TL/OSL KORMEGHATÁROZÁS TESZTELÉSE RÓMAI KORI BÉLYEGES TÉGLÁKON THE TESTING OF TL AND OSL METHODS ON ARCHEOLOGICALLY ACCURATELY DATED BRICK SAMPLES

TÓTH ORSOLYA¹; SIPOS GYÖRGY¹; HAVAS ZOLTÁN²

¹Szegedi Tudományegyetem, Természeti Földrajzi és Geoinformatikai Tanszék, 6722 Szeged, Egyetem u. 2-6.

²Aquincumi Múzeum, 1031 Budapest, Záhony u. 4.

E-mail: totho@geo.u-szeged.hu

Abstract

In the framework of the present research different techniques used in luminescence dating were tested on known age Roman bricks. The aims of the measurements were to develop a reliable sampling and sample preparation protocol, and to increase the precision of future results. Experiments were performed on 5 bricks, originating from the Roman centre of Aquincum, which could be dated on the basis of specific signs and stamps at a precision of a decade.

From each brick 6 samples were collected, using 3 different sampling techniques. 2 of the samples were grinded further in an agate mortar. During the sample preparation procedure one of the samples was treated with H_2SiF_6 in order to separate the quartz content of the anyway polymineralic material. Equivalent dose measurements were made by using TL (thermoluminescence) in most of the cases, however the quartz sample was also measured by the means of OSL (optically stimulated luminescence). During the measurement of dose rates two different techniques were applied to determine the potassium-content of samples: ICP-MS and μXRF . The results obtained by the combination of different sampling, preparation and measurement techniques were plotted against the known age of the samples.

Based on the experiments mechanical treatment during sampling greatly affects the intensity of the luminescence signal and therefore the received equivalent dose and age as well. Similarly, extended H_2SiF_6 acidic treatment also has a considerable effect on the results, and significant differences were experienced when comparing TL and OSL ages, and the K-contents measured by different techniques. Consequently, the best results were yielded in case using the most gentle sampling procedure, excluding additional acid treatment, using TL and K-contents determined by ICP-MS.

Kivonat

Kutatásunkban eltérő, lumineszcens kormeghatározás során alkalmazott módszereket teszteltünk régészeti alapokon jól keltezhető római korú téglákon. Célunk a lehető legmegbízhatóbb mintagyűjtési és mintaelőkészítési protokoll kialakítása, valamint a későbbi eredmények pontosítása volt. A kísérleteket 5 darab Aquincumból származó téglán végeztük, melyeket a rajtuk található bélyegek, valamint különböző jelölések alapján 10 éves pontossággal lehetett régészeti úton datálni.

A kísérletekhez minden téglából 6-6 mintát gyűjtöttünk 3 különböző mintagyűjtési technikát alkalmazva. A mintaelőkészítés során az egyik részmintát H_2 SiF₆ savval kezeltük az egyébként polimineralikus anyag kvarctartalmának elkülönítése céljából. A lumineszcens mérések kapcsán az egyenérték dózist általában TL (termolumineszcencia), de a kvarc minta esetében OSL (optikailag stimulált lumineszcencia) felhasználásával is vizsgáltuk. A dózisteljesítmény meghatározásakor a minták K-tartalmát ICP-MS és μ XRF segítségével is mértük. A különböző mintagyűjtési, előkészítési és mérési eljárások kombinációjaként kapott eredményeket végül összevetettük az ismert korokkal.

Vizsgálataink alapján a mintagyűjtés okozta mechanikai behatás mértéke nagyban befolyásolja a kapott lumineszcens intenzitásokat, így az egyenérték dózis és kor eredményeket is. A hosszabb ideig tartó H_2SiF_6 kezelés szintén számottevő eltéréseket okozott az eredményekben. A TL és OSL korok is jelentős különbségeket mutattak, csakúgy, mint a különböző módszerekkel meghatározott K-koncentrációk. Összességében a legjobban illeszkedő eredményeket a legkisebb mechanikai behatás mellett, további savas kezelés nélkül, TL méréseket és ICP-MS-sel meghatározott K adatokat alkalmazva kaptuk.

KEYWORDS: TL, OSL, STAMPED BRICKS, SAMPLING, SAMPLE TREATMENT

KULCSSZAVAK: TL, OSL, BÉLYEGES TÉGLÁK, MINTAGYŰJTÉS, MINTA-ELŐKÉSZÍTÉS

Előzmények, célkitűzések

Az utóbbi évtizedekben a TL/OSL az egyik legszélesebb körben alkalmazott kormeghatározási módszerré nőtte ki magát az archeometriában. Ennek egyik oka, hogy lehetőséget biztosít olyan kerámiák és üledékek készítési, illetve képződési idejének meghatározására, melyek korát más módszerrel nem lehet megadni. Az első kormeghatározási célzattal elvégzett lumineszcens mérések külföldön mintegy 60 évvel ezelőtt történtek, Magyarországon az 1980-as években végeztek először ilyen irányú vizsgálatokat, azonban a hazai kutatások ezt követően megszakadtak (Benkő 1988), ezért hazánkban kevés az ilyen irányú kutatás, és az ebből eredő mérési tapasztalat. А módszer időbeli alkalmazhatósága alapesetben 10-300 000 évre tehető (Novothny és Újházy 2000). Α kormeghatározás kétféle úton történhet: üledékek vizsgálata során az ún. Optikailag Stimulált Lumineszcens (OSL) módszer, míg kerámiák esetén a Termolumineszcens (TL) módszer legelterjedtebb. alkalmazása а А mérési eredményeket számos tényező befolyásolja, ami miatt fontos a technológia minél szélesebb körű módszertani és méréstechnikai tesztelése.

Napjainkban a technikai fejlesztések főként az OSL mérésekre terjedtek ki, azonban a TL módszer alkalmazására is számos példa található a szakirodalomban. Az esetek többségében kerámia edények, kerámia töredékek, valamint téglák korának meghatározása a kutatások célja. A mérések segítségével mód nyílik: egy-egy kultúra időbeli elhelyezésére (Feathers 1998), az alkalmazott módszerek fejlesztésére (Meric et. al 2009), valamint egy-egy tárgy vagy műalkotás eredetiségének megállapítására (Zink és Porto 2005, Sipos és Papp 2009). Templomok, várak, egyéb épületek tégláinak vizsgálata során esetenként a különböző építési időszakok és átépítések ideje is meghatározható, ez történhet a még álló falak tégláiból (Göksu és Schwenk 2000), illetve akár tetőcserepek alapján (Nakata et. al 2006). A módszer alkalmas régebbi építőanyagok kiszűrésére is: Blain et al. (2010) egy középkori templom téglamintáit vizsgálva arra а következtetésre jutottak, hogy egyes római kori téglákat újra felhasználtak az építés során. Általánosságban elmondható, hogy évszázados pontossággal adható meg a fenti építőanyagok kora. Mindezek mellett Bailiff (2007) igen pontos eredményeket ért el XVII. századi épületek kormeghatározása során, azonban ehhez körültekintő és hosszadalmas háttérsugárzás mérésre volt szükség.

A kutatás elsődleges célja olyan laboratóriumi eljárások összehasonlító vizsgálata volt, amelyeket



 ábra: A vizsgált téglák lelőhelyeinek elhelyezkedése (1. Dunakeszi, késő római kikötőerőd; 2. III. kerület, aquincumi légiótábor; 3. III. kerület, római kori helytartó palota).

Fig. 1.: Location of arcaeological sites where the examined bricks were found (1.Dunakeszi, Late Roman harbor fortress, 2. Budapest 3. district, Aquincum Legion Camp, 3. Budapest 3. district, Roman Viceroy's Palace).

kormeghatározó szegedi lumineszcens а laboratóriumban rendszeresen alkalmazunk, és amelyek hatása a kapott eredményekre kevéssé Korábbi vizsgálataink ismert. során azt tapasztaltuk, hogy a mintagyűjtés módja jelentős hatással lehet a kapott korokra (Tóth 2010). Emellett teszteltük az általában üledékek kormeghatározásában használt OSL módszer kerámiákon történő alkalmazhatóságát. Α kísérleteket 5 darab Aquincumból származó téglán végeztük el, melyek kora a rajtuk lévő jelzések alapján 10 éves pontossággal megadható.

A vizsgált anyag és a mintaterület

A Római Birodalom területén Augustus uralkodás idején kezdett elterjedni a téglák használata, elsősorban a hadsereg közvetítésével. Ekkor létesültek az első téglaégető műhelyek is, melyekben különböző szokások alakultak ki a téglák jelölésére.

A vizsgált téglák az alábbi helyszínekről kerültek elő: Dunakeszi késő római kikötő erőd, III. kerület aquincumi légiótábor és római helytartó palota (**1. ábra**). Két tégla esetében a lelőhely ismeretlen.

A téglák készítési korának régészeti úton történő meghatározására történhet egyrészt a téglákon található bélyegek, jelek, vagy feliratok azonosításával, másrészt pedig a téglák mellől előkerülő, jól datálható leletek alapján, illetve rétegtani vizsgálatok segítségével. A Római Birodalomban működő téglaégető műhelyek egyedi jelöléssel rendelkeztek, melyet általában fából készült bélyegző segítségével helyeztek el a még nyers téglán (Havas 2009).



2. ábra: A vizsgált római kori bélyeges téglák, és a bélyegek rajzolataFig. 2.: The examined Roman Age stamped bricks, and the line draw of the stamps

1.táblázat: A vizsgált téglák régészeti adatai, a bélyegek feloldása, és az ez alapján megadható készítési időszakok.

Table 1.:	Archaeological	data,	interpretation	of stamps	and th	e derived	production	date of	of the	investigated	1 brick
samples.											

Ltsz:	Raktári azonosító	Labor kód	Lelőhely, ásatás éve	tégla forma	tégla állapot, méret (cm)	bélyeg szövege, feloldása	bélyeg típus	Készítési idő
2003.32.303	585	OSZ 647	Budapest, III., Hajógyári- sziget, 1951	later	Töredék 17×13×6	[l]eg(ionis) ° 1111 F(laviae)	$ITP^{1} IX/4.$ = Havas 2005, 34. ²	162-166 AD ⁴
-	2480	OSZ 648	ismeretlen	tegula	Töredék 14,5×20×3	c(ohortis) ∞ (milliariae) n(ovae) S(urorum) Ant(oninianae)	Nagy 1939, 134, 114/14- 15. kép ³	213/214- 222 AD ⁵
-	2530	OSZ 649	ismeretlen	tegula	Töredék 13,5×14×3,5	[coh(ortis) VII] Br(eucorum) Severian(ae)	ITP XXIV/41. ¹	222-235 AD ⁶
58453	-	OSZ 650	Budapest, III., Kórház u. 22., 1950	tegula	Töredék 21×16,5×3,5	coh(ortis) VII Br(eucorum) Gor[d(ianae)]	ITP XXIV/42. ¹	238-244 AD ⁷
1935/2/31	2928	OSZ 651	Dunakeszi, régi révház, 1935	later (sesquipedalis)	ép, három töredékben 46,5×32,5×7	of(ficinae) ARN M^axenti a(pparatu?) Vin()	ITP XXVI/21. ¹	351-374 AD ⁸

⁽¹ Szilágyi 1933, ² Havas 2005, ³ Nagy 1939, ⁴ Lőrincz 1978, 301-304; Lőrincz 2010, 96-98., ⁵ Lőrincz 2001, 147, 285, Kat. 435., ⁶ Lőrincz 2001, 147, 239, Kat. 272., ⁷ Lőrincz 2001, 147, 239, Kat. 274., ⁸ Mráv 2003, 37-40; Lőrincz 2003, 80.)

Emellett számos esetben egyéb, ujjal behúzott jel is felfedezhető a téglákon (**2. ábra**), ezek, segítségével vált nyomon követhetővé egy-egy égető napi teljesítménye (Havas 2007). A fenti információk alapján a műhely, így az adott tégla készítési helye, illetve készítési ideje viszonylag pontosan megállapítható (**1. táblázat**).

Módszer

A lumineszcens kormeghatározás általában kvarc és földpát ásványokat tartalmazó anyagokon történik, alapja a hővel, illetve fénnyel történő gerjesztés. A félvezető kvarc és földpát kristályrácsában az elektronok alapesetben a vegyérték sávban helyezkednek el, azonban radioaktív sugárzás hatására a magasabb energiaszintet képviselő vezetési sávba kerülhetnek, miközben ún. "lyukakat" hagynak maguk után (Bøtter-Jensen et al. 2003). A legtöbb kristályrács azonban nem tökéletes, számos esetben az elektronok egy része a vegyérték és a vezetési sáv között elhelyezkedő rácshibákba, ún. csapdákba kerül. Minél hosszabb ideig van kitéve az ásvány ionizáló sugárzásnak, annál több elektron halmozódik fel a csapdákban. A csapdázódott elektronok később hő, vagy fény általi gerjesztés következtében a csapdákból kilépve egyesülhetnek a hátrahagyott "lyukakkal" (rekombináció) (Novothny és Újházy 2000). Ez a folyamat foton leadással jár, melyet a gerjesztés módját alapul véve termo- (TL), illetve optikailag stimulált lumineszcenciának (OSL) neveznek. Kerámiák esetében a lumineszcens jelek felhalmozódása a kiégetés után kezdődik meg, majd a laboratóriumban az ezután felhalmozódó jelet mérik.

A kerámiákban található ásványi szemcsék az elektronok csapdázódása által mérik az őket ért radioaktív sugárzás nagyságát, azaz mintegy doziméterként funkcionálnak. A kiégetési idejének megállapításához az így elnyelt összes dózis, azaz paleodózis (D_p [Gy]), valamint az egységnyi idő alatt elnyelt dózis, azaz a dózisteljesítmény (D* [Gy/ka]) értékét kell meghatározni (Aitken 1998, Wintle 2008). A paleodózis közvetett módon, laboratóriumi mesterséges dózisok és az általuk előidézett lumineszcencia közötti összefüggés segítségével becsülhető. Az így mért dózis értéket egyenérték dózisnak (D_e [Gy]) nevezik.



3. ábra: A téglaminták a külső 2 mm-es réteg eltávolítását követően.

Fig. 3.: The brick samples after removing the outer 2 mm layer.

A dózisteljesítmény α , β , és γ komponensei pedig a mintában és környezetében található természetes radioizotópok koncentrációja alapján számítható. Az egyenérték dózis és a dózisteljesítmény meghatározása után az alábbi egyenlettel adható meg a kiégetés óta eltelt idő:

Az archeometriai célú mintagyűjtés általában fúrással történik, ha elegendő anyag áll rendelkezésre töréssel, porítással (mozsárban, vagy reszelővel) is gyűjthető a minta. Mindkét esetben a tárgy felszínének külső 2-3 mm-ét el kell távolítani a rövid hatótávolságú környezeti α és β sugárzás hatásának kizárása céljából (**3. ábra**). A külső rész különböző anyagösszetételi vizsgálatokon keresztül a kerámiaanyag dózisteljesítményének meghatározására használható fel.

Vizsgálataink során minden téglából három eltérő módszerrel gyűjtöttünk mintát az alábbiak szerint. Az első részminta gyűjtése porítással (reszelő segítségével) történt (A1). A reszelés során előfordulhat, hogy a minta szilánkosra törik, nem esik szét szemcsékre, ezért az A1-es minta egy részén további achát mozsaras porítást alkalmaztunk (A2). Az A1-es minta egy másik részét H_2SiF_6 (hexafluor szilícium) savval kezeltük (A3), a kvarc frakció elkülönített vizsgálatának céljából. Mintát gyűjtöttünk továbbá magas fordulatszámú (4000-5000 fordulat/perc) Proxxon típusú, gyémánt fúrófejjel ellátott fúró (B1), illetve alacsony fordulatszámú (100-500 fordulat/perc) normál típusú, volfrám karbid fúrófejjel ellátott fúró (C) segítségével. A magas fordulatszámú fúróval gyűjtött minta egy részének esetében szintén további achát mozsaras porítást alkalmaztunk (B2) (**4. ábra**).

Így összességében minden téglából 6-6 részmintát gyűjtöttünk. Mivel elegendő anyag állt rendelkezésre, ezért a részmintánk tömege 1-2 g között volt.

A feltárások során az ún. finomszemcsés eljárást alkalmaztuk; a savas maratást követően leválasztottuk a minták 4-11 µm-es frakcióját, az A3-as részmintákat további 1 hetes H_2SiF_6 kezelésnek vetettük alá a földpát komponensek eltávolítása céljából (Roberts és Wintle 2001), a mintákat végül 1 cm átmérőjű alumínium korongra ülepítettük (Aitken 1985, Sipos és Papp 2009), (**5. ábra**).

A termolumineszcens és optikai lumineszcens mérések 0.0858 Gv/s dózisteljesítménvű. ⁹⁰Sr/⁹⁰Y béta alumínium korongra kalibrált, sugárforrással rendelkező RISØ DA-15 TL/OSL műszer segítségével történtek. A TL mérésekhez 7-59 Schott BG-45 Corning és szűrők kombinációját, míg az OSL mérésekhez Hoya U-340 szűrőt alkalmaztunk.

TL mérések során az egyenérték dózis meghatározása a hozzáadott dózis eljárás (MAAD -Multiple Aliquot Additive Dose) segítségével történt (Aitken 1985, Sipos és Papp 2009). Ennek során 3-3 részmintából álló korongcsoportokat alakítottunk ki, melyek növekvő nagyságú béta besugárzást kaptak. A TL kioltást követően ezek alapján állítható fel úgynevezett az dózis/lumineszcens-válasz (6A ábra). görbe Feltételezve, hogy a lumineszcens jel növekedése az idő múlásával egyenletes volt, a görbe extrapolálható, így a 0 időponttól elnyelt dózis értéke az "x" tengelyről leolvasható.



4. ábra: A mintagyűjtés során alkalmazott különböző eljárások.

Fig. 4.: Different methods used during sampling.



5. ábra: A feltárás során alkalmazott finomszemcsés előkészítés menete.

Fig. 5.: The course of the fine grain sample preparation procedure.

Azonban a kezdeti TL növekmény esetenként nem lineáris. Ez növekvő nagyságú, ún. regenerációs dózisok besugárzásával vizsgálható (Roberts et. al 1993, Wintle 2008). A korábban már kioltott részminták besugárzásával ugyanis a kapott dózis/lumineszcens-válasz görbének elviekben az origóba kellene tartania. Az ettől való eltérés adja meg korrekció értékét (**6B ábra**). Az OSL méréseket a hexafluor-szilícium savval kezelt mintákon (A3) végeztük el, az egymintás regenerációs (SAR – Single Aliquout Regeneration) eljárást használtuk a mérések során (Wintle és Murray 2006). A SAR protokoll esetében is a növekvő dózisok és a lumineszcens válaszok közötti összefüggés megadása a cél, azonban ez esetben minden egyes korongon (részmintán) külön-külön el kell végezni a méréseket (7. ábra). A módszer során a minta érzékenység változását folyamatosan követni kell. Az eljárás előnye, hogy természetes OSL-hez tartozó dózis érték leolvasásához nem szükséges extrapoláció (Wintle és Murray 2006).

A belső dózisteljesítmény (α , β) meghatározásához szükséges radioaktív elemkoncentrációk (U, Th, K) mérése a Magyar Földtani és Geofizikai Intézet induktív csatolású plazma tömegspektrométerével (ICP-MS) történt. Emellett a Szegedi Tudományegyetem Ásványtani, Geokémiai és Kőzettani Tanszékén röntgen-fluoreszcens (μ XRF) műszerrel sor került a K-tartalom összehasonlító mérésére is. A kapott koncentrációk az ICP-MS esetében 5 %-os, míg az μ XRF esetében 1-2 %-os relatív hibával terheltek.

A környezetből származó γ dózisteljesítményt eltemetett téglafalakhoz kapcsolódó korábbi méréseink alapján határoztuk meg. Mindezek mellett meg kellett becsülni a téglák in situ nedvességtartalmát is, mivel a pórusokban lévő víz "leárnyékolja" a szemcséket, így egységnyi idő alatt kevesebb sugárzás éri az ásványokat. A nedvességtartalmat az általunk mért maximális porozitás, illetve a lelőhely adatok alapján állapítottuk meg.



6. ábra: A TL mérések során alkalmazott hozzáadott (A) és regenerációs (B) mérések dózis/lumineszcens válasz görbéje.

Fig. 6.: Dose response curves of the additive (A) and regenerative (B) methods, applied during TL measurements.



7. ábra: Az OSL mérések során alkalmazott egymintás regenerációs mérések (SAR) dózis/lumineszcens-válaszgörbéje.

Fig. 7.: The dose response curve of the OSL single aliquot regeneration measurements (SAR).

Eredmények

A mintagyűjtési technika hatása a kapott TL intenzitásokra és az egyenérték dózis értékekre

A különböző mintagyűjtési eljárások összehasonlítása során elsőként az ugyanarra a besugárzásra (8,6 Gy) adott normalizált TL lefutását válaszgörbék vizsgáltuk. Jól megfigyelhető, hogy 3 esetben a fúrással gyűjtött minták nagyobb TL intenzitással rendelkeznek, miközben az A2-es, mozsárral porított részminták görbéje legtöbbször alacsonyabb az A1-es reszelt részminta görbéjénél (8. ábra). Ez alapján elmondható, hogy a különböző mintagyűjtési eljárások jelentősen befolyásolhatják a TL intenzitásokat, s bár a minták eltérően viselkedtek, általános tendenciaként kirajzolódik, hogy a fúrás valamelyest megemeli, az achát mozsaras porítás pedig csökkenti a normalizált TL jeleket. Előbbi betudható a hamis TL jelenségének, amiről Aitken (1985) is beszámol, utóbbi esetében pedig feltételezzük, hogy a még durvább mechanikai behatás már a TL jel részleges törlődését okozza. Ezek a jelenségek a mért egyenérték dózis nagyságára is hatással lehetnek.

A H_2SiF_6 savas kezelés kapcsán megfigyelhető, hogy a savval kezelt részminta (A3) jelentősen kisebb jelet ad. Ennek valószínűsíthető okai egyrészt az, hogy a kezelés hatására a lumineszcens szempontból kevésbé érzékeny, ezért kisebb intenzitást produkáló, kvarc került túlsúlyba (Aitken 1985), másrészt a hosszan tartó (1 hetes) maratás a jel kémiai erózióját is előidézhette. Utóbbi tesztelésére további vizsgálatokra van szükség.

Ezek után kérdés, hogy a TL intenzitás változása vajon mennyire befolyásolja a mérések alapján számított egyenérték dózisokat. Ennek megállapítása előtt dózis plató-teszt segítségével határoztuk hogy mely hőmérséklet meg, tartományban viselkedik az adott minta a legstabilabban, azaz a TL görbe mely szakaszát kell integrálni a hozzáadott dózis/lumineszcens-válasz összefüggés meghatározásnál. A plató teszt során 10 °C-onként vizsgáltuk az egyes minták egyenértékdózis változását a MAAD eljárás segítségével. A plató-teszt általánosságban azt mutatta, hogy az A1, A2, B1, B2 és C-jelű részminták 270-310 °C közötti, míg az A3-as, H₂SiF₆ savval kezelt, így redukált földpát tartalmú részminták 340-360 °C közötti hőmérséklet tartományban viselkedtek а legstabilabban (9. ábra). Ennek valószínűsíthető oka, hogy korábbi megfigyelések alapján (Bøtter-Jensen 2003, Aitken 1985) a kvarcnak 350 °C-on van a legstabilabb csapda populációja. A polimineralikus minták esetében a kvarc jelét elnvomia a többi ásvány (főként földpátok) jele. A 9. ábrán az egyik téglaminta részmintáinak plató tesztjei láthatóak. Ez esetben is jól látszik, hogy az A3 részminta görbéje nem illeszkedik a sorba. A többi görbét összevetve megfigyelhető, hogy az A és B jelű részminták lefutása ugyan hasonló, a legkisebb hibaértékeket az A1 jelű részminta értékei mutatják.

A plató tesztek alapján megadott hőmérséklet intervallumokat figyelembe véve lineáris regressziót alkalmazva határoztuk meg a hozzáadott dózis/lumineszcens-válasz összefüggéseket. A kapott egyenérték dózisokat ezután korrigáltuk a regenerációs mérések során mért dózis értékekkel. A korrekciós értékek, attól függően, hogy a dózis/lumineszcens-válasz görbe hol metszette a dózis tengelyt pozitív, illetve negatív irányba módosították az egyenérték dózisokat (**2. táblázat**).

Ezt követően összehasonlítottuk a számított egyenérték dózis értékeket. A reszeléssel és a magas fordulatszámú fúróval gyűjtött A1-es, illetve B1-es részminták között mindössze 3 %-nyi különbség adódott. Az alacsony fordulatszámú fúróval gyűjtött C-jelű részminták egyenérték dózisai az A1-es és B1-es minták értékeinél 5 %kal, illetve 8 %-kal voltak nagyobbak (2. táblázat). A H₂SiF₆ savval kezelt részminták (A3) értékei általában igen nagy hibával rendelkeztek, két esetben pedig a többi minta egyenérték dózisához viszonyítva kiugróan magasak voltak (2. táblázat). Ennek hátterében a jóval alacsonyabb TL intenzitás állhat. ami jelentősen növelheti а dózis/lumineszcens-válasz görbe bizonytalanságát. Kimutatható emellett, hogy a gyűjtött minták további achát mozsaras porítása esetén, ahogyan az már a TL intenzitások vizsgálata kapcsán is sejthető volt, alacsonyabb egyenérték dózisokat kaptunk, az A2 és B2 részminták kapcsán az eltérés 14 %, illetve 7 % volt (2. táblázat).



Az egyes téglamintákat vizsgálva megállapítható, hogy az achát mozsaras porítás alacsonyabb egyenérték dózisokat eredményez, míg az alacsony fordulatszámú fúróval gyűjtött minták értékei magasabbnak adódnak a többi részminta értékeinél. A reszelt (A1) és a magas fordulatszámú fúró segítségével gyűjtött részminták (B1) rendkívül jó egyezést mutatnak. A legkisebb egyenérték dózis hibákat a magas fordulatszámú fűró segítségével gyűjtött részminta esetén kaptuk (**10. ábra**). Az egyes minták ugyan eltérően viselkedhetnek, de az átlagos tendencia a fent említettek alapján alakul. **2.táblázat:** Az egyes részminták plató hőmérsékletei, MAAD, illetve REG értékei, valamint a kettő összegéből számolt egyenérték dózisok.

Table 2.: The plateau temperatures of the samples, MAAD and REG values, and equivalent doses, calculated from the sum of the later two.

minta	Plató	MAAD	REG	De
	(°C)	(Gy)	(Gy)	(Gy)
647 A1	270-290	8,09±0,41	+0,40±0,36	8,49±0,55
647 A2	260-300	7,02±0,28	$+0,25\pm0,25$	7,27±0,38
647 A3	280-310	8,14±0,34	-0,37±0,22	7,77±0,41
647 B1	270-310	7,25±0,30	+0,26±0,36	7,51±0,47
647 B2	320-340	7,15±0,17	+0,26±0,33	7,40±0,38
647 C	280-300	7,86±0,21	+0,15±0,20	8,01±0,29
648 A1	270-300	7,37±0,25	+0,25±0,37	7,62±0,45
648 A2	270-300	7,58±0,44	$+0,34\pm0,57$	7,93±0,72
648 A3	310-340	$8,08{\pm}0,82$	-0,22±0,56	7,86±0,99
648 B1	290-310	7,08±0,36	$+0,31\pm0,38$	7,38±0,52
648 B2	290-310	6,51±0,29	$+0,08\pm0,45$	6,59±0,53
648 C	270-300	7,79±0,32	+0,12±0,20	7,91±0,37
649 A1	280-310	7,89±0,37	-0,08±0,29	7,82±0,47
649 A2	310-340	7,01±0,57	$-0,35\pm0,40$	6,66±0,70
649 A3	340-360	10,89±1,13	-0,17±1,66	10,72±2,01
649 B1	270-300	7,80±0,15	$-0,27\pm0,21$	7,53±0,26
649 B2	270-290	7,26±0,18	$-0,17\pm0,32$	7,09±0,37
649 C	270-300	8,03±0,21	+0,03±0,18	8,07±0,27
650 A1	270-290	6,93±0,24	+0,50±0,26	7,43±0,35
650 A2	290-310	6,39±0,27	$-0,27\pm0,15$	6,12±0,32
650 A3	310-330	10,26±0,74	$+0,44\pm0,57$	9,04±1,55
650 B1	260-290	6,29±0,46	$+0,51\pm0,50$	6,80±0,68
650 B2	270-300	6,39±0,50	$+0,42\pm0,32$	6,81±0,59
650 C	270-300	7,21±0,25	+0,38±0,17	7,58±0,30
651 A1	280-300	6,06±0,45	-0,57±0,24	5,49±0,51
651 B1	310-320	6,71±0,15	$-0,53\pm0,38$	6,18±0,41
651 B2	270-290	5,63±0,38	$-0,38\pm0,22$	5,25±0,44
651 C	270-300	7,23±0,29	-0,10±0,14	7,13±0,32

3. táblázat: Az OSL módszerrel mért egyenérték dózisok. **Table 3.:** Equivalent doses measured by OSL.

Minta	n (db)	Viszaforgatási arány	Dózis hiba (%)	Rekuperáció (%)	D _e (Gy)
OSZ647	8	1,02±0,07	7,1±0,8	3,0±2,5	5,98±0,43
OSZ648	8	1,01±0,05	8,6±1,1	3,8±1,4	5,29±0,64



9. ábra: AZ OSZ648-as minta egyenérték dózis plató tesztjének eredménye a különböző részmintánk esetében.

Fig. 9.: Equivalent dose plateau tests of different subsamples of sample OSZ648



10. ábra:

Az egyenérték dózisok alakulása az eltérő mintagyűjtési módszerek esetén.

Fig. 10.:

Equivalent doses in case of the different sampling methods.

Az OSL mérések eredményei

Az OSZ647, OSZ648, OSZ649 és az OSZ650-es A3 részminták 8-8 korongján OSL méréseket is végeztünk. Az előmelegítési tesztek alapján 200 °Cadódott az alkalmazandó nak előmelegítési A SAR mérések során kapott hőmérséklet. eredményeknek három feltételnek kell

megfelelniük: 1.) az egyenérték dózis hiba 10 %-nál alacsonyabb, 2.) a visszaforgatási arány nem esik kívül a 1,00±0,10 intervallumon, illetve 3.) a rekuperáció mértéke nem lehet magasabb 5 %-nál (Murray és Wintle 2000). Az OSZ647-es és OSZ648-as minták összes korongja megfelelt ezen kritériumoknak. Az OSZ649-es és OSZ650-es

mintákról azonban ez nem mondható el: egyenérték dózis hibájuk átlagosan 15-20 % körül ingadozott, a visszaforgatási arány is a legtöbb esetben meghaladta a kritikus értéket, így ezen minták mérési eredményeit nem tudtuk kiértékelni.

A két megfelelően viselkedő minta tekintetében összességében azt tapasztaltuk, hogy az OSL mérések során ugyanarra a finomszemcsés kvarcmintára jelentősen alacsonyabb egyenérték dózisokat kaptunk, mint a TL mérések alkalmával (**3. táblázat**).

Dózisteljesítmény eredmények

Az U, Th és K mennyiségét ICP-MS vizsgálatok segítségével határoztuk meg, emellett a K-tartalom esetében párhuzamos μXRF méréseket is végeztünk. A két módszer eredményei között átlagban 18 % különbséget tapasztaltunk. Az eltérés iránya változó volt, általánosságban a μ XRF-fel mért értékek voltak alacsonyabbak, egy esetben mintegy 40 %-kal (4. táblázat).

A téglákat körülvevő földminta nem állt rendelkezésünkre, így a γ dózisteljesítményt, a régészeti jegyzőkönyvek, illetve hasonló környezetben elvégzett in situ méréseink alapján értékűnek becsültük. 1.0 ± 0.2 Gy А nedvességtartalmat a leírások, illetve a mért maximális porozitás mérések alapján átlagosnak vettük, így 12,5±2,5%-os értékkel számoltunk. Mivel minden részminta esetében a finomszemcsés eljárást alkalmaztuk az összes dózisteljesítményt az α , β , és γ komponensek összegéből határoztuk meg. Különbséget csak a polimineralikus és a kvarc minták között tettünk, az α sugárzás hatékonyságát (Aitken 1985) előbbiek esetében 8±2 %-nak, utóbbiak esetében 4±2 %-nak vettük.

4. táblázat: A téglaminták U, Th és K koncentrációi, illetve az ezek alapján számított összes dózisteljesítmény.

minta	Th (ppm) ¹	U (ppm) ¹	K (%) ¹	K (%) ²	D* (Gy/ka) ³	D** (Gy/ka) ³	D* (Gy/ka) ⁴	D**(Gy/ka) ⁴
647	2,98±0,15	11,4±0,57	2,81±0,14	3,1±0,15	4,44±0,39	4,64±0,41	4,48±0,21	4,62±0,21
648	2,16±0,11	11,7±0,59	2,66±0,13	2,51±0,13	4,13±0,36	4,03±0,35	4,01±0,19	3,88±0,16
649	2,32±0,12	12,3±0,62	2,82±0,14	2,26±0,11	4,33±0,38	3,95±0,34	4,25±0,20	3,75±0,19
650	2,71±0,14	11,3±0,57	2,55±0,13	2,95±0,15	4,19±0,36	4,46±0,39	4,04±0,19	4,40±0,20
651	1,99±0,10	9,89±0,49	2,11±0,11	1,3±0,06	3,57±0,30	3,02±0,26	3,32±0,16	2,60±0,15

Table 4.: Concentration of U, Th and K in bricks and the calculated dose rates.

1: ICP-MS segítségével mérve, 2: µXRF segítségével mérve, D*: ICP-MS segítségével mért K-tartalommal számítva, D**: µXRF segítségével mért K- tartalommal számítva

1: measured with ICP-MS, 2:measured with μ XRF, D*: Dose rate calculated with K-content determined by ICP-MS, D**: Dose rate calculated with K-content determined by μ XRF

5. táblázat: Az egyes részminták lumineszcens módszerrel meghatározott korának, illetve régészeti úton megadott korának összehasonlítása

Table 5.: Comparison of luminescence ages to arheological ages of the subsamples

	A1	A2	A3	B1	B2	С	OSL
Lumineszcens kor / régészeti kor*	1,00±0,04	0,95±0,13	1,24±0,25	0,96±0,05	0,90±0,02	1,07±0,12	0,80±0,02
Lumineszcens kor / régészeti kor**	1,03±0,07	0,91±0,14	1,27±0,27	1,01±0,15	0,93±0,08	1,10±0,19	0,79±0,02

*: ICP-MS segítségével mért K-tartalommal számítva, **: µXRF segítségével mért K- tartalommal számítva

*: Dose rate calculated with K-content determined by ICP-MS, **: Dose rate calculated with K-content determined by μXRF



11. ábra: A különböző eljárások alapján meghatározott korok összevetése a régészeti datálással**Fig. 11.:** Comparison of archeologica data to the ages, determined by different methods

6.táblázat: A porított részminták (A1) régészeti úton és lumineszcens kormeghatározás segítségével meghatározott kor adatainak összehasonlítása

Minta	Kor (év)	Dátum	Relatív hiba (%)	Régészeti kor	Eltérés (év)
647 A1	1900±170	AD 113±170	9,0	AD 162-166	-51
648 A1	1830±160	AD 183±160	8,7	AD 213/214-222	-35
649 A1	1800±160	AD 213±160	8,8	AD 222-235	-15
650 A1	1770±140	AD 243±140	8,1	AD 238-244	+2
651 A1	1520±180	AD 493±180	11,7	AD 351-374	+130

Table 6.: Comparison of ages measured from powdered samples (A1) to the archeological data

A kor adatok összehasonlítása

láttuk választott Mint а mintagyűjtés, а méréstechnika és radioaktív lumineszcens а elemtartalom meghatározásához alkalmazott módszerek is jelentősen befolyásolhatják a kapott egyenérték dózis és dózisteljesítmény eredményeket. Ezek együttes hatásának meghatározását, illetve az eljárások megfelelő kiválasztását koradatok kombinációjának а kiszámításának fényében lehet elvégezni.

A különböző módon meghatározott korokat összehasonlítva jól látható, hogy az ICP-MS mérések alapján kapott korok általánosságban közelebb esnek a régészeti korokhoz, hiszen ebben az esetben 1-10 %-os, míg a μ XRF-el mért Ktartalmat behelyettesítve 2-12 %-os eltérést figyelhető meg (**5. táblázat**). A továbbiakban ezért az ICP-MS eredmények alapján számított korok elemzésére fektetünk nagyobb hangsúlyt. Megállapítható, hogy az OSL mérések nem vezettek eredményre, hiszen az így kapott korok 19-22 %-os eltéréseket mutatnak a pontosnak tekinthető, bélyeg alapján megadott korokhoz képest. A H2SiF6 savas maratással kezelt részminták közül kettő esetében lényegesen idősebb korokat kaptunk, az eltérés mértéke akár a 60 %-ot meghaladhatja, is így H_2SiF_6 kezelés alkalmazhatósága a további mérések során kétséges. A különböző mintagyűjtési technikákat összehasonlítva kitűnik, hogy a reszelt, illetve a magas fordulatszámú fúró segítségével gyűjtött részminták mutatnak a legjobb egyezést a régészeti korokkal, mivel az előbbi során átlagosan 0,05±4,28 %-os, míg az utóbbi esetén átlagosan 3,60±5,37 %-os eltérést kaptunk végeredményül. Mindemellett az alacsony fordulatszámú fúróval gyűjtött részminták esetében is viszonylag alacsony eltéréseket tapasztaltunk (átlagosan 6,54±11,63 %), bár az egyes részminták eredményei jelentősen szóródnak az átlag körül. Az achát mozsaras porítással feldolgozott részminták esetében a kapott korok alacsonyabbak voltak a régészeti koroknál, az átlagos eltérés a reszelt és porított, valamint a fúrt és porított minták esetében $4,82\pm12,90$ %, illetve $10,21\pm1,60$ % volt. (**11. ábra, 5. táblázat**)

A legjobbnak tekinthető eljárásokkal kapott korokat összevetve a régészeti korokkal az eltérés a középértékek tekintetében átlagosan mindössze 47 év, egyes minták esetében akár mindössze 5-15 év is lehet. Ugyanakkor nem szabad figyelmen kívül hagyni, hogy a kormeghatározás végeredménye összességében 10-12 %-os hibával rendelkezik az egyes téglák esetében, ami alapján egy-egy különálló minta vizsgálata kapcsán a készítés évszázada is csak viszonylag kis biztonsággal adható meg (**6. táblázat**).

Összegzés

A kutatás során ismert korú téglamintákon hajtottunk végre különböző kísérleteket módszertani összehasonlítások céljából. Vizsgáltuk a különböző mintagyűjtési eljárások hatását a TL kormeghatározás végeredményének tekintetében, az OSL módszer téglákon történő alkalmazhatóságát, valamint a különböző anyagvizsgálati módszerek okozta eltéréseket a dózisteljesítmény számítása során. Az eredmények alapján az alábbi következtetésekre jutottunk.

OSL mérések Az kerámiákon történő alkalmazhatósága a vizsgált téglák finomszemcsés kvarc frakciója esetében problémás; az OSL-lel részminták jelentősen fiatalabbnak mért mutatkoztak. Ugyanezen részminták esetében a TL mérések is pontatlanok voltak, illetve két esetben jelentősen idősebb korokat kaptunk a régészeti úton meghatározott koroknál. Ez alapján úgy tűnik a nagyobb érzékenység és a jobb jel/zaj arány miatt a polimineralikus részminták TL kormeghatározása célravezetőbb.

Kísérleteink alapján továbbá elmondható, hogy a legideálisabb mintagyűjtési módszer a reszelés, valószínűleg a mintát ért csekélyebb mechanikai hatás miatt. A korok fényében a magasabb fordulatszámú fúróval összehasonlítva az alacsony fordulatszámú fúróval történő mintagyűjtés nagyobb mértékben növelte a végeredmény bizonytalanságát, ugyanakkor előbbi esetében a TL görbék jelentős intenzitásnövekedést mutattak. A utólagos achát mozsaras minták porítását mindenképp kerülni kell, mert az jelentősen csökkenti a kapott korok megbízhatóságát. Amennyiben tehát a reszelővel történő mintagyűjtés nem megoldható és fúró használatára van szükség, az ebből adódó bizonytalanságokat figyelembe kell venni a továbbiakban.

A vizsgált téglaminták koreredményei 9-12 %-os relatív hibával rendelkeznek, ami megfelel a lumineszcens kormeghatározás átlagos bizonytalanságának (Aitken 1998, Wintle 2008), ugyanakkor az eredmények hibája a dózisteljesítmény környezeti hátterének jobb megismerésével, helyszíni mérésekkel egyes téglák esetében csökkenthető. Mindemellett vizsgálataink arra is rámutattak, hogy az itt tesztelt mintagyűjtési és mérési protokoll segítségével 5 mintát vizsgálva hozzávetőleg 3 %-os eltérés várható a valós koroktól. Ez azt jelenti, hogy több, ugyanarról a helyről származó tégla vagy kerámia kormeghatározása esetén a lelőhely, illetve a vizsgált régészeti jelenség kora viszonylag pontosan megadható, hiszen a minták korának átlagolása lehetővé teszi a környezeti változókból eredő hiba részleges kiszűrését.

Köszönetnyilvánítás

Az ICP MS és µXRF mérések kivitelezéséért köszönet illeti Bertalan Évát (MFGI) és Bozsó Gábort (SZTE).

Tóth Orsolya publikációt megalapozó kutatása a TÁMOP 4.2.4.A/1-11-1-2012-0001 **A2-ELMH-12-2-0035** azonosító számú Nemzeti Kiválóság Program – Hazai hallgatói, illetve kutatói személyi támogatást biztosító rendszer kidolgozása és működtetése országos program című kiemelt projekt keretében zajlott. A projekt az Európai Unió támogatásával, az Európai Szociális Alap társfinanszírozásával valósul meg.

Sipos György publikációt megalapozó kutatása a TÁMOP-4.2.4.A/2-11/1-2012-0001 **A2-MZPDÖ-13-0082** azonosító számú Nemzeti Kiválóság Program – Hazai hallgatói, illetve kutatói személyi támogatást biztosító rendszer kidolgozása és működtetése konvergencia program című kiemelt projekt keretében zajlott. A projekt az Európai Unió támogatásával, az Európai Szociális Alap társfinanszírozásával valósul meg.

A lumineszcens vizsgálatokhoz szükséges infrastruktúra fejlesztése a HURO/1101/126 számú projekt, Magyarország-Románia Határon Átnyúló Együttműködési Program 2007-2013 keretében valósult meg, az Európai Unió támogatásával, az Európai Regionális Fejlesztési Alap valamint a Magyar Köztársaság és Románia társfinanszírozásával.

Irodalomjegyzék

AITKEN M. J. (1985): *Termoluminescence Dating*. Academic Press. Orlando. pp. 359.

AITKEN M. J. (1998): *An Introduction to Optical Dating*. Oxford University Press. London. pp. 110.

BAILIFF K. (2007): Methodological developments in the luminescence dating of brick form english late-medieval and post-medieval buildings. *Archaeometry* **49/4** 827–851.

BENKŐ L. (1988): Kemencék és edények vizsgálata TL módszerrel. *Iparrégészet* 263–272.

BLAIN S., BAILIFF I. K., GUIBERT P., BOUVIER A. & BAYLÉ M. (2010): An intercomparison study of luminescence dating protocols and techniquies applied to medieval brick samples from Normandy (France). *Quaternary Geochronology* **5** 311–316. BØTTER-JENSEN L., MCKEEVER, STEPHEN W. S. & WINTLE, A. G. (2003): *Optically stimulated luminescence dosimetry*. Elsevier, 11–15.

FEATHERS J. K.(1998): Luminescence dating of protohistoric pottery from Great Basin *Geoarcheology* **13/3** 287–308.

GÖKSU H. Y. & SCHWENK P. (2000): Thermoluminescence dating of terrazzo from the monastery church of Tegernsee (Bavaria, Germany) using the 210 °C TL peak of quartz. *Radiation Environment Biophysis* **39** 301–308.

HAVAS Z. (2005): *Az óbudai hajógyári-szigeti helytartói palotakomplexum kerámia építészeti elemei.* Szakdolgozat, ELTE-BTK Régészettudományi Intézet, Ókori Régészeti Tanszék, Budapest. pp. 52.

HAVAS Z. (2007): Jelölések római kori téglákon – egy értelmezési kísérlet. In: Bíró Sz. (szerk.) 2007: *FiRKÁK I.* Fiatal Római Koros Kutatok I. Konferenciakötete, Győr, 173–184.

HAVAS Z. (2009): Atilia Firma téglaműhelyének termékei Pannóniában. In: Bíró Sz. (szerk.) 2009: *Ex Officina Studia in honorem Dénes Gabler*. Mursella Régészeti Egyesület, Győr, 205–223.

LŐRINCZ B. (1978): Die Besatzungstruppen des Legionslagers von Aquincum am Ende des 1.– Anfang des 2. Jahrhunderts. *ActaArchHung* **30** 299–312.

LÖRINCZ B. (2001): *Die römischen Hilfstruppen in Pannonien während der Prinzipatszeit*. Teil I: Die Inschriften. WAS **3**.

LŐRINCZ B. (2003): Die Ziegelstempel der Schiffslände von Bölcske. In: Szabó Á. és Tóth E. (Hrsg.), Bölcske. Römische Inschriften und Funde. $R\acute{e}gF\ddot{u}z$ új sor. **II**. 77–102.

LŐRINCZ B. (2010): Die Besatzungstruppen des Legionslagers von Aquincum am Ende des 1.– Anfang des 2. Jahrhunderts. In: Lőrincz B., Zur Militärgeschichte der Donauprovinzen des Römischen Reiches. Ausgewählte Studien 1975-2009. Band I. *Hungarian Polish Studies* **19** 86–112.

MERIC N., ATLIHAN M. A., KOSLA M., YÜCE Ü. R. & CINAROGLU A. (2009): Infrared stimulated luminescence and thermoluminescence dating of archeological samples from Turkey. *Geochronometria* **34** 25–31.

MURRAY A. S. & WINTLE A. G. (2000): Luminescence dating of quartz using an imroved single-aliquot regenerative dose protocol. *Radiation Measurement* **32** 57–73.

MRÁV ZS. (2003): Zur Datierung der spätrömischen Schiffsländen an der Grenze der

Provinz Valeria Ripensis. In: Szabó Á.-Tóth E. (Hrsg.), Bölcske, Römische Inschriften und Funde Libelli Archaeologici Ser. Nov. II. 33–50.

NAGY L. (1939): A szír és kisázsiai vonatkozású emlékek a Duna középfolyása mentében. *ArchÉrt* **52** 115–147.

NAKATA Y., TAMAKI M. & HASHIMOTO T. (2006): Red-thermoluminescence dating using quartz grains extracted from a roof-tile an old Japanese temple. *Journal of Radioanalitical and Nuclear Chemistry* **272**/2 433–438.

NOVOTHNY Á. & ÚJHÁZY K. (2000): A termoés optikai lumineszcencens kormeghatározás elméleti alapjai és gyakorlati kérdései a negyedidőszaki kutatásokban. *Földrajzi Értesítő* **XLIX./3-4** 165–187.

ROBERTS R. G., UREN C. J. & MURRAY A. S. (1993): *Thermolumineszcence dating techniques at the Alligator Rivers Region Research Institute*. Australian Government Publishing Service, Canberra. pp. 52.

ROBERTS H. M. & WINTLE A. G. (2001): Equivalent dose determinations for polimineralic fine-grains using the SAR protocol: application to a Holocene sequence of the Chinese Loess Plateau. *Quaternary Science Reviews* **20/5-9**. 859–863.

SIPOS GY. & PAPP SZ. (2009): Terrakotta műalkotások vizsgálata és kormeghatározása termlumineszcens módszerrel, Szépművészeti Múzeum, Budapest. *Archeometriai Műhely* VI/1 61–64.

SZILÁGYI J. (1933): Inscriptiones tegularum Pannonicarum. (=Pannoniai bélyeges téglák) *DissPann* II.1 Budapest. 152–153.

TÓTH O. (2010): Középkori templomromok téglaanyagának TL kormeghatározása és archeometriai vizsgálata. Közöletlen TDK munka, SZTE, Természeti Földrajzi és Geoinformatiaki Tanszék, Szeged . 40–53.

WINTLE A. G. & MURRAY A. S. (2006): A review of quartz optically stimulated luminescence characteristic and their relevance in single-aliquot regeneration dating protocols. *Radiation Measurement* **41** 369–391.

WINTLE A. G. (2008): Luminescence dating:where it has been and where it is going. *Boreas* **37** 471–482.

ZINK A. & PORTO E. (2005): Luminescence dating of the Tangara terracottas of the Louvre collections. *Geochronometria* 24 21–26.