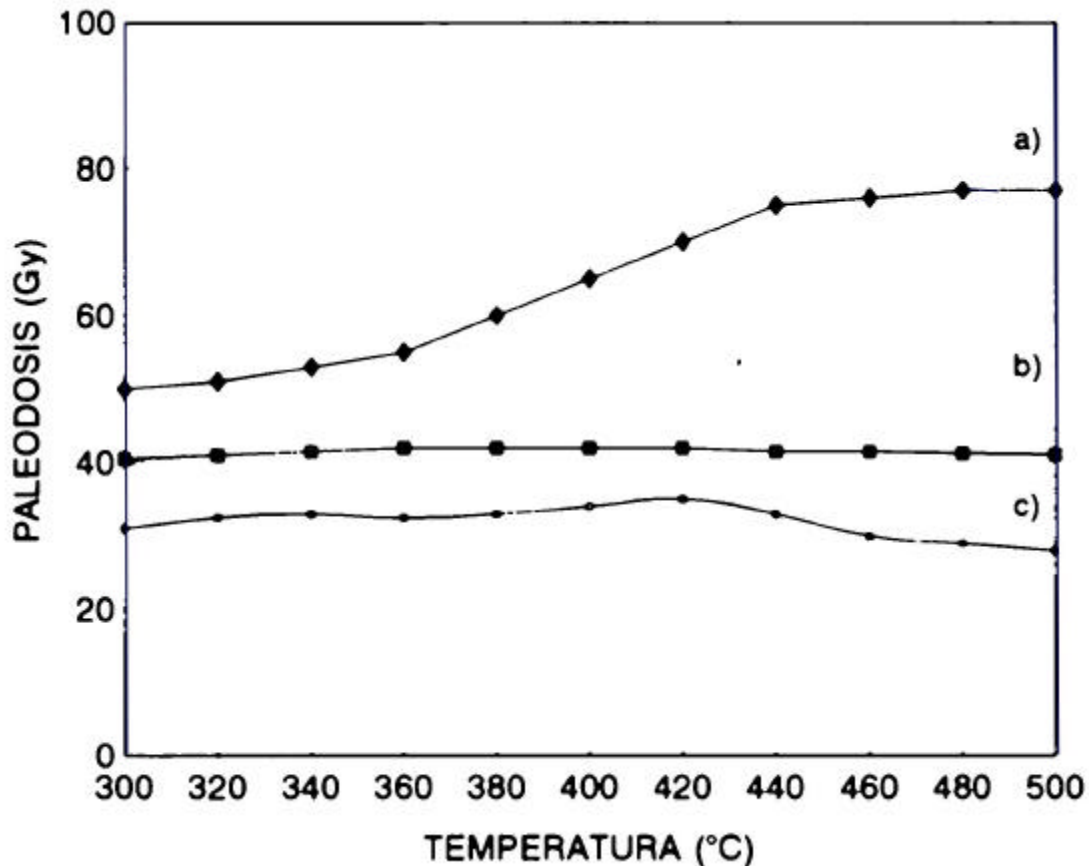


Fig. 3.8. Paleodosis vs temperatura
a), b) y c) corresponde a diferente periodo de tiempo de exposición al sol.

3.4.3. Técnica de grano fino⁽⁸⁰⁾

Esta técnica se usa principalmente para cerámicas, es indispensable considerar los dos conceptos siguientes: Primero, los granos que se van a estudiar deben ser lo suficientemente pequeños (entre 4 y 11 μm) para que las partículas alfa puedan interaccionar en toda la masa del grano, estas proporcionarán la dosis correspondiente a la radiactividad de la matriz. Es por supuesto esencial que solamente se trate de los granos obtenidos del proceso de trituración y tamizado de la muestra. Segundo, que con los granos obtenidos se puedan preparar capas muy delgadas para poder medir la eficiencia de éstos a las partículas alfa. Una

ventaja básica es la influencia que ejercen estas partículas sobre la respuesta TL de la muestra. Otra razón por la que se requiere de esta técnica alternativa es la opacidad que presentan los granos de cuarzos (técnica anterior) de algunas cerámicas fabricadas. Por otro lado, los granos finos usados en esta técnica contienen una mezcla de minerales desconocidos y existe el riesgo de que algunos de estos puedan tener características adversas a la TL, tales como desvanecimiento anómalo de la señal. Por lo que se debe poner un riguroso control en la preparación de las muestras.

3.4.3.1. Preparación de las muestras

Los fragmentos de cerámica se trituran de la misma forma que en la técnica de inclusiones de cuarzos. Posteriormente el producto se lava con acetona, se obtiene una suspensión de granos finos, en un baño ultrasónico para evitar la coagulación. Los tiempos establecidos para la separación están en función del diámetro del grano, así por ejemplo se separan los granos con tamaño entre 1 y 8 μm con tiempos de 20 y 2 minutos respectivamente, en una columna de 60 milímetros de acetona. Con los granos separados mediante el proceso anterior se prepara una suspensión en acetona, para después depositarlos en los discos de aluminio (comúnmente de 10mm de diámetro y 0.5mm de espesor) de tal forma que se deposite sobre el disco una capa muy delgada, del material de interés (del orden de pocos μm de espesor); para esto, los discos se colocan en el fondo de tubos de vidrio, los cuales a su vez, se han clasificado sobre gradillas de plástico. El resto de la acetona se elimina por evaporación. Comúnmente se preparan alrededor de sesenta discos con muestra para obtener las lecturas TL con una dispersión que no podrá ser mayor de $\pm 5\%$. Para el manejo de los discos que contienen la muestra de interés, éstos deberán ser bien identificados y colocados en contenedores planos, preferentemente de plástico. Los granos de menor tamaño son desechados ya que estos presentan una TL espuria muy elevada.

3.5. Eficiencia de las partículas alfa

Como se mencionó anteriormente, las capas muy delgadas de la muestra permiten medir la TL efectiva causada por las partículas alfa. También se mencionó que para una dosis (en términos de energía depositada) este tipo de radiación es menos efectiva que la radiación beta y gamma. La proporción entre la radiación alfa y la radiación beta es estimada por medio del valor k determinado para la muestra. La sensibilidad a la radiación alfa se puede medir usando una fuente calibrada tal como ^{241}Am , empleando el mismo método de incremento de la dosis como se ilustra en la Fig. 3.4; de donde se obtiene Q_a que puede inducir un nivel de TL igual a la TL natural considerado frecuentemente como equivalente de dosis alfa. Entonces tanto Q_a como Q , el equivalente de dosis beta, son inversamente proporcionales a la sensibilidad respectiva, esta relación se puede escribir como:

$$k = \frac{Q}{Q_a} \quad (3.6)$$

donde Q es determinada usando una fuente calibrada de radiación beta, de la misma forma que en la técnica de inclusión de cuarzo. Para este propósito se requiere que la masa de la muestra depositada en los discos sea la misma. Sin embargo, como no se puede evitar una pequeña variación, para fines estadísticos se deben tomar varias lecturas para la elaboración de la curva de calibración y así poder determinar Q .

La TL efectiva de una partícula alfa depende de su energía, por lo que el valor Q_a antes de ser incluido en la ecuación (3.6), debe ser corregido por la diferencia entre la energía del espectro de la fuente alfa y la de la dosis natural proveniente del torio (Th) y uranio (U). De acuerdo con Zimmerman⁽⁸⁰⁾, si se usa una energía

de 3.7MeV para evaluar Q_α entonces el valor obtenido directamente debe ser dividido por 0.85 antes de insertarse en la ecuación (3.6). En la práctica, una importante consideración con respecto a la energía, es que la placa de muestra depositada en los discos sea lo suficientemente delgada para que toda la muestra sea alcanzada por las partículas alfa; de otra forma el valor obtenido de k puede ser erróneamente más bajo⁽⁸¹⁾.

3.6. Efecto de la humedad

El agua presente en los poros de la cerámica absorbe parte de la radiación, que de otra forma alcanzaría a los granos termoluminiscentes, por lo tanto el agua disminuye la intensidad TL por unidad de masa. Así el grado de pérdida o ganancia de humedad en la muestra durante el periodo de entierro es un serio obstáculo para la exactitud de la edad calculada.

Para cerámicas, el nivel de saturación puede ser muy bajo, cercano a 5% para fabricaciones compactas; pero muy alto, cercano a 25% para cerámicas no muy bien cocidas. Los materiales más porosos como el suelo presentan valores probables entre 20-40%. El problema para la determinación de la saturación ya sea en cerámica o en suelo se debe a que no se conocen en muchos de los casos el tamaño y distribución de los poros. También existen dudas acerca de la saturación en el pasado, ignorándose si se debe a cambios climáticos naturales o por la interacción del hombre en el drenado del sitio. Excluyendo las condiciones secas, se ha llegado a promediar el contenido de agua (F) como $(0.8 \pm 0.2)W$. Donde W es el contenido de saturación expresado como (peso húmedo / peso seco), F es el contenido de agua retenido durante el periodo de entierro y dF como la incertidumbre, esto quiere decir que $F = 0.8$ y $dF = 0.2$.

Como se mencionó anteriormente, el agua absorbe una cantidad de radiación en función de la masa de la muestra. Para cerámicas se ha estimado, que el

coeficiente de absorción en el agua es de 50% para el caso de partículas alfa, 25 y 14% para partículas beta y radiación gamma respectivamente⁽¹²⁾. Consecuentemente, si la rapidez de dosis ha sido evaluada por la medición en material seco, el valor actualizado para usarse en la ecuación de la edad (3.3) estará dado por:

$$D_a = \frac{D_{a, \text{seco}}}{1 + 1.5WF} \quad (3.7)$$

$$D_b = \frac{D_{b, \text{seco}}}{1 + 1.25WF} \quad (3.8)$$

$$D_g = \frac{D_{g, \text{seco}}}{1 + 1.14W_l F} \quad (3.9)$$

donde W se refiere a la muestra y W_l al suelo. La incertidumbre esperada considerando $dF \pm 0.2$ para $F = 0.8$, representa la incertidumbre resultante en la edad calculada mediante la técnica de inclusiones de cuarzo.

La incertidumbre antes expresada en F produce un 7% de desviación en la edad calculada para cerámicas (alfarería) y suelo, teniendo respectivamente 20 y 40% de porosidad.

A causa del corto alcance de las partículas alfa en la cerámica, cercano a 20 μm , es difícil saber si el agua interviene en su trayectoria. Sin embargo, los poros de la cerámica son muy finos, una proporción substancial de estos sigue siendo menor que 10 μm de diámetro; no obstante la posibilidad de que el efecto de la humedad en la dosis de radiación alfa sea menor que aquel dado por la ecuación (3.7) no puede ser generalizado⁽¹²⁾.

Zimmerman⁽⁸⁰⁾, recomienda que después de hacer las evaluaciones de la tasa de dosis, tanto de la muestra como del suelo en condiciones secas, éstas deben ser corregidas por el efecto del agua de acuerdo con las siguientes ecuaciones:

$$D_a = \frac{D_{a \text{ seco}}}{1 + \left(\frac{\text{muestra con agua}}{\text{muestra seca}} - 1 \right) \frac{s / r(\text{agua})}{s / r(\text{muestra})}} \quad \frac{s / r(\text{agua})}{s / r(\text{muestra})} = 1.50 \quad (3.10)$$

$$D_b = \frac{D_{b \text{ seco}}}{1 + \left(\frac{\text{muestra con agua}}{\text{muestra seca}} - 1 \right) \frac{s / r(\text{agua})}{s / r(\text{muestra})}} \quad \frac{s / r(\text{agua})}{s / r(\text{muestra})} = 1.25 \quad (3.11)$$

$$D_g = \frac{D_{g \text{ seco}}}{1 + \left(\frac{\text{muestra con agua}}{\text{muestra seca}} - 1 \right) \frac{m_{en} / r(\text{agua})}{m_{en} / r(\text{muestra})}} \quad \frac{m_{en} / r(\text{agua})}{m_{en} / r(\text{muestra})} = 1.14 \quad (3.12)$$

donde

s/r es el poder de frenado másico

μ_{en} es el coeficiente de absorción de energía

La razón entre el poder de frenado másico (s/r) y el coeficiente de absorción de energía (m_{en}/r) se obtiene de las tablas estándar^(82,83), suponiendo que los valores para la cerámica y para el suelo, son los mismos que para el aluminio⁽⁸⁰⁾.

Para evaluar las ecuaciones antes mencionadas, es necesario estimar el contenido de agua en el momento de tomar la muestra en el sitio de interés, así como el grado de saturación de ésta. Este valor “in situ” se puede evaluar por la recolección de los pedazos de cerámica y del suelo en contenedores herméticamente cerrados para evitar que puedan absorber humedad del medio ambiente durante el trayecto al laboratorio, donde se pesan para determinar el contenido de agua que han retenido con el tiempo. Posteriormente las muestras se introducen en recipientes donde son cubiertas totalmente por el agua, permaneciendo por varios días. Finalmente se sacan y se deja escurrir el resto de agua, cuando la muestra presenta el aspecto de humedad y no de mojada se procede a tomar el peso correspondiente. Este método, permite obtener valores para aquellos casos donde es difícil medir el grado de saturación, como es el caso de suelos.

3.7. Efecto del radón en la dosis anual

Tal como se menciona en capítulos anteriores, en la cadena de decaimiento del ^{238}U hay un producto de decaimiento, el ^{222}Rn , el cual es un gas inerte químicamente. Consecuentemente es capaz de moverse libremente en los poros de la cerámica, a través del suelo y liberarse a la superficie. El movimiento del radón es solamente suspendido por su propio decaimiento a ^{218}Po . Como la vida media del radón es de 3.82 días, tiene tiempo suficiente para difundirse más de un par de centímetros sobre el suelo. De este modo, en fechamiento por TL debe tomarse en cuenta la liberación de este elemento, ya que para una cerámica y suelo con una pérdida del 100% del radón, la tasa de dosis anual disminuye en un 25 y 20% para la técnica de grano fino y para la técnica de inclusiones de cuarzo respectivamente. Sin embargo, la mayoría de las cerámicas tienen poros muy estrechos y generalmente contienen suficiente humedad, por lo que la liberación del radón es de aproximadamente del 20%⁽¹²⁾.

Un método de evaluación del radón es mediante el contador de partículas alfa, en el cual se coloca la muestra directamente sobre una capa muy delgada de sulfuro de zinc, usando una nueva capa de sulfuro para cada muestra. La capa delgada se puede preparar sobre una cinta adhesiva muy delgada y colocada sobre un anillo de plástico. El diámetro del anillo debe ser preferentemente de 42mm. El anillo de plástico con la muestra se coloca sobre la cavidad de lucita que está sobre el tubo fotomultiplicador y se inicia la medición que será dada en cuentas/kseg. Todo el proceso debe realizarse en condiciones mínimas de luz, de preferencia solamente con la ayuda de una lámpara con filtro rojo.

Cada centelleo de luz producido por una partícula alfa en el sulfuro de zinc causa fotoelectrones que son emitidos al fotocátodo del fotomultiplicador, iniciando la acción de multiplicación en la cadena de díodos, por un factor de alrededor de un millón de pulsos eléctricos son obtenidos en el ánodo. Estos pulsos son contados por medio de circuitos electrónicos después de pasar por un discriminador. De esta forma los pulsos causados por la radiación beta y gamma son rechazados. Las cuentas se registran a intervalos regulares de tiempo, generalmente en periodos de kilosegundos. Finalmente, con las cuentas obtenidas se hacen las conversiones apropiadas para obtener las dosis correspondientes⁽¹²⁾.

Para evaluar la cantidad de radón que se libera de la muestra, se debe medir la cantidad de partículas alfa primero en un recipiente sellado y después medir nuevamente en un recipiente abierto, por diferencia se conoce el número de partículas alfa que libera el radón.

Otro método usado para medir la liberación de radón es mediante el uso de detectores sólidos de trazas nucleares. Estos dispositivos tienen la finalidad de medir el número de marcas que dejan las partículas alfa en un determinado periodo de tiempo⁽⁸⁴⁾.

Estos detectores son generalmente películas delgadas de nitrato de celulosa, las cuales requieren de procesos químicos y de un contador de chispa⁽⁸⁵⁾. Al incidir las partículas alfa en estos materiales, forman regiones de daño intenso a escala atómica, estas regiones pueden presentarse como un cilindro de material que ha sufrido ionización y desplazamientos atómicos alrededor de la trayectoria de las partículas. El resultado son cambios estructurales permanentes en la materia original. A la región afectada a lo largo de la trayectoria de las partículas, se le conoce como traza latente. El radio del cilindro es de solo unas cuantas docenas

de angstroms. En materiales aislantes a temperatura ambiente, la traza latente es permanente. En materiales conductores, por el contrario, no se observan trazas permanentes debido a que la movilidad de los electrones del material permite la regeneración del daño provocado por la partícula, de manera que el material vuelve a su forma original antes de que se forme cualquier traza incipiente. Dado el tamaño de la traza latente, es preciso amplificarla. Un método sencillo, consiste en sumergir el material irradiado en solvente químico que ataque en forma preferente a la región dañada. Esto da lugar a pequeños canales huecos en el material en los sitios donde se formaron las trazas latentes estas cavidades se denominan trazas reveladas. El diámetro superficial de estas trazas puede llegar a medir unas cuantas micras, lo que las hace observables por microscopía óptica convencional⁽⁸⁶⁾.

Los detectores de trazas son generalmente insensibles a radiación beta y gamma. Para el caso de las partículas alfa emitidas por el radón se utilizan en general plásticos. Las películas de nitrato de celulosa conocidas comercialmente como LR-115, dan resultados proporcionales a la concentración del radón y la de sus productos de decaimiento⁽⁸⁷⁾.

3.8. Límites de error

La incertidumbre en la edad de una cerámica o lava, por ejemplo, es tan importante como la edad misma, ya que en algunos casos la incertidumbre está entre los límites de la transición de un periodo histórico o geológico, por lo que se deben considerar todas las fuentes posibles de error. Generalmente se consideran dos principales fuentes; errores fortuitos que suelen ocurrir durante el desarrollo experimental, tales como el análisis de las curvas TL de cada muestra, la determinación de la concentración de los diferentes elementos que contribuyen a la tasa de dosis anual, etc. y errores sistemáticos, que están involucrados con la calibración de equipo, como por ejemplo, las fuentes de irradiación, los detectores de centelleo, etc.

Independientemente de si la fuente de error es fortuita o sistemática, se considera el porcentaje de error de cada uno de los parámetros o cantidades medias para obtener finalmente el error global como la raíz cuadrada de la suma de los cuadrados de los errores individuales. Suponiendo que la dispersión de los valores tiene una distribución gausiana, la desviación estándar s se usa para la medición del límite de error^(12,68).

3.8.1. Error en la medición de la TL

Los errores del primer tipo de fuente se determinan de Q e I mediante el análisis de las curvas TL, así como en la determinación de los diferentes componentes que influyen en la tasa de dosis anual. Considerando σ_f , como la dispersión de estos errores se tiene:

$$s_f^2 = s_1^2 + s_2^2 \quad (3.13)$$

Si dQ , dI y dk representan la incertidumbre de Q , I y k con un nivel de confianza del 95.5%, entonces el porcentaje de error correspondiente en la edad s_1 , está dado por:

$$s_1^2 = \left[100(1 - f_a) \frac{dQ}{Q} \right]^2 + \left[\frac{100dI}{Q + I} \right]^2 + \left[100f_a \frac{dk}{k} \right]^2 \quad (3.14)$$

La incertidumbre de k , está influenciada por la incertidumbre de Q , como se aprecia en el primer término de la ecuación (3.14), por lo que dk/k puede ser sustituida por dy/y . Donde y es la ordenada al origen y dy es su desviación⁽¹²⁾.

3.8.2. Error en la evaluación de la dosis anual

Tomando en cuenta un 3% de error en la eficiencia del detector de centelleo y considerando la incertidumbre en la medición de la radiación beta y gamma por TL como dD_b y dD_g respectivamente, el porcentaje de error σ_2 en la edad está dado por:

$$s_2^2 = 25f_a^2 + \left[100f_b \frac{dD_b}{D_b} \right]^2 + \left[100f_g \frac{dD_g}{D_g} \right]^2 \quad (3.15)$$

donde:

D es la dosis correspondiente para radiación α , β y γ
 f es el factor de dispersión para α , β y γ

Para el método de grano fino $f_\alpha = 0.4$, $f_\beta = 0.4$ y $f_\gamma = 0.2$, mientras que para el método de inclusiones de cuarzo los valores son; 0.0, 0.7 y 0.3 respectivamente⁽⁶⁸⁾.

3.8.3. Error sistemático

Este error comprende la incertidumbre en la calibración absoluta de las fuentes de radiación usadas en el análisis de las curvas TL y en la calibración de los dosímetros TL, la pérdida de radón, cuando se usa el contador de partículas alfa para determinar el contenido de U y Th, así como en la determinación “in situ” del agua. La incertidumbre de las fuentes de irradiación y la medición de la dosis gamma con dosímetros TL ya fueron consideradas en las ecuaciones (3.14) y (3.15), solamente falta por considerar la dispersión en la determinación del agua.

Por lo que:

$$s_s^2 = s_3^2 \quad (3.16)$$

donde

$$s_3^2 = (dF)^2 \cdot \left\{ 100w(1.5f_a + 1.25f_b) + 100w_1(1.14f_g) \right\}^2 \quad (3.17)$$

donde

F es el contenido de agua retenida durante el entierro de la muestra
 dF es la incertidumbre
 w es el índice de saturación de la muestra
 w_1 es el índice de saturación para el suelo

Finalmente se obtiene la incertidumbre global por la siguiente expresión:

$$s_g^2 = s_f^2 + s_s^2 \quad (3.18)$$

4. DESARROLLO EXPERIMENTAL

4.1. Toma de muestras

Para este trabajo se estudiaron fragmentos de muestras de cerámica de los sitios arqueológicos de Teotihuacán y Calixtlahuaca, Estado de México, y de Edzná, Estado de Campeche. Mientras que las muestras geológicas, provienen de sedimentos eólicos del desierto de Sonora.

Teotihuacán es un sitio arqueológico que se encuentra a $19^{\circ}42'$ de latitud norte y $98^{\circ}52'$ de longitud oeste, a 45 km al noreste de la ciudad de México (Fig. 4.1). En este sitio se encuentran los restos de la ciudad más antigua del continente americano. El lugar fue ocupado por primera vez en los siglos I y II a.C. De ser un pequeño asentamiento pasó a convertirse en una importante ciudad desde el siglo II d.C. hasta cerca del año 700 d.C. La ciudad ocupaba una superficie muy amplia 21 km^2 y llegó a estar poblada por 125000 habitantes, considerándose en ese entonces como una de las ciudades más grandes del mundo⁽⁸⁸⁻⁹⁰⁾.

Calixtlahuaca es un sitio arqueológico de la Cultura Mexica que se encuentra a $19^{\circ}20'$ de latitud norte y $99^{\circ}42'$ de longitud oeste, a 66 km de la ciudad de México (Fig. 4.1). Este sitio estaba ocupado por los Matlazincas antes de la llegada de los españoles. Sin embargo, se cree que ya había pobladores en el lugar desde mucho antes. Se han encontrado pedazos de cerámica que podrían corresponder desde el Clásico Temprano hasta el Posclásico Temprano⁽⁹¹⁾.

En el occidente de la península de Yucatán, a unos 50 km de la costa, se estableció una pequeña comunidad alrededor del año 600 de nuestra era. Sus pobladores practicaban la agricultura y la alfarería, la unión de estos pequeños

asentamientos humanos se convertirían más tarde en el mundo maya que se conoce.

Edzná está ubicado en los $19^{\circ}35'$ de latitud norte y $90^{\circ}19'$ de latitud oeste, es un sitio arqueológico de la cultura maya que se encuentra en Campeche (Fig. 4.1). Este sitio es conocido por su desarrollo cultural desde el clásico temprano hasta el posclásico temprano (600-1200 años d.C). Sin embargo, la edad determinada por ^{14}C en el interior de algunos edificios, no concuerda con los datos históricos^(11,92).

Sonora, estado ubicado al noroeste de México, al norte de la sierra Madre occidental, limita al norte con los Estados Unidos. Las paleodunas del desierto son de interés para geólogos y geofísicos principalmente, para conocer los cambios climáticos y sus efectos ocurridos hace miles de años.

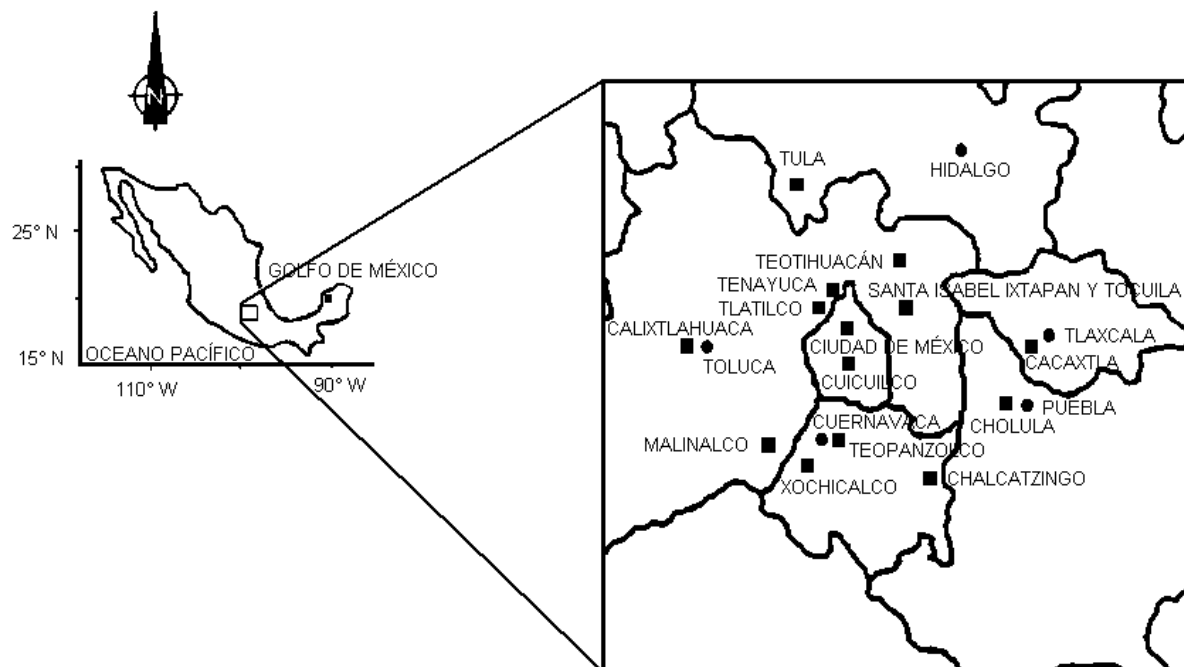


Fig. 4.1, Mapa de la República Mexicana (• ciudad capital; ■ sitio arqueológico)

En las zonas de interés, se realizaron pequeñas excavaciones hasta obtener pedazos de cerámica, sedimentos o dunas. Se recogieron las muestras y se tomó

una muestra del suelo que rodeaba a la cerámica. Ambas muestras se colocaron en bolsas de color negro oscuro y luego se envolvieron con aluminio para protegerlas de la luz, se trasladaron al laboratorio tomando todas las precauciones para no exponerlas a alguna fuente artificial de radiación, tal como cámaras de rayos X, *escáners* etc.

4.2. Determinación del contenido de humedad en las cerámicas

Cuando la muestra se recoge en época de lluvias, para determinar la humedad se limpia perfectamente y se pesa (PMh); se seca en un horno eléctrico a una temperatura no mayor de 50°C, durante tres días y finalmente se pesa nuevamente para obtener el peso de la muestra seca (PMs). Cuando las muestras se recogen en época de secas, como fue nuestro caso, la humedad se determina de la forma siguiente: uno de los fragmentos de cada vasija se limpia perfectamente y se coloca en un vaso de vidrio con agua deionizada durante tres días. Después de este tiempo se pesa, obteniendo el peso de la muestra húmeda (PMh). Posteriormente se seca en un horno eléctrico en condiciones normales durante tres días más, al término de los cuales se vuelve a pesar, obteniéndose de esta forma el peso de la muestra seca, (PMs). En cualquiera de los casos antes mencionados, el resultado obtenido se expresa en porcentaje de humedad.

4.3. Determinación de los elementos

4.3.1. Descortezado

De cada vasija se descortezó un fragmento, rebajando por lo menos dos milímetros del total de la superficie para remover todo el material que estuvo expuesto a la radiación ambiental o al sol. Este proceso se llevó a cabo con la ayuda de fresas a muy baja velocidad para evitar que la muestra se calentara. Esta operación se llevó a cabo en presencia de luz roja. Posteriormente se trituró y se molió la muestra descortezada en un mortero de ágata y se tamizó con una malla de 125 μm .

4.3.2. Determinación de potasio

Este elemento es muy importante en el fechamiento por TL debido a la contribución en la tasa de dosis anual, principalmente de radiación beta. Sin embargo, en la separación de la materia orgánica es posible que parte de este elemento sea también eliminado, pero los efectos causados por la radiación liberada por éste, ya quedaron registrados en los diferentes minerales de la muestra. Lo mismo ocurre al separar los diferentes minerales en la técnica de inclusiones de cuarzo, al separar los feldespatos de potasio (KAlSi_3O_8).

La determinación del K y de los diferentes elementos presentes en las muestras, se llevó a cabo con un microscopio electrónico de barrido de la marca PHILLIPS, modelo XL30 propiedad del ININ. Este microscopio cuenta con un filamento de tungsteno como fuente de electrones y está acoplado a una microsonda, por medio de la cual se pueden llevar a cabo los estudios de microanálisis. En teoría este sistema puede medir todos los elementos que se encuentran en concentraciones por arriba de las 100 ppm.

4.3.3. Determinación de uranio y torio

Otra parte de cada muestra se molió y se tamizó con tamaño de grano entre 60 y 80 μm , con la cual se determinó el contenido de U y Th. El método utilizado en este caso fue el de análisis por activación neutrónica^(93,94), en el reactor TRIGA MARK III del ININ, cuya potencia es de 1MW.

4.4. Dosis anual

Una vez determinadas las concentraciones de K, U y Th, se determinó la tasa de dosis anual de cada uno de ellos. Mediante el análisis radioquímico⁽²⁵⁾, se determinó la actividad específica de acuerdo con las leyes de decaimiento radiactivo discutidas ampliamente en la sesión 1.4 del primer capítulo, posteriormente se determinó la tasa de dosis anual en función de la energía

depositada en los diferentes minerales de cada muestra, usando los valores de energía de las Tablas 1.1, 1.2 y 1.3,

4.5. Técnica de grano fino

4.5.1. Tratamiento de materia orgánica

Una vez que las muestras de cerámica fueron descortezadas, molidas y tamizadas, se pesaron 100 g de cada muestra de 125 μm y se colocaron en un vaso de teflón, agregándoles H_2O_2 al 10% hasta cubrir por completo cada muestra. Posteriormente se dejaron en reposo aisladas completamente de la luz. Las muestras permanecieron en estas condiciones entre cinco y diez días. Posteriormente se les agregó H_2O_2 al 30%, y se lavaron varias veces con agua deionizada dejando decantar durante dos horas en cada lavado. Este proceso de lavado se repitió tres veces para cada muestra. Finalmente cada una de las muestras se sometió a un baño ultrasónico con agua deionizada durante diez minutos.

4.5.2. Eliminación de carbonatos

Los carbonatos son malos transmisores de la luz, por lo que se deben eliminar completamente antes de tomar la lectura TL de la muestra. Para la eliminación de carbonatos de las muestras tratadas mediante el proceso anterior, se cubrieron totalmente con HCl al 10%, de pH conocido. El recipiente que contenía cada una de las muestras con el ácido se metió al baño ultrasónico durante tres minutos, en seguida se dejó reaccionar durante diez minutos más. Al término de este tiempo de reacción, se midió nuevamente el pH, como no se apreció ningún cambio se estimó que la muestra ya no contenía carbonatos. Se decantó el ácido y se procedió a lavar tres veces con agua deionizada, finalmente se lavaron las muestras en el baño ultrasónico. Las muestras ya limpias se secaron en un horno eléctrico a una temperatura por debajo de los 50°C durante tres días.

4.5.3. Obtención de grano fino

Esta técnica consiste en separar granos con tamaño entre 4 y 11 μm . En nuestro estudio este proceso se llevó a cabo de la forma siguiente:

En cada uno de tres tubos de ensayo se colocó un gramo de muestra, en seguida se les adicionaron 6 ml de acetona. Se agitaron perfectamente y se dejaron decantar durante dos minutos, el sobrenadante de cada tubo se vertió en tres tubos más. Posteriormente a los tres primeros tubos, se les agregaron nuevamente 6 ml de acetona, se volvieron a decantar durante dos minutos y se vertió el sobrenadante en otros tres tubos limpios. Este proceso se repitió hasta que el sobrenadante de los tubos iniciales presentó aspecto transparente. De esta forma se separó la muestra con tamaño de grano entre 0 y 11 μm . Para separar la muestra con tamaño de grano menor que 4 μm se dejaron decantar todos los tubos que contenían el sobrenadante durante 75 minutos. Al final de este tiempo el sobrenadante se vertió en un recipiente que se había rotulado previamente como “acetona sucia”, ya que contiene granos con tamaño entre 0 y 4 μm . El precipitado que quedó en los tubos de ensayo contiene la muestra con tamaño de grano entre 4 y 11 μm . Esta muestra se recogió en uno o dos tubos a los cuales se les agregaron nuevamente 6 ml de acetona. Estos tubos se agitaron y se dejaron decantar nuevamente durante 20 minutos para separar el resto de granos con tamaño menor de 4 μm ; se vertió el sobrenadante en el recipiente de la acetona sucia, repitiendo este proceso hasta que la acetona se apreció transparente, indicando con esto que los granos de menor tamaño se habían separado completamente⁽⁸⁰⁾. Finalmente el polvo precipitado en los tubos se recogió en un solo tubo y se dejó evaporar la poca acetona que contenía. De esta forma se obtuvo la muestra útil con tamaño de grano entre 4 y 11 μm , con la cual se preparó una suspensión para depositar la cantidad deseada de muestra sobre los discos de aluminio, para tomar su lectura TL.

4.5.4. Preparación de los discos con muestra

La muestra útil obtenida mediante el proceso anterior generalmente pesa un poco más de 200 mg, con los cuales se prepara una suspensión con acetona de 2 mg/ml de cada muestra en estudio.

Se colocaron los discos de aluminio de 0.5mm de espesor por 10mm de diámetro en los tubos de vidrio de fondo plano, estos tubos se colocaron a su vez en una gradilla múltiple de acrílico, en seguida se agregaron tres microlitros de acetona en los tubos que contenían los discos, con la finalidad de que el disco de aluminio permanezca pegado al fondo del tubo al momento de agregar la suspensión de la muestra, así como de verificar que no queden burbujas de aire. Posteriormente se agregó un mililitro de la suspensión a cada tubo con una micropipeta especialmente calibrada, agitando la suspensión cada tres tomas para mantenerla homogénea.

Finalmente la gradilla que contiene todos los tubos con la muestra se aisló completamente de la luz, donde permaneció hasta que los restos de acetona se evaporaron completamente. De esta forma la muestra arqueológica quedó perfectamente adherida homogéneamente en toda la superficie del disco de aluminio. Se prepararon por lo menos 60 discos útiles de cada muestra para su estudio.

4.6. Análisis de las curvas TL

Se tomó la lectura TL natural (TLN) de 20 discos preparados de acuerdo con el método mencionado en el párrafo anterior. Cada muestra se le tomó una segunda lectura y se restó a la primera para obtener la intensidad TL neta, este procedimiento se aplicó en todos los casos.

4.6.1. Método de incremento de la dosis

Se tomaron otros 16 discos con la muestra sin leer y se agruparon en cuatro grupos de cuatro cada uno para ser irradiados a diferentes dosis (1β , 2β , 3β ,

etc.) y obtener la curva de calibración a partir de la cual se determinó la dosis equivalente Q .

4.6.2. Método de regeneración de la señal TL

Se tomaron 16 discos de los 20 a los que se les había tomado la TLN y se irradiaron a las mismas dosis de la prueba anterior para regenerar su señal TL. Al graficar la dosis contra la intensidad TL, se obtiene la curva de calibración como la de la Fig. 3.5, donde se determinó el factor de corrección por supralinealidad I . En cada estudio se irradiaron por lo menos cuatro discos con muestra para cada dosis, el intervalo de irradiación fue entre 10 y 200 Gy de radiación beta. Una vez realizados los estudios anteriores se determinó la paleodosis de acuerdo con la ecuación (3.4).

4.7. Irradiación de las muestras

La fuente utilizada para la irradiación de las muestras fue un emisor de radiación β de ^{90}Sr , Amersham, cuya actividad es de 3.7GBq (100 mCi) y que da una rapidez de dosis de 3.6 Gy/h. Para el uso de esta fuente se tomó en cuenta que el espesor de las muestras no afectara en forma apreciable la trayectoria de la radiación, ya que al pasar a través de la materia, las partículas beta sufren una gran variedad de interacciones; pueden cambiar de trayectoria, pueden perder energía por la producción de electrones energéticos secundarios o por la producción de rayos X. Por ejemplo, la energía máxima del ^{90}Y de 2.27 MeV es disminuida en aproximadamente la mitad con una lámina de aluminio de 0.4mm de espesor, y una lámina de 3mm de este material reduce la energía a solamente el 1% del valor inicial.

En minerales para fechamiento por TL el grado de atenuación es similar al del aluminio. Para una muestra de grano fino, cuyo tamaño de grano es entre 4 y 11 μm , la atenuación es despreciable, pero para muestras con tamaño de grano mayores de 0.1mm éste comienza a ser significativo. En el caso de la técnica de inclusiones de cuarzo, la contribución se hace despreciable con la corrosión que

causa el ácido fluorhídrico en toda la superficie del grano, disminuyendo a menos de 100µm su tamaño^(12,68).

4.8. Equipo lector de TL

Para la lectura tanto de las muestras no irradiadas, como irradiadas, se utilizó el equipo analizador TL 1100 AUTOMATED TL SYSTEM fabricado por Daybreak Nuclear and Medical System, Guilford, CT (EE UU). Tanto el emisor de radiación β como este equipo, se encuentran en el Instituto de Geofísica, en la UNAM. Este equipo cuenta con un portamuestras tipo carrusel, con capacidad para 20 discos. Aunque el equipo permite también la medición de la señal fotoluminiscente, en esta ocasión solo se midió la señal TL.

Este equipo cuenta con un tubo fotomultiplicador (TFM) convencional y con un filtro que permite la medición de la luz entre 400 y 600 nm. Sin embargo, en casos especiales se puede cambiar. El equipo cuenta también con su propia bomba de vacío y un sistema de alimentación de nitrógeno (ultrapuro, 99.998%). Con el *Software* correspondiente, se controla todo el proceso de lectura de las muestras. Algunas de sus aplicaciones más importantes son; ajuste del vacío de operación (25-28 µmHg), ajuste del alto voltaje (894 V), ajuste de la rampa de calentamiento, lectura TL, resta el fondo a cada lectura para dar la TL neta, guarda la información en disco duro y disco flexible, etc.

4.8.1. Parámetros de lectura

La lectura de las muestras en estudio se llevó a cabo con los siguientes parámetros:

Vacío	25-28 µmHg
Nitrógeno	10 l/h
Alto Voltaje	894 V
Calentamiento	20 °C/s

El intervalo de integración de la señal TL fue entre 150 y 500 °C.

El *Software* de este equipo permite además obtener las gráficas de los resultados, el cual mediante el ajuste por mínimos cuadrados determina el valor de Q , así como el valor de I . Permite también el análisis de la meseta, para definir cuando una muestra se puede o no fechar.

4.9. Muestras geológicas

4.9.1. Determinación del contenido de humedad en las dunas

Como estas muestras se encuentran en forma de polvo de arena, se tamizaron a 125 μm y se pesaron. Una alícuota de cada una se pesó para obtener el peso de la muestra seca, en seguida se colocó en un pequeño crisol de plata y se cubrió completamente de agua. Las alícuotas permanecieron en el agua durante tres días, al término de los cuales se volvieron a pesar para determinar el grado de saturación. En seguida se secaron en un horno a 50°C durante tres días más y finalmente se volvieron a pesar para conocer el contenido de humedad de la misma forma que para las cerámicas.

4.9.2. Técnica de inclusiones de cuarzo

Se realizó un estudio previo en condiciones de luz natural para conocer el tipo de minerales que contiene la muestra, y así establecer las técnicas de separación más convenientes; entre las que se cuentan: separación magnética, separación por líquidos pesados, teñido, etc.

4.9.3. Separación de minerales

De los diferentes minerales identificados en la prueba anterior, solamente los feldespatos, las plagioclasas, y los cuarzos presentan buenas propiedades TL. Aprovechando la susceptibilidad magnética de los minerales presentes en la muestra, se realizó primero una separación magnética con el equipo conocido como Frantz. En esta separación se eliminan casi todos aquellos minerales que no presentan buenas propiedades TL. Como se vio que los cuarzos eran abundantes en la muestra, se decidió separarlos para aplicar la técnica de inclusiones de

cuarzo. Para esta técnica se requiere una pureza de los cuarzos $\geq 98\%$, por lo que después de la separación magnética, se procedió a separar el resto de minerales mediante la técnica de líquidos pesados, aprovechando la diferencia en su densidad. Con politungstano de sodio se preparó el líquido con una densidad de 2.67 g/ml.

4.9.4. Teñido de minerales

Durante la separación de los cuarzos con el líquido pesado, se tomaba una alícuota de éstos y se teñía con ácido rodizónico. Con este reactivo las plagioclasas se tiñen de rojo. El proceso de separación se repitió hasta que la coloración prácticamente desapareció. Esta identificación se llevó a cabo con el uso de un microscopio común (binocular).

4.9.5. Selección de granos entre 105 y 125 μm

Una vez obtenida la pureza deseada ($\geq 98\%$) en la muestra, ésta se pasó por una serie de tamices para seleccionar los granos con tamaño entre 105 y 125 μm .

4.9.6. Preparación de los discos con muestra

A diferencia de la técnica de grano fino, donde se requiere aproximadamente de 1 mg de muestra para cada lectura, para la técnica de inclusiones de cuarzo se requieren aproximadamente 3 mg. Se describe brevemente la técnica que se siguió para la preparación de estos discos:

Se colocaron los discos de acero en un contenedor de acrílico con capacidad para 50 o 60 discos. Este contenedor cuenta con la numeración bien visible para su identificación. Una vez colocados los discos en los nichos del contenedor, se deposita una capa de silicón por aspersión sobre ellos. Se coloca una malla de acero inoxidable de 125 μm sobre el contenedor y sobre ésta otra placa de acrílico con un orificio que la atraviesa. En seguida se colocó una segunda malla y finalmente otra placa de acrílico. El orificio de las placas de acrílico es de 9 mm de diámetro, igual al diámetro del disco de acero. Cuando este arreglo quedó fijo

se agregó, con una cucharilla previamente calibrada, la muestra de cuarzos, obteniéndose de esta forma una distribución homogénea de la muestra en el disco de acero. Este arreglo se vuelve a desarmar y nuevamente se aplica una capa de silicón por aspersión. Después de 24 horas de reposo, los discos quedan listos para las siguientes pruebas.

4.9.7. Blanqueo parcial

Se tomó un lote de discos preparados mediante el proceso anterior y se clasificaron para exponerse a la luz del sol, durante diferentes periodos de tiempo, desde pocos minutos hasta más de 24 horas. Después de la exposición al sol, se dejaron enfriar hasta la temperatura ambiente y en seguida se procedió a tomar las lecturas TL correspondientes.

4.9.8. Irradiación de las muestras

De los mismos lotes donde se tomaron las muestras que se expusieron a la luz del sol, se tomó otro lote y se dividió en grupos de cuatro discos cada uno para ser irradiados a diferentes dosis de radiación beta, de la misma forma que las muestras de grano fino, para determinar de esta forma, las diferentes paleodosis de acuerdo con la Fig. 3.7a.

A otro grupo de 16 discos, se les tomó la lectura TL natural y en seguida se dividieron en grupos de cuatro para irradiar a las mismas dosis del lote anterior, con la finalidad de regenerar la señal TL de acuerdo con la Fig. 3.7b. Con los resultados anteriores se procedió a graficar la paleodosis contra la temperatura de acuerdo con la Fig. 3.8, para así determinar la paleodosis verdadera, con la que, a su vez, se determinó la edad una vez conocida la tasa de dosis anual, tanto para las dunas como para el suelo donde se tomaron las muestras.

5. RESULTADOS

5.1. Cerámica de Edzná

En la Fig. 5.1, se muestra el espectro de emisión obtenido en el microscopio electrónico de barrido tanto para la cerámica como para el suelo donde se tomó la primera. En esta figura se indica la energía de la banda K característica de cada elemento así como su intensidad⁽⁹⁵⁾.

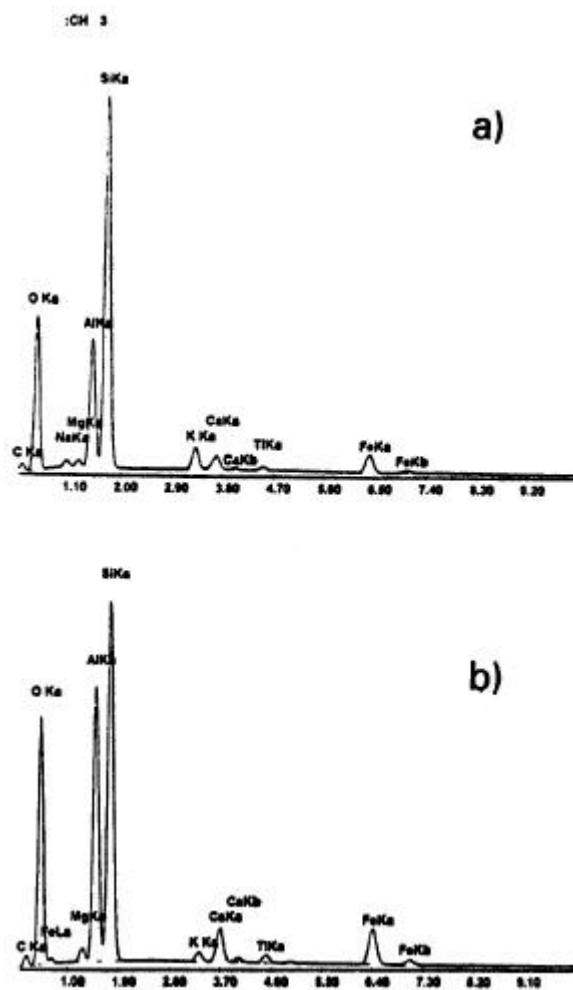


Fig. 5.1. Elementos identificados en el Microscopio Electrónico de Barrido.

a) Cerámica de Edzná, b) suelo

En la Tabla 5.1, se muestran los elementos identificados mediante la técnica de microanálisis, su contribución en peso y en masa atómica, de la cerámica y del suelo de Edzná.

En la Tabla 5.2, se muestra la concentración de potasio, de uranio y de torio, determinados los dos últimos mediante la técnica de análisis por activación neutrónica. También se resumen los valores de la dosis correspondiente al tipo de radiación que emite cada uno de ellos.

Tabla 5.1. Elementos presentes en la cerámica y suelo de Edzná.

Elemento	Cerámica			Suelo		
	%Peso	%Atómico	%Error	%Peso	%Atómico	%Error
C	9.79	16.00	3.94	9.65	15.69	3.35
O	42.59	52.26	0.79	44.62	54.46	0.65
Na	0.87	0.74	5.78			
Mg	0.66	0.53	5.22	0.93	0.75	3.31
Al	9.84	7.16	0.84	15.00	10.86	0.59
Si	29.00	20.27	0.48	21.46	14.92	0.52
K	1.96	0.98	2.07	0.57	0.28	3.96
Ca	1.19	0.58	2.84	2.08	1.01	1.70
Ti	0.42	0.17	6.64	0.63	0.26	4.16
Fe	3.68	1.29	1.99	5.06	1.77	1.44
Total	100.00	100.00		100.00	100.00	

Tabla 5.2. Elementos, tipo de radiación y dosis para la cerámica y suelo de Edzná.

Muestra	Elemento	Concentración	Dosis (mGy/año)		
			α	β	γ
Cerámica	K	$1.96 \pm 2.07\%$		1.626 ± 0.033	0.478 ± 0.009
	U	$4.85 \pm 0.19\text{ppm}$	13.478 ± 0.528	0.708 ± 0.027	0.557 ± 0.021
	Th	$26.09 \pm 0.27\text{ppm}$	19.254 ± 0.199	0.746 ± 0.007	1.341 ± 0.013
Suelo	K	$0.57 \pm 3.96\%$		0.473 ± 0.018	0.139 ± 0.005
	U	$2.15 \pm 0.12\text{ppm}$	5.974 ± 0.333	0.314 ± 0.017	0.247 ± 0.014
	Th	$25.58 \pm 1.67\text{ppm}$	18.878 ± 1.232	0.731 ± 0.047	1.314 ± 0.085

Considerando el factor de eficiencia propuesto por Aitken⁽¹²⁾ de 0.15, para radiación alfa, se obtuvo una D_α de 4.173 ± 0.084 mGy/año, mientras que la D_β fue de 3.080 ± 0.043 mGy/año. Se realizó una segunda evaluación de los elementos del suelo y los resultados obtenidos se promediaron con los valores

mostrados en la Tabla 5.2, obteniéndose una D_γ de 2.081 ± 0.022 mGy/a, mientras que la contribución de la radiación cósmica fue de 0.24 ± 0.01 mGy/a⁽⁹⁶⁾. La tasa de dosis total de la muestra seca fue de 9.571 ± 0.108 mGy/a. Después de hacer la corrección por humedad, de acuerdo con Aitken⁽¹²⁾, se obtuvo finalmente una dosis de 8.16 ± 0.14 mGy/a.

La Fig. 5.2, muestra la intensidad TL neta (restando el fondo) de la muestra de Edzná, clasificada como CH3, como una función de la temperatura; donde se aprecia que el pico principal aparece a 300°C. Para la determinación del valor de Q se siguió el procedimiento del incremento de la dosis; mientras que, la determinación del factor I , se llevó a cabo mediante el método de regeneración⁽¹²⁾. Las dosis aplicadas para ambas pruebas fueron las siguientes; 20Gy (1 β), 40Gy (2 β), 60Gy (3 β) y 80Gy (4 β). Después de la irradiación, las muestras se guardaron protegidas de la luz y a los quince días se tomaron las lecturas; durante este tiempo no se apreció desvanecimiento en la señal TL. Para los resultados se tomaron en cuenta únicamente las lecturas de los discos que presentaron una incertidumbre menor del 4%. En la Fig. 5.3, se presentan la intensidad TL natural (TLN) y la suma de la TL natural más la TL artificial (TLA).

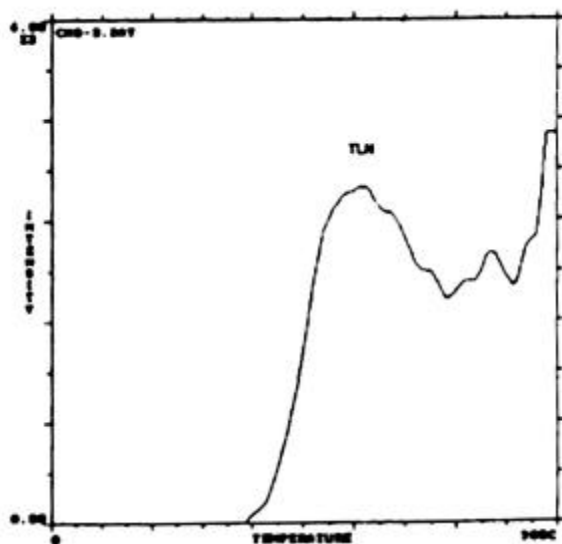


Fig. 5.2. Intensidad TL natural (TLN) de la cerámica de Edzná.

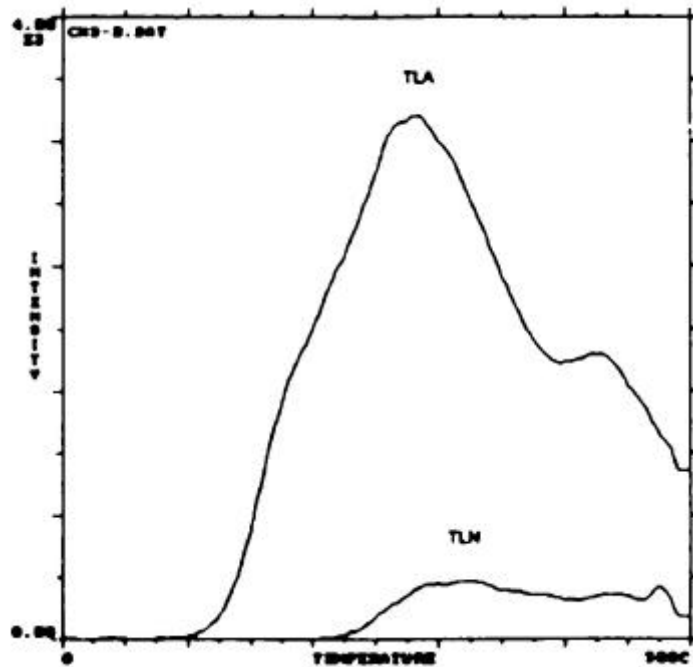


Fig. 5.3. Intensidad TL natural (TLN) y artificial (TLA) de la cerámica de Ezná

La región estable identificada por el estudio de la meseta⁽³³⁾ fue entre 320 y 340°C, como se muestra en la Fig. 5.4.

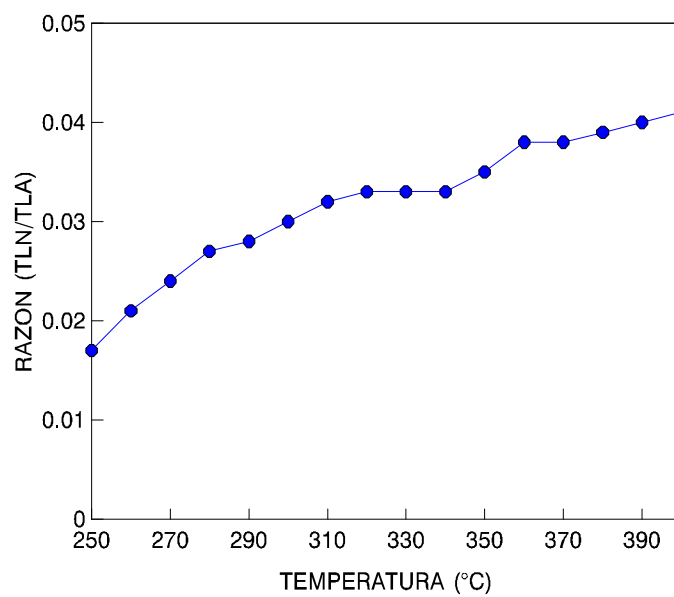


Fig. 5.4. Meseta mostrada por la cerámica de Edzná.

En la Fig. 5.5, se muestran las curvas TL obtenidas por el método de incremento de la dosis. Con los valores obtenidos de esta prueba, se elaboró la curva de calibración para determinar la dosis equivalente Q , como se muestra en la Fig. 5.6, donde se da la dosis en grays (Gy) y la incertidumbre se da en proporción porcentual. Por extrapolación, para una intensidad TL igual a cero, para este caso le corresponde una $Q = 325.8 \pm 2.4$ mGy. Por otro lado, a los discos con muestra, que se les había tomado previamente la lectura TL natural, se irradiaron con las mismas dosis de la prueba anterior ($1\beta + 2\beta + 3\beta + 4\beta$) para regenerar su señal TL. Las curvas TL obtenidas de esta prueba se muestran en la Fig. 5.7, donde se aprecia que la forma de la curva TL no cambia. En la Fig. 5.8, se muestra la curva de calibración para determinar también por extrapolación el factor de corrección por supralinealidad, que en este caso fue $I = 7.671 \pm 0.086$ Gy. La paleodosis total obtenida con estos resultados, de acuerdo con la ecuación (3.4) fue $P = 7.997 \pm 0.086$ Gy.

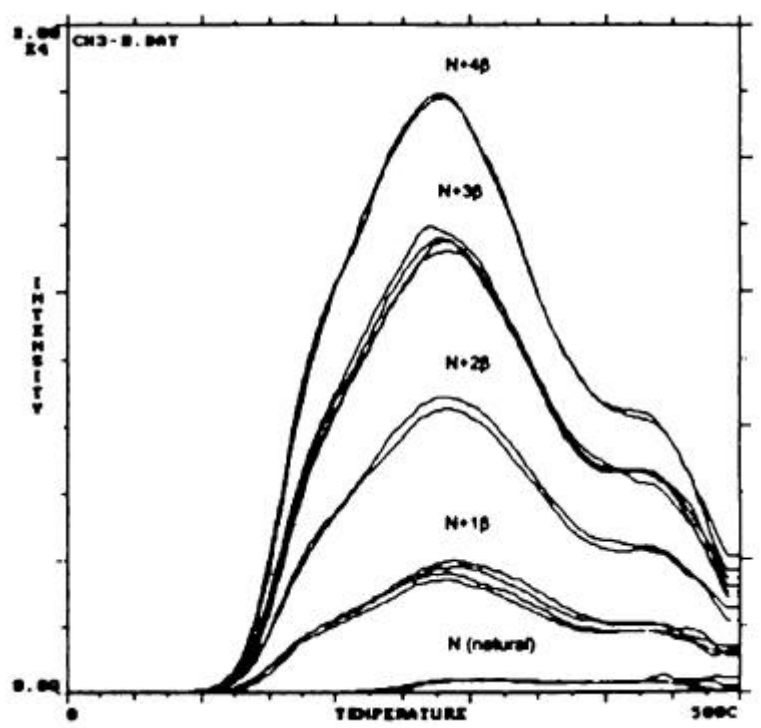


Fig. 5.5. Intensidad TL a diferente dosis de la cerámica de Edzná.
($1\beta = 20\text{Gy}$, $2\beta = 40\text{Gy}$, $3\beta = 60\text{Gy}$, $4\beta = 80\text{Gy}$)

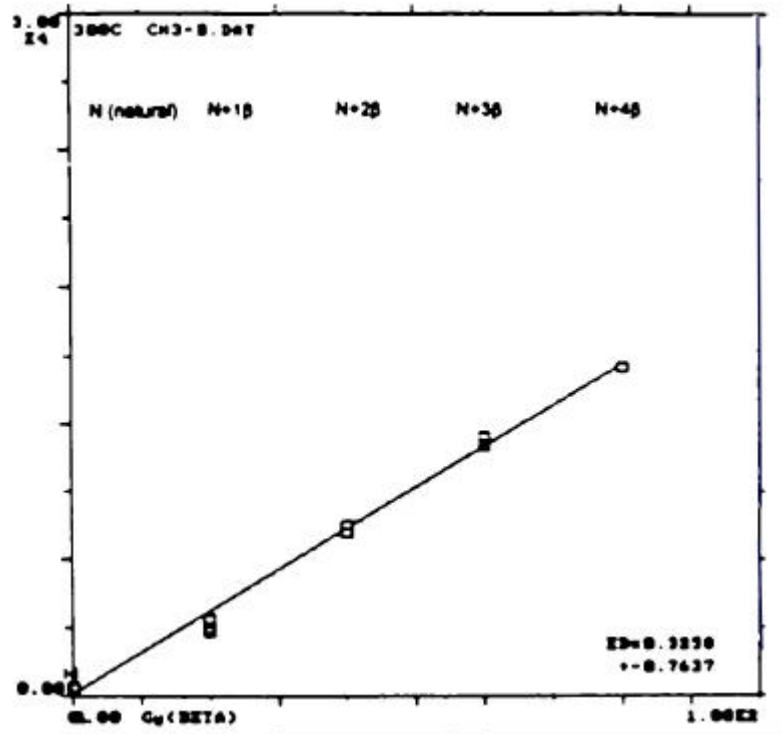


Fig. 5.6. Curva de calibración para determinar la dosis equivalente($Q = ED$).

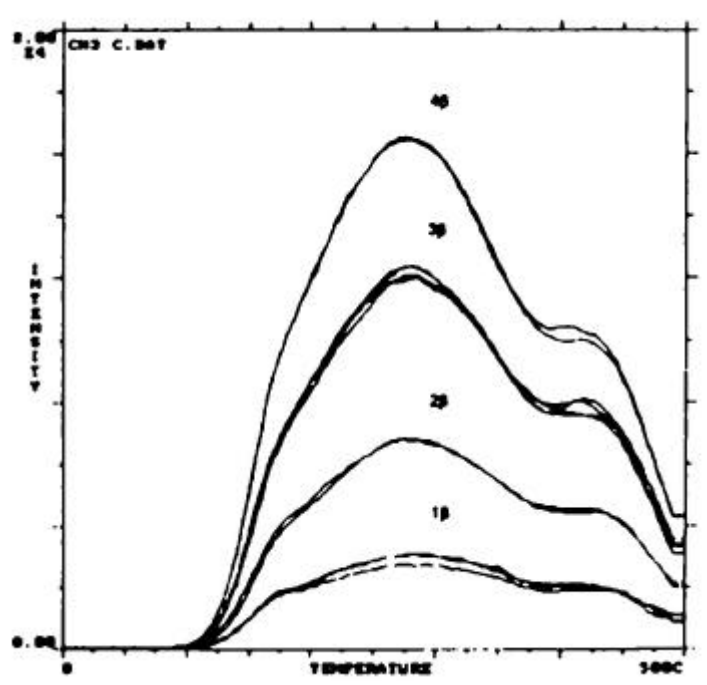


Fig. 5.7. Regeneración de la señal TL en la cerámica de Edzná.

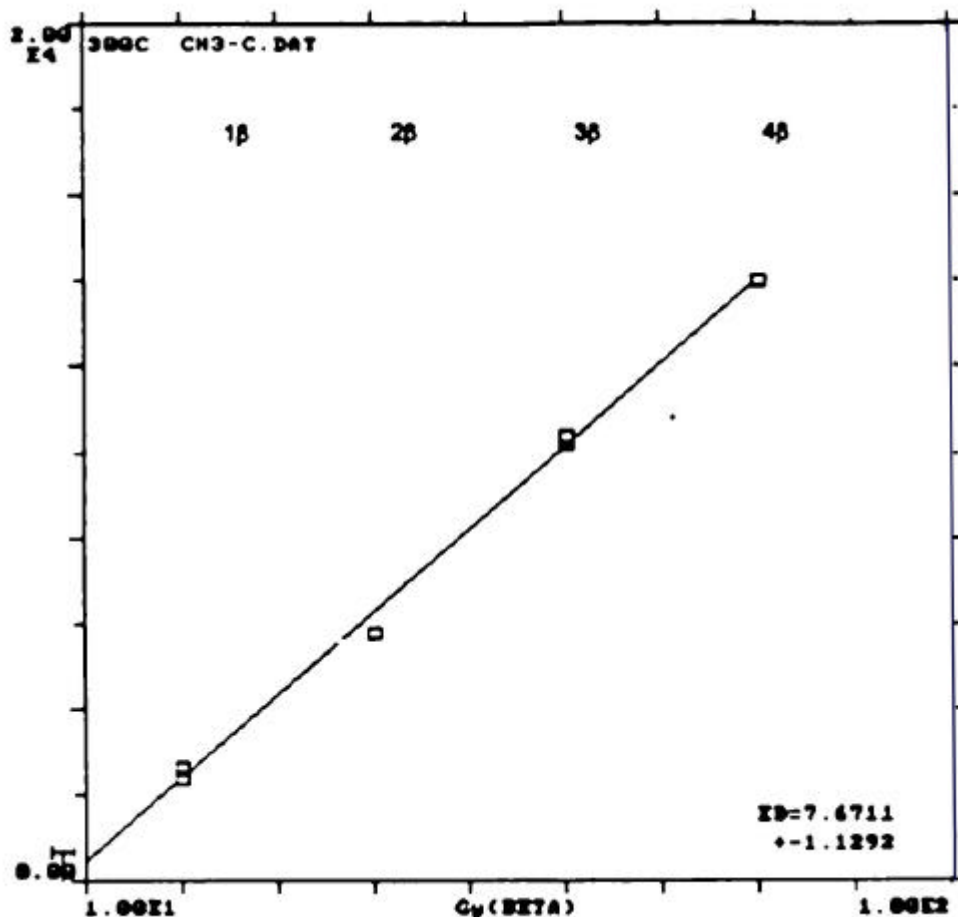


Fig. 5.8. Curva de calibración para determinar el factor I ($I=ED$).

Sustituyendo los valores anteriores en la ecuación (3.3), se obtuvo la edad de 980 ± 90 años. Mientras que por el método de ^{14}C , se ha estimado una edad entre 800 y 1000 años para estas muestras⁽¹¹⁾.

5.2. Cerámica de Calixtlahuaca

En la Fig. 5.9, se muestra el espectro de emisión obtenido en el microscopio electrónico de barrido tanto para la cerámica como para el suelo. En esta figura se indica la energía de la banda K característica de cada elemento así como su intensidad.

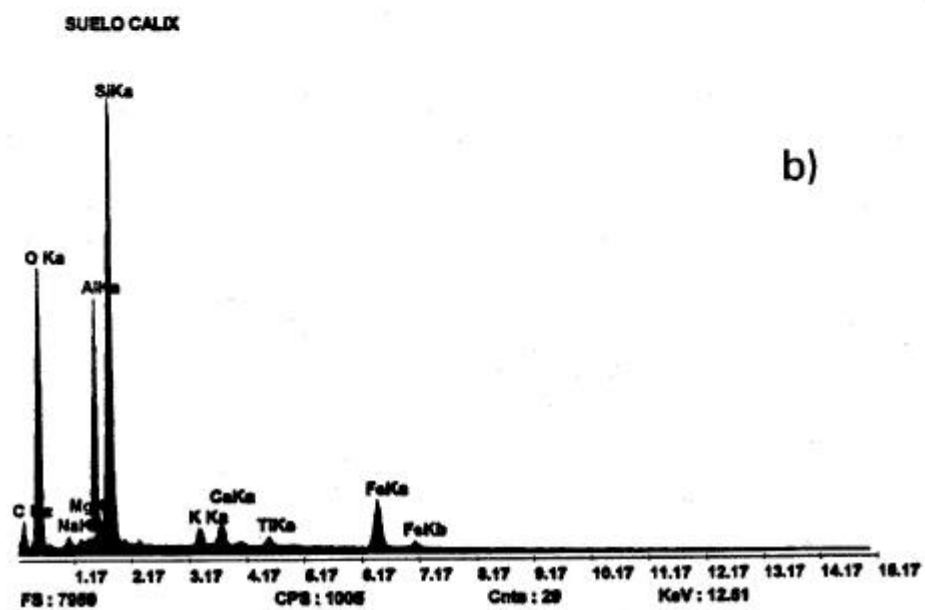
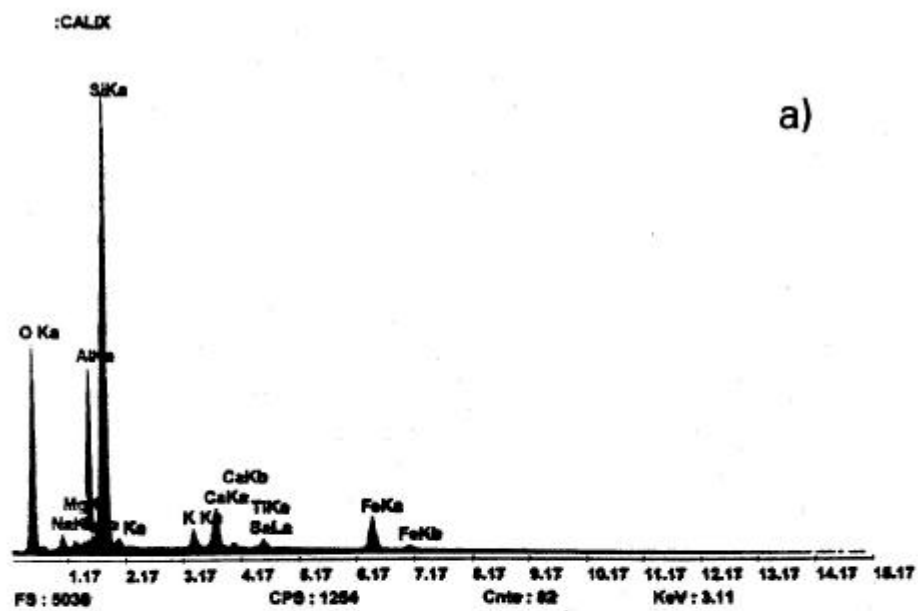


Fig. 5.9. Elementos identificados en el Microscopio Electrónico de Barrido.

a) Cerámica de Calixtlahuaca, b) suelo

En la Tabla 5.3, se muestran los valores de los diferentes elementos encontrados por microanálisis, tanto para la cerámica como para el suelo que rodeaba a la primera.

Tabla 5.3, Elementos presentes en la cerámica y suelo de Calixtlahuaca.

Elemento	Cerámica			Suelo		
	%Peso	%Atómico	%Error	%Peso	%Atómico	%Error
C				1.158	1.771	1.87
O	67.046	78.087	0.78	70.178	80.567	0.53
Na	1.368	1.123	3.66	1.018	0.813	2.86
Mg	0.249	0.193	10.95	0.543	0.411	3.27
Al	8.325	5.823	0.79	9.068	6.173	0.51
Si	16.479	11.073	0.48	12.555	8.210	0.38
P	0.289	0.176	5.82			
K	0.860	0.415	2.58	0.681	0.320	2.13
Ca	1.956	0.921	1.62	1.016	0.466	1.69
Ti	0.535	0.211	4.15	0.470	0.180	3.20
Fe	2.892	0.977	1.68	3.313	1.090	1.10
Total	100.00	100.00		100.00	100.00	

Mientras que en la Tabla 5.4, se muestran las concentraciones de los diferentes elementos, el tipo de radiación y la dosis correspondiente con la que contribuyen en la tasa de dosis anual.

Tabla 5.4, Elementos, tipo de radiación y dosis de la cerámica y suelo de Calixtlahuaca.

Muestra	Elemento	Concentración	Dosis (mGy/año)	
			α	β
Cerámica	K	$0.86 \pm 2.58\%$		0.7138 ± 0.0184
	U	$3.117 \pm 0.225\text{ppm}$	8.6621 ± 0.6252	0.4553 ± 0.0328
	Th	$5.056 \pm 0.784\text{ppm}$	3.7313 ± 0.5785	0.7386 ± 0.1145
Suelo	K	$0.681 \pm 0.025\%$		0.5652 ± 0.0001
	U	$1.323 \pm 0.267\text{ppm}$	3.6766 ± 0.7419	0.1932 ± 0.0390
	Th	$2.388 \pm 0.296\text{ppm}$	1.7623 ± 0.2184	0.0682 ± 0.0084

En este caso la dosis de radiación gamma se midió con dosímetros TL de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ desarrollados en el ININ⁽⁹⁷⁾, obteniéndose una Dy de 2.7729 ± 0.1486 mGy/año. La eficiencia a la radiación alfa fue la misma que en el caso anterior.

Con estas determinaciones, la tasa de dosis anual en condiciones secas fue de 5.9456 ± 0.2008 mGy/año. De la misma forma que en el caso anterior, al hacer las correcciones por efecto de la humedad la dosis real fue de 5.5584 ± 0.1895 mGy/año.

La Fig. 5.10 muestra la intensidad TL natural (TLN) en función de la temperatura. Como se puede apreciar, en este caso las curvas TL no mostraron un pico bien definido. Sin embargo, sí mostraron reproducibilidad de una lectura a otra.

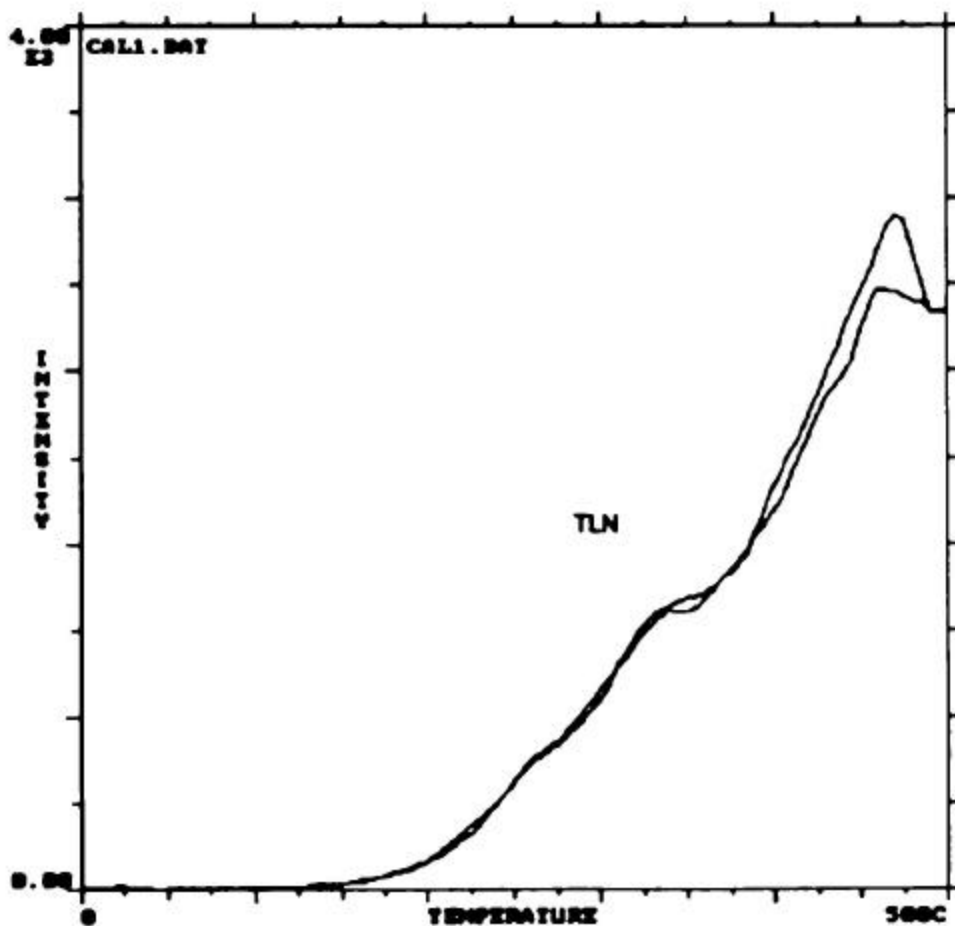


Fig. 5.10. Intensidad TL natural (TLN) de la cerámica de Calixtlahuaca.

En la Fig. 5.11, se presenta la intensidad TL natural (TLN) y la suma de la TL natural más la TL artificial (TLA).

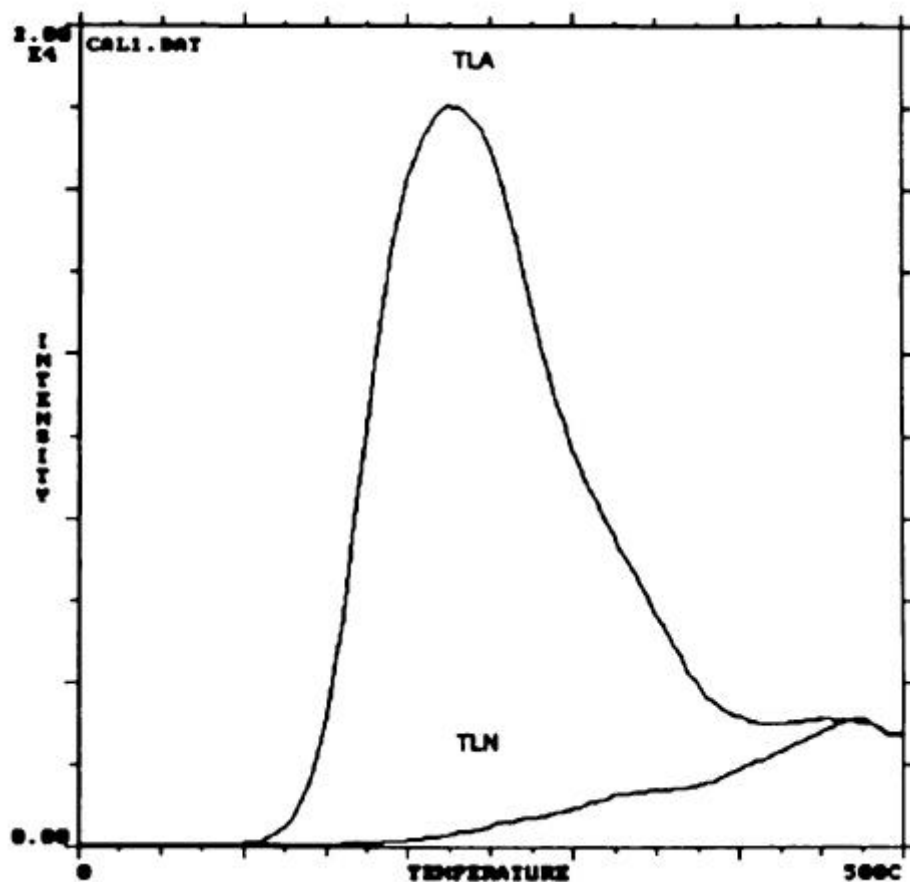


Fig. 5.11. Intensidad TL natural y artificial de la cerámica de Calixtlahuaca

Para determinar la dosis equivalente Q , así como el factor de corrección por supralinealidad I , se procedió de la misma forma que con la cerámica de Edzná. Las dosis aplicadas en este caso fueron las siguientes; 32Gy (1β), 64Gy (2β), 96.6Gy (3β) y 129Gy (4β). Después de la irradiación, las muestras se guardaron protegidas de la luz y a los quince días se tomaron las lecturas correspondientes. Sin embargo, como no se apreció ninguna meseta para la razón TLN/TLA, se determinó la dosis equivalente cada 10°C , dentro del intervalo de temperatura entre 250 y 400°C , para verificar la presencia de la meseta de acuerdo con Mejdahl⁽⁴⁶⁾.

En la Fig. 5.12, se muestran las curvas TL obtenidas por el método de incremento de la dosis. Con los valores obtenidos de esta prueba, se elaboró la curva de calibración para determinar la dosis equivalente Q , como se muestra en la Fig. 5.13. Por otro lado en la Fig. 5.14 se muestran las curvas TL obtenidas en la prueba de regeneración de la señal TL, mientras que en la Fig. 5.15, se muestra la curva de calibración para obtener el factor de corrección I , determinándose este valor en el mismo intervalo de temperatura que el valor Q . En la Tabla 5.5 se resumen los resultados obtenidos de estas pruebas así como la paleodosis correspondiente, mientras que en la Fig. 5.16 se muestra la gráfica resultante, donde se identificó finalmente la meseta entre 340 y 360°C, y una paleodosis promedio de $P = 8.46 \pm 0.27$ Gy.

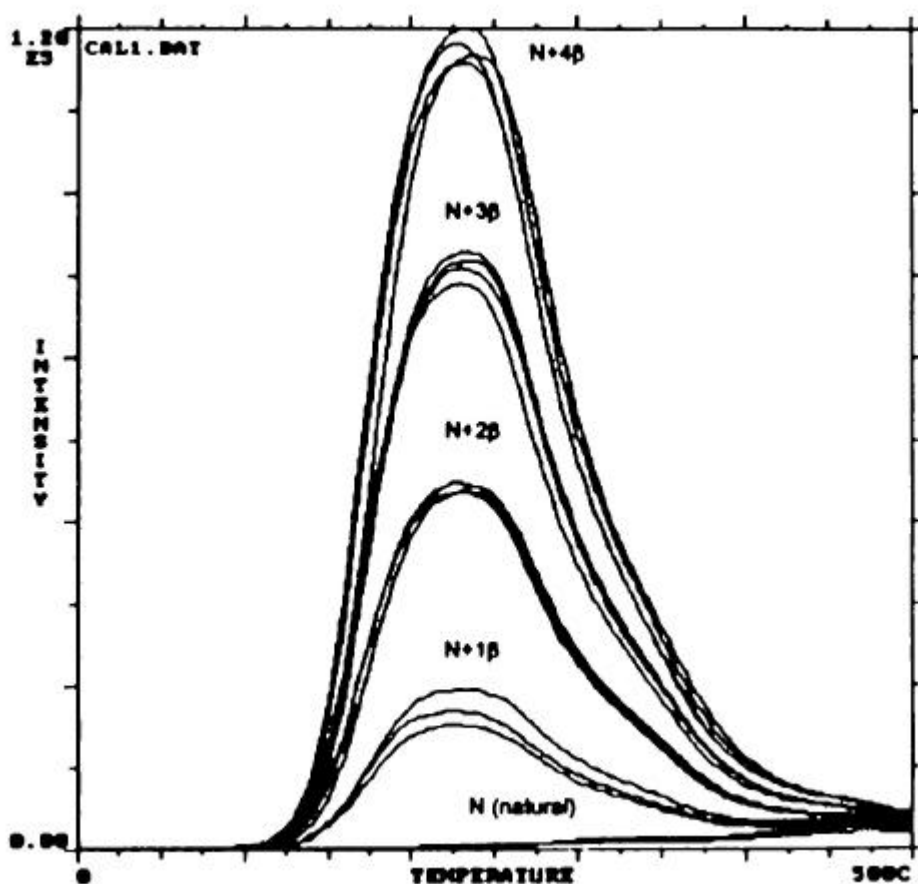


Fig. 5.12. Intensidad TL de la cerámica de Calixtlahuaca a diferentes dosis.
(1b = 32Gy, 2b = 64Gy, 3b = 96.6Gy, 4b = 129Gy)

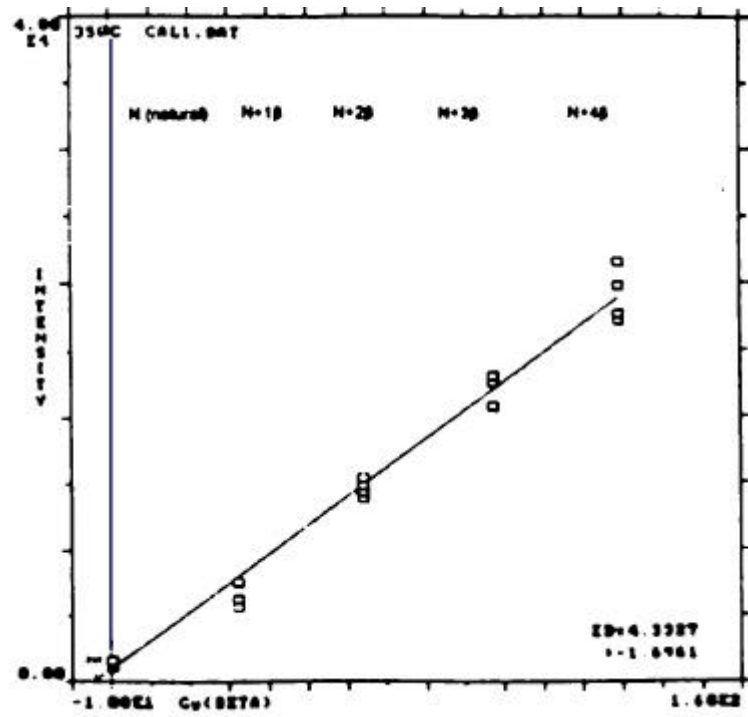


Fig. 5.13. Curva de calibración para determinar la dosis equivalente ($Q = ED$).

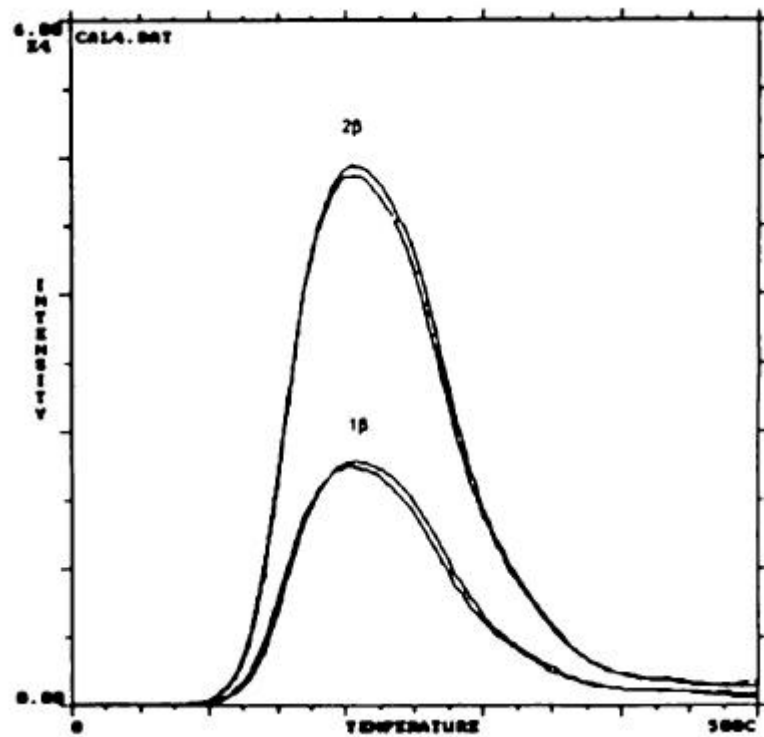


Fig. 5.14. Regeneración de la señal TL en la cerámica de Calixtlahuaca.

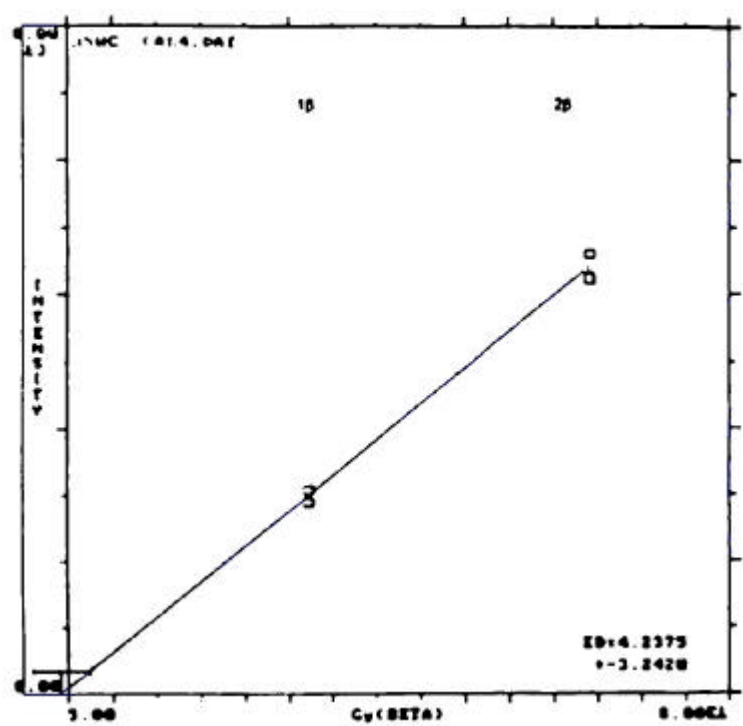


Fig. 5.15. Curva de calibración para determinar el factor I ($I = ED$).

Tabla 5.5, Dosis equivalente, factor de corrección y paleodosis de la cerámica de Calixtlahuaca, determinados a diferente temperatura.

Temperatura	Q (Gy)	I (Gy)	Paleodosis (Gy)
250	2.3408 ± 0.0343	6.8084 ± 0.1847	9.1492 ± 0.1878
260	2.1936 ± 0.0350	6.5747 ± 0.2082	8.7683 ± 0.2111
270	1.9493 ± 0.0325	6.4987 ± 0.2049	8.4480 ± 0.2074
280	1.4754 ± 0.0242	6.2027 ± 0.1959	7.6781 ± 0.1973
290	0.8241 ± 0.0120	5.9227 ± 0.1658	6.7468 ± 0.1662
300	0.1550 ± 0.0023	6.2043 ± 0.1407	6.3593 ± 0.1407
310	0.5942 ± 0.0086	5.9548 ± 0.1428	6.5490 ± 0.1430
320	1.4830 ± 0.0210	5.6545 ± 0.1367	7.1375 ± 0.1383
330	2.3285 ± 0.0340	5.4433 ± 0.1417	7.7718 ± 0.1457
340	3.1479 ± 0.0494	5.2139 ± 0.1752	8.3618 ± 0.1820
350	4.3327 ± 0.0734	4.2375 ± 0.1373	8.5702 ± 0.1556
360	6.0745 ± 0.1122	2.3737 ± 0.0583	8.4482 ± 0.1264
370	8.4088 ± 0.1620	1.0695 ± 0.0281	9.4783 ± 0.1644
380	11.800 ± 0.2200	0.4220 ± 0.0085	12.222 ± 0.2201
390	16.700 ± 0.2996	0.7327 ± 0.0069	17.433 ± 0.2996
400	22.500 ± 0.3971	1.3664 ± 0.0156	23.866 ± 0.3974

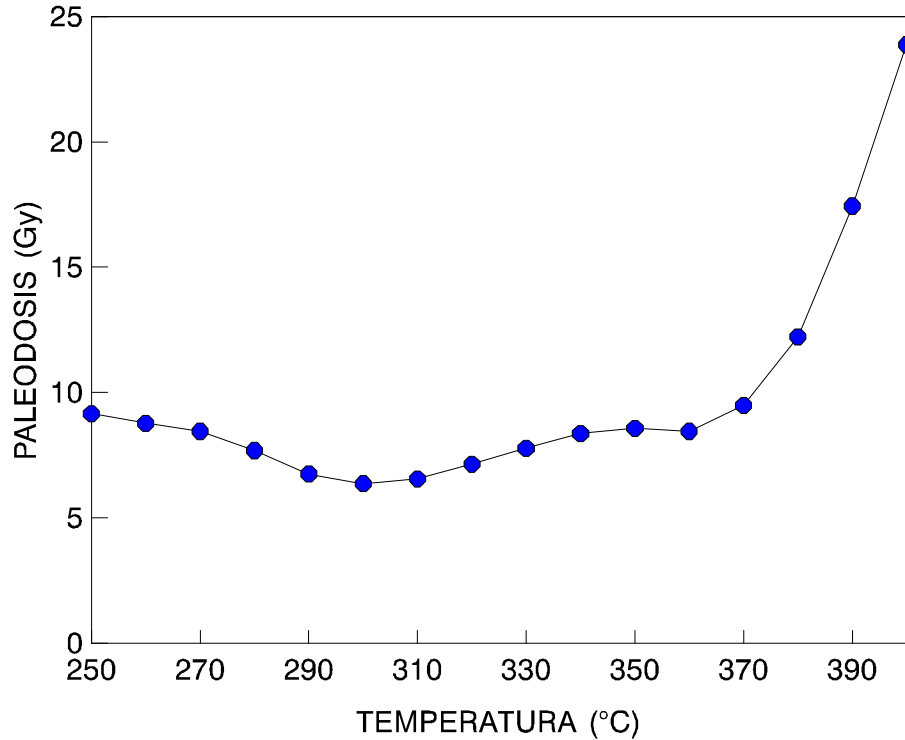


Fig. 5.16. Meseta mostrada por la cerámica de Calixtlahuaca.

Sustituyendo estos valores en la ecuación (3.3), se obtuvo la edad de 1520 ± 90 años para la cerámica de Calixtlahuaca.

5.3. Cerámica de Teotihuacán.

De tres muestras pertenecientes a este sitio, solamente la clasificada como IIA23714, se pudo estudiar. Las dos restantes mostraron curvas TL diferentes de una lectura a otra.

En la Fig. 5.17, se muestra el espectro de emisión obtenido en el microscopio electrónico de barrido tanto para la cerámica como para el suelo de Teotihuacán. En esta figura se indica la energía de la banda K característica de cada elemento así como su intensidad.

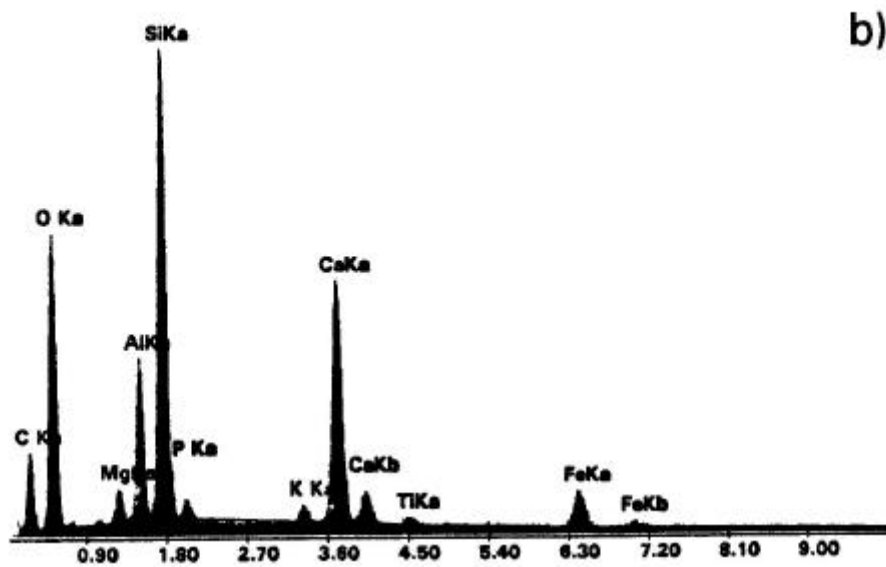
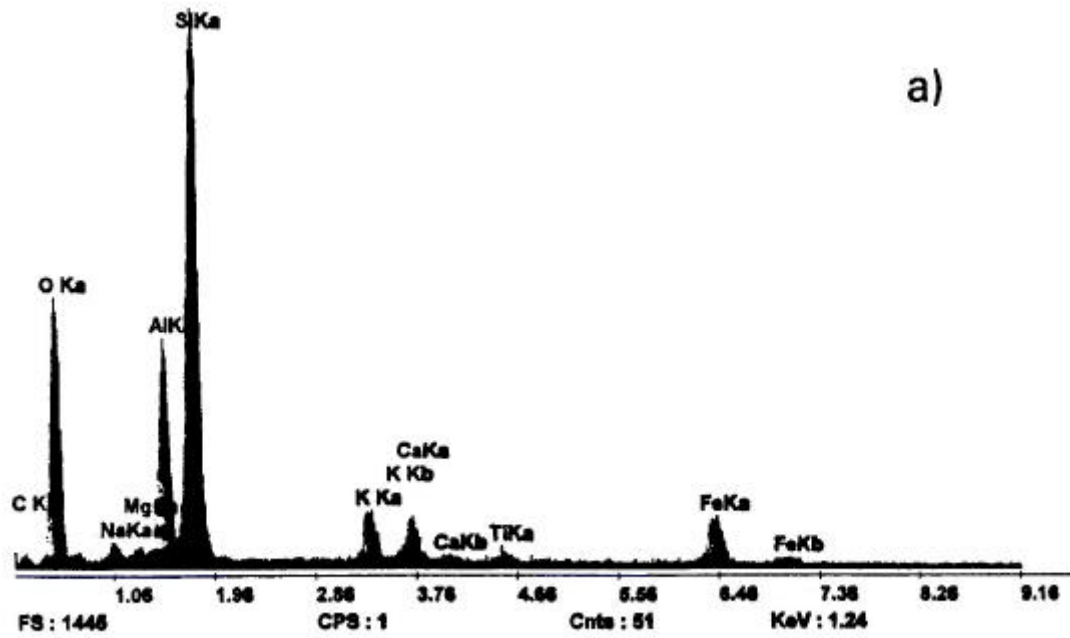


Fig. 5.17. Elementos identificados en el Microscopio Electrónico de Barrido.

a) Cerámica de Teotihuacán, b) suelo

En la Tabla 5.6, se muestran los valores de los diferentes elementos encontrados por microanálisis, tanto para la cerámica como para el suelo de Teotihuacán.

Tabla 5.6, Elementos presentes en la cerámica y suelo de Teotihuacán.

Elemento	Cerámica			suelo		
	%Peso	%Atómico	%Error	%Peso	%Atómico	%Error
C	0.426	0.675	8.69	28.52	40.51	1.58
O	65.327	77.710	1.40	39.82	42.47	0.83
Na	1.432	1.185	5.95			
Mg	0.744	0.583	6.89	1.35	0.95	2.75
Al	8.007	5.648	1.41	4.84	3.06	1.11
Si	16.205	10.981	0.87	13.44	8.17	0.65
P				0.58	0.32	4.68
K	1.984	0.966	2.82	0.48	0.21	4.54
Ca	1.646	0.782	3.28	7.92	3.37	0.81
Ti	0.521	0.207	7.47	0.24	0.09	9.53
Fe	3.708	1.264	2.68	2.80	0.86	2.06
Total	100.00	100.00		100.00	100.00	

En la Tabla 5.7, se muestra la concentración de potasio, de uranio y torio en las muestras de Teotihuacán. También se resumen los valores de la dosis correspondiente al tipo de radiación que emite cada uno de ellos.

Tabla 5.7, Elementos, tipo de radiación y dosis para la cerámica y suelo de Teotihuacán.

Muestra	Elemento	Concentración	Dosis (mGy/año)		
			α	β	γ
Cerámica IIA23714	K	$1.984 \pm 2.82\%$		1.646 ± 0.046	0.484 ± 0.013
	U	$1.79 \pm 0.22\text{ppm}$	4.974 ± 0.611	0.261 ± 0.032	0.205 ± 0.025
	Th	$5.72 \pm 0.68\text{ppm}$	4.221 ± 0.501	0.163 ± 0.019	0.294 ± 0.034
Suelo	K	$0.48 \pm 7.54\%$		0.398 ± 0.030	0.117 ± 0.008
	U	$10.93 \pm 0.88\text{ppm}$	30.374 ± 2.445	1.596 ± 0.128	1.255 ± 0.101
	Th	$2.78 \pm 0.05\text{ppm}$	2.051 ± 0.036	0.079 ± 0.001	0.142 ± 0.002

No fue posible colocar dosímetros TL en este sitio, por lo que la dosis de radiación gamma se determinó de la misma forma que para la muestra de Edzná, obteniéndose una D_γ de 5.158 ± 0.019 mGy/año. La eficiencia a la radiación alfa, así como la contribución cósmica fueron las mismas que para la cerámica de

Edzná. La tasa de dosis anual obtenida en condiciones secas fue de 5.2068 ± 0.1746 mGy/año. Se determinó el 12.6% de humedad en la cerámica que permaneció enterrada, por lo que al hacer la corrección por efecto de la humedad de acuerdo con 3.5, se obtuvo una dosis final de 4.4854 ± 0.0467 mGy/año.

La Fig. 5.18, muestra la curva TL natural obtenida de esta cerámica, donde se aprecia que no se define claramente el pico principal pero se aprecian dos pequeñas protuberancias que se podrían considerar como dos picos; el primero a 350 y el segundo a 380°C.

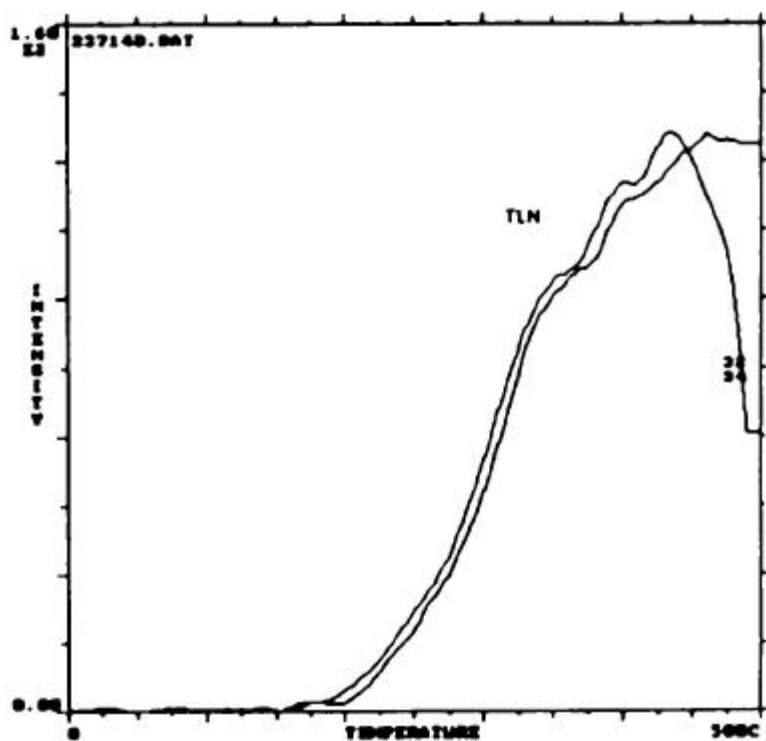


Fig. 5.18. Intensidad TL natural (TLN) de la cerámica de Teotihuacán.

La Fig. 5.19, muestra la intensidad TL natural y la suma de la intensidad TL natural mas la artificial. En esta figura se aprecia claramente que la muestra irradiada presenta un pico bien definido a 250°C. Sin embargo, esta cerámica tampoco mostró la meseta con la relación TLN/TLA, por lo que se procedió de la misma forma que para la cerámica de Calixtlahuaca.

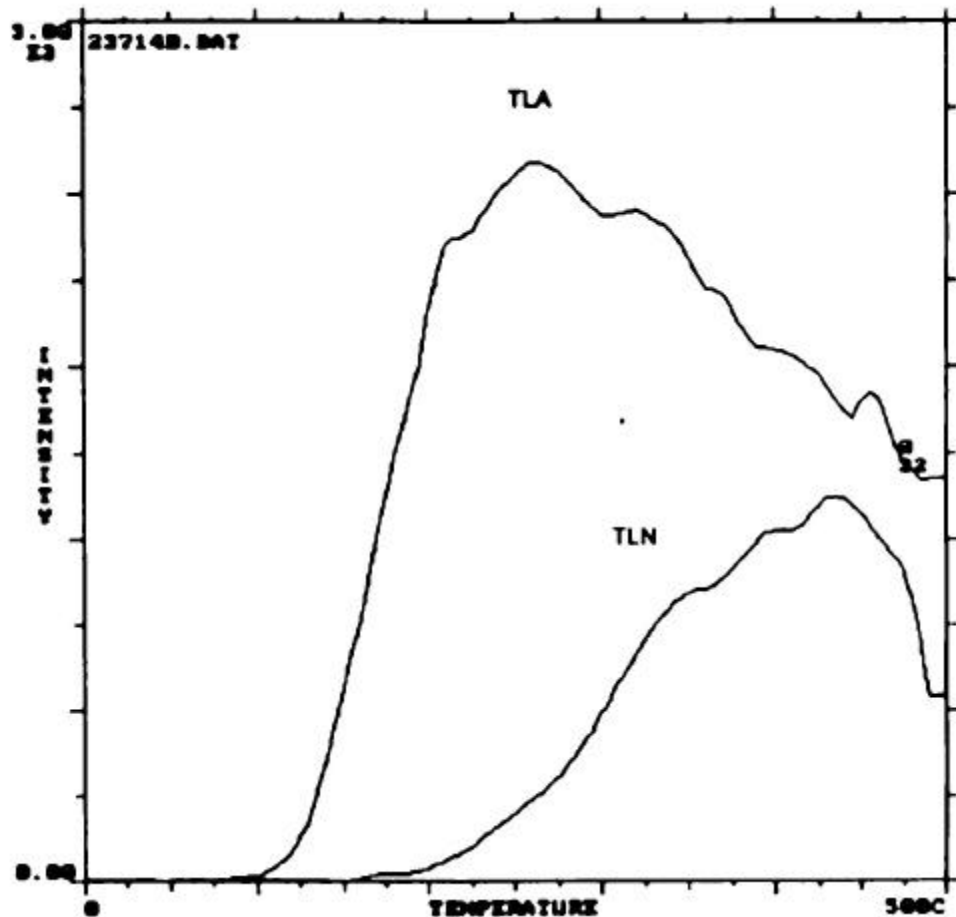


Fig. 5.19. Intensidad TL natural (TLN) y artificial (TLA) de la cerámica de Teotihuacán

Se siguió el mismo procedimiento para la determinación de la dosis equivalente, Q , así como el factor por supralinealidad I . Las dosis aplicadas para ambas pruebas fueron las siguientes; 25Gy (1β), 50Gy (2β), 75Gy (3β) y 100Gy (4β). Las lecturas TL también se tomaron 15 días después de la irradiación.

En la Fig. 5.20, se muestran las curvas TL obtenidas por el método de incremento de la dosis, donde se aprecia claramente un pico bien marcado a 250°C. Mientras que la Fig. 5.21 muestra la curva de calibración correspondiente, para determinar la dosis equivalente Q .

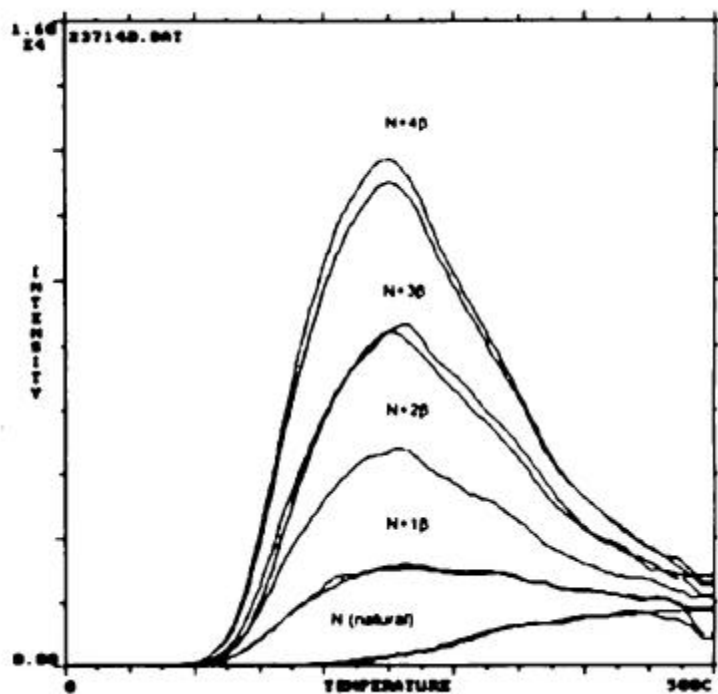


Fig. 5.20. Intensidad TL de la cerámica de Teotihuacán a diferentes dosis.
(1b = 25Gy, 2b = 50Gy, 3b = 75Gy, 4b = 100Gy)

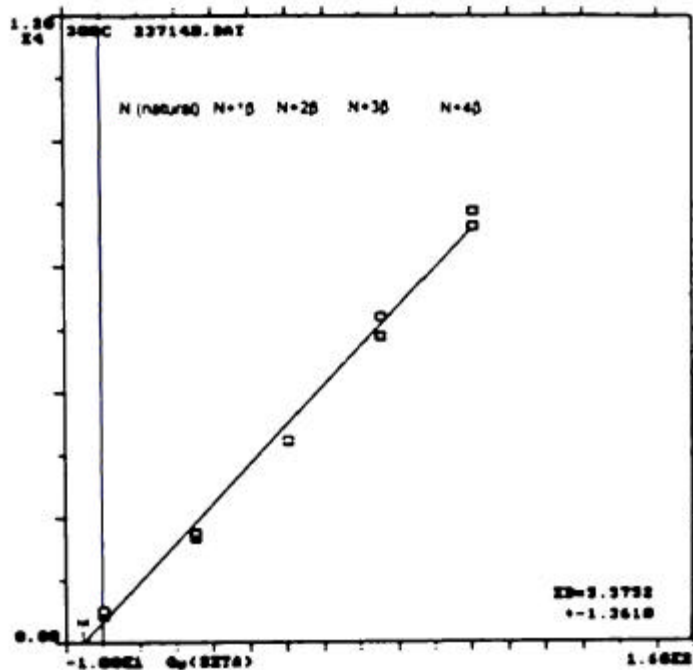


Fig. 5.21. Curva de calibración para determinar la dosis equivalente ($Q = ED$).

Por otro lado en la Fig. 5.22, se muestran las curvas TL obtenidas en la prueba de regeneración de la señal TL, mientras que en la Fig. 5.23, se muestra la curva de calibración para obtener el factor de corrección I .

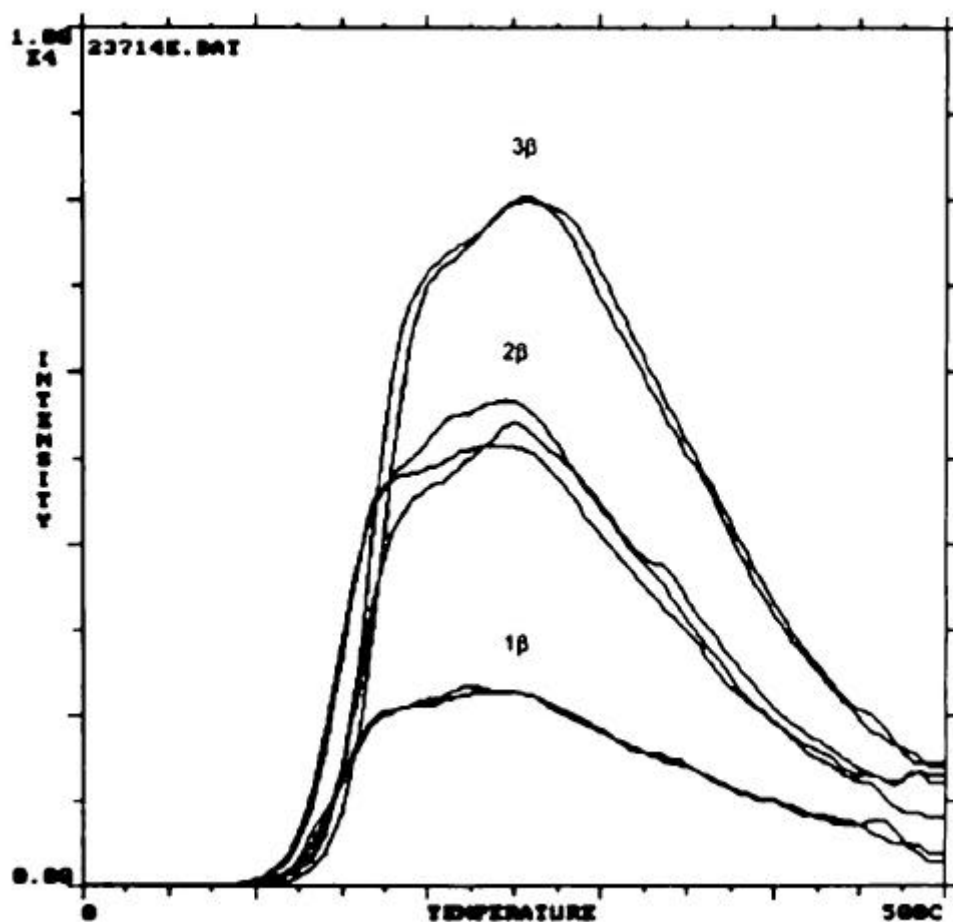


Fig. 5.22. Regeneración de la señal TL en la cerámica de Teotihuacán.

La determinación de la dosis equivalente, el factor de corrección por supralinealidad, así como de la paleodosis correspondiente, se determinaron en el mismo intervalo de temperatura de la cerámica de Calixtlahuaca. Sin embargo, al graficar la paleodosis contra la temperatura, la cerámica de Teotihuacán no mostró ninguna meseta, por lo que no fue posible estimar su edad.

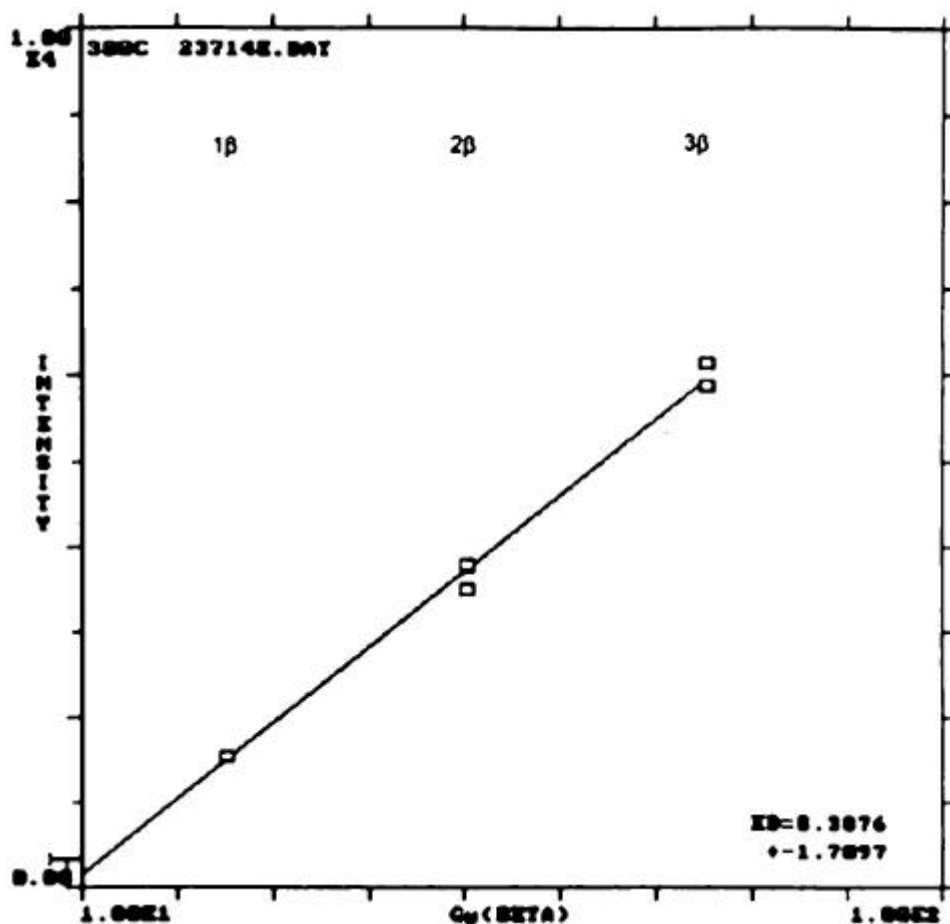


Fig. 5.23. Curva de calibración para determinar el factor I ($I=ED$)

5.4 Paleodunas de Sonora

En la Fig. 5.24, se muestra el espectro de emisión obtenido en el microscopio electrónico de barrido para esta muestra. En esta figura se indica la energía de la banda K característica de cada elemento así como su intensidad.

En la Tabla 5.8, se muestran los valores de los diferentes elementos encontrados por microanálisis para la muestra. En este caso, para el suelo se consideran los mismos componentes ya que se trata de arena del desierto donde se tomó la muestra en estudio.

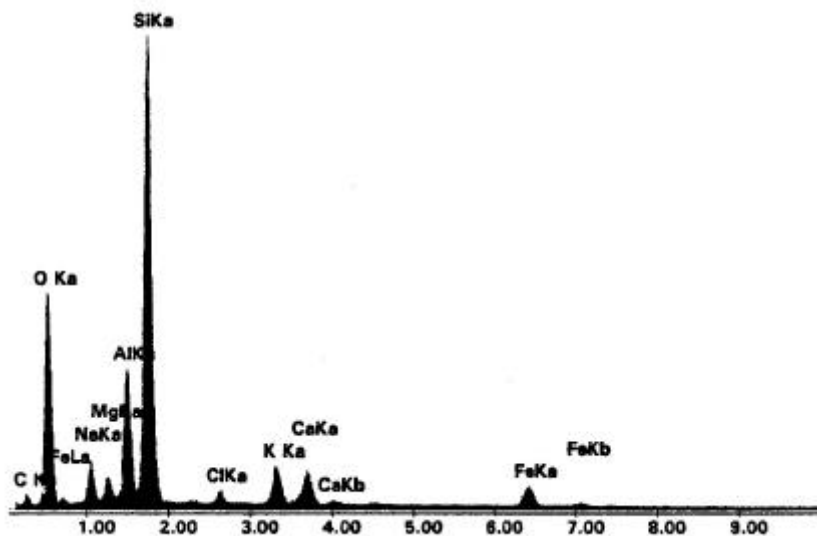


Fig. 5.24. Elementos identificados en el Microscopio Electrónico de Barrido.
Dunas del Desierto de Sonora.

Tabla 5.8, Elementos presentes en las dunas del desierto de Sonora.

Elemento	Duna		
	%Peso	%Atómico	%Error
C	13.06	20.73	3.04
O	41.38	49.34	0.76
Na	3.47	2.88	2.03
Mg	1.52	1.19	2.82
Al	7.30	5.16	0.94
Si	25.51	17.33	0.47
Cl	0.66	0.36	3.89
K	2.27	1.11	1.71
Ca	1.94	0.92	1.89
Fe	2.89	0.99	2.10
Total	100.00	100.00	

Mientras que en la Tabla 5.9, se muestran las concentraciones de los diferentes elementos y la tasa de dosis anual de radiación beta.

Tabla 5.9, Elementos y dosis de radiación beta de las dunas del desierto de Sonora.

Muestra	Elemento	Concentración	Dosis β (mGy/año)
Duna	K	$2.27 \pm 1.71\%$	1.8841 ± 0.0322
	U	$2.33 \pm 0.24\text{ppm}$	0.3404 ± 0.0350
	Th	$7.01 \pm 1.00\text{ppm}$	0.2004 ± 0.0286

En este caso no se muestra la tasa de dosis de radiación alfa porque no interviene en este método. Mientras que la dosis de radiación gamma se midió con dosímetros TL de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ elaborados en el ININ, obteniéndose una D_γ de 1.6066 ± 0.0096 mGy/año.

En la Fig. 5.25, se muestra la intensidad TL natural de los cuarzos con una pureza $\geq 98\%$, los cuales fueron separados por métodos magnéticos y por líquidos pesados. Todo este proceso se llevó a cabo con la ayuda de luz roja de muy baja intensidad.

La Fig. 5.26, muestra como la señal TL natural disminuye con el tiempo de blanqueo a la luz del sol. Mientras que en la Fig. 5.27 se muestra la intensidad TL obtenida por el método del incremento de la dosis, obteniéndose de esta forma la curva de calibración que se muestra en la Fig. 5.28 donde por extrapolación se determinaron las dosis de acuerdo con la Fig. 3.7.

En la Tabla 5.10, se resume la dosis equivalente Q para las muestras que permanecieron a la luz del sol desde 5 hasta 300 minutos. Estas se determinaron en función de la intensidad TL en el intervalo de temperatura entre 250 y 380 °C. La Fig. 5.29 muestra estos resultados.

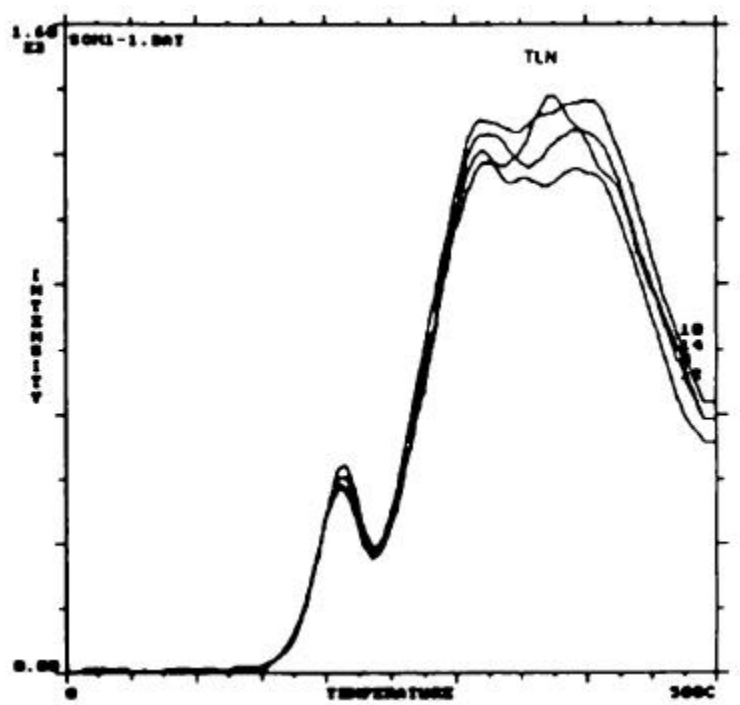


Fig. 5.25. Intensidad TL natural de los cuarzos presentes en las paleodunas.

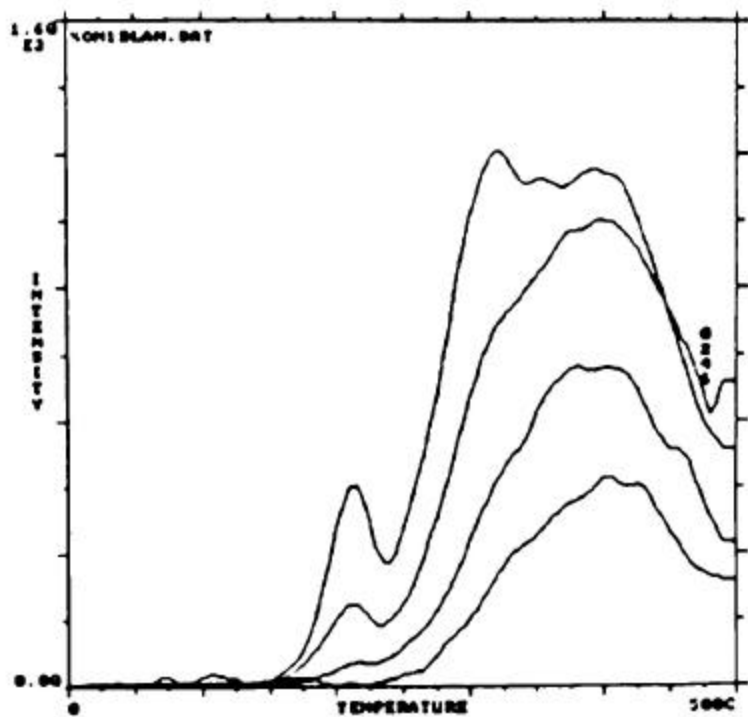


Fig. 5.26. Blanqueo de la señal TL de los cuarzos a diferente tiempo de exposición a la luz del sol.

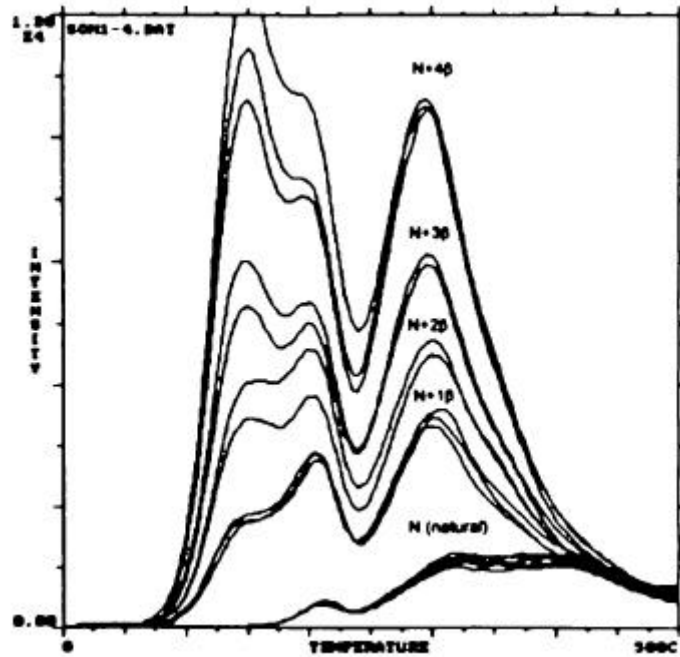


Fig. 5.27. Intensidad TL de los cuarzos a diferente dosis.
(1b = 15Gy, 2b = 30Gy, 3b = 45Gy, 4b = 60Gy)

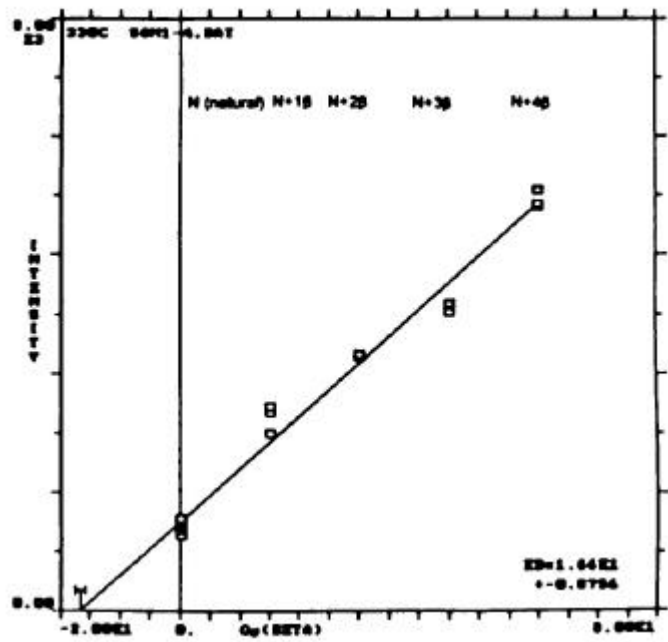


Fig. 5.28. Curva de calibración de los cuarzos para extrapolar la señal TL de las muestras expuestas al sol.

Tabla 5.10, Dosis equivalente (Gy) de los cuarzos que permanecieron expuestos a la luz del sol.

Temp	5min	5.8min	6.7min	7.5min	10min	40min	180min	300min
250	2.78	3.16	3.36	3.15	3.75	4.00	4.20	4.41
260	3.28	3.57	4.08	3.64	4.37	4.61	4.75	5.13
270	3.89	4.28	4.83	4.30	5.03	5.34	5.51	5.85
280	4.67	5.19	5.75	5.16	6.02	6.42	6.74	6.94
290	5.63	6.19	6.76	6.16	7.18	7.45	8.02	8.32
300	6.97	7.54	8.00	7.47	8.60	9.11	9.78	10.11
310	8.32	8.97	9.56	8.75	10.1	10.96	11.57	12.02
320	7.97	9.28	10.05	9.27	10.82	11.58	12.56	13.20
330	8.45	9.32	10.94	9.58	11.70	12.19	13.53	14.63
340	8.58	10.57	12.20	9.74	11.85	13.06	14.57	16.27
350	8.71	10.90	13.44	10.15	12.49	14.38	16.31	18.35
360	7.54	12.29	15.12	11.27	14.47	16.64	18.81	21.97
370	5.70	14.52	19.90	12.93	17.44	19.65	21.87	27.43
380	9.04	17.94	22.84	16.06		26.65	23.91	36.26

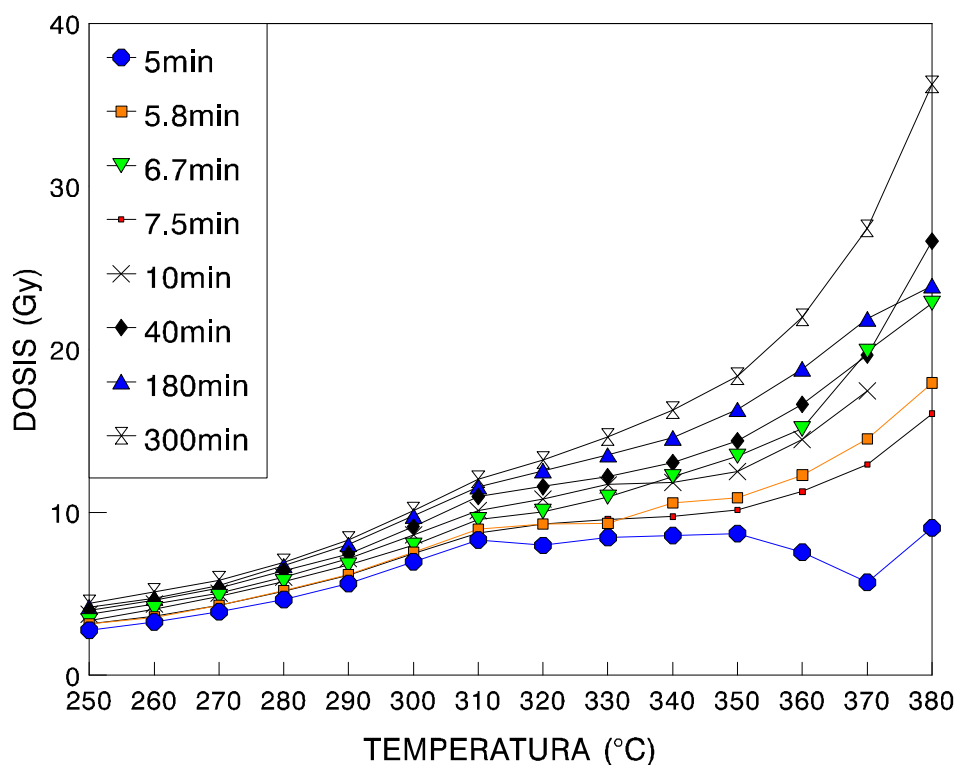


Fig. 5.29. Dosis equivalente Q, en función de la temperatura.

La Fig. 5.30, muestra la dosis equivalente Q de los cuarzos que sí presentaron meseta en el intervalo de temperatura entre 310 y 350°C, que fueron los que se blanquearon a la luz del sol por 5 y 5.8 minutos. La dosis equivalente Q promedio obtenida de esta prueba fue de 8.80 ± 0.32 Gy.

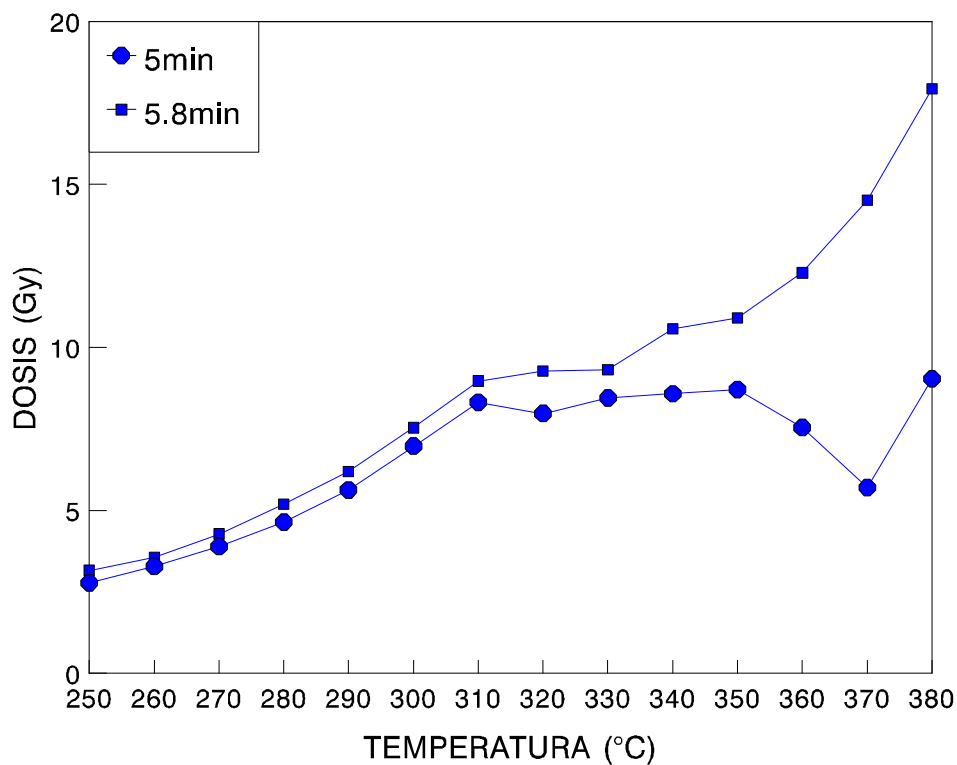


Fig. 5.30. Cuarzos que sí mostraron meseta.

En la Fig. 5.31, se muestran las curvas TL obtenidas de los cuarzos que se sometieron a la prueba de regeneración. Mientras que en la Fig. 5.32 se muestra la curva de calibración para determinar el factor de corrección por supralinealidad I . El valor promedio de este factor fue $I = 5.64 \pm 0.15$ Gy, por lo que la paleodosis total fue $P = 14.44 \pm 0.35$ Gy.

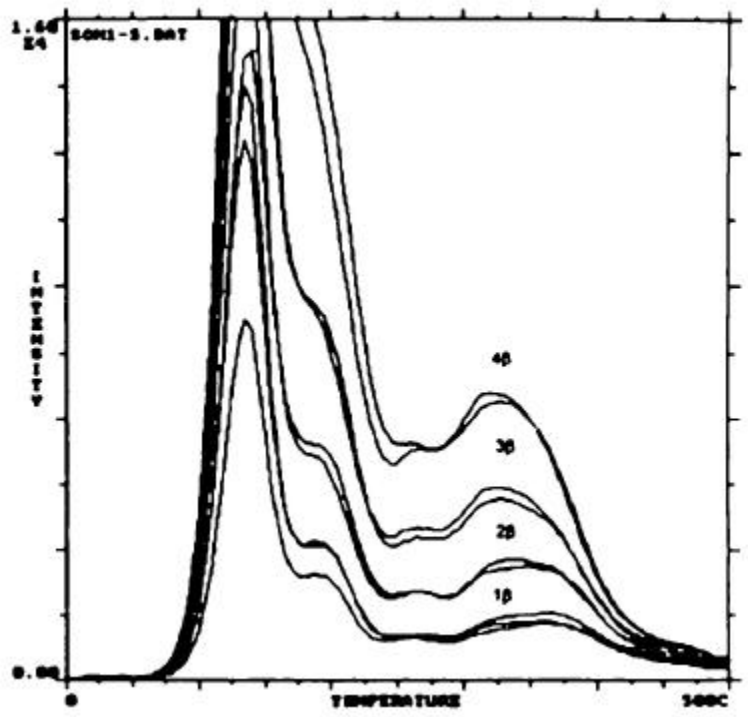


Fig. 5.31. Regeneración de la señal TL en los cuarzos.

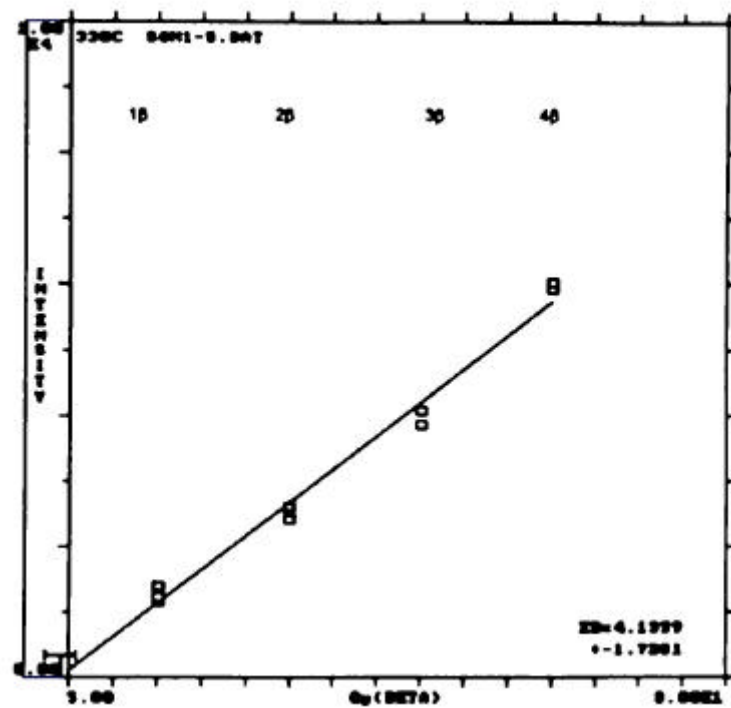


Fig. 5.32. Curva de calibración para la determinación del factor I ($I = ED$).

Con los resultados obtenidos y suponiendo que el contenido de humedad en el desierto es despreciable, se sustituyeron los valores anteriores en la ecuación (3.5), resultando una edad de 3810 ± 110 años.

CONCLUSIONES

La razón TLN/TLA de la cerámica de Edzná mostró una meseta entre 220 y 240°C obteniéndose una edad de 980 ± 90 años, la cual está de acuerdo con los valores reportados por la técnica de ^{14}C que están entre 800 y 1000 años.

En la cerámica de Calixtlahuaca, no se obtuvo meseta para la razón TLN/TLA; sin embargo, al graficar temperatura contra paleodosis se obtuvo la meseta entre 340 y 360°C, determinándose una edad de 1520 ± 90 años. No existe ningún fechamiento por otro método en este sitio; sin embargo la validez de la edad estimada se comprobó con los estudios petrográficos realizados a la cerámica, cuyas características corresponden al clásico temprano⁽⁹¹⁾.

La razón TLN/TLA, de la cerámica de Teotihuacán tampoco mostró meseta, ni al graficar la temperatura contra la paleodosis, por lo que no fue posible estimar su edad. Este comportamiento de la cerámica se debe posiblemente a que estuvo almacenada cerca de alguna fuente de calor, provocando el desvanecimiento de la TL.

De las dunas, solamente aquellas que se borraron parcialmente a la luz del sol durante 5 y 5.8 minutos presentaron meseta en el intervalo de temperatura entre 310 y 350°C. La edad obtenida para estas muestras fue de 3810 ± 110 años. A la fecha, no existe en México ningún otro fechamiento de este tipo de muestras por lo que no fue posible comparar la edad estimada.

El método de teñido de las plagioclasas, resulta apropiado para la obtención de cuarzos con una pureza $\geq 98\%$, con los cuales resulta apropiada la técnica de blanqueo parcial para su fechamiento.

Es de vital importancia tener cuidado en la recolección de las muestras, ya que se debe evitar la exposición de éstas a fuentes de radiación o de calor, lo cual induce señal TL o desvanecimiento de la misma, alterando consecuentemente los resultados.

La identificación de la meseta o región de trampas estables, es necesaria para poder fechar a muestras geológicas o arqueológicas. La región continua de la meseta indica claramente que las trampas son lo suficientemente profundas como para permanecer inalteradas a lo largo de los años. Una cerámica que presenta meseta, con toda seguridad no ha sido expuesta al calor, por lo que los electrones que ocupan las trampas de esta región no han recibido la energía necesaria para salir de dichas trampas con el paso del tiempo^(41,68).

El fechamiento por TL es un método confiable tanto para muestras geológicas como arqueológicas, con una incertidumbre entre 2.8 y 8.8%, la cual es más baja que aquella mostrada por el método de ^{14}C ^(12,68,80).

Los resultados obtenidos de este trabajo^(22,23), han despertado el interés de muchos grupos de investigación tales como; geólogos, geofísicos, arqueólogos, antropólogos, etc. Por lo que actualmente se tiene en proceso una gran cantidad de muestras de diferentes sitios, tanto del país como del extranjero. Lo cual nos motiva a continuar con estas investigaciones, ya que cada muestra presenta características muy distintas, por lo que se deben estudiar individualmente.

Otra aplicación del método de fechamiento por TL, es en la exploración petrolera ya que es fundamental conocer la edad de las rocas donde se realiza una perforación. Conocida la edad de las rocas, se puede pronosticar con mayor seguridad el sitio donde hay yacimientos de petróleo, por lo que puede ser de mucha utilidad en este campo para evitar gastos innecesarios.

El método de fechado por TL resulta ser promisorio respecto a otras técnicas tradicionales y podrá ser utilizado en lo sucesivo para fechar muestras de otros sitios arqueológicos, donde sus pobladores no hayan dejado testimonio *escrito* de su presencia. Mientras que el fechamiento de las paleodunas, permitirá el estudio de los fenómenos geológicos que provocaron cambios climáticos en el pasado. Los resultados aquí mostrados son los primeros en su tipo que se realizan en México.

REFERENCIAS

- 1.-Arnold, J.R. y Libby, W.F. Radiocarbon Dates, 113 No 2927, 111-120, 1951.
- 2.-White, S.E., Cortés, M.R., Ramírez, J.O. y Valastro, S. Geomorfología Volcánica y Acontecimientos Glaciales durante el Pleistoceno Superior y Comparación con las Montañas Rocallosas. Colección Científica, Serie Arqueología, Instituto Nacional de Antropología e Historia. 1990.
- 3.-Bloomfield, K. A Late-Quaternary Monogenetic Volcano Field in Central Mexico. Geol. Rundsch., **64**, 476-497, 1975.
- 4.-Ortega Guerrero, B. Paleomagnetismo, Magnetoestratigrafía y Paleoecología del Cuaternario Tardío en el Lago de Chalco, Cuenca de México. Tesis Doctoral, Instituto de Geofísica, UNAM. 1992.
- 5.-Stopees, G.R. y Sheridan, M.F. Giant Debris Avalanches from Colima Volcanic Complex, Mexico: Implications for Long-runout Land-Slides (>100km) and Hazard Assessment. Geology, **20**, 299-302, 1992.
- 6.-Robin, C., Mossad, P. Camus G., Cantagrel J.M., Gorgaud, A. and Vincent, P. Eruptive History of the Colima Volcanic Complex (Mexico). J. Volcanol. Geotherm. Res., **31**, 99-113, 1987.
- 7.-Luhr, J.F. and Prestegard, K.L. Caldera Formation at Volcán Colima, Mexico. By Large Holocene Debris Avalanche Deposits. J. Volcanol. Geotherm. Res., **35**, 335-348, 1988.
- 8.-Siebe, C., Rodríguez, S., Stoopes, G., Komoroski, J.C. and Sheridan, M. How many Debris Avalanche Deposits at the Colima Volcanic Complex or: quo vadismus?. Tercera Reunión Nacional "Volcán Colima", Universidad de Colima, Resúmenes 15-16, 1992.
- 9.-Clark, R.M. A Calibration Curve for Radiocarbon Dates. Antiquity, **49**, 251-266, 1975.
- 10.-Martín del Pozzo, A.L. Geoquímica y Paleomagnetismo de la Sierra de Chichinautzin. Tesis Doctoral, Facultad de Ciencias, UNAM. 1990.
- 11.-Forsyth, D.W. Investigation at Edzná, Campeche, Mexico. Brigham Young University, Utah Provo Papers at the New World Foundation **60**, 1983.
- 12.-Aitken M.J. Thermoluminescence Dating. London Academic Press 1985.1985.

- 13.-J.R. Cameron, N. Suntharalingam. Thermoluminescent dosimetry TLD. Madison, The University of Wisconsin Press, 1968.
- 14.-Azorín J., Gutiérrez A., Niewiadomski T. and González P. Dosimetric Characteristics of LiF:Mg,Cu,P TL Phosphor Prepared at ININ, Mexico. .Rad. Prot. Dosim. **33**(1/4), 283 1990.
- 15.-Niewiadomsky T., Jasinka M. and Ryba E. Sintered TL Dosimeters. Proc. Therd Int. Conf. Luminescence Dosimetry, Risö-Report, 249, Vol, I Danish AEC, Risö, Roskilde, Denmark, 332 (1971).
- 16.-Portal G. Preparation and Properties of Principal TL Products, Applied Thermoluminescence Dosimetry. Eds. M. Oberhofer and Scharmann **6**, 97-122 (1981).
- 17.-Horowitz Y.S. Thermoluminescence and Thermoluminescent Dosimetry. CRC Press. Inc. Boca Raton, Florida (1984).
- 18.-McKeever S.W. and Horowitz Y.S. Charge Trapping Mechanism and Microdosimetric Processes in Lithium Fluoride. Radiat. Phys. Chem. **36**, 35 (1990).
- 19.-Meijvogel K., Bos A.J.J. Influence of Thermal Treatments on Glow Curve and Thermoluminescence Emission Spectra of LiF:Mg,Cu,P. Rad. Meas. **24(3)** 239-247 (1995).
- 20.-Mahjna S., Yossian D. Horowitz Y.S. The Effect of Thermal Annealing on Defect Structure and Thermoluminescence in LiF:Mg,Cu,P. Rad. Meas. **24(4)** 395-400 (1995).
- 21.-González P.R. Optimización de la Preparación y Estudio de las Propiedades Termoluminiscentes del LiF:Mg,Cu,P para Dosimetría de la Radiación Ionizante. Tesis maestría, FQUNAM, agosto 1995.
- 22.-González P., Chung H., Azorín J., Schaaf P. and Ramírez A. Thermoluminescence Dating of a Pottery Sample From Edzná-Campeche in Mexico. Nucl. Sci. J. **35(4)** 280-284 (1998).
- 23.-González P., Azorín J., Schaaf P., Ramírez A., Assessing the Potential of Thermoluminescence Dating of Pre-Conquest Ceramics From Calixtlahuaca, Mexico. Rad. Prot. Dosim. **84(1-4)** 483-487 (1999).

- 24.-Mann W.B. and Garfinkel S.B. Radioactivity and its Measurement Van Nostrand Inc. Princeton N.J., 1964.
- 25.-Choppin, R. and Rydberg J. Nuclear Chemistry. Theory and Applications. Pergamon Press, 1980.
- 26.-Joliot, F. and Curie I. Nature **133**, 201, 1934.
- 27.-Halliday, D. Introductory Nuclear Physics. New York. J. Wiley 1955.
- 28.-Arya, A.T. Fundamentals of Nuclear Physics. Allyn and Bacon, Inc., Boston, 1966.
- 29.-Azorín, J. Introducción a la Física Nuclear, Cap. III. Ediciones Técnico-Científicas AZVEG, México, 1997.
- 30.-Bowen, H.J.M., and Gibbons D. Radioactivation Analysis. Clarendon Press, Oxford, 1963.
- 31.-Azorín J. Luminescence Dosimetry. Theory and Applications (Edit. Técnico-Científicas, México, D.F.), 1990.
- 32.-Oberhofer M. and Scharman A. Applied TL Dosimetry. ECSC, EEC, EAEC, Brussels and Luxemburg 1981.
- 33.-Aitken, M.J. Physics and Archaeometry 2nd Edn. Oxford University Press, London 1974.
- 34.-Cameron J.R., Suntharalingam N. Wilson R.S. and Watanabe S. Supralinearity of Thermoluminescent Phosphors. Proc. 2nd Int. Conf. Lumin. Dosim., Gatlinburg. 1968.
- 35.-Urbach E. Luminescence of Alkali Halides . Sber. Akad. Wiss. Wien . Abt. **Ila** 139, 363, 1930.
- 36.-Hoogenstraaten, W. Electron Traps in Zinc Sulphide Phosphors. Philips Res. Rept. **13**, 515, 1958.
- 37.-Chen R. Kinetics of Thermoluminescence Glow Peaks In: Thermoluminescence and Thermoluminescent Dosimetry (Ed. Y. S. Horowitz, CRC Press, Boca Raton), 1984.

- 38.-López E.J. Ajuste del Modelo de Chen de Orden Cinético General, Aproximado a la Podgorsak, a Datos Experimentales de Dosímetros TL. Informe Técnico-Científico No. DSICGI-03-94/A, ININ. 1994.
- 39.-Daniels, F., Boyd, C.A. and Saunders, D.F. Thermoluminescence as a Research Tool. *Science* **117**, 343-349, 1953.
- 40.-Kennedy, G.C. and Knopff, L. Dating by thermoluminescence. *Archaeology* **13**, 147-148, 1960.
- 41.-Aitken, M.J., Tite M.S. and Reid J. Thermoluminescent Dating of Ancient Ceramics. *Nature* **202**, 1032-1033, 1964.
- 42.-Aitken, M.J., Zimmerman, D.W. and Fleming, S.J. Thermoluminescent Dating of Ancient Pottery. *Nature* **219**, 442-444, 1968.
- 43.-Ichikawa, Y. Dating of Ancient Ceramics by Thermoluminescence. *Bulletin of the Institute of Chemical Research, Kyoto University* **43**, 1-6, 1965.
- 44.-Mezess, R.B. and Zimmerman, D.W. Pottery Dating from Thermoluminescence . *Science* **152**, 347-348, 1966.
- 45.-Ralph, E.K. and Han, M.C. Dating of Pottery by Thermoluminescence. *Nature* **210**, 245-247, 1966.
- 46.-Mejdahl, V. Thermoluminescence Dating of Ancient Danish Ceramics. *Archaeometry* **11**, 99-104, 1969.
- 47.-Prescott , J.R., Hutton, J.T., Habermehl, M.A., Van, M. Nuclear Analysis Techniques as a Component of Thermoluminescence Dating. 9th Australian Conference on Nuclear Techniques of Analysis. Newcastle, Australia, 1995
- 48.-Leung, P.L., Stokes, M.J., Wang, W., Zhou Z. And Xia J. Pre-dose Dating using Fine Poly-mineral Grains from Pottery. *Nuclear Techniques* **20(8)**, 465-471, 1997.
- 49.-Leung, P.L., Stokes, M.J., Wang, W., Zhou Z. And Xia J. The TL Dating of Ancient Porcelain. *Nuclear Techniques* **20(8)**, 478-484, 1997.
- 50.-Xia J., Wang W., Xiong Y. The TL Dating of Mao Pagoda in Quingpu Country. *Nuclear Techniques* **20(8)**, 502-504, 1997.
- 51.-Göksu, H.Y. and Turetken, N. Source Identification of Obsidian Tools by TL. *PACT* 3, 356-358, 1979.

- 52.-Wintle, A.G. Anomalous Fading of Thermoluminescence in Mineral Samples. Nature **245**, 143-144, 1973.
- 53.-Guérin, G. and Valladas, G. Thermoluminescence Dating of Volcanic Plagioclases. Nature **286**, 697-699, 1980.
- 54.-Morozov, G.V. The Relative Dating of Quaternary Ukrainian Sediments by the Thermoluminescence Method. 8th International Quaternary Association Congress, Paris, 167, 1968.
- 55.-Bourov, N.G., Vlasov, V.K., Kiryukhin, O.V. and Fatkulbayanova, N.L. Thermoluminescence Measurements of Ceramic Samples from Accidentally Polluted Territory of Southern Urals. Radiat. Meas. **24(4)**, 493-498, 1995.
- 56.-Bailiff, I.K. The Use of Ceramics for Retrospective Dosimetry in the Chernobyl Exclusion Zone. Radiat. Meas. **24(4)**, 507-511, 1995.
- 57.-Nakanishi, A. Thermoluminescence Study of the Terrestrial Ages of Antarctic Meteorites. Radiat. Meas. **23(2/3)**, 405-408, 1994.
- 58.-Benoit, P.H., Fayetteville, A.R., Yongheng C., Wushan, G. Galactic Cosmic-Rays-Produced Thermoluminescence Profiles in Meteorites, Lunar Samples and a Terrestrial Analog. Radiat. Meas. **26(2)**, 281-289, 1996.
- 59.-Chen Y., Natural Thermoluminescence of Meteorites and Cosmic Ray Exposure of their Parent Bodies. Nuclear Techniques **20(8)**, 508-512, 1997
- 60.-Ikeya M. New Applications of Electron Spin Resonance, Dating, Dosimetry and Microscopy. World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd. 1993.
- 61.-Ikeya M. ESR (EPR) Dating Based on Natural Radiation Effects. Nucl. Geophys. **8(3)**, 201-224, 1994.
- 62.-Rink, W.J., Billion-year Age Dependence of Luminescence in Granitic Quartz. Radiat. Meas. **23(2/3)**, 419-422, 1994.
- 63.-Visocekas, R., Zink, A., Tale, V. and , Spooner, N.A. Trap Spectroscopy and TSL in Feldspars. Rad. Prot. Dosim. **66(1/4)**, 391-394, 1996.
- 64.-Fukuchi, T., Quartet ESR Signals Detected from Natural Clay Minerals and Their Applicability to Radiation Dosimetry and Dating. Jap. J. of Appl. Phys. **35(3)**, 1977-1982, 1996.

- 65.-Braunlich, P. Gasiot, J. and Fillard, J.P. Laser Heating in Thermoluminescence Dosimetry. J. Appl. Phys. **53**, 5200-5209, 1982.
- 66.-Zimmerman, D.W. Introduction to Basic Procedures for Sample Preparation and TL Measurement of Ceramics. PACT 2, 1-6, 1978.
- 67.-Huxtable, J. Fin Grain Dating . PACT 2. 7-11, 1978.
- 68.-Fleming, S.J. Thermoluminescence Techniques in Archaeology. Oxford University Press, New York, 1979.
- 69.-Fleming, S.J. Thrmoluminescent Dating: Refinement of the Quartz Inclusion Method. Archaeometry **12**, 133-147, 1970.
- 70.-Chen, R., McKeever, S.W. Characterization of Nonlinearities in the Dose Dependence of Thermoluminescence. Rad. Meas. **23(4)**, 667-673, 1994.
- 71.-Sunta, C.M., Yoshimura, E.M., Okuno E. Supralinearity and Sensitization Factors in Thermoluminescence. Rad. Meas., **23(4)**, 655-666, 1994.
- 72.-Kristianpoller N., Chen R. and Israeli M. Dose Dependence of Thermoluminescence Peaks. J. Phys. D: Appl. Phys. **7**, 1063-1072 (1974).
- 73.-Chen R., Yang X.H. and McKeever S.W.S. The Strongly Superlinear Dose Dependence of Thermoluminescence in Syntetic Quartz. J. Phys. D: Appl. Phys. **21**, 1452-1457 (1988)
- 74.-Horowitz Y.S. Matematical Modelling of TL Supralinearity for Heavy Charged Particles. Radiat. Prot. Dosim. **33**, 75-81 (1990).
- 75.-McKeever S.W.S. Modelling Supralinearity in Gamma Irradiated TL Dosimeters. Radiat. Prot. Dosim. **33**, 83-89 (1990)
- 76.-Chen R.and Fogel G. Supralinearity in Thermoluminescence Revisited. Radiat. Prot. Dosim. **47(1/4)**, 23-26 (1993).
- 77.-Bailiff, I.K. Beta TLD Apparatus for Small Samples. PACT 6. 72-75, 1982.
- 78.-Mejdahl, V. The Plateau Method for Dating Partially Bleached Sediments by Thermoluminescence. Quaternary Sciences Reviews, **7**, 347-348, 1988.

- 79.-Morris, M.F. and McKeever, W.S. Further Developments of A Model for Describing the Optical Bleaching of the Thermoluminescence From Quartz as Applied to Sediment Dating. *Rad. Prot. Dosim.* **47(1/4)**, 637-641, 1993.
- 80.-Zimmerman, D.W. Thermoluminescent Dating Using Fine Grains from Pottery. *Archaeometry* **13**, 29-52, 1971.
- 81.-Wang, W., Zhou, Z. and , Xia J. The Conversión Factor of α Radiation Efficiency. *Nuclear Techniques.* **20(8)** 450-454, 1997
- 82.-Evans, R.D. The Atomics Nucleus. McGraw-Hill , New York, Toronto and London. 714-715, 1955.
- 83.-Berger, M.J. and Seltzer, S.M. In Estudios in Penetration of Charged Particles in Matter (Publ. 1133 NAS-NRC, Washington, D.C.), 205-268, 1964.
- 84.-Nelson R.A., Measurements Uncertainties of Long-Term ^{222}Rn Averages at Environmental Levels Using Alpha Track Detectors. *Health Phys.* 53(5), 447-453, 1987.
- 85.-Tommasino L. Radon Monitoring by Alpha Track Detection in Radon Monitoring in Radioprotection, Environmental Radioactivity and Earth Sciences, World Scientific, Singapore, 123-132, 1990.
- 86.-Yong D.A. Etching of Radiation Damage in Lithium Fluorid. *Nature*, 375-377, 1958.
- 87.-Miles J.C.H. and Sinnaeve J. The Performace of Different Types of Etched-Track radon Dosemeter in two International Intercomparisons. *Nucl. Tracks and Rad. Meas.*, 2(1-6), 735-738, 1984.
- 88.-Matos M. Teotihuacán. *Arqueología Mexicana*, **II 10**, 75-79, oct.-nov. 1994.
- 89.-Manzanilla L. Teotihuacán. *Arqueología Mexicana*, **V 30**, 26-27, mar.-abr. 1998.
- 90.-Microsoff, Enciclopedia Encarta 97.
- 91.-López C. Ceramista Arqueóloga del IIAUNAM, comunicación personal.
- 92.-Benavides, A. Mayas de Campeche. *Arqueología Mexicana*. **III 18**, 26-31, 1996.

- 93.-Travesi A. Análisis por Activación Neutrónica. Publicaciones Científicas de la Junta de Energía Nuclear, Madrid, Esp. 1975
- 94.-Hutton J.L., and Prescott J.R. Field and Laboratory Measurement of Low-Level Thorium, Uranium and Potassium. Nucl. Tracks Radiat. Meas. **20(2)** 367-370, 1992.
- 95.-Om J. Scanning Electron Microscopy. Plenum Press, New York-London, 107-131, 1976.
- 96.-Smith, M.A., Prescott, J.R. and Head, M.J. Quaternary Science Reviews (Quaternary Geochronology), **16**, 299-320, 1997.
- 97.-Azorin J., González G., Gutiérrez A. and Salvi R. Preparation and Properties of a highly Sensitive $\text{CaSO}_4\text{:Dy}$ Thermoluminescent Dosimeter. Health Phys. **46(2)**, 269, 1984.