

**TOKAT BALLICA MAĞARASI SU ALTI NUMUNELERİNİN
IRSL YÖNTEMİ İLE EŞDEĞER DOZ TESBİTİ**

Mustafa Hicabi BÖLÜKDEMİR, Şeref OKUDUCU

Gazi Üniversitesi, Fen-Edebiyat Fakültesi, Fizik Bölümü, 06500 Teknikokullar/Ankara
e-mail : hicabi@gazi.edu.tr, okuducu@gazi.edu.tr
Alınış: 09 Ağustos 2007, Kabul: 24 Ekim 2007

Özet: Optik Uyarmalı Lüminesans yöntemi özellikle 1985'den beri arkeolojik ve jeolojik numunelerin eşdeğer doz tespitinde ve tarihlendirilmesinde yoğun bir şekilde kullanılmaktadır. Bu yöntemde, feldspat numuneler için en uygun uyarma dalgaboyu infrared'dir ve bu durumda işlem İnfrared Uyarmalı Lüminesans (IRSL) olarak adlandırılır. Tarihlendirme işleminin en önemli adımlarından birisi eşdeğer doz (Paleodoz-Toplam doz) ölçümüdür. Bu çalışmada, içinde doğal oksijenli ortam üreten Tokat-Ballıca Mağarasından alınan numunelerin eşdeğer doz ölçümleri tek tablet ilave doz (SAAD) ve tek tablet yeniden oluşturma ilave doz (SARA) yöntemleri kullanılarak hesaplanmıştır. Çevresel şartların, tarihlendirme işlemlerinde önemli bir parametre olduğu sonucuna varılmıştır.

Anahtar kelimeler: OSL, IRSL, feldspat

**THE DETERMINATION OF EQUIVALENT DOSE WITH IRSL METHOD
FOR UNDERWATER SAMPLES FROM TOKAT-BALLICA CAVE**

Abstract: Particularly since 1985, Optically Stimulated Luminescence Technique has been intensively used in determination of equivalent dose and dating of archeological and geological materials. In this method, the most suitable wavelength is infrared to stimulate the feldspar sediments, and in this case it is called Infrared Stimulated Luminescence (IRSL). One of the most important steps in dating is the measurement of equivalent dose (Paleodose). In this study, equivalent dose determination of sediment obtained from Tokat-Ballıca Cave that is formed medium with natural oxygen itself is calculated using Single Aliquot Additive Dose (SAAD) and Single Aliquot Regeneration Additive Dose (SARA) processes. The conclusion is drawn that the environmental conditions is an important parameter for the determination of equivalent dose in dating.

Key words: OSL, IRSL, feldspar

GİRİŞ

Organik ve inorganik malzemelerin tarihlendirilmesi için çeşitli yöntemler vardır. Doğal ve yapay olarak türemiş, çevresel olaylarla ilişkili materyallerin tarihlendirilmesi için organik olmayan malzemelerle çalışmak önemlidir, bu nedenle yeni ve farklı yöntemler geliştirilmiştir (TANIR vd. 2000, 2002).

Doğal veya yapay olarak türemiş çevresel olaylarla ilişkili materyallerin oluşum zamanının belirlenmesi, pek çok bilim dalının araştırmalarında büyük önem taşır (LIRITSIZ 2000). Optik Uyarmalı Lüminesans (OSL) çalışmaları 1950'li yıllara kadar dayanmaktadır, fakat

Jeolojik ve arkeolojik eserlerin tarihlendirilmesinde kullanımı HUNTLEY vd. (1985) tarafından sunulan çalışma ile yoğunlaşmıştır. Bu yeni yöntem Termolüminesans (TL) ve Electron Spin Rezonans (ESR) ile aynı sınıfa dahil olup benzer özellikler gösterir ve doğal bir radyasyon dozimetresi gibi kullanılabilen bir tekniktir.

Bir obje gömüldüğünde, toprakta doğal olarak bulunan ^{40}K , ^{232}Th , ^{238}U gibi radyoizotoplardan veya kozmik ışıklardan gelen radyasyonun etkisinde kalır. Soğurulan radyasyon dozu, normal atomik bölgelerdeki elektronların serbest kalmasına neden olur. Bu elektronlar başka yerlerde tuzaklanarak, düzenli olması gereken yapıda bozulmalar oluştururlar. Bu tuzaklanmış elektronların sayısı, mineralin aldığı nükleer radyasyon dozuyula orantılıdır. Lüminesans şiddeti de örnek tarafından soğurulan nükleer radyasyon dozuyula orantılıdır. Mineral bir şekilde uyarılırsa elektronlar bu tuzaklardan serbest hale geçerler. Bu uyarma TL'de ısı ile OSL'de ışık ile sağlanır. Mineralin gömülme süresi ne kadar uzun ise o kadar çok radyasyona maruz kalmıştır. Bu yöntemle tarihlendirmede amaç, örneğin aldığı nükleer radyasyon dozunu bularak en son gün ışığa maruz kaldığı tarihi bulmaktır.

HÜTT vd. (1988) ilk kez infrared ışığın ($880 \pm 80 \text{ nm}$) feldspatlardaki lüminesansı ölçmek için kullanılabileceğini ortaya çıkarmıştır. SPOONER vd. (1990)'de infrared uyarımı ile sadece feldspatlardan lüminesans üretildiğini, kuvarlarda lüminesans oluşturulamadığını açıklamıştır.

FULLER vd. (1994) tarafından yapılan bir çalışmada farklı yaklaşımlar kullanılarak yaşları farklı yöntemlerle belirlenmiş örneklerle infrared uyarmalı lüminesans (IRSL) uygulanmış ve TL'den daha iyi sonuçlar elde edildiği görülmüştür. İnfrared diyot sistemleri, lazer sistemlerine göre ölçüm cihazına ve ölçümlere kolaylık getirmiştir. IRSL, kuvarlardan lüminesans ölçmek için uygun olmamasına rağmen kuvars örneklerin saflığını test etmek için uygulanmıştır (BOTTER-JENSEN 1993).

Güneş ışığına maruz kalmamış, tarihlendirme çalışmalarında kullanmak için uygun malzeme olan örnekler arasında; okyanusa ve göle ait, lös, alüvyon, çamur, kum veya kumsal çökelti ve kendiliğinden bir buzulun buzu içine katılmış toz, nehirlere ait tortular vb. vardır (DULLER 1994, FULLER 1994). Bu örneklerin farklı bölgelerden alınmasına rağmen, yaş tayini çalışmalarındaki TL'nin sıcaklığa bağlı değişimi genellikle her örnek için aynıdır (LIRITZIS 2000).

Sedimentlerin lüminesans ile tarihlendirilmeleri iki temel büyüklüğün ölçülmesine dayanır: 1) Eşdeğer doz, 2) Yıllık Doz. Eşdeğer doz, numunenin son güneş ışığına maruz kaldığı andan bugüne kadar aldığı toplam nükleer radyasyon dozunu tanımlar ve yıllık doz numunenin bir yılda maruz kalabileceği dozu tanımlar. Eşdeğer dozun tespit edilebilmesi için farklı yöntemler geliştirilmiştir ve bu konudaki çalışmalar devam etmektedir. Çünkü kullanılan yöntemlerin kendilerine özgü avantaj ve dezavantajları mevcuttur. Bu konuda WINTLE (1997), DULLER (1991), MURRAY vd. (1997), MURRAY & ROBERTS (1998), MURRAY & WINTLE (2000), ZHAO vd. (2002) bazı çalışmalar gerçekleştirmiştir.

Eşdeğer dozun tespitinde, 1991 yılından itibaren ileri sürülen tek-tablet kullanımı (DULLER 1991, MEJDAHL & BOTTER-JENSEN 1994), standart yöntemlerin dezavantajlarını kısmen ortadan kaldırdığı için özellikle lüminesansı zayıf olan numuneler için daha avantajlı görünmektedir. Bu yöntemde tüm işlemler sadece tek bir tablet kullanımına

dayandırıldığından, tablettten tablete farklılıklar gösteren lüminesans hassasiyet değişimlerini ve normalizasyon gereksinimini ortadan kaldırır. Ancak MEJDAHL & BOTTER-JENSEN (1994) tarafından geliştirilen Tek Tablet Yeniden oluşturma İlave Doz (SARA) Yöntemi (Single Aliquot Regeneration Additive Dose) eşdeğer doz tespitine farklı bir yaklaşım getirmektedir. SARA yöntemi 3–4 örnek hazırlanarak uygulandığından gerçek bir tek tablet kullanımı işleminden farklıdır.

Bu çalışmada, numuneler Tokat iline 36 km mesafedeki Ballica Mağarasından alınmıştır ve burası ilk olarak Ankara Mağara Araştırma Derneği (MAD)'nin Speleologları tarafından 1987 yılının Kasım ayında incelenmiştir (Tokat Turizm Müdürlüğü Arşivinden, MAD Bülteni, Sayı 6, Kasım 1991). Oldukça uzun yaş limitine sahip oldukları bilinen ancak gün ışığına en son maruz kaldığı andan bugüne kadar geçen zamanı bulabilmek için tarihlendirilmesi amaçlanan numuneler kullanılmıştır. Tarihlendirme için öncelikle eşdeğer dozun bilinmesi gerektiğinden, tek-tablet ilave doz (SAAD) ve SARA yöntemleri uygulanarak eşdeğer doz deneysel olarak bulunmuştur.

DENEYSEL İŞLEMLER

Deney Sistemi

Deneyde kullanılan OSL sayma sistemi (ELSEC-Optical Dating System 9010), SPOONER, AITKEN, SMITH, FRANKS ve McELROY (1990) tarafından geliştirilmiştir. Temel lüminesans okuyucu, infrared ışık yayınlayan diyot (LED) modülüne bağlıdır. Tüm veriler, 9010 otomatik okuyucu tarafından toplanır ve bu sistem 40mA'de tablet üzerine 30 mW/cm² güç veren 24 adet TEMT 484 IR diyotu kullanır. Lüminesans, Thorn EMI 9235 QA fotoçoğaltıcı tüp ile dedekte edilir. Bu çalışmada tabletlere laboratuvar dozu vermek için kullanılan ⁹⁰S–⁹⁰Y β-kaynağının doz hızı 34mGy/s 'dir. Tüm IRSL sinyalleri 75s için toplanmıştır.

Tabletlerin Hazırlanması

Numuneler Tokat-Ballica mağarasından alınmış sualtı sediment örnekleridir. Numuneler herhangi bir ışık etkisine maruz kalmaması için karanlıkta (kırmızı ışık altında) alınmıştır. Muhtemel bir ışık etkisi nedenini ortadan kaldırmak için laboratuvara getirilen numunelerin dış tabakaları ≈1,5-2cm alınmıştır. Öncelikle ezilip elendikten sonra karbonat bileşiklerinden kurtulmak için 45 dakika %10'luk HCl ve kuvars bileşiklerinden kurtulmak için 45dakika %40'luk HF'den geçirilmiştir. Her işlem arasında saf su ile yıkama yapılmıştır. Bu numuneler aseton içerisine konularak bir süspansiyon oluşturulmuş ve 6cm uzunluğunda 1cm çapında kuvars tüplerin altına yerleştirilen alüminyum diskler üzerine çökeltmiştir. Alüminyum disk üzerindeki numunenin kurumması için oda sıcaklığında bir gün bekletilmiştir. Alüminyum disklerin üzerinde çok ince bir tabaka halinde çökertilen numuneler (tablet), Tablet tutucu içine yerleştirilip optik uyarmalı lüminesans sistemine yerleştirilirler. Zimmermann yöntemi ile hazırlanan örneklerin boyutları < 20-30 µm'dir.

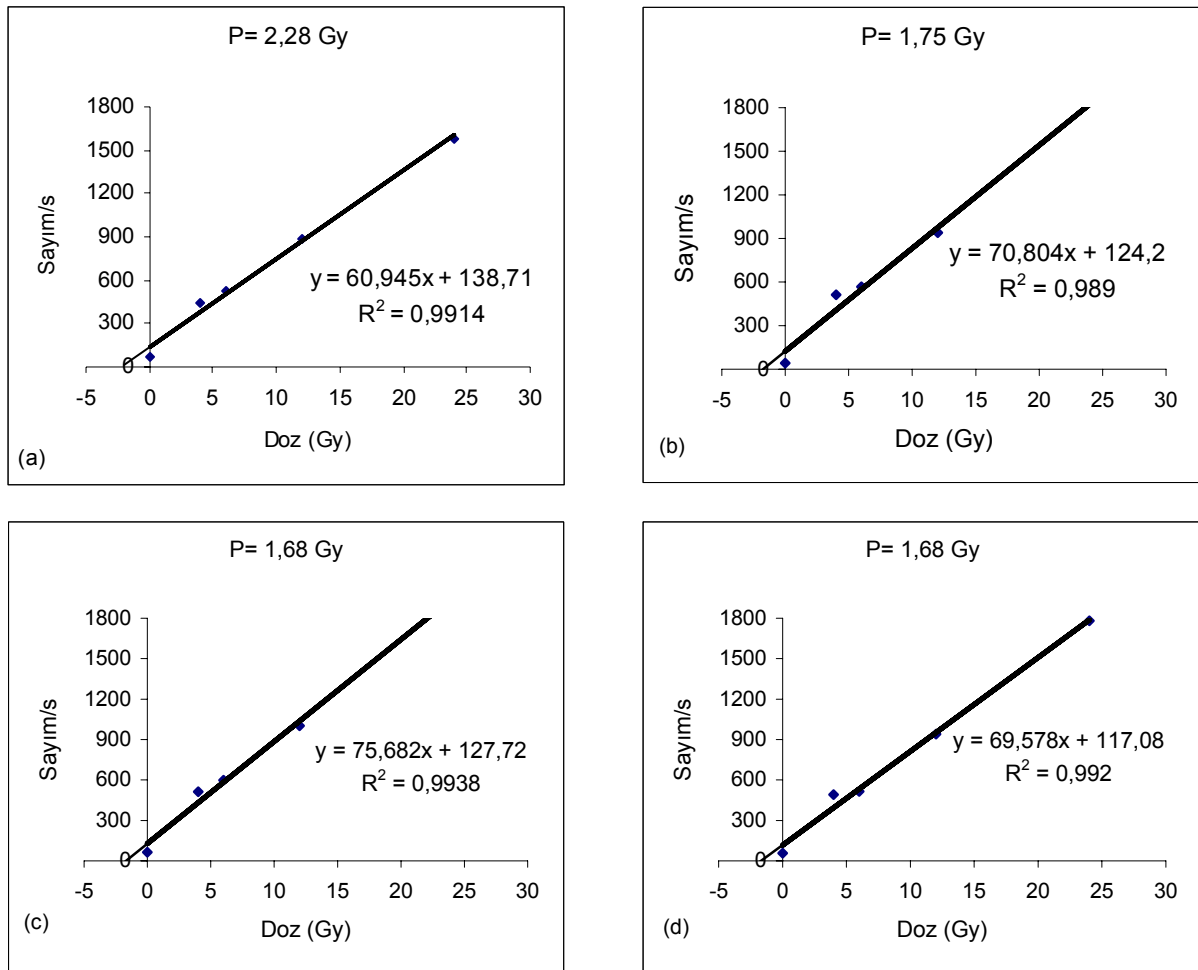
IR(880±80 nm) ışık ile uyarılarak, polimineral sediment örneklerinden elde edilen lüminesans sayımları, örnek içindeki feldspat yapısı ile ilgilidir; IR kuvars yapısında emisyonu neden olabilecek dalga boyuna sahip değildir. Tüm deneysel işlemler kontrollü kırmızı ışık altında yapılmıştır.

METODOLOJİ

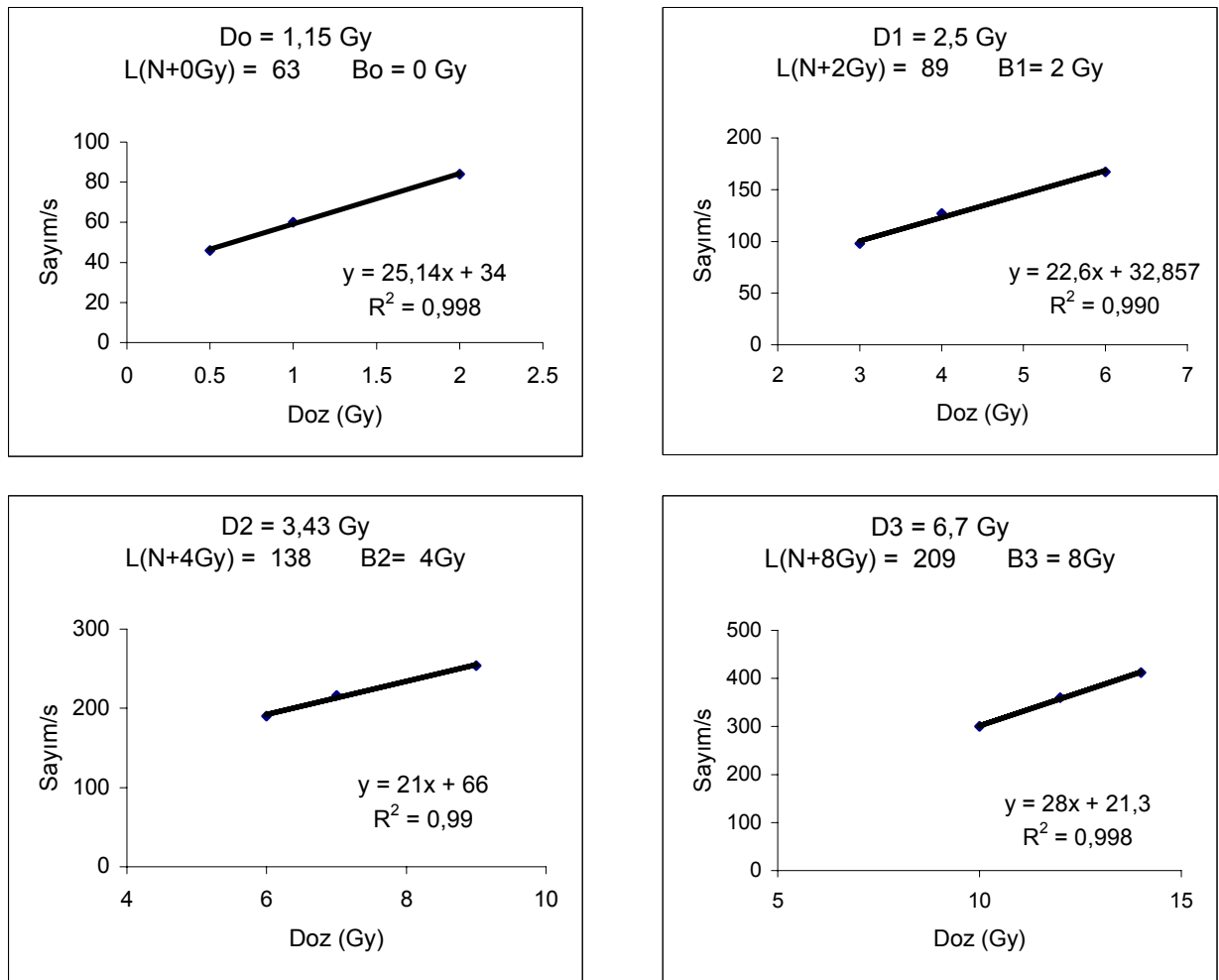
Hazırlanan örnekler iki gruba ayrılarak 1. gruba tek-tablet ilave doz (SAAD), 2. gruba SARA yöntemi uygulanmıştır. Öncelikle hazırlanan bir test grubu için ön ısıtma sıcaklığı belirlenmiştir. 160°C'de 1 dakika olarak tespit edilmiştir. 1. gruptakiler için işlem adımları şöyledir: Tek-tablete hiçbir laboratuvar dozu verilmeden, 1 dakika ön-ısıtma yapılmış ve doğal lüminesansı ölçülmüştür. Tablet gün ışığına maruz bırakılarak veya 100Watt'lık ampul altında tutularak sıfırlanmış ve sonra 2Gy doz verilmiştir. Bu işlemden sonra yine 160°C'de 1 dakika ön-ısıtma yapılmış ve lüminesans şiddeti L(2) ölçülmüştür. Bu adımlar 4Gy, 6Gy, 8Gy için tekrarlanmıştır. Her adım arasında örneğin sıfırlanıp sıfırlanmadığı lüminesans ölçülerek kontrol edilmiştir ve sayım taban seviyeye düşmemişse güneş ışığına maruz bırakılarak sıfırlanmaya kadar işlem tekrar edilmiştir. Laboratuvar dozu verilmeyen örneğin lüminesans sayımı L(N), diğerleri ise sırasıyla L(2), L(4), ... olarak adlandırılmış ve lüminesans sayımlarının dozlara karşı grafikleri çizilmiştir. L(N) sayımı bu grafiğe interpolate edilerek eşdeğer doz bulunur.

2. gruptakiler için 4 tablet hazırlanmış ve doğal lüminesansları ölçülmeden, birine doz verilmemiş, diğer üçüne artan laboratuvar dozu (2Gy, 4Gy ve 8Gy) verilmiştir (sırasıyla B₀, B₁, B₂, B₃ olarak adlandırılır). B₀, B₁, B₂ ve B₃ için elde edilen lüminesans sayımları, aynı tablet için uygulanan farklı dozlar sonucu alınan lüminesans sayımının doza karşı çizilen grafiğinde extrapole edilerek (tek tablet yöntemi) B₀, B₁, B₂ ve B₃ 'e karşılık gelen D₀, D₁, D₂ ve D₃ dozları bulunmuştur. Bu dozlar ilave edilen dozların fonksiyonu olarak çizilmiştir. Eşdeğer doz, eğrinin x-ksenini kestiği noktadır.

SARA yönteminde önemli bir sınırlama vardır. Hassasiyet değişimleri D₀-D₃ aralığındaki dozlar için aynı olmalıdır. Bu işlem test edilmiştir ve $D_0/P=D_3/(P+B_3)$ bulunmuştur. Bu yöntemde, ayrıca ilave doz eğrilerindeki regresyon katsayısının 1 'e çok yakın olması gerekir.



Şekil 1. Balıca numunelerinin tek tablet ilave doz yöntemiyle eşdeğer dozunun bulunması. (a), (b) ve (c)'de üç ayrı örnek kullanılarak yapılan ölçümler, (d)'de ortalamalarından elde edilen sonucu göstermektedir.



Şekil 2. Ballica örneklerinin tek örnek yöntemiyle hesaplanan beta dozları.

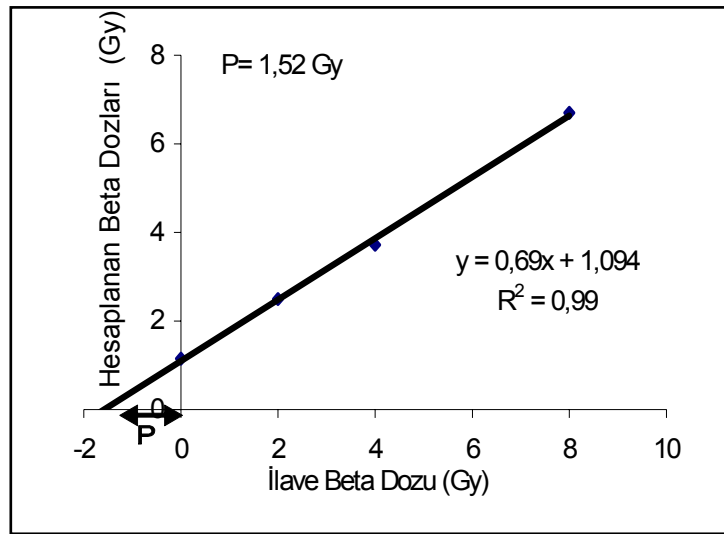
TARTIŞMA VE SONUÇLAR

Tek-tablet ilave doz (SAAD) ve SARA yöntemi ile bulunan eşdeğer doz sonuçları Şekil-1, Şekil-2 ve Şekil-3 de gösterilmiştir. Sonuçların kendi aralarında uyumlu oldukları söylenebilir. Ancak ölçümlerden görülebileceği gibi örneklerin doğal lüminesans sayımları nispeten düşüktür. Mağaranın oluşumunda veya daha sonra çeşitli nedenlerle, iklimsel değişikliklerden, deprem gibi yer hareketlerinden vs. zaman zaman gün veya güneş ışığının etkisi altında kaldığı düşünülebilir.

Deneysel verilerin değerlendirildiği yöntemlerin paleodoz ölçümünde önemi tabii ki büyüktür; ancak, kullanılan her iki yöntemde de sonuçlar ayrı ayrı hazırlanan tabletlere defalarca uygulanmış olduğundan sonuçları uygun kabul edebiliriz. SARA yöntemi hataları daha aza indirger. Çünkü tek tablet yöntemindeki tekrarlanan doz verme işlemi sırasında örneklerin doza cevaplarında kararsızlıklar olabileceği düşünülebilir. Özellikle yaşlı örnekler için testlerin artırılması gerekmektedir.

Seçilen bu numunelerin sualtı örnekleri olması nedeniyle, çevreden aldıkları nükleer radyasyonun elektron tuzaklarının oluşmasına katkıları diğer örneklerle göre az olmalıdır. Doğal lüminesans sayımının küçüklüğünün bir nedeni de bu olabilir. Yani, sualtı numunelerinin tarihlendirilmelerinde yeni parametreler devreye girmelidir.

Sonuç olarak lüminesans sinyali, numunelerin nükleer radyasyon dozuna verdikleri cevaplara, kararlılığa, yapısına ve bulunduğu ortamın özelliklerine bağlı olarak değişmektedir. Lüminesans sinyallerinin doğasını anlamak ve mekanizmasını çözmek için çalışmalar devam etmektedir.



Şekil 3. Ballica örneklerinin SARA yöntemiyle eşdeğer dozunun bulunması.

KAYNAKLAR

- BÖLÜKDEMİR MH, 2004. Optik uyarmalı Lüminesans (OSL) Yönteminin Yaş Tayini için Tokat-Ballica mağarasından Alınan Örneklerle Uygulanması. YL Tezi, Gaziosmanpaşa Üniversitesi, 51syf.
- DULLER GAT and WINTLE AG, 1991. On infrared stimulated luminescence at elevated temperatures Nuclear Tracks and Radiation Measurements. 18, 379-384.
- DULLER GTA, 1994. A new method for the analysis of infrared stimulated luminescence data from potassium feldspars. Radiation Measurement. 23, 281-285.
- FULLER IC, WINTLE AG and DULLER GAT, 1994. Test of the partial bleach methodology as applied to the infra-red stimulated luminescence of an alluvial sediment from the Danube. Quaternary Geochronology, 13, 539-543.
- HUNTLEY DJ, GODFREY-SMITH DI and THEWALT MLW, 1985. Optically dating of sediments. Nature, 313, 105-107.
- HUTT G, JEAKE I and TCHONKA J, 1988. Optical Dating: K-feldspar optical response stimulation spectra. Quaternary Science Reviews, 7, 381-385.
- LIRITSIZ I, 2000. Advances in thermo-and opto luminescence dating of environmental materials (sedimentary deposits) part I: Techniques. Global Nest:the International Journal, 2 (1), 3-27.

- MEJDAHL V and BOTTER-JENSEN L, 1994. Luminescence dating of archaeological materials using a new technique based on single aliquot measurements. *Quaternary Science Review*, 13, 551-554.
- MURRAY AS, ROBERTS RG and WINTLE AG, 1997. Equivalent dose measurement using a single aliquot of quartz. *Radiation Measurements*, 27, 171-184.
- MURRAY AS and ROBERTS RG, 1998. Measurement of the Equivalent dose using in quartz using a regenerative-dose single-aliquot protocol. *Radiation Measurements*, 29, 503-515.
- MURRAY AS and WINTLE AG, 2000. Luminescence dating of quartz using an improved dose single-aliquot regenerative- dose protocol. *Radiation Measurements* 32, 57-73.
- SPOONER, NA, AITKEN MJ, SMITH BW, FRANKS M and MCELRAY C, 1990. Archaeological dating by infrared-stimulated luminescence using a diode array. *Radiation Protection Dosimetry*, 34, 83-86.
- TANIR G, ARIKAN N, ŞARER B, TEL E, 2000. The application of the IRSL dating technique to feldspars from Kayseri-Turkey. *Journal of Environmental Radioactivity*, 51, 363-370.
- TANIR G, OKUDUCU Ş, GÜLEN S, 2002. A fitting procedure for palaeodose from old sandstone using IRSL. *Czechoslovak Journal of Physics*, 52, 963-968.
- ZHAO H, LI SH and MURRAY AS, 2003. Comparison of SAAD and SAR protocols for equivalent dose determination using quartz. *Radiation Measurements*, 37, 417-424.
- WINTLE AG, 1997. Luminescence dating: Laboratory procedures and protocols. *Radiation Measurements*, 27, 769-817.