

综 述

# 光释光单片技术及其在澳大利亚 旧石器遗址上的应用

韩志勇<sup>1,2</sup>, 沈冠军<sup>1</sup>, 张家富<sup>3</sup>

(1. 南京大学城市与资源学系, 南京 210093;

2. 中国科学院地球环境研究所黄土与第四纪地质国家重点实验室, 西安 710075;

3. 北京大学环境学院地表过程实验室, 北京 100871)

**摘要:** 近几年光释光测年技术有了很大的发展, 主要体现在单片技术和单颗粒技术的建立与应用上。新技术降低了样品的用量, 提高了测量精确度, 并使得准确测定不均匀晒退沉积物的年龄成为可能。通过澳大利亚旧石器遗址多种释光技术测年结果的对比, 可以看到热释光法和光释光法对晒退彻底的沉积物同样可行, 而对不均匀晒退的沉积物, 只有光释光的单片技术才能获得可靠的年龄。由于我国旧石器遗址中大多缺乏彻底晒退的沉积物, 单片技术可能在建立这些遗址的年代框架方面起到重要作用。

**关键词:** 光释光测年; 单片技术; 旧石器遗址

中图分类号: P533

文献标识码: A

文章编号: 1000-3193 (2004) 03-0248-06

## 1 引言

沉积物中的矿物颗粒能将接受到的电离辐射能量储存起来, 并可通过人工激发, 将部分能量以释光(Luminescence)的形式释放出来。激发源可以是热或光, 相应的释光即热释光(TL)或光释光(OSL), 两者皆可用于测定第四纪沉积物的年代。这是因为沉积物中的矿物颗粒如果在被埋藏前曝光, 颗粒中原有的释光信号会被晒退, 如果曝光充分, 光释光信号就会回零, 而热释光信号则减至某个残留的水平。埋藏后矿物颗粒重新累积释光信号, 且信号的强度与累积的电离辐射剂量(等效剂量)成正比。如果电离辐射的强度(年剂量)已知, 就可通过测量颗粒的释光信号强度, 算出矿物颗粒从被埋藏开始到现在的时间。

采集测年样品要求不能曝光。样品经处理后, 通常选取 1—8  $\mu\text{m}$  细颗粒或 90—120  $\mu\text{m}$  的粗颗粒。前者是多种矿物的混合, 而后者为提纯后的长石或石英。再将这些颗粒固定在数十以至上百个的直径一般为 1 cm 的金属圆片(片子)上, 部分片子不做任何处理, 保持自然状态, 另一些则通过人工辐照已知剂量, 再用释光仪测量。光释光的测量是将样品曝露在

收稿日期: 2003-07-01; 定稿日期: 2003-10-12

基金项目: 黄土与第四纪地质国家重点实验室开放基金(批准号: SKLQG0303)

作者简介: 韩志勇(1968-), 男, 江苏南京人, 南京大学城市与资源学系副教授, 主要从事第四纪年代学研究。

特定波长的光线下,同时测量样品的光释光强度。通过自然样品与经人工辐照样品的光释光强度的对比,就可以估算样品的等效剂量了。

年剂量由内部剂量和外部剂量组成,石英的内部剂量通常忽略不计。外部剂量主要来自石英颗粒周围物质中的放射性元素,少量来自宇宙射线。如果采样点周围 30 cm 以内的岩性是均匀的,这时的年剂量可以通过测量样品本身来估算。由于沉积物中的水能够吸收部分电离辐射能量,所以还要考虑样品的含水量。宇宙射线剂量是根据样品的埋藏深度以及采样地点的纬度计算得出。

光释光测年技术是在热释光测年的基础上发展起来的。热释光测年早在上世纪 60 年代就出现,起初测量有加热史的样品年龄,70 年代末开始用于沉积物的测年。光释光测年在 1985 年才由 Huntley 等首次提出<sup>[1]</sup>,90 年代开始,新的等效剂量测量技术逐步建立。与热释光测年相比,光释光测年的主要优点是矿物颗粒沉积时光释光信号易于晒退回零,从而满足第四纪沉积物测年的前提,即前期的释光信号被彻底晒退。对于考古遗址中堆积物的年龄测定,光释光法较热释光法有明显的优势<sup>[2]</sup>。有鉴于此,目前考古遗址的堆积物多采用光释光法测年。本文将介绍运用单片技术评估沉积物晒退均匀程度,同时回顾不同的释光测年技术在澳大利亚旧石器遗址测年上的应用,希望对我国旧石器遗址的释光测年有借鉴的意义。

## 2 单片技术

由于采用的激发源是光而不是高温加热,对样品释光性质影响很小,因此可以对同一片子反复做光释光测量,这使得通过测量一个片子而获得等效剂量成为可能<sup>[3-4]</sup>。仅测量一个片子就得到一个等效剂量值,相应地得到一个年龄,这就是单片技术(Single-aliquot protocol)。就粗颗粒而言,一个片子上一般有几十乃至上千的颗粒。单颗粒技术(Single-grain protocol)可以视为单片技术的特例,这时一个片子上只有一个颗粒。多片技术(Multiple-aliquot protocol)<sup>[5-6]</sup>测量一个等效剂量值需要多个片子,一般来讲,需要几十个片子。

与多片技术相比,单片技术有很多优点:(1)单片技术只需少量的样品,甚至一个矿物颗粒就可以得到一个等效剂量值或一个年龄值,这一点对量少的样品尤其重要;(2)多片技术要求每一个片子具有相同的释光性质,如灵敏度、光释光晒退程度等,绝大多数样品难以满足这些要求。片子之间的性质差异的增加,将导致数据的离散性加大,得到的等效剂量的误差也因此增加。这个问题对单片技术来说不存在;(3)利用单片技术可以评估样品晒退是否均匀,选择晒退程度大的颗粒测定年龄,从而提高了测年的准确性;(4)多片技术测量很费时,也需要对片子做归一化处理,相反,单片技术就不需要这些步骤,因此减少了系统误差,也减少了工作量。由于多片技术存在以上的不足,一般情况下,沉积物的光释光测年应考虑使用单片技术。

单片技术的建立是等效剂量测量的一大进步,但同时,年剂量估算方面存在的问题就显现出来了。目前采用的年剂量估算方法所测出的应该是样品的平均年剂量。如果样品是均匀的,可以采用平均等效剂量来计算年龄;但对于不均匀的沉积物,它的放射性分布也是不均匀的,即使我们能测量一个彻底晒退的颗粒的等效剂量,这时也不能确定该颗粒实际所接受的年剂量,可见单颗粒技术受限于样品的均匀程度。单片技术虽也要注意样品的均匀问

题,但权衡利弊,单片技术的利要大于弊,尤其对于测量不均匀晒退的沉积物。目前粗颗粒石英的单片技术已进入实用阶段。

### 3 沉积物晒退评估

光释光测年的一个前提是样品埋藏时其光释光信号已被彻底晒退,然而大多数沉积物受沉积环境的制约难以满足这一前提。与旧石器遗址有关的堆积物,按晒退程度的大小大体可分为4类,第一类是风成沉积物,如沙丘砂等,这类沉积物的颗粒在被覆盖以前有足够的时间曝露在阳光下,晒退比较均匀和彻底,它们是最佳的测年对象,获得的光释光年龄也最可靠;第二类是河流相、湖相沉积物,受水深、浑浊度及沉积时的日照条件等多种因素的影响,每个矿物颗粒曝光程度不同,样品通常是不均匀晒退的,其中有可能存在彻底晒退的颗粒;第三类是斜坡堆积物、洪积物,只有部分矿物颗粒有机会见光,晒退非常不均匀;第四类是洞穴堆积物,一般情况下曝光条件差,只有少数有见光史的堆积物才可测量。

对于晒退彻底的沉积物,例如,来自南非南部海岸的 Die Kelders 遗址的样品,采用多片技术和单片技术可以获得一致的结果<sup>[7]</sup>。对于不均匀晒退的样品,残留的信号将导致采用多片技术获得的光释光年龄值偏大<sup>[8]</sup>。单片技术的出现使我们可以识别样品是否均匀晒退。目前已提出了多种利用单片等效剂量值的离散性对样品的晒退情况进行评价的方法。如果样品中所有的颗粒都彻底晒退,那么单片的等效剂量值应是同等的。不等的等效剂量意味着颗粒是不均匀晒退,一般来讲,单片的等效剂量值的差距越大,样品晒退越不均匀。对于同一样品,单片的等效剂量值越低,相应的颗粒在沉积时晒退的程度越大。在这种情况下,应该取相对小的等效剂量值来计算年龄<sup>[8]</sup>。判断样品不均匀晒退程度及选取合理的等效剂量值可以借助统计图<sup>[9-10]</sup>。

单颗粒技术的等效剂量值最适合用来评估晒退程度,但由于操作困难及大部分颗粒没有可测信号,所以实际可以采用只有少量(几十个)颗粒的片子,这时单片技术的效果接近单颗粒技术<sup>[11]</sup>。由于样品不可能是理想状态的均匀,其中可能含有少量放射性强的矿物,可以设想位于该矿物周围的颗粒实际所接受到的年剂量比样品的平均年剂量明显偏高,那么实际测得的这些颗粒的等效剂量值也会偏大,按目前的统计方案,这些颗粒都会被视为未被彻底晒退而被排除在年龄计算之外,不会给年龄结果带来额外的误差。

### 4 堆积物不均匀晒退的遗址

释光测年技术的进步及其应用的历程,即由热释光法到光释光法,再从多片技术到单片技术,可以在澳大利亚旧石器遗址的年代学研究中大致反映出来。澳大利亚最早有人居住的时间涉及到现代人的起源,在相关学界极受关注。测年技术(主要是释光测年)的应用,指示人类5万年前或更早就到达澳大利亚<sup>[12-14]</sup>,但这一推测成立与否要通过评估样品的晒退程度来确定释光年龄的可靠性<sup>[15]</sup>,结果显示有些遗址的堆积物是不均匀晒退的,以前得到的释光年龄与实际年龄有很大出入,而另一些则是彻底晒退的,原有的年龄是可靠的。

在澳大利亚中部的 Punitjarra 岩厦遗址,堆积物主要源自岩厦外细的风成物,少量来自岩厦本身的砂岩碎屑。沉积物热释光年龄和木炭<sup>14</sup>C 年龄之间存在明显的差距。沉积学、古植

物和其它考古证据支持 $^{14}\text{C}$  年龄。该地点的堆积物中有老的砂岩颗粒的加入被认为是热释光年龄偏大的一个可能原因<sup>[16]</sup>。澳大利亚北部 Kimberley 地区的 Jinmium 岩厦遗址的研究结果支持这个推断。该遗址的堆积物由未固结的沙质沉积物组成,其中发掘出一件有雕刻痕迹的砂岩碎块。以前的石英粗颗粒热释光测量指示与雕刻物共生的堆积物的年龄为 50—75 kyr,下覆含石制品的热释光年龄是 116—176 kyr<sup>[17]</sup>。该地点同一样品的多片和单片技术的测年结果相似,给出的年龄符合地层层序,顶部的年龄是 2.2 kyr,底部年龄 22 kyr,但与 $^{14}\text{C}$  年龄相比,这两个年龄依然太老。单颗粒的等效剂量值分布得散,被解释为埋藏前很多颗粒没有充分晒退。单颗粒技术测量揭示埋藏是最近发生的( $< 10$  kyr),这个结果与 $^{14}\text{C}$  年龄吻合<sup>[18]</sup>。

## 5 堆积物均匀晒退的遗址

在澳大利亚东南部著名的 Lake Mungo 遗址,1974 年发现了一具近乎完整的人类骨架化石(LM3),从中提取了世界上最古老的人类线粒体 DNA<sup>[19]</sup>。骨架埋藏于 Lower Mungo 单元的上部。该单元由磨圆和分选好的石英及砾石组成。热释光的测年结果表明 LM3 的年龄为 42—45 kyr<sup>[14,20]</sup>。但随后 Thorne 等采用多片技术确定了人化石所在层位的光释光年龄为  $61 \pm 2$  kyr<sup>[21]</sup>,这个年龄因为没有考虑可能的不均匀晒退的影响而受到怀疑<sup>[22-23]</sup>。最新的光释光单片技术的测量结果表明该地点样品确实是彻底晒退的,造成光释光年龄偏大的原因是由于 Thorne 等人在确定层位时出现差错,LM3 所在位置的沉积物的年龄应该是 40 kyr<sup>[19]</sup>。

澳大利亚西南的 Devil's Lair 遗址位于一个洞穴中,在其中发现了火塘、石制品等遗存。地层由沙质沉积物、流石夹层和其它硬化堆积物组成。沙质沉积物是从洞外被风吹进的。早期的人类占据 Devil's Lair 的时间可以由第 28 层和 39 层的年代控制。单片技术测量显示石英颗粒的信号在被埋藏前已被均匀晒退。第 28 层的光释光年龄为 43.4 kyr,第 39 层的年龄为 51.1 kyr,这与木炭的 $^{14}\text{C}$  年龄非常接近。据此结果,可以推断人类到达澳洲大陆西南角的时间大约是 48 kyr 以前<sup>[24]</sup>。

澳大利亚北部的岩厦遗址 Malakunanja II 的堆积物由分选差的砂层和砂砾层组成,从中发掘出大量的石器。该遗址的底部热释光年龄是 50—60 kyr<sup>[12]</sup>,这个年龄因为被分子生物学家用来校正现代人 DNA 的演化速率而受到特别关注。这个年龄可靠与否需要判断沉积物是否彻底晒退。单片技术和单颗粒技术获得的结果显示堆积物确实是彻底晒退的<sup>[15]</sup>,原先的热释光年龄是可靠的。

## 6 结 论

光释光测年技术的发展使其成为第四纪沉积物测年的一个重要手段。在比较理想的情况下,光释光年龄可获得与 $^{14}\text{C}$  年龄相当的精确度<sup>[25]</sup>。对不均匀晒退的沉积物,单片技术使我们能评估它们的晒退程度,并从中找到晒退程度最大的颗粒,据此可得出接近真实年龄的光释光年龄<sup>[26]</sup>。澳大利亚旧石器遗址的释光测年研究表明光释光测年技术,尤其是其中的单片技术,是一个非常重要而且有效的确定旧石器遗址年代的方法。我国众多的旧石器遗址的堆积物大多是不均匀晒退,所以单片技术在这些遗址的测年中有广阔的应用前景。

致谢: R. G. Roberts 为作者提供了澳大利亚旧石器遗址年代学研究的很多资料,并与作者做了有益的探讨。

### 参考文献:

- [ 1 ] Huntley DJ , Godfrey-Smith DI , Thewalt MLW. Optical dating of sediments [ J ]. *Nature* , 1985 , 313 : 105 —107.
- [ 2 ] Zhou LP , van Andel TH , Lang A. A luminescence dating study of open-air Palaeolithic sites in western Epirus , Greece [ J ]. *J Archaeol Sci* , 2000 , 27 : 609 —620.
- [ 3 ] Murray AS , Roberts RG , Wintle AG. Equivalent dose measurement using a single aliquot of quartz [ J ]. *Radiat Meas* , 1997 , 27 : 171 —183.
- [ 4 ] Murray AS , Wintle AG. Luminescence dating of quartz using an improved single-aliquot regenerative-dose protocol [ J ]. *Radiat Meas* , 2000 , 32 : 57 —73.
- [ 5 ] Prescott JR , Huntley DJ , Hutton JT. Estimation of equivalent dose in thermoluminescence dating—the Australian slide method [ J ]. *Ancient TL* , 1993 , 11 : 1 —5.
- [ 6 ] Mejdahl V , Bøtter-Jensen L. Luminescence dating of archaeological materials using a new technique based on single aliquot measurements [ J ]. *Quat Sci Rev* , 1994 , 13 : 551 —554.
- [ 7 ] Feathers JK , Bush DA. Luminescence dating of Middle Stone Age deposits at Die Kelders [ J ]. *J Hum Evol* , 2000 , 38 : 91 —119.
- [ 8 ] Li SH. Optical dating: insufficiently bleached sediments [ J ]. *Radiat Meas* , 1994 , 23 : 563 —567.
- [ 9 ] Olley JM , Caitcheon GC , Murray AS. The distribution of apparent dose as determined by optically stimulated luminescence in small aliquots of fluvial quartz: implications for dating young sediments [ J ]. *Quat Geochron (Quat Sci Rev)* , 1998 , 17 : 1033 —1040.
- [ 10 ] Galbraith RF , Roberts RG , Laslett GM *et al.* Optical dating of single and multiple grains of quartz from Jinnium rock shelter , northern Australia: Part I, Experimental design and statistical models [ J ]. *Archaeometry* , 1999 , 41 : 339 —364.
- [ 11 ] Olley JM , Caitcheon GG , Roberts RG. The origin of dose distributions in fluvial sediments , and the prospect of dating single grains from fluvial deposits using optically stimulated luminescence [ J ]. *Radiat Meas* , 1999 , 30 : 207 —217.
- [ 12 ] Roberts RG , Jones R , Smith MA. Thermoluminescence dating of a 50 ,000 year-old human occupation site in northern Australia [ J ]. *Nature* , 1990 , 345 : 153 —156.
- [ 13 ] Roberts RG , Jones R , Spooner NA *et al.* The human colonisation of Australia: Optical dates of 53 ,000 and 60 ,000 years bracket human arrival at Deaf Adder Gorge , Northern Territory [ J ]. *Quat Sci Rev* , 1994 , 13 : 575 —583.
- [ 14 ] Bowler JM , Price DM. Luminescence dates and stratigraphic analyses at Lake Mungo: Review and new perspectives [ J ]. *Archaeol Oceania* , 1998 , 3 : 156 —168.
- [ 15 ] Roberts RG , Yoshida H , Galbraith RF *et al.* Single-aliquot and single-grain optical dating confirm thermoluminescence age estimates at Malakunanja II rock shelter in northern Australia [ J ]. *Ancient TL* , 1998 , 16 : 19 —24.
- [ 16 ] Smith MA , Prescott JR , Head MJ. Comparison of  $^{14}\text{C}$  and luminescence chronologies at Puritjarra rock shelter , central Australia [ J ]. *Quat Sci Rev (Quat Geochron)* , 1997 , 16 : 299 —320.
- [ 17 ] Fullagar RLK , Price DM , Head LM. Early human occupation of northern Australia: archaeology and thermoluminescence dating of Jinnium rock-shelter , Northern Territory [ J ]. *Antiquity* , 1996 , 70 : 751 —773.
- [ 18 ] Roberts RG , Bird M , Olley JM *et al.* Optical and radiocarbon dating at Jinnium rock shelter in northern Australia [ J ]. *Nature* , 1998 , 393 : 358 —362.
- [ 19 ] Bowler JM , Johnston H , Olley JM *et al.* New ages for human occupation and climatic change at Lake Mungo , Australia [ J ]. *Nature* , 2003 , 421 : 837-840.
- [ 20 ] Oyston B. Thermoluminescence age determinations for the Mungo III human burial , Lake Mungo , southeastern Australia [ J ]. *Quat Sci Rev (Quat Geochron)* , 1996 , 15 : 739 —749.
- [ 21 ] Thorne A , Grün R , Mortimer G *et al.* Australia 's oldest human remains: age of the Lake Mungo 3 skeleton [ J ]. *J Hum Evol* , 1999 , 36 : 591 —612.
- [ 22 ] Gillespie R , Roberts RG. On the reliability of age estimates for human remains at Lake Mungo [ J ]. *J Hum Evol* , 2000 , 38 : 727 —732.

- [23] Bowler JM, Magee JW. Redating Australia 's oldest human remains : a sceptic 's view [J]. *J Hum Evol*, 2000, 38: 719—726.
- [24] Turney CSM, Bird MI, Fifield LK *et al.* Early human occupation at Devil 's Lair , southwestern Australia 50 ,000 years ago [J] , *Quat Res*, 2001, 55: 3—13.
- [25] Murray AS, Clemmensen LB. Luminescence dating of Hbocene aeolian sand movement , Thy , Denmark [J]. *Quat Sci Rev*, 2001, 20: 751—754.
- [26] Zhang JF, Zhou LP, Yue SY. Dating fluvial sediments by optically stimulated luminescence : selection of equivalent doses for age calculation [J]. *Quat Sci Rev*, 2003, 22: 1123—1129.

## OSL DATING USING SINGLE-ALIQUOT PROTOCOL AND ITS APPLICATION TO PALEOLITHIC SITES IN AUSTRALIA

HAN Zhi-yong<sup>1,2</sup>, SHEN Guan-jun<sup>1</sup>, ZHANG Jia-fu<sup>3</sup>

(1. *Department of Urban and Resources Sciences, Nanjing University, Nanjing 210093;*

2. *State Key Laboratory of Loess and Quaternary Geology, Institute of Earth Environment, CAS, Xi'an 710075;*

3. *Laboratory for Earth Surface Processes, College of Environmental Sciences, Peking University, Beijing 100871)*

**Abstract:** Optically stimulated luminescence (OSL) dating is becoming an important Quaternary dating method, especially for sediments that cannot be dated by other methods, such as <sup>14</sup>C and uranium-series. OSL dating can usually be reliably applied to sediments of ages ranging from decades to more than 100 kyr. The rapid development of OSL dating techniques over recent years is embodied by the establishment of single-aliquot protocols—in particular, the single-aliquot regenerative-dose (SAR) protocol. These new techniques require much less sample for analysis than multiple-aliquot protocols and often result in an improvement in precision of equivalent dose estimates. In addition, single-aliquot methods make it possible to date sediments composed of grains that have been bleached by sunlight to different extents at the time of deposition. Various luminescence dating techniques have been applied to Paleolithic sites in Australia in order to provide age controls beyond the practical dating range of <sup>14</sup>C. Results show that both thermoluminescence (TL) and OSL dating are feasible methods for sediments that have been sufficiently bleached at the time of deposition, while only single-aliquot protocols can be used to retrieve reliable age data from unequally and incompletely bleached samples. Because of the paucity of well bleached sediments at Paleolithic sites in China, single-aliquot protocols are believed to be the best choice to establish a luminescence-based temporal framework.

**Key words:** Optical dating; Single-aliquot protocol; Paleolithic sites