



TECHNISCHE
UNIVERSITÄT
WIEN



Datierung eines japanischen Hangofens (anagama) mittels Thermolumineszenzdatierung

DIPLOMARBEIT

Atominstytut (ATI) der TU Wien
vorgelegt am 24.10.2018

Name: David Oliver Eigner B.Sc.

Matrikelnummer: 01128064

Universität: Technische Universität Wien

Studiengang: 066 434

Betreuung: Ao. Univ.Prof. Dipl.-Ing. Dr.techn. Christina **STRELI**
Senior Scientist Dipl.-Ing. Dr.techn. Johannes **STERBA**
Amtsdir. Ing. Manfred **FUGGER**

Abstract

Since archaeometry was established to be an independent academic discipline and its applied methods are being more and more accepted by archaeologists (e.g. neutron activation analysis, non-destructive dating), major progress could be achieved in age determination of the smallest sample quantities. Particularly the method of thermoluminescence dosimetry can exploit its strengths at dating pottery artefacts by sampling smallest amounts, and there are many further application areas (up to 500.000 years under good conditions). Moreover, neutron activation analysis allows to determine the chemical fingerprint of any artefacts as well. By these datapoints one can draw exact conclusions about its origin.

In this paper, Sue pottery is being investigated via the two methods mentioned above to find out about the conditions of its production, its distribution and Japan's trade relations around 1000 B.C. Both pottery pieces have been provided by Prof. Maria Shinoto and Prof. Naoko Nakamura, who manage the excavation at Nakadake-Sanroku, where these fragments were found. As producing Sue pottery was dominated by the Japanese rulers back then, by analyzing these fragments, one can also find out about the extension of the, at that time, young state Japan. Furthermore, one can observe that the pottery from Nakadake was disseminated right up to the Ryukyu-Islands, which means that there had to be active trade relations.

We discovered that dating the pottery by applying the method of thermoluminescence is basically possible, but that there are unknown physical processes, which lead to an inaccurate result. Depending on the chosen temperature interval of the plateau as well as on the local dose rate (terrestrial /cosmic constituent) we arrive at different ages for both samples. It was detected, that both fragments are certainly older than 1000 years, probably between 1000 and 1400 years. This result matches with the geological and historical finds of the excavation site, as well as with another series of measurements Verena Singer did for her bachelor thesis. Since now there are three measurement series – two of them in the present paper – which yield more than 1000 years, one can most certainly contradict Lukas Neidharts's thesis, in which he derives through another sample from the same excavation site an age of 761 ± 52 years

Kurzfassung

Seit sich die Archäometrie als eigenständiges Wissenschaftsgebiet etabliert hat, und die dort eingesetzten Methoden langsam immer mehr auch bei Archäologen akzeptiert werden (Neutronenaktivierungsanalyse, zerstörungsfreie Datierungsverfahren), konnten immense Fortschritte bei der Altersbestimmung von kleinen und kleinsten Probenmengen erzielt werden. Insbesondere das Verfahren der Thermoluminiszenzdosimetrie kann bei der Datierung von keramischen Artefakten durch geringe Probenentnahme und weite Einsatzbereiche (bis zu 500.000 Jahre bei guten Voraussetzungen) seine Stärken ausspielen. Ebenso kann mit der Neutronenaktivierungsanalyse (NAA) der chemische Fingerabdruck jedes Artefakts genau bestimmt werden, und mittels der dadurch gewonnenen Daten genaue Rückschlüsse auf die örtliche Herkunft gefunden werden.

Die in dieser Arbeit zu untersuchende Sue-Keramik kann mit Hilfe der beiden oben genannten Verfahren interessante Rückschlüsse auf die Herstellungsbedingungen, Verbreitung und Handelsbeziehungen des Japans um 1000 A.D. liefern. Beide Bruchstücke wurden von Prof. Maria Shinoto und Prof. Naoko Nakamura zur Verfügung gestellt, welche die Ausgrabungen beim Fundort der Keramiken in Nakadake-Sanroku leiten. Da die Erzeugung der Sue-Keramik im Japan des 10 Jhdt. unter herrschaftlicher Aufsicht stand, kann durch die Datierung und chemischer Analyse der Bruchstücke auf die Ausweitung des jungen japanischen Staates geschlossen werden. Ebenso kann festgestellt werden, dass sich die Keramiken, die in Nakadake hergestellt wurden, bis hin zu den Ryūkyūinseln verbreitet haben, es also eine rege Handelsbeziehung geben musste.

Wir konnten feststellen, dass die Datierung der Sue-Keramik und des Ofens mittels Thermoluminiszenzdosimetrie zwar prinzipiell möglich, diese aber durch unbekanntes physikalische Prozesse mit einer Unschärfe behaftet ist. Je nach gewähltem Plateaukriterium und dem sich dadurch ermittelten Temperaturintervall und abhängig von den Korrekturmethode der Vor-Ort-Dosisleistung (terrestrische/kosmische Komponente) ergeben sich andere Ergebnisse des Alters bei beiden Proben. Es konnte grundsätzlich ermittelt werden, dass beide Probenstücke sicher nicht jünger als 1000 Jahre sein können und vermutlich ein Bereich von 1000 bis 1400 Jahren angesetzt werden kann. Dies deckt sich auch mit den geologischen und historischen Funden der Ausgrabungsstätte sowie einer weiteren Messserie in der Bachelorarbeit von Fr. Verena Singer. Nachdem drei Messreihen - wovon zwei in dieser Diplomarbeit durchgeführt wurden - ein Alter von über 1000 Jahre festlegen, kann einer vorangegangenen Arbeit von Hr. Lukas Neidhart nun recht sicher widersprochen werden. In dieser wurde bei einer weiteren Probe aus dem gleichen Ausgrabungsfundort ein Alter von 761 ± 52 Jahre festgestellt.

Inhaltsangabe

| | | |
|----------|---|-----------|
| 1 | EINLEITUNG..... | 1 |
| 1.1 | MOTIVATION | 1 |
| 1.2 | AUFGABENSTELLUNG..... | 3 |
| 2 | THEORETISCHE GRUNDLAGEN..... | 4 |
| 2.1 | STRAHLENPHYSIK | 4 |
| 2.1.1 | <i>Strahlungsarten</i> | 5 |
| 2.1.1.1 | Nichtionisierende Strahlung | 5 |
| 2.1.1.2 | Ionisierende Strahlung | 6 |
| 2.1.2 | <i>Aktivität</i> | 7 |
| 2.1.3 | <i>Dosis und Dosisseinheiten</i> | 9 |
| 2.1.4 | <i>Natürliche Hintergrundstrahlung</i> | 10 |
| 2.1.4.1 | Kosmische Strahlung | 10 |
| 2.1.4.2 | Terrestrische Strahlung | 11 |
| 2.2 | STRAHLUNGSMESSUNG | 12 |
| 2.2.1 | <i>Physikalische Grundlagen</i> | 13 |
| 2.2.2 | <i>Detektortypen und Nachweisverfahren</i> | 14 |
| 2.2.2.1 | Elektrische Nachweisverfahren | 15 |
| 2.2.2.2 | Nicht elektrische Nachweisverfahren..... | 18 |
| 2.3 | DOSIMETRIE | 19 |
| 2.3.1 | <i>Historischer Überblick</i> | 19 |
| 2.3.2 | <i>Physikalische Grundlagen</i> | 20 |
| 2.3.2.1 | Allgemeine Theorie | 20 |
| 2.3.2.2 | Fading | 26 |
| 2.3.3 | <i>TL-Materialien in der Dosimetrie</i> | 26 |
| 2.3.3.1 | Kalziumfluorid (CaF ₂) [46] | 26 |
| 2.3.3.2 | Lithiumfluorid (LiF) [48]..... | 27 |
| 2.3.3.3 | Weitere Materialien | 28 |
| 2.4 | DATIERUNG | 29 |
| 2.4.1 | <i>Prinzip der Datierung</i> | 29 |
| 2.4.1.1 | Allgemeines | 29 |
| 2.4.1.2 | Bestimmung der archäologischen Dosis – additive Methode | 29 |
| 2.4.1.3 | Bestimmung der jährlichen Dosis | 32 |
| 2.4.2 | <i>Probengewinnung</i> | 33 |
| 2.4.3 | <i>Neutronenaktivierungsanalyse (NAA)</i> | 35 |
| 2.4.4 | <i>Eigenaktivitätsmessung</i> | 39 |
| 2.4.5 | <i>Feuchtigkeitsgehalt</i> | 40 |
| 2.4.6 | <i>Hardware</i> | 41 |
| 2.4.7 | <i>Software</i> | 45 |
| 3 | DURCHFÜHRUNG | 47 |
| 3.1 | BESTIMMUNG DER FLUGDOSIS UND ETWAIGER RÖNTGENSCANS VIA LIULIN | 47 |
| 3.1.1 | <i>Motivation</i> | 47 |
| 3.1.2 | <i>Experiment</i> | 47 |
| 3.1.3 | <i>Ergebnisse</i> | 49 |
| 3.1.3.1 | Ergebnisse der Flüge Wien – Japan: | 49 |
| 3.1.3.2 | Ergebnisse der Flüge Japan – Wien: | 50 |
| 3.2 | VORORT MESSUNG DER UMWELTDOSISLEISTUNG VIA TL – DOSIMETRIE..... | 51 |
| 3.2.1 | <i>Motivation</i> | 51 |
| 3.2.2 | <i>Experiment – Messung der TL-Dosimeter</i> | 51 |
| 3.2.3 | <i>Ergebnisse</i> | 52 |
| 3.2.3.1 | TL Dosimeter ATI | 52 |
| 3.2.3.2 | TL Dosimeter Japan Schreibtisch | 53 |
| 3.2.3.3 | TL Dosimeter Japan Ausgrabung | 55 |
| 3.3 | DATIERUNG | 57 |
| 3.3.1 | <i>Experiment</i> | 57 |
| 3.3.2 | <i>Proben</i> | 57 |

| | | |
|----------|---|-----------|
| 3.3.3 | <i>Ergebnisse</i> | 58 |
| 3.3.3.1 | Übungsziegel | 58 |
| 3.3.3.2 | Probenserie KI1-N5..... | 62 |
| 3.3.3.3 | Probenserie KI1-52 | 66 |
| 4 | DISKUSSION | 71 |
| 4.1 | PROBENSERIEN KI1-N5 | 71 |
| 4.1.1 | <i>Variation des Verhältnisses extern terrestrische/kosmische Dosis</i> | 71 |
| 4.1.2 | <i>Variation des Plateaus</i> | 72 |
| 4.1.3 | <i>Verwerfung einzelner Messpunkte</i> | 76 |
| 4.2 | PROBENSERIEN KI1-52..... | 79 |
| 4.2.1 | <i>Variation des Verhältnisses von terrestrische/kosmische Dosis</i> | 79 |
| 4.2.2 | <i>Variation des Plateaus</i> | 80 |
| 5 | INTERPRETATION | 85 |
| 6 | ANHANG | 87 |
| 6.1 | MESSERGEBNISSE ALPHAZÄHLER..... | 87 |
| 6.2 | LIULIN TESTMESSUNGEN..... | 87 |
| 7 | ABBILDUNGSVERZEICHNIS | 90 |
| 8 | TABELLENVERZEICHNIS | 94 |
| 9 | QUELLENVERZEICHNIS | 95 |

1 Einleitung

1.1 Motivation

Die Archäometrie („αρχαιον“ = alt; „μετρον“ = messen) ist ein relativ junger Wissenschaftszweig. Unter diesem Begriff werden alle physikalisch/chemischen aber auch geoarchäologisch/biotischen Verfahren subsumiert, welche im Wesentlichen zur Datierung und Materialanalytik herangezogen werden können.

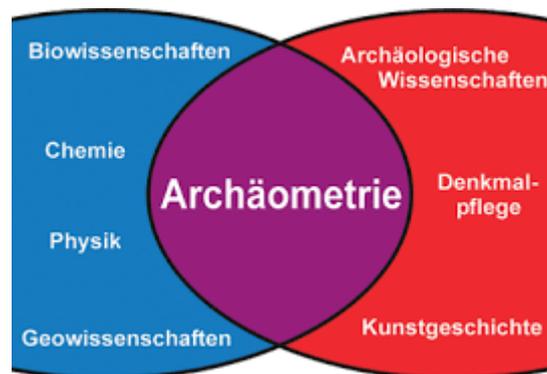


Abb. 1 Die Archäometrie als interdisziplinäres Fach [1]

Erst 1959 wurde der Begriff Archäometrie von Christopher Hawkes, Professor für Europäische Archäologie in Oxford, eingeführt. Als interdisziplinäre Schnittstelle zwischen den verschiedenen Wissenschaften (Abb. 1) konnte in den letzten 50 Jahren eine enorme Entwicklung stattfinden, welche vor allem auf die Entdeckung neuer oder die Verfeinerung schon bekannter naturwissenschaftlicher Methoden zurückzuführen ist.

Nach anfänglicher Skepsis, welche Archäologen dem jungen Wissenschaftszweig entgegenbrachten, setzten sich deren Methoden und Techniken allerdings schnell durch und wurden allgemein anerkannt. Besonders durch immer kleiner werdende benötigte Probenmengen, immer genauer werdende Datierungsverfahren und deren absolute Fälschungssicherheit (Thermolumineszenzdatierung) sowie den breiten Anwendungsbereich konnte der Archäometrie zum heutigen Status verholfen werden [1].

Das Verfahren der TL-Datierung wird zur Altersbestimmung von keramischen Erzeugnissen benutzt, so auch bei jenen Funden, die bei Ausgrabungen bei Nakadake-Sanroku zu Tage getreten sind. Die entdeckten Brennöfen und Keramiken liegen in einer kleinen Provinz in Südkyūshū, welche als Wiege der japanischen Zivilisation gesehen wird [2]. Das Töpfereizentrum selbst liegt am Fuße des 280 m hohen Mt. Nakadake und umfasst bis zu 50 Öfen, welche an den Hängen als sogenannte „anagama“ (Tunnelöfen) angelegt wurden. Die Technik des Brennens von Sue-Keramik wurde Anfang des 5. Jhdt. von koreanischen Handwerkergruppen in Japan eingeführt.

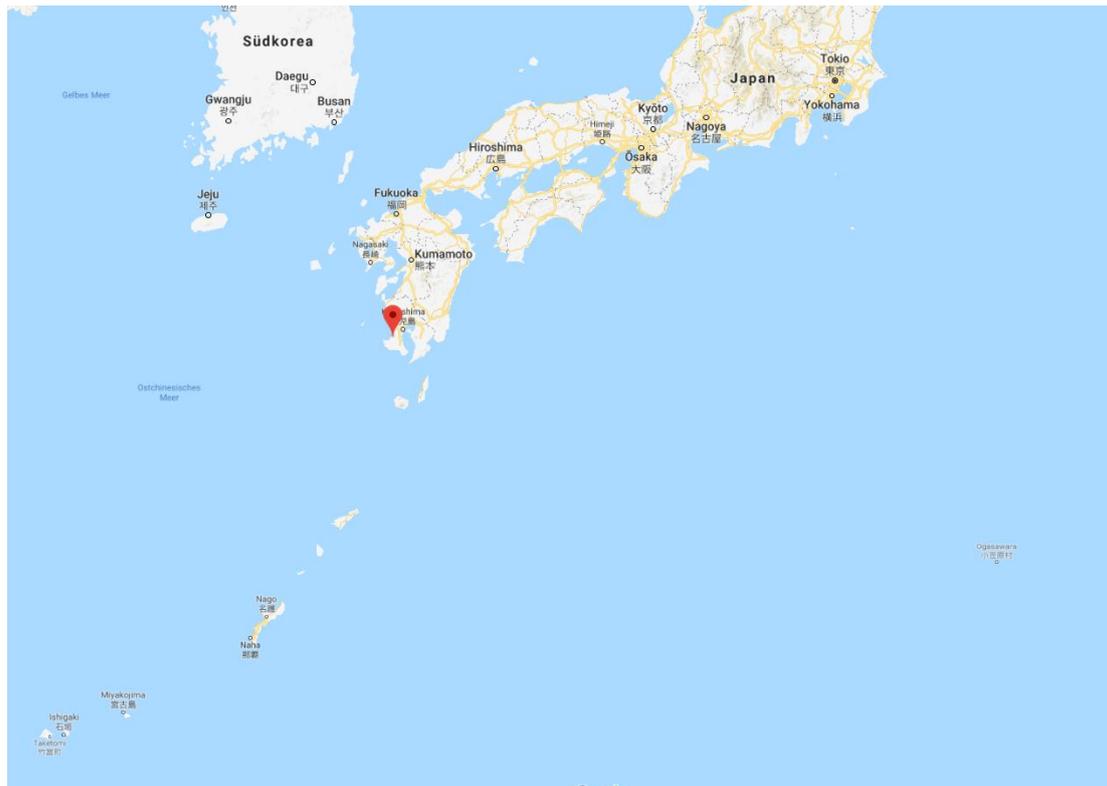


Abb. 2 Ausgrabungsstätte am Mt. Nakadake in Südkyūshū (rote Pinnnadel) [3]

Durch die archäometrische Analysen der Funde können weitreichende Erkenntnisse über die Historie Japans erlangt werden: Die Verbreitung der Sue-Keramik von Mt. Nakadake konnte bis auf die Ryūkyū Inseln nachverfolgt werden, dies ist deswegen interessant da dadurch Rückschlüsse auf die ersten Handelsrouten von Japan in den Süden gemacht werden können. Ebenso kann die Entwicklung des japanischen Staates nachverfolgt werden, die damalige Herrschaft in Yamato war bedacht darauf, die Herstellung der Keramik stark zu kontrollieren und sie mit Hilfe von Gelehrten weiter zu verbreiten.

So kann man anhand der Ausbreitung von Brennofenzentren das Territorium der Zentralgewalt Japans bis hin zum 9. Jhdt., als der Staat seine Macht auf allen drei Hauptinseln gefestigt hatte, bei seiner Entstehung historisch beleuchten. Die Bedeutsamkeit dieser südlichen Region kann nicht nur an der Entstehung eines Zentralstaates festgemacht werden, vielmehr spielte die Region Kyūshū auch als Gegenpol zum Machtzentrum auf der Insel Honshū eine wichtige Rolle. Zu guter Letzt sollte auch nicht unerwähnt bleiben, dass auch die ersten Europäer über diese Route im Jahre 1543 in Tanegashima aufliefen [4].

Einen ersten Versuch einer Datierung der Sue-Keramik mit Hilfe von Thermoluminiszenzdosimetrie am Atominstiut der TU Wien unternahm Lukas Neidhart im Jahr 2016. Anhand einer Scherbe des oben genannten Töpfereizentrums im Zuge seiner Bachelorarbeit konnte durch zwei Messreihen (derselben Scherbe) ein Alter von $761 \pm 52 a$ festgestellt werden [5]. Dies entspricht jedoch nicht dem Alter, welches aufgrund anderer archäometrischer Verfahren und Messserien, archäologischen und historischen Belegen erwartet wurde. Um das oben festgestellte Alter nochmals einer Prüfung zu unterziehen, wurden weitere Keramikstücke von Nakadake nach Wien per Flugzeug geschickt und jeweils eine Messreihe von beiden Sue-Keramiken durchgeführt.

1.2 Aufgabenstellung

In dieser Arbeit wurden zwei keramische Sue-Fragmente untersucht und deren Alter mittels Thermolumineszenzdatierung und -dosimetrie bestimmt. Dazu war es nötig die zusätzlich akkumulierte Dosis der Bruchstücke und der vor Ort vergrabenen Dosimeter, welche ihren Ursprung im Flug von Japan nach Wien hatte, mittels eines Spektrometers zu bestimmen und von der natürlichen Dosis abzuziehen.

Die Bestimmung der natürlichen jährlich absorbierten Dosisleistung (terrestrische + kosmische Komponente) vor Ort wurde mittels teils an der Ausgrabungsstätte vergrabenen, teils im Institutsgebäude des Atominstututs in Wien und in den Räumlichkeiten der Ausgrabungsleiterin in Japan positionierten Thermolumineszenzdosimeter bestimmt. Alle Dosimeter wurden einzeln mittels einer speziellen Messvorrichtung erhitzt und ausgelesen, danach mit einer Referenzdosis bestrahlt und erneut ausgemessen.

Die durch den Transport zusätzlich akkumulierte Dosis der Bruchstücke und der Dosimeter wurde mittels LIULIN Spektrometer bestimmt und von der natürlichen Dosis abgezogen.

Für die Altersbestimmung wurden die Probenstücke vorsichtig und unter ständigem Rotlicht ausgepackt, und einem im Weiteren näher beschriebenen Aufbereitungsprozedere unterworfen. Die dadurch erhaltenen Probenplättchen, mit Probenmaterial belegten Aluminiumdisks, wurden mit Hilfe des HVK Geräts teils sofort erhitzt und die resultierende Thermolumineszenzintensität gemessen, teils wurden die Probenplättchen mit zusätzlicher Alpha- und Beta-Strahlung behandelt und danach gemessen. Jede Probe wurde nach der ersten Messung erneut einer definierten Strahlung ausgesetzt und als Referenz für die spezifische Empfindlichkeit jedes Probenplättchens ein zweites Mal gemessen.

Weiters mussten für eine genaue Datierung der Feuchtigkeitsgehalt der Bruchstücke mittels Wägung ermittelt werden. Die probeninterne Alphaaktivität wurde mittels Alphazähler und Leermessung ermittelt. Für die Bestimmung des probenspezifischen Kaliumoxidgehalts wurde jeweils Probenmaterial und Referenzmaterial einer Neutronenaktivierungsanalyse unterzogen.

Mit allen erhaltenen Daten und den weiteren relevanten Parametern konnte nach Abzug der zusätzlich akkumulierten Dosis das Alter der Bruchstücke bestimmt werden.

2 Theoretische Grundlagen

2.1 Strahlenphysik

Die Grundlage für die Thermolumineszenzdosimetrie bilden spezifische Materialien, welche die durch ionisierende Strahlung erzeugten und in deren Festkörperstruktur akkumulierten Sekundärelektronen speichern. Dazu ist es nötig, sich mit den Grundlagen der Strahlenphysik und damit elektromagnetischer Wellen auseinander zu setzen. Das sichtbare Licht, also jenes das vom menschlichen Auge aufgenommen und in Reize umgewandelt werden kann, umfasst nur einen sehr kleinen Teil des elektromagnetischen Spektrums.

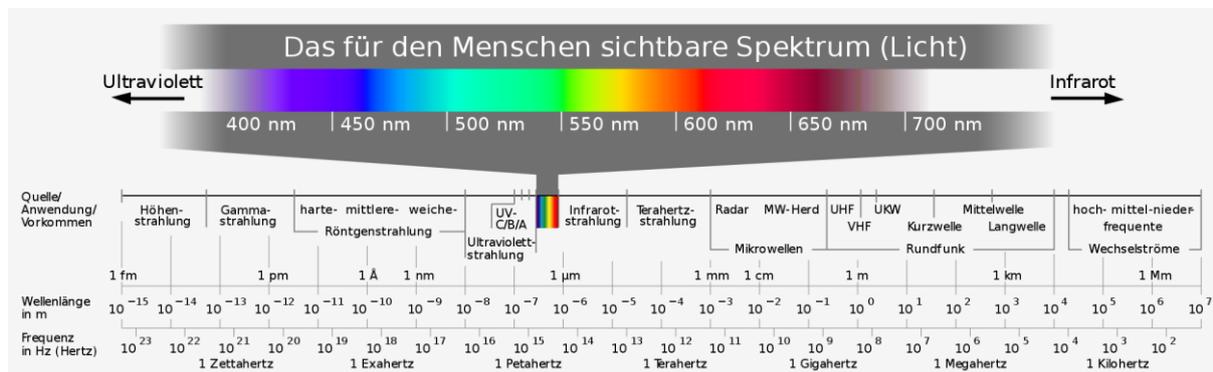


Abb. 3 Elektromagnetisches Wellenspektrum mit dem Farbspektrum des sichtbaren Lichts [6]

Unter Strahlung im Allgemeinen versteht man, im Gegensatz zu Schallwellen, einen Energie- und Massentransport, welcher nicht an ein Medium gebunden ist. Nach Prof. Lewis kann die Strahlungsart von elektromagnetischen Wellen als Photonenstrahlung, welche von einzelnen Quanten (=Photonen) vermittelt wird bezeichnet werden [7].

Wie in Abb. 3 ersichtlich, kann elektromagnetische Strahlung zuvorderst über ihre Wellenlänge oder Frequenz eingeteilt werden. Sollte die Strahlung auch mit einem Massentransport verbunden sein, so kann diese auch nach Newton als Korpuskularstrahlung bezeichnet werden [8]. Die vermittelnden Teilchen können geladen oder ungeladen sein, beispielsweise Elektronen, Neutronen, Protonen oder auch ganze Moleküle. Zusammengefasst werden Photonen- und Korpuskularstrahlung aufgrund des Teilchen-Wellen Dualismus als Teilchenstrahlungen bezeichnet.

Eine weitere wichtige Unterteilung des elektromagnetischen Wellenspektrums ist jene, ionisierende von nichtionisierender Strahlung zu unterscheiden (Abb. 4). Dabei wird nicht darauf Bedacht genommen, ob es tatsächlich zu einem Ionisierungsvorgang gekommen ist, sondern lediglich darauf ob es auf Grund der zur Verfügung stehenden Korpuskel- oder Photonenenergien zu solchen Ionisierungen prinzipiell kommen kann. Die dazu benötigten Energien reichen, je nach bestrahlter Materie, von ca. 10^{-19} bis $10^{-16} J$, was den Bindungsenergien der äußeren oder inneren Hüllenelektronen entspricht [9]. Die ionisierende Strahlung kann weiter in direkt oder indirekt ionisierende Strahlungsarten aufgeteilt werden. Darauf wird in einem späteren Kapitel genauer eingegangen.

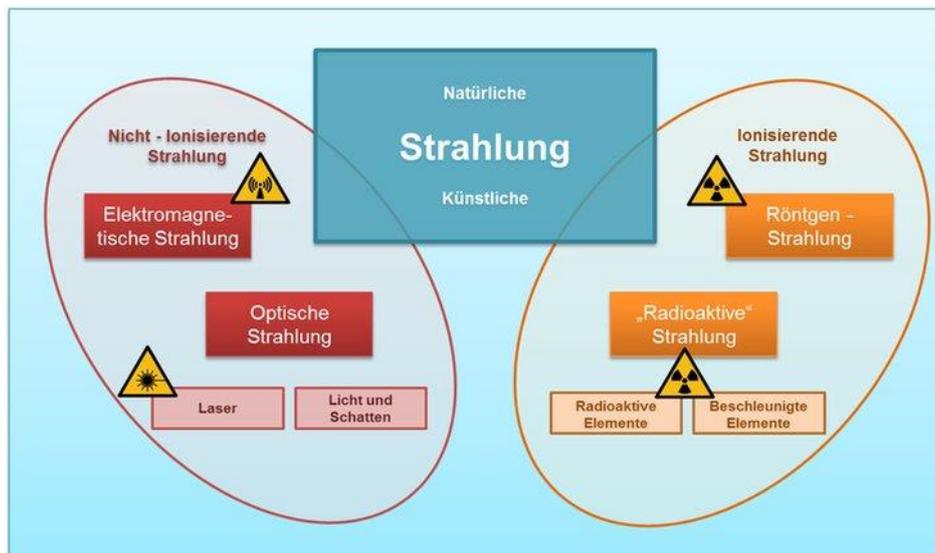


Abb. 4 Einteilung der verschiedenen Strahlungsarten [10]

2.1.1 Strahlungsarten

2.1.1.1 Nichtionisierende Strahlung

Die nichtionisierende Strahlung des elektromagnetischen Spektrums kann durch die Energie der vermittelnden Teilchen ($< 3 \text{ eV}$) und aufgrund des Zusammenhangs (mit Frequenz und Wellenlänge auch über diese eingeteilt werden ($>750 \text{ THz}$; $<400 \text{ nm}$)).

$$E_{ph} = h * f \quad (1)$$

$$c = \lambda * f \quad (2)$$

mit E_{ph} ... Photonenenergie [eV]
 h ... $6,626 \cdot 10^{-34}$ plancksches Wirkungsquantum [Js]
 f ... Frequenz [s^{-1}]
 λ ... Wellenlänge [m]

Die Energie dieser nichtionisierenden Strahlung ist nicht ausreichend, um andere Atome zu ionisieren, d.h. ein Elektron aus dem Atom zu entfernen. Demnach kann die Grenze nach Abb. 3 unterhalb des sichtbaren Lichts ($400\text{-}700 \text{ nm}$ Wellenlänge) gezogen werden. Beispiele für nichtionisierende Strahlung sind Radiowellen, Infrarotstrahlung und Mikrowellen.

2.1.1.2 Ionisierende Strahlung

Im Gegensatz zur nichtionisierenden Strahlung sind die Energien der ionisierenden Strahlung groß genug, um Elektronen aus den Atomen der bestrahlten Materie zu schlagen. Dazu zählen beispielsweise UV-C Strahlung (Photonenenergie ca. 5 eV), Röntgenstrahlung (ca. 100-300 keV) und Höhenstrahlung (Höchstenergien bis ca. 10^{20} eV).

Direkt ionisierende Strahlung in Form von geladenen Teilchen (e^- , e^+ , α) oder Photonen (γ), können durch Stöße mit anderen Atomen unmittelbare Ionisationen in der bestrahlten Materie auslösen. Dem gegenüber steht die indirekt ionisierende Strahlung welche von ungeladenen Teilchen (n) ausgelöst wird. Diese Teilchen übertragen ihre Energie zuerst auf Stoßpartner in der bestrahlten Materie, welche wiederum die umgebenden Atome ionisieren.

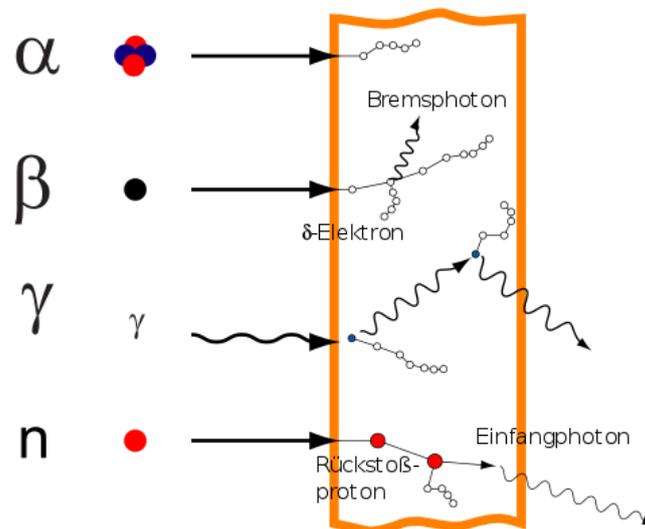


Abb. 5 Wechselwirkung von direkt und indirekt ionisierender Strahlung mit Materie; α , γ , p^+ direkt, n indirekt [11]

Da ionisierende Strahlung die Fähigkeit hat, in biologischen Systemen wie etwa Gewebe unterschiedliche DNA-Schäden zu verursachen (Einzel- und Doppelstrangbrüche), ist beim Umgang von Strahlungsquellen äußerste Vorsicht geboten [12]. Trotz der Gefahren, können durch richtigen Umgang mit ionisierender Strahlung wichtige wissenschaftliche Erkenntnisse gewonnen werden, die von der hier behandelten Datierung via Dosimetrie über Strahlentherapie bis hin zu Astrophysik weite Bereiche des Lebens maßgeblich bereichert haben.

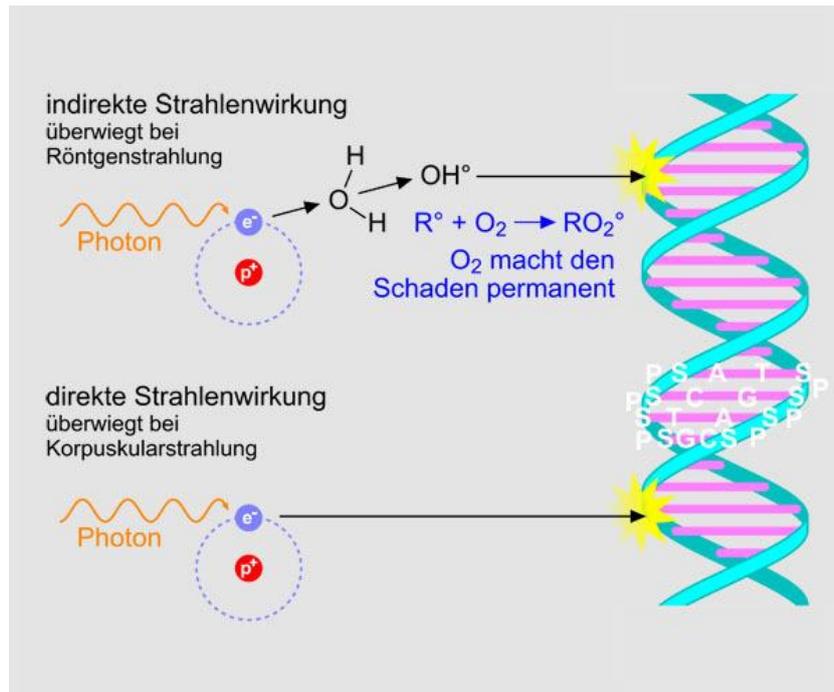


Abb. 6 Wirkung von direkt und indirekte ionisierender Strahlung auf DNA [13]

Im Weiteren dieser Diplomarbeit wird, wenn von Strahlung gesprochen wird, immer ionisierende (direkt oder indirekt) verstanden.

2.1.2 Aktivität

Ein Blick auf die Karlsruher Nuklidkarte zeigt eindrucksvoll, dass viele Kerne radioaktiv sind, sie also im Laufe der Zeit unter Emission von Teilchen (e^- , e^+ , α , Photonen) zerfallen.

Ein Charakteristikum für alle Arten von radioaktivem Zerfall ist dessen exponentielle Abnahme mit der Zeit, was deutlich macht, dass Radioaktivität ein statistischer Prozess ist. Dieser Prozess kann mittels des Zerfallsgesetzes [14] beschrieben werden:

$$N(t) = N_0 * e^{-\lambda t} \quad (3)$$

mit $N(t)$... Kerne die nach der Zeit t noch nicht zerfallen sind
 N_0 ... Kerne zu Beginn
 λ ... Zerfallskonstante [s^{-1}]
 t ... Zeitintervall [s]

Aus Gl. 3 kann mittels der Halbwertszeit, also jener Zeitspanne nach der die Hälfte der zum Zeitpunkt $t=0$ radioaktiven Atome zerfallen ist, und elementarer Umformungen die Zerfallskonstante bestimmt werden:

$$\frac{N_0}{2} = N_0 * e^{-\lambda T_{1/2}} \longrightarrow \lambda = \frac{\ln 2}{T_{1/2}} \quad (4)$$

mit $T_{1/2}$... Halbwertszeit [s]

Eine wichtige Größe bei der Beschreibung radioaktiver Stoffe und deren Zerfall ist die Aktivität A , welche die Einheit Becquerel ($1 \text{ Bq} = 1 \text{ Zerfall/s}$) hat. Die Aktivität kann leicht aus dem Zerfallsgesetz abgeleitet werden, sie ist definiert als Anzahl der Kernzerfälle pro Zeitintervall:

$$A(t) = -\frac{dN(t)}{dt} = \lambda * N(t) \quad (5)$$

Es ist leicht einsichtig, dass beim Einsetzen des Zerfallsgesetzes in die Formel für die Aktivität diese, wie auch der Zerfall, einem exponentiellen Abfall folgt. Nimmt also die Anzahl der noch nicht zerfallenen Kerne ab, so nimmt auch gleichermaßen die Gesamtaktivität ab.

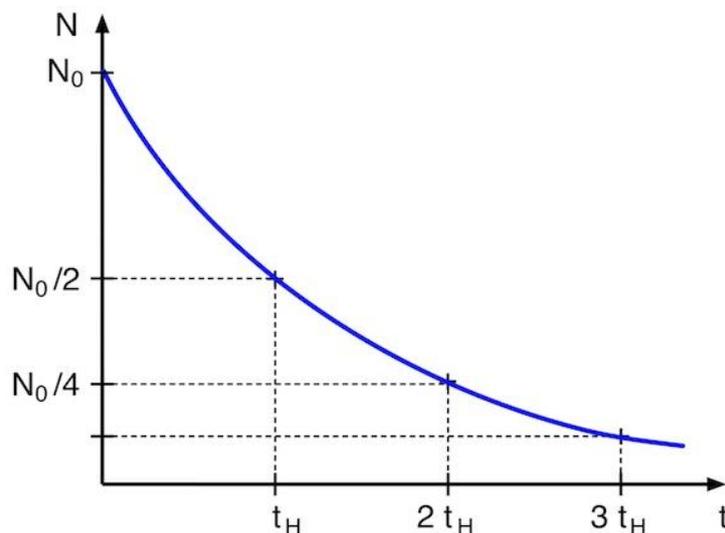


Abb. 7 Exponentieller Abfall für den Zerfall von radioaktiven Atomkernen [15]

Eine weitere wichtige Größe radioaktiver Substanzen ist die spezifische Aktivität, welche der Quotient aus Aktivität A und Masse m eines radioaktiven Stoffes ist. Wie aus Gl. (6) ersichtlich ist, hängt die spezifische Aktivität (Anzahl Zerfälle pro Masse M) nicht vom Messzeitpunkt ab [9]:

$$a = \lambda * \frac{N_A}{M} \quad (6)$$

In Tab. 1 sind exemplarisch für einige Elemente die jeweiligen spezifischen Aktivitäten dargestellt.

| Element | Spezifische Aktivität [kBq/kg] |
|---------|--------------------------------|
| Kalium | 31,2 |
| Thorium | 8080 |
| Uran | 25290 |
| Neodym | 10 |

Tab. 1 Beispiele für die spezifische Aktivität von Elementen

2.1.3 Dosis und Dosiseinheiten

Für die Charakterisierung von Strahlung ist es weiters bedeutsam zwischen den einzelnen Dosisgrößen für Dosimetrie und den Strahlenschutz zu unterscheiden. Eine Einteilung kann mittels physikalischer Größen (Ionendosis, Energiedosis und Kerma) und Strahlenschutzgrößen (Ortsdosisleistung, Personendosen, Organäquivalenzdosis und effektive Dosis) vollzogen werden.

Jegliche Wirkung von Strahlung auf organische oder anorganische Stoffe beruht auf der Absorption von Strahlungsenergie in Materie. Daher ist die fundamentalste physikalische Dosisgröße, welche auch in der Datierung benutzt wird, die pro Massenelement absorbierte Energie, auch Energiedosis genannt, vgl. Gl. (7). Diese wird mit der Einheit Gray [Gy] bewertet.

Die anderen physikalischen Größen (Ionendosis und Kerma) werden nur verwendet, wenn es die messtechnischen Bedürfnisse verlangen. So gesehen ist die Energiedosis jene Einheit, von der auch die Äquivalenzdosen (alle Strahlenschutzgrößen) „abgeleitet“ werden.

$$D = \frac{dE}{dm} \quad (7)$$

mit D ... Energiedosis [J/kg] = [Gy]
 E ... Energie [J]
 m ... Masse [kg]

Abgeleitet ist jedoch nur im übertragenen Sinne gemeint, da es sich streng genommen nicht um physikalische Größen handelt, sondern alle Strahlenschutzgrößen einen biologischen Bewertungsfaktor innehaben, welcher mit teilweiser Unschärfe behaftet ist.

Die wichtigste Einheit, welche u.a. für Organdosis, effektive Dosis und Äquivalentdosis herangezogen wird, ist das Sievert [Sv]. Es wurde eingeführt, um den Unterschied

zwischen der rein physikalisch gemessenen Energiedosis in Gray, und den verschiedenen biologisch relevanten Größen zu unterstreichen. Die Wichtungsfaktoren müssen insbesondere die komplexen Zusammenhänge von LET (linearer Energietransfer), Bestrahlungsbedingungen und der relativen biologischen Wirksamkeit miteinfließen lassen.

Zwar hat das Sievert genauso wie das Gray die Einheit [J/kg], da das Sievert jedoch mit verschiedenen Faktoren (für Alphastrahlung bspw. 20) multipliziert wird ist 1 Sv nicht unbedingt 1 Gy.

In Tab. 2 werden zur Übersicht noch einmal alle Dosisgrößen zusammengefasst:

| Strahlungsdosisgrößen | | |
|------------------------------|--------------------------|---------------------------|
| Physikalische | Biologisch bewertete | |
| | Mess- und berechenbar | Nur berechenbar |
| Ionendosis [C/kg] | Ortsdosisleistung [Sv/h] | Organäquivalentdosis [Sv] |
| Energiedosis [Gy] | Personendosis [Sv] | Effektive Dosis [Sv] |
| Kerma [Gy] | | |

Tab. 2 Zusammenfassung der verschiedenen relevanten Dosisgrößen

Relevant für die Altersbestimmung mit Hilfe der Thermolumineszenzdosimetrie ist allein die Energiedosis, da hierbei die akkumulierte Dosis von anorganischer Materie gemessen werden soll.

2.1.4 Natürliche Hintergrundstrahlung

Die natürliche Hintergrundstrahlung wird in dieser Arbeit als jene externe Strahlenexposition verstanden, welche einerseits durch die kosmische Strahlung und andererseits durch die terrestrische Strahlung verursacht wird.

Das Verständnis der beiden Komponenten ist für die Thermolumineszenzdatierung von größter Bedeutung: Da die akkumulierte Dosisleistung (Dosis pro Zeiteinheit) näherungsweise als konstant angesehen werden wird [16], kann von der Gesamtdosis und der Kenntnis des Ortsdosisleistung pro Jahr fast direkt auf das Alter zurückgeschlossen werden. Daher kann es nicht schaden sich mit den beiden Strahlungsursprüngen kurz auseinanderzusetzen.

2.1.4.1 Kosmische Strahlung

Die externe kosmische Strahlung wurde von Victor Hess postuliert, nach dem er bei einer Ballonfahrt eine höhere elektrische Leitfähigkeit der Atmosphäre feststellen konnte. Dabei handelte es sich um die sekundäre kosmische Strahlung, d.h. jene Strahlung, die entsteht, nachdem die primäre Strahlung mit dem Erdmagnetfeld und der Erdatmosphäre wechselwirkte.

Die Teilchen der primären kosmischen Strahlung bestehen zu 85% aus Protonen, 12% aus α -Teilchen und nur zu 3% aus Teilchen die eine Kernladungszahl $Z > 3$ haben.

Insgesamt besteht sie also aus geladenen Teilchen, welche in Quellen (Galaxien, Sonne) erzeugt wird. Da die primäre kosmische Strahlung aus den Tiefen der Milchstraße und weiter entfernten Galaxien stammt, kann sie auch als extragalaktische Materieprobe verstanden werden, die eine ähnliche Elementhäufigkeit wie unser Sonnensystem hat [17].

Insofern mag es kaum verwundern, dass die externe kosmische Strahlung nicht überall auf der Erde gleich stark ist: Geladene Teilchen werden durch das Magnetfeld der Erde (und der Sonne) abgelenkt und abgeschwächt. Daher ist die Dosis abhängig von der Höhe der Messung und auch vom Breitengrad wo die Messung stattfindet.

Die kosmische Dosisleistung kann durch eine Formel, welche von Prescott und Stephan empirisch abgeleitet wurde, je nach Breitengrad und Höhe des Fundorts eines zu datierenden Artefakts berechnet werden [18]. Auch in der Auswertesoftware der TU Wien (MDA der Firma WEGS Data) wird die kosmische Dosis mittels jener Formel berechnet.

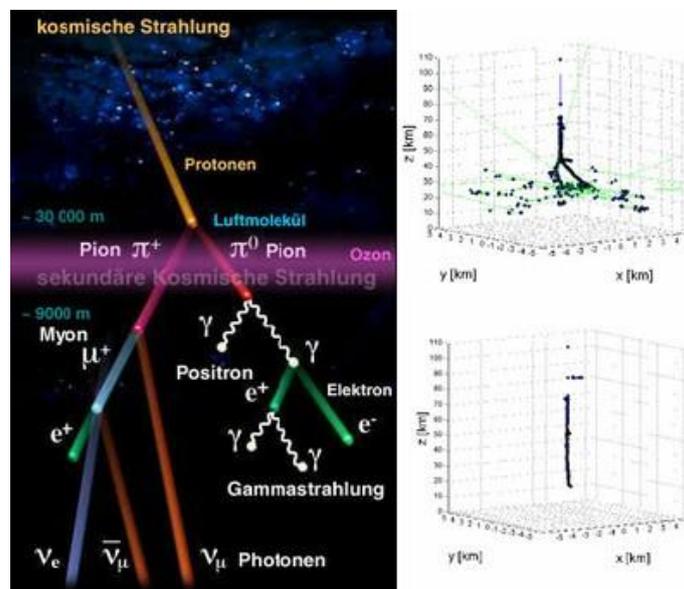


Abb. 8 Schematische Darstellung der primären und sekundären kosmischen Strahlung [19]

Der kosmische Anteil der natürlichen Strahlenbelastung beträgt im Mittel um $0,35 \text{ mGy/a}$ [20].

2.1.4.2 Terrestrische Strahlung

Der zweite Anteil der externen natürlichen Strahlenexposition ist die terrestrische Strahlung. Diese ist eine auf der Erde allgegenwärtige (α , β , γ)Strahlung, die durch Radionuklide verursacht wird, welche vor Milliarden Jahren durch die stellare Nukleosynthese gebildet wurden und die wegen ihrer langen Halbwertszeit noch nicht zerfallen sind [21]. Ebenso tragen kosmogene Nuklide (Be-7, C-14, ...), welche aufgrund der kosmischen Strahlung in der Atmosphäre nachgebildet werden, zur terrestrischen Strahlung bei.

Besonders hervorzuheben sind die natürlichen Radionuklide:

- Kalium-40 (HWZ 1,3 Milliarden Jahre)
- Uran-238 (HWZ 4,4 Milliarden Jahre)
- Thorium-232 (HWZ 14 Milliarden Jahre)

Da sich diese primordialen (=ursprünglichen) Radionuklide nicht gleich verteilen und auch nicht gleich im Boden/Gestein angereichert werden, überrascht es nicht, dass es teilweise erhebliche Unterschiede je nach örtlicher Bodenzusammensetzung gibt. Die Dosis kann dabei von 10-50 nGy/h bis hin zu 120 nGy/h betragen [22]. Im Mittel beträgt die terrestrische Dosisleistung um die 0,4 mGy/a [23] [24] [25].



Abb. 9 Karte der terrestrischen Strahlung in Deutschland [26]

2.2 Strahlungsmessung

Da der menschliche Körper kein Sinnesorgan hat, welches (natürliche oder künstliche) Strahlung „messen“ d.h. empfinden könnte, muss auf technische Geräte zurückgegriffen werden um die Gefahren, die mit ionisierender Strahlung einhergehen, auf ein Minimum zu beschränken. Gerade im Hinblick auf vergangene Zwischenfälle (siehe Three Mile Island, Fukushima und Tschernobyl [27]) scheint es umso wichtiger zu sein, einen respektvollen Umgang mit radioaktiven Stoffen und deren ionisierender Strahlung zu finden.

Abseits von der Bedeutsamkeit der Strahlenmessung zum Schutz von biologischen Materialien, ist auch gerade für die Forschung die sich mit ionisierender Strahlung, radioaktiven Stoffen und deren Spaltprodukten bzw. Tochternukliden beschäftigt eine genaue Messung von höchster Wichtigkeit.

Da die in dieser Arbeit verwendete Methode der Thermolumineszenzdosimetrie ebenso auf strahlenphysikalischen Mechanismen beruht, soll im Folgenden ein kurzer Überblick über die verschiedenen Messsysteme ionisierender Strahlung gegeben werden.

2.2.1 Physikalische Grundlagen

Jedes Nachweisverfahren für Strahlung (Protonen, Neutronen, Elektronen etc.) beruht auf den durch Wechselwirkung im Messmedium generierten Sekundärelektronen. Alle diese Teilchen habe eine bestimmte kinetische Energie E_{kin} , welche beim Wechselwirken mit Atomen oder Molekülen folgende elementare Prozesse auslösen können:

- Anregung von Hüllenelektronen (Energie höher als die niedrigste mögliche)
- Ionisation von Hüllenelektronen (Elektron wird aus der Atomhülle geschlagen)
- Streuung an einem Hüllenelektron
- Ablenkung im Coulombfeld des Kerns (Entstehung von Bremsstrahlung)
- Elastische Stöße mit dem Atomkern (Kern erhält Rückstoß)
- Inelastische Stöße mit dem Atomkern (Anregung des Kerns)
- Emission von Cerenkov-Strahlung bei Geschwindigkeiten $> c/n$

Die oben genannten Effekte können einzeln oder aber auch in Kombination für den Nachweis der Teilchen genutzt werden, wobei die Effekte bei unterschiedlichen kinetischen Energien der einfallenden Teilchen verschiedene Wirkungsquerschnitte aufweisen. Dies ist beim Auswählen der Nachweisart zu bedenken. Weiters haben verschiedene Teilchenarten mit der bestrahlten Materie auch unterschiedliche Wechselwirkungen (Neutronen sind ungeladen, sie können damit nicht mit dem Coulombfeld des „getroffenen“ Atoms interagieren) [28].

Eine wichtige Größe bei der Messung von Strahlung ist der Lineare Energie Transfer (LET), welcher den spezifischen Energieverlust eines ionisierenden Teilchens pro Längeneinheit an das durchdringende Material angibt. Da die Teilchen nicht sofort ihre gesamte kinetische Energie beim Durchlaufen abgeben, kann ein einziges Teilchen bei seinem Weg durch Materie mit vielen Atomen in Wechselwirkung treten (Ionenpaare, Anregung, ...). So gesehen kann der LET auch als indirektes Maß für die Anzahl der Ionisationen pro Wegeinheit gesehen werden.

$$L = \frac{dE_L}{dx} \tag{8}$$

mit L ... linearer Energietransfer [J/m]
 E_L ... durchschnittliche Energieübertragung auf die Materie [J]
 x ... Längeneinheit des Weges durch die Materie [m]

Wenn polyenergetische Strahlung mit Materie interagiert, muss mit einer LET-Verteilung gerechnet werden [29]:

$$\bar{L}_T = \int_0^{L_{max}} T(L) L dL \quad (9)$$

mit $T(L)$... Spurspezifische Energieverteilung

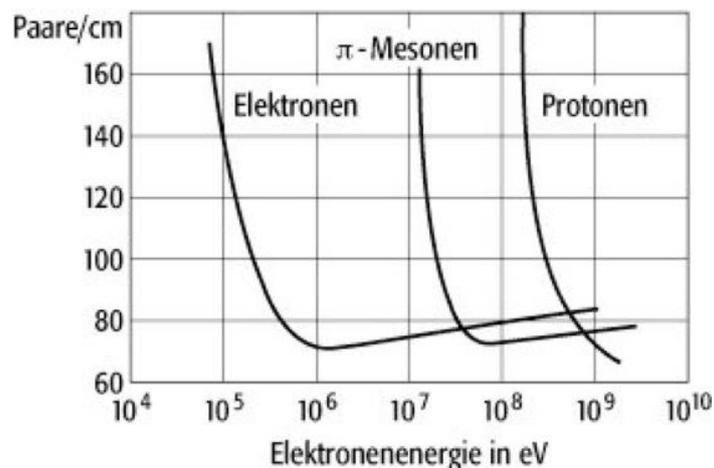


Abb. 10 Verlauf der Ionisationsstärke für Elektronen, π -Mesonen und Protonen über ihrer kinetischen Energie [30]

2.2.2 Detektortypen und Nachweisverfahren

Aufgrund der mannigfaltigen Wechselwirkungen von ionisierenden Teilchen mit Materie muss es auch verschiedene Nachweisverfahren geben. Die Aufgaben der Detektoren reichen von einfachen qualitativen Messungen über den Nachweis eines Strahlungsfeldes (oder Kontamination im medizinischen Bereich) bis hin zu energiedispersiven Messungen polychromatischer Strahlung, Dosimetrie und Teilchenbahnnachweis. Man unterscheidet die folgenden Aufgaben:

- Teilchennachweis (Anwesenheit von Strahlungsquanten)
- Aktivitätsmessung (Erfassung der Zerfallsraten)
- Spektrometrie (quantitativer Nachweis der Energien der Strahlungsquanten)
- Strahlungsfeldanalyse (Erfassung der räumlichen Ausdehnung der Strahlung)
- Dosimetrie (Messung von in Substanzen erzeugten Dosen)

Damit diese verschiedensten Aufgaben von den Detektoren adäquat umgesetzt werden können, müssen sie folgende Voraussetzungen erfüllen:

- Empfindlichkeit oder Teilchenausbeute
- Fähigkeit zwischen verschiedenen Teilchenarten zu unterscheiden
- Zeitliches und räumliches Auflösungsvermögen
- Energieauflösungsvermögen
- Linearität

Die **Empfindlichkeit** des Detektors ist das Verhältnis von detektierten Teilchen N_D zu auf den Detektor fallenden Teilchen N_0 .

Die Fähigkeit des Detektors verschiedene Teilchenarten zu unterscheiden, hängt mit dessen **teilchenspezifischer Nachweisempfindlichkeit** zusammen.

Das **zeitliche Auflösungsvermögen** [1/s] ist die Fähigkeit des Detektors zwei Ereignisse getrennt zu registrieren. Die maximale Zählrate hängt vom zeitlichen Auflösungsvermögen ab.

Räumliches Auflösungsvermögen ist wichtig für Detektoren, welche die Bahn von Teilchen, die sie durchdringen, nachweisen.

Sein **Energieauflösungsvermögen** ist das kleinste noch auflösbare Energieintervall δE polychromatischer Strahlung sowie die Energieabhängigkeit des Ausgangssignals.

Oftmals ist auch **Linearität** gewünscht, die Anzeige des Detektors soll also möglichst über eine lineare Funktion mit der zu messenden Größe verknüpft sein.

Grundsätzlich kann Strahlennachweis mit jedem physikalischen, chemischen oder biologischen Verfahren, welches ein Signal durch Strahlenexposition misst, durchgeführt werden. Eine grobe Unterteilung ist dabei zwischen elektrischen und nicht-elektrischen Verfahren zu machen.

2.2.2.1 Elektrische Nachweisverfahren

Von den Detektoren, die ionisierende Strahlung durch ein elektrisches Signal detektieren, ist der in der Allgemeinheit wohl berühmteste das Geiger-Müller-Zählrohr, auch Auslösezählrohr (siehe unten). Dieses ist aber nur ein Spezialfall der Zählrohre, in Abb. 11 wird schematisch der Aufbau eines einfachen Zählrohrs dargestellt. Sie bestehen aus einem zylindrisch geformten metallischen Rohr, welches an beiden Seiten verschlossen ist und als Kathode dient. Ein Draht im Inneren, der an einer Seite durch eine Isolation herausgeführt wird, ist die Anode.

Zählrohre in dieser Bauform können jedoch nur für die Detektion von Gammastrahlung dienen, da nur diese den Metallzylinder durchdringen kann. Soll auch Teilchenstrahlung (α , β , n) gemessen werden, so muss ein „Fenster“ ausgelassen werden, welches mit einem massearmen Material (Glimmer oder Folie) verschlossen wird.

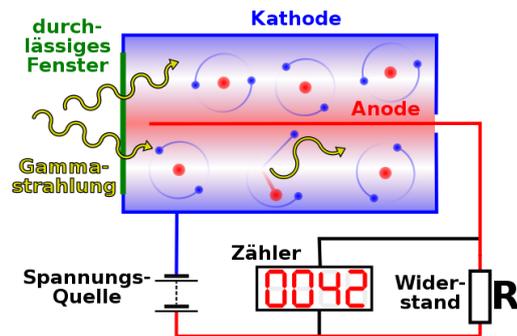


Abb. 11 Schematischer Aufbau eines Zählrohres mit Zylinder als Kathode und Draht im Inneren als Anode [31]

Zwischen Kathode und Anode liegt eine Spannung an, wenn nun ionisierende Strahlung das Zählrohr durchdringt, erzeugt diese in der Gasfüllung im Inneren freie Elektronen. Die Elektronen werden wiederum im E-Feld zur Anode wandern. Wie in Abb. 12 zu sehen ist, hängt das Schicksal der erzeugten Elektronen von der angelegten Spannung ab. Das benutzte Füllgas kann ein Edelgas (Argon, Xenon) aber auch Luft sein, da sich diese dosimetrisch weitgehend wie menschliches Weichteilgewebe oder Wasser verhält.

Im ersten Bereich, also bei nur geringer Spannung, rekombiniert ein Teil der Elektronen am Weg zur Anode wieder mit den Ionen. Dies ist durch ihre geringe Geschwindigkeit und dadurch häufigere auftretende Stöße zu erklären. Die gemessene Intensität entspricht also nur jenen Elektronen, die die Anode tatsächlich erreichen.

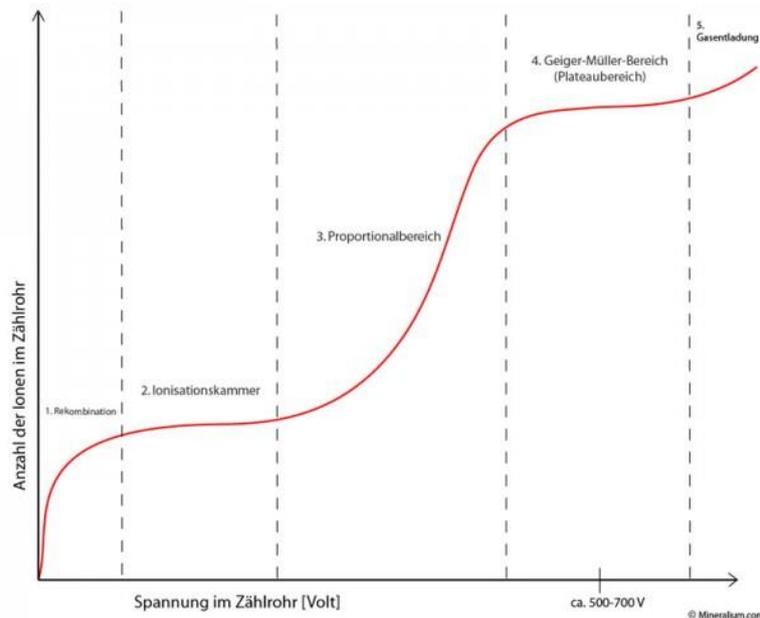


Abb. 12 Schematische Charakteristik eines Zählrohres, Impulshöhe über angelegte Spannung [32]

Wird nun die Spannung zwischen Anode und Kathode im Zählrohr erhöht (100 V), kommt man in den Bereich der **Ionisationskammer**. Hier erreichen alle freigesetzten Elektronen die Anode, die gemessene Intensität ist also proportional zu der Energie, welche die Strahlung im Zählrohr freisetzt.

Eine weitere Erhöhung der Spannung (Feldstärken um 10^6 V/m) bewirkt, dass die freigesetzten Elektronen aufgrund des hohen elektrischen Feldes, knapp vor dem Erreichen der Anode so stark beschleunigt werden, dass diese wiederum weitere Elektronen auslösen können (Sekundärelektronen). Hierbei wird pro Event ein größerer Ausgangsimpuls als bei der Ionisationskammer erzeugt, dessen Höhe aber noch proportional zu der Zahl der primären Ionen ist. Detektoren, die in diesem 3. Bereich arbeiten, nennt man **Proportionalitätszählrohre**.

Nochmalige Erhöhung der Zählrohrbetriebsspannung bringt den Detektor in den 4. Bereich, nun wird er als **Geiger-Müller-Zählrohr**, oder auch Auslösezählrohr, betrieben. Jedes ionisierende Teilchen bewirkt nun eine selbstständige Gasentladung des gesamten Füllgases. Die eingeleitete Gasentladung ist unabhängig von der Energie oder Art der auslösenden Strahlung, es kann jedoch mittels verschiedener Fenstermaterialien zwischen den Teilchen diskriminiert werden.

Die Stromimpulse sind bei jedem Event gleich groß und können ohne vorherige Verstärkung als Knackgeräusch durch einen Lautsprecher hörbar gemacht werden. Durch die totale Gasentladung hat das Geiger-Müller-Zählrohr eine relativ hohe Totzeit (Zeitintervall nach einem registrierten Ereignis, in dem der Detektor kein weiteres Event zeitlich auflösen kann), woran noch eine ähnlich lange Erholungszeit anschließt. Daher hat sich der Betrieb mittels Löschgaszusatz allgemein durchgesetzt.

Auch der **Halbleiterzähler** funktioniert ähnlich wie die gasgefüllten Detektoren: eine in Sperrrichtung betriebene p-n-Halbleiterdiode hat in deren p-n-Übergangsschicht eine durch Spannung erzeugte Verarmung an Ladungsträgern. Wird nun ein einfallendes Teilchen in dieser Übergangsschicht absorbiert, erzeugt dieses wiederum Elektronen-Loch-Paare, welche einen Stromimpuls auslösen, der wiederum gemessen wird.

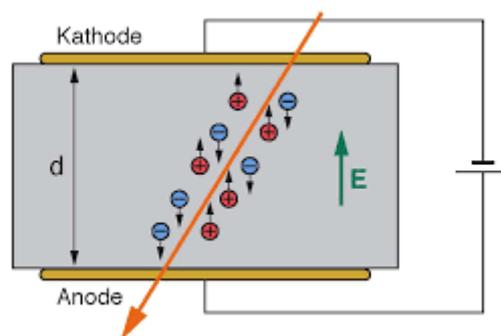


Abb. 13 Schematische Darstellung eines Halbleiterzählers mit verarmter Übergangsschicht [33]

Weitere elektrische Nachweisverfahren sind beispielsweise die **Ionisation in Festkörpern** und sogenannte **Faraday-Becher**.

2.2.2.2 Nicht elektrische Nachweisverfahren

Zu den nichtelektrischen Nachweisverfahren gehört die allgemein bekannte **Fotoplatte**, welche von niemand geringeren als Antoine Henri Becquerel dazu benutzt wurde, um das bis dahin unbekannte Phänomen der ionisierenden Strahlung von Uranerzen zu entdecken (X-rays wurden ein Jahr vorher, 1895, von Wilhelm Conrad Röntgen entdeckt). Die Fotoemulsionen bestehen aus Bromsilberkristallen, die in Gelatine und Kunststoff eingebettet sind. Ein durch Strahlung freigesetztes Elektron auf seinem Weg durch die Emulsion kann nun bis zu 10^{11} Silberatome aktivieren, welche dann bei der Entwicklung des Films zu elementarem Silber reduziert werden. Die Schwärzung ist also ein mittelbares Maß für die absorbierte Energiedosis oder Strahlungsmenge. Bekanntestes Anwendungsgebiet der Fotoemulsionen ist das bildgebungstechnische Röntgenverfahren, siehe Abb. 14.



Abb. 14 Beispielbild einer medizinischen Röntgenaufnahme [34]

Wird Absorbern durch ionisierende Strahlung Energie zugeführt und dort aufgenommen, so führt dies i.A. zu einer Erwärmung der bestrahlten Materie und damit zu einer Erhöhung der Temperatur. Dies macht man sich beim **Kalorimeter** zu Nutze, bei dem man durch die gemessene Temperaturdifferenz die Energiedosis bestimmen kann. Da jedoch nicht unbedingt die absorbierte Strahlung zu einer Erwärmung führen muss, sondern beispielsweise für strukturelle Veränderungen des Kristallgitters oder der chemischen Beschaffenheit vom Material verbraucht werden kann, muss dies durch den kalorischen Defekt miteinbezogen werden.

$$h = \frac{E_a - E_h}{E_a} \quad (10)$$

mit h ... kalorischer Defekt
 E_a ... absorbierte Energie [J]
 E_h ... Energie die in Wärme umgesetzt wird [J]

Ein weiteres Verfahren sind **Dosimeter**, die sogleich unter 2.3 beschrieben werden. In Tab. 3 werden die verschiedenen Verfahren noch einmal zusammengefasst:

| Strahlungseffekte | Nachweisgrößen | Detektoren |
|--|--|--|
| Elektrische Verfahren | | |
| Ionisation in Gasen oder Flüssigkeiten | Elektrische Ladung, Strom | Ionisationskammern, Proportionalitäts- und Auslösezählrohr, Elektrometer |
| Ionisation in Festkörpern | Elektrische Ladung, Strom | Halbleiterdetektor |
| Auffangen der Ladungen eines Strahlenbündels | Gesammelte primäre elektrische Ladung | Faraday-Becher |
| Nichtelektrische Verfahren | | |
| Fotografische Wirkung | Schwärzung, Spuren | Filmemulsionen |
| Chemische Reaktionen | Polymerisation von organischen Molekülen | Radiochromfilme |
| | Radikalbildung | Verfärbungsdosimeter aus organischen Verbindungen |
| Biologische Effekte | DNS Veränderungen | Fluoreszenzanalyse DNS |
| Wärme | Temperaturdifferenz | Kalorimeter |
| Lumineszenz | Lichtemission beim Aufheizen | Thermolumineszenzdosimeter (LiF, CaSO ₄ , Al ₂ O ₃ , ...) |
| | Lichtemission beim UV-Exposition | Phosphatgläser |

Tab. 3 Zusammenfassung verschiedener Methoden und Nachweisgrößen für die Untersuchung von Strahlung [35]

2.3 Dosimetrie

Die drei dosimetrischen Datierungsmethoden, Thermolumineszenz (TL), optisch-stimulierte-Lumineszenz (OSL) und die Elektronenspinresonanz (ESR) basieren auf der zeitabhängigen Akkumulation von Strahlenschäden in Mineralien. Was diese Verfahren unterscheidet ist die physikalische Methode wie die Strahlenschäden (also die akkumulierte Dosis) gemessen wird.

Da in dieser Arbeit nur die Thermolumineszenzdosimetrie zur Altersbestimmung angewandt wird, beschränken sich die folgenden Kapitel auf die Erklärung eben dieser. Für weitergehende Information über die anderen zwei Verfahren, sei der Leser auf die Literatur verwiesen [36] [37].

2.3.1 Historischer Überblick

Erst um 1950 wurden erste Anwendungen für die Thermolumineszenz im Bezug auf anorganische Stoffe in der Archäologie beschrieben (Elizabeth Ralph, Mark Han und Martin J. Aitken). Drei Jahre später, 1953, wurde von Daniels, Boyd und Saunders [38] vorgeschlagen diese Methode für die Altersbestimmung zu verwenden.

In den Jahren 1957/1958 wurden schlussendlich erste Datierungsergebnisse von Wissenschaftlern der Universität Bern (Friedrich Houtermans und Norbert Grögler) vorgestellt. Federführend bei der nachfolgenden Weiterentwicklung der Methode in den 1960er Jahren war Martin J. Aitken in Oxford, der wohl als der bekannteste Forscher im Bereich der Thermolumineszenzdatierung angesehen werden kann. Methodische Verbesserungen führten 1985 zur optisch-stimulierten-Lumineszenzdatierung durch David Huntley [39].

2.3.2 Physikalische Grundlagen

2.3.2.1 Allgemeine Theorie

Die zu beobachtende Lumineszenz bei Materie hängt eng damit zusammen, dass ionisierende Strahlung im nichtleitenden Festkörper physikalische und chemische Eigenschaften verändert. Diese Veränderungen werden „Strahlenschäden“ genannt, von denen die meisten unmittelbar nach deren Erzeugung wieder „ausheilen“ (Rekombinieren). Einige jedoch werden gespeichert, wachsen quasilinear mit dem Alter der Probe an und bilden die Grundlage für die Thermolumineszenzdatierung.

Die detaillierten Berechnungen und Grundlagen der Thermolumineszenzdatierung sind erschöpfend von Aitken beschrieben und erläutert worden. Daher werden sie in dieser Arbeit nur verkürzt dargestellt, der Leser sei für detailliertere Ausarbeitungen auf das Buch von oben genanntem Autor verwiesen [40]. Die im folgenden Abschnitt vorkommenden Gleichungen werden ebenso von Aitken übernommen.

Damit es überhaupt zu einer Akkumulation der von ionisierender Strahlung generierten Elektronen im Kristallgitter kommen kann, müssen sich in diesem Festkörper Kristallfehler befinden, beispielsweise:

- **Eindimensionale** Gitterfehler: Zwischengitteratome, Fremdatome, Leerstellen
- **Zweidimensionale** Gitterfehler: Versetzungen, Korngrenzen, Zwillingsgrenzen und Stapelfehler
- **Dreidimensionale** Gitterfehler: Poren, Einschlüsse von Fremdphasen, Ausscheidungen

In Abb. 15 sind einige der wichtigsten Gitterfehler schematisch dargestellt:

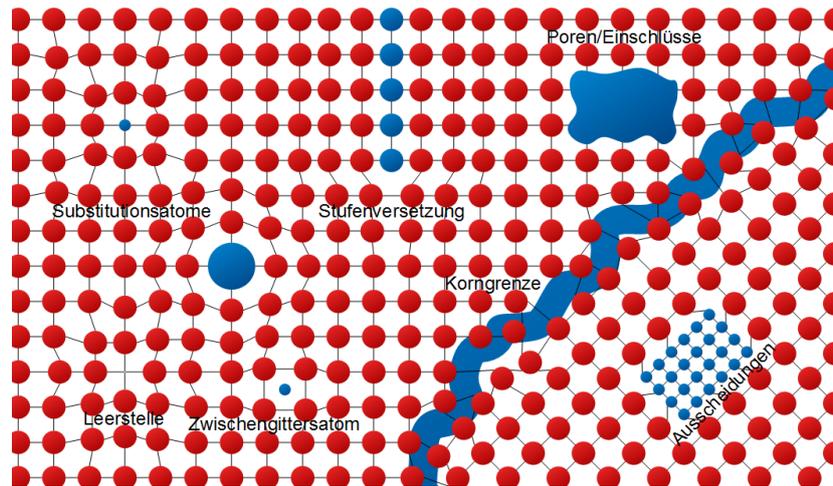


Abb. 15 Exemplarische Darstellung verschiedener Gitterfehler [41]

Die Existenz von Gitterfehlern in Kristallen verändert deren Bandstruktur, in der vormals verbotenen Zone (weißer Bereich in Abb. 16) des idealen Kristalles befinden sich nun mögliche Zustände die von Elektronen besetzt werden können ($E_{1,2}$ in Abb. 16).

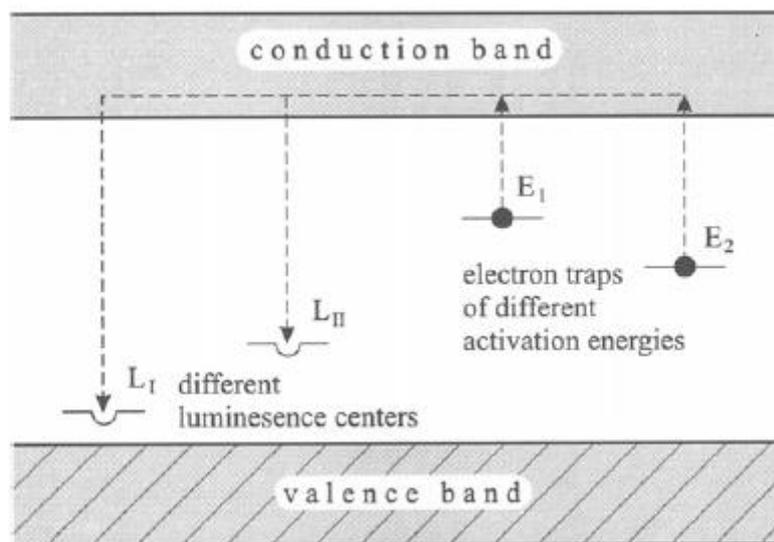


Abb. 16 Valenz- und Leitungsband eines realen Kristallgitters mit Gitterfehlern [1]

Bei der Wechselwirkung von ionisierender Strahlung mit einem nichtleitenden Festkörper entfernt diese von den Atomen Hüllenelektronen und hebt sie vom vollen Valenzband in das leere Leitungsband (a. in Abb. 17). Im Leitungsband können die Elektronen frei durch das Material diffundieren, die meisten Elektronen werden in einer kurzen Zeit wieder in ihren Grundzustand zurückfallen und damit mit den vorher im Valenzband entstandenen Löchern rekombinieren.

Ein kleiner Teil der Elektronen werden jedoch an Gitterdefekten mit negativem Ladungsdefizit festgehalten („trapped“ b. in Abb. 17). Ebenso werden die dazugehörigen Löcher von Defekten mit positivem Ladungsdefizit festgehalten.

Die Anzahl der Elektronen die sich in Fallen befinden steigt proportional mit der akkumulierten Dosis und somit mit dem Alter der zu untersuchenden Probe an, bis sie

entweder durch thermische Erwärmung (Thermolumineszenz) oder durch optische Anregung (optisch-stimulierte-Lumineszenz) wieder aus den Fallen gehoben werden und durch Diffusion mit Löchern rekombinieren können (siehe c. Abb. 17) . Dabei wird Licht emittiert, welches durch einen Photomultiplier gemessen werden kann.

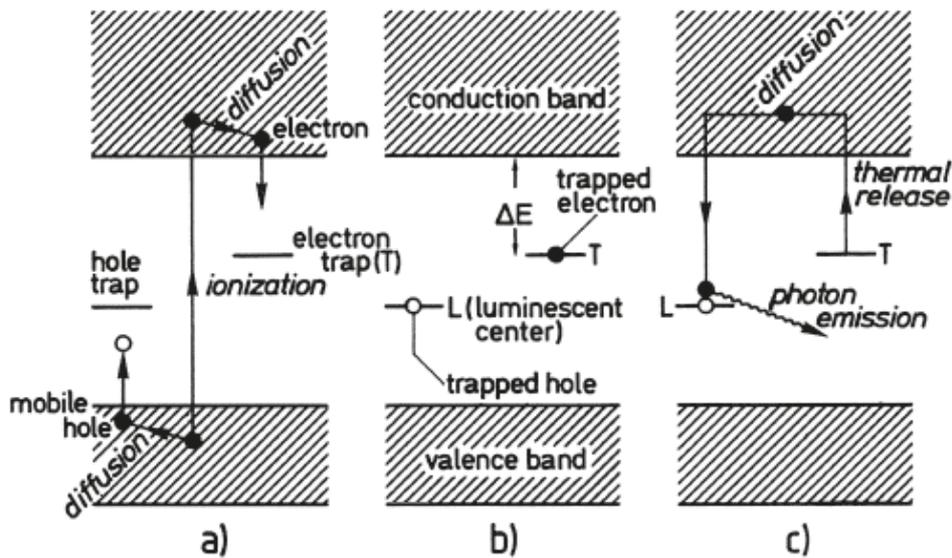


Abb. 17 Prozess der Lumineszenz bei nichtleitenden Festkörpern [42]

Der genaue Prozess wird nochmals anhand des Kristallgitters für Quarz in Abb. 18 dargestellt, unter (1) ist die ideale Quarz Gitterstruktur zu sehen, einfallende ionisierende Strahlung könnte in dieser Konstellation keine Energie persistent in das Gitter übertragen. Bei der realen Struktur (2) kann, wie unter (3) ersichtlich ist, Energie dadurch gespeichert werden, indem ein Sauerstoffatom angeregt wird und ein Elektron abgibt. Dieses wird von einer positiven Leerstelle eingefangen, das Fremdatom Aluminium hingegen gibt eines seiner Elektronen an das Sauerstoffatom ab. Ergebnis ist ein metastabiler Zustand (4), welcher durch thermische oder optische Anregung „aufgehoben“ werden kann, d.h. das Elektron diffundiert wieder zurück zum Aluminiumatom. Das Resultat ist emittiertes Licht, welches gemessen werden kann (5).

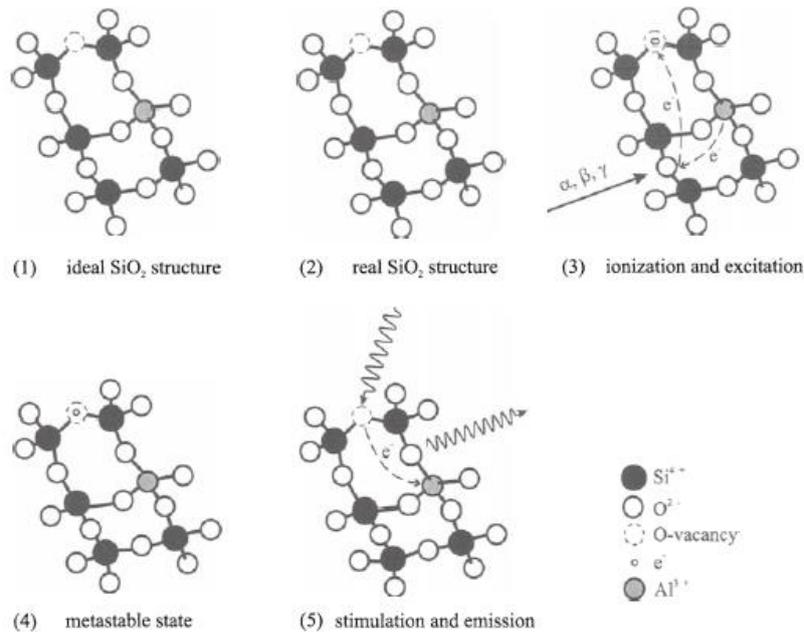


Abb. 18 Lumineszenz-Prozess schematisch dargestellt für Quarz [1]

Die Lebensdauer dieser „eingefangenen“ Elektronen hängt jedoch von einer Anzahl an Faktoren ab. Nach der folgenden Gleichung

$$\tau = \frac{1}{a_0} * e^{\frac{E}{k_B * T}} \quad (11)$$

- mit τ ... mittlere Lebensdauer von eingefangenen Elektronen [s]
 a_0 ... Konstante [s⁻¹]
 E ... Aktivierungsenergie der Elektronenfallen [eV]
 T ... Temperatur [K]
 k_B ... Boltzmann-Konstante [J/K]

spielen insbesondere die Tiefe der Fallen und die Temperatur eine wichtige Rolle. Um dies zu verdeutlichen werden für drei unterschiedliche Temperaturen und Aktivierungsenergien jeweils die mittlere Lebensdauer der Elektronenfallen in Tab. 4 dargestellt:

| Aktivierungsenergie E | Lebensdauer τ bei 20°C | Lebensdauer τ bei 100°C | Lebensdauer τ bei 500°C |
|----------------------------|--------------------------------|---------------------------------|---------------------------------|
| 1,00 eV | ca. 39 min | ca. 0,37 s | ca. 30*10 ⁻⁹ s |
| 1,50 eV | ca. 36200 a | ca. 26 d | ca. 53*10 ⁻⁶ s |
| 1,75 eV | ca. 798*10 ⁶ a | ca. 178 a | ca. 2,2*10 ⁻³ s |

Tab. 4 Unterschiedliche mittlere Lebensdauern für verschiedene Temperaturen und Aktivierungsenergien für Quarz [43]

Wie schon beschrieben wurde, emittiert die zu untersuchende Probe unter thermischer Erhitzung durch Rekombination Licht. Wird diese gemessene Lichtintensität nun über der

Temperatur aufgetragen, erhält man die sogenannte „Glowkurve“ (Abb. 19 Beispiel einer Glowkurve).

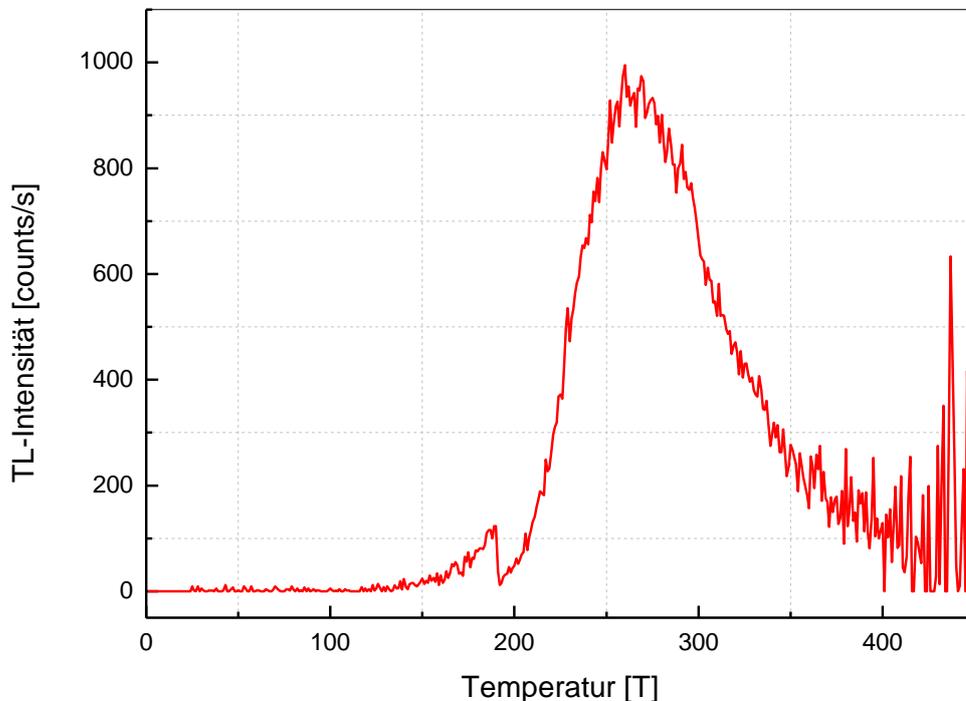


Abb. 19 Beispiel einer Glowkurve

Wie man unschwer erkennen kann, zeigt die Kurve bei ca. 190°C einen rapiden Abfall. Dies ist dem oben genannten Fakt der mittleren Lebensdauer von Elektronenfallen geschuldet: Der Experimentator sollte, um niedere Aktivierungsenergien von der Messung auszuschließen, bei 190°C ein Tempern vornehmen. Damit können niederenergetische Beiträge zur Glow-Kurve verlässlich ausgeschlossen werden.

Ebenso augenfällig ist die Existenz eines Maximums und des darauffolgenden Abfalls der Messkurve. Die Erklärung liegt in den Verteilungen der Übergangswahrscheinlichkeit und Besetzungsdichte der Elektronen in den Fallen. In Abb. 20 wird dies schematisch dargestellt.

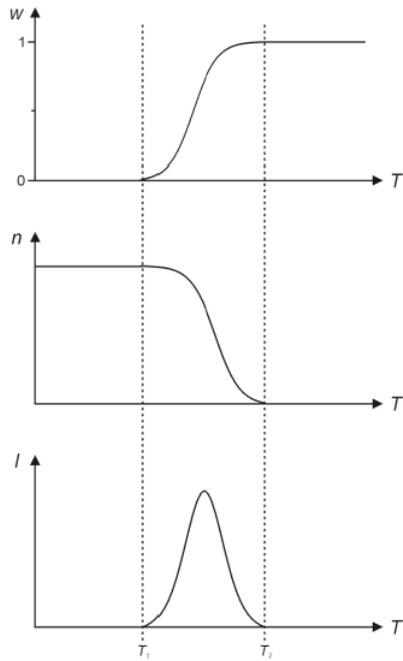


Abb. 20 Verteilungen der Übergangswahrscheinlichkeit, der Besetzungsdichte und der daraus erhaltene TL-Peak [44]

Die Gleichungen für die Übergangswahrscheinlichkeit und Besetzungswahrscheinlichkeit sind folgende:

$$w = \tau^{-1} = a_0 * e^{-\frac{E}{k_B T}} \quad (12)$$

mit w ... Übergangswahrscheinlichkeit als Kehrwert der Lebensdauer [s^{-1}]

$$n(t) = n_0 * e^{-wt} \quad (13)$$

mit $n(t)$... Anzahl der Elektronen in den Fallen zum Zeitpunkt t
 n_0 ... Anzahl der Elektronen in den Fallen zum Zeitpunkt $t=0$

Wie wir erkennen können, sinkt die Besetzungsdichte der Elektronen mit steigender Temperatur, während die Übergangswahrscheinlichkeit steigt was mit Gl. (14) zum beobachteten TL-Peak in den Glow-Kurven führt.

$$I(t) = -\frac{dn}{dt} = w * n(t) = a_0 * e^{-\frac{E}{k_B T}} * n(t) \quad (14)$$

2.3.2.2 Fading

Da es bei der Thermolumineszenzdatierung aufgrund der weiten zu beobachteten Zeiträume viele Effekte gibt, die das Ergebnis der Datierung verfälschen können, sollen hier einige kurz besprochen werden.

Thermisches Fading: Strahlenschäden in den nichtleitenden Festkörpern können bei Anregung des Festkörpers (bspw. thermische Erwärmung) „ausheilen“. Zu beobachten ist dann ein zu junges Alter der Probe.

Anomales Fading: Aber auch bei normaler Temperatur kann es in machen Substanzen dazu kommen, dass die Strahlenschäden wieder ausheilen. In diesem Fall kann die TL-Datierung nicht mehr mit Erfolg eingesetzt werden, eine Bestimmung des Alters kann nicht mehr durchgeführt werden oder nur mehr mit speziellen Techniken. Es wird vermutet, dass anomales Fading durch den Tunneleffekt erklärt werden kann. Ebenso kann es durch lokale Transitionen von „traps“ herrühren. Ob diese Art des Fadings vorliegt, kann wie folgt überprüft werden: Einige Probenplättchen werden erst ein paar Wochen später als die ersten der Probenreihe ausgemessen. Sollte sich das gemessene TL-Signal um einige Prozente unterscheiden, muss von anomalem Fading ausgegangen werden.

Sättigung: Die Dichte an Strahlenschäden steigt mit dem Alter quasi-linear nur innerhalb bestimmter Bereiche, welche vom gemessenen Material abhängen. In optimalen Fällen wird durch stationäre Rekombination eine konstante Strahlenschädendichte beobachtet. Ebenso kann durch weitere ionisierende Strahlung die Strahlenschäden sogar abnehmen.

Erzeugung neuer Defekte: Sollte das Material α -Teilchen emittierende Verunreinigungen im Kristallgitter vorweisen, so können neue „traps“ erzeugt werden, in welche die Elektronen rekombinieren. Dies verlangsamt die Rate mit den Strahlenschäden von ionisierender Strahlung im Kristall akkumuliert werden.

2.3.3 TL-Materialien in der Dosimetrie

In dieser Arbeit werden für die unter 3.2 durchgeführten Messungen zur Bestimmung der externen Gammastrahlungskomponente TL-200 Dosimeter benutzt. Im Folgenden wird kurz umrissen um was es sich dabei handelt und eine Aufstellung von weiteren TL-Materialien gegeben. Tieferegehende Informationen werden dem Leser im Buch von Furetta Claudio [45] bereitgestellt.

2.3.3.1 Kalziumfluorid (CaF₂) [46]

Kalziumfluorid (CaF₂) kann mit einer Vielzahl an Elementen (Mn, Dy und Tm) dotiert werden und wird häufig in der Dosimetrie eingesetzt.

CaF₂:Dy wird auch unter der Bezeichnung **TLD-200** vertrieben, und wurden in dieser Arbeit für die Messungen in Kap. 3.2 benutzt. CaCl₂ und NH₄F werden für die Produktion von TLD-200 Dosimeter vermischt und in destilliertem Wasser gelöst, danach wird 0,1 mol% Dy in die Lösung eingerührt. Die unerwünschten Beiprodukte werden mit

destilliertem Wasser und Ethanol mehrmals ausgespült. Nach Trocknen (5 h bei 120°C) werden aus dem erhaltenen Festkörper die CaF₂:Dy Dosimeter gepresst. TLD-200 Dosimeter zeigen ein quasi-lineares Verhalten bis zu 1 kGy, sehr wenig Fading (1-2% pro Monat) und geringe Tribothermolumineszenz. Weiters ist die Thermolumineszenz-Ausbeute konstant für mehr als 100 Auslesezyklen.

Die in dieser Arbeit benutzten TL-200 Dosimeter unterscheiden sich durch die obigen dadurch, als dass sie nicht gesintert wurden, sondern aus Einkristallen gezogen.

CaF₂:Mn wird mittels Niederschlagverfahren aus Lösungen von CaCl₂ und MnCl₂ in NH₄F hergestellt. Der niedergeschlagene Festkörper wird in inerter Atmosphäre bei 1200°C getrocknet, danach gemahlen gepresst und gesintert. Die Empfindlichkeit von bei 30 keV Photonenenergie ist 15mal größer als die Empfindlichkeit bei der ⁶⁰Co Energie. Das quasi-lineare Verhalten zeigt sich bis 50 Gy. CaF₂:Mn wird unter dem Namen **TLD-400** vertrieben.

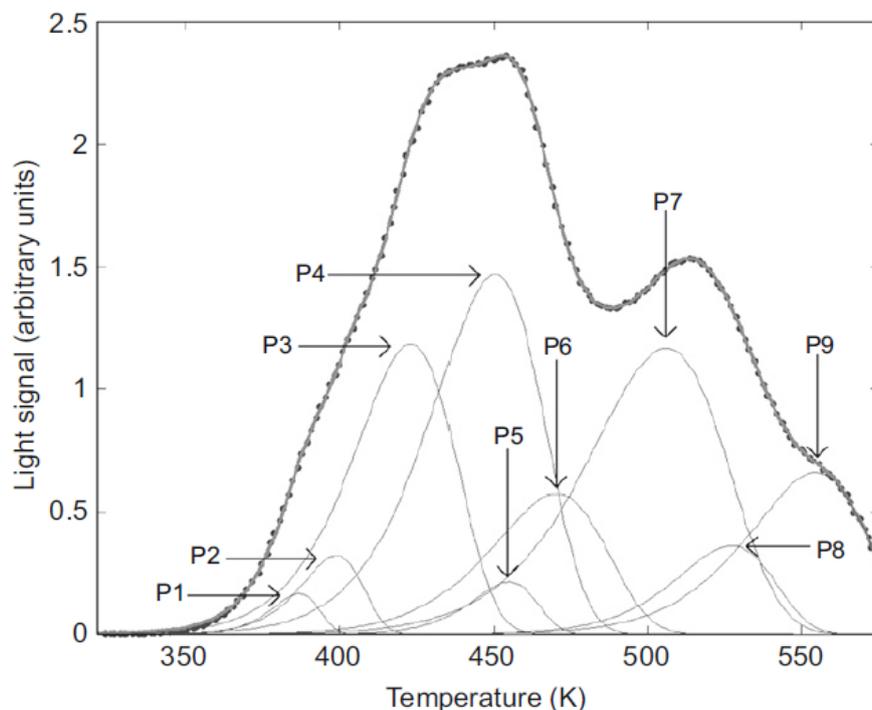


Abb. 21 Schematische Glow-Kurve für TLD-200 mit bis zu neun Peaks [47]

2.3.3.2 Lithiumfluorid (LiF) [48]

Lithiumfluorid basierende Dosimeter haben einen weiten Anwendungsbereich in der Dosimetrie, weil sie einen guten Kompromiss zwischen allen wichtigen Parametern darstellen. Im Gegensatz zu den oben beschriebenen Kalziumfluoriddosimetern sind LiF Dosimeter mit ihren Eigenschaften ausreichend um biologisches Gewebe zu simulieren. Demnach könne sie als Gewebsäquivalent benutzt werden. Mögliche Dotierungen können mit Mg, Ti bzw. Mg, Cu, P durchgeführt werden.

LiF:Mg,Ti wird unter den Namen TLD-100, -600, -700 vertrieben, abhängig von der Herstellung mit natürlichen Li oder angereichert mit ⁶Li bzw. ⁷Li. Eine Mischung aus

Lithiumfluorid, Magnesiumfluorid, Kaliumkryolith und Lithiumtitanfluorid wird in einer Vakuumkammer oder unter inerte Atmosphäre in einem Ofen einer bestimmten Temperatur ausgesetzt und mittels Czochralski-Verfahren ein Einkristall gezogen. Nach Abkühlung wird der erhaltene Festkörper gemahlen und bei 400°C gesintert. Die Glow-Kurve von LiF:Mg,Ti zeigt mindestens sechs Maxima, die Komplexität kann durch die „trap“ Dynamik erklärt werden. Das quasi-lineare Verhalten zeigt sich von 100 mGy bis zu 6 Gy, danach folgt der Bereich der Sublinearität.

LiF:Mg, Cu, P sind auch bekannt unter dem Vertriebsnamen **TLD-700H**. Eine spezielle LiF Mischung wird mit Wasser und Aktivatoren vermischt und mit Mischungen der oben genannten Elemente und Ammoniumphosphat auf 1050°C unter inerte Atmosphäre erhitzt. Danach wird die Schmelze schnell auf 400°C abgeschreckt, der erhaltene Festkörper wird gemahlen und nach kompletter Abkühlung nochmals gesintert.

Vorteile von LiF:Mg, Cu, P Dosimetern sind vor allem ihre simple Glowkurvenstruktur, kleines Fading sowie eine hohe Empfindlichkeit. Das quasi-lineare Verhalten konnte von $5 \cdot 10^{-5}$ bis 10 Gy beobachtet werden.

2.3.3.3 Weitere Materialien

Weiters können Magnesium Borate (**MgO_xB₂O₃**) für die Dosimetrie eingesetzt werden, diese zeigen hervorragende Äquivalenz zu Gewebe und weisen in ihrer Glowkurvenstruktur nur einen einzigen Peak auf. Die Empfindlichkeit dieser Dosimeter ist 10-20mal so hoch wie jene der Lithiumfluoriddosimeter. Magnesiumfluoride (**MgF₂**) und Magnesiumorthosilikate (**Mg₂SiO₄**) sind nur zwei der noch unzähligen Materialien, die für die Dosimetrie eingesetzt werden können.

2.4 Datierung

2.4.1 Prinzip der Datierung

2.4.1.1 Allgemeines

Eine Datierung durch Thermolumineszenzmessung kann deshalb durchgeführt werden, da die zu untersuchenden Artefakte aus Tonmineralien bestehen (weshalb auch bei organischen Stoffen keine TL-Datierung möglich ist). Ton ist eine geologisch genau definierte Bodenart [49], welche hauptsächlich aus Schichtsilikaten besteht (Illit, Kaolinit, ...), aber auch andere Materialien enthalten kann, die ihm Plastizität verleihen. Materialien, die dem Ton keine Plastizität verleihen, wie beispielsweise Quarz, Feldspat oder Dolomit, werden assoziierte Phasen genannt.

Diese assoziierten Phasen stellen wiederum selbst kleine Dosimeter dar, bzw. deren Gitterfehler und Leerstellen, weshalb die physikalischen Grundlagen auch unter 2.3 nachgelesen werden können.

Wenn die über den gesamten Zeitraum akkumulierte Dosis mittels Erhitzens gemessen wurde, kann mit der folgenden Gleichung auf das Alter bzw. dem Zeitpunkt der letzten Erhitzung der keramischen Probe zurückgeschlossen werden:

$$\text{Alter } [a] = \frac{\text{Archäologische Dosis } [Gy]}{\text{jährliche Dosisleistung } \left[\frac{Gy}{a}\right]} \quad (15)$$

Wie ersichtlich ist, muss für eine Altersbestimmung auch die jährliche Dosisleistung vor Ort gemessen werden, welche aus kosmischer und terrestrischer Strahlung besteht. Dies kann wiederum mit geeigneten vom Hersteller spezifizierten TL-Dosimetern durchgeführt werden.

2.4.1.2 Bestimmung der archäologischen Dosis – additive Methode

Es gibt zwei Methoden zur Bestimmung der archäologischen Dosis. Da in dieser Arbeit jedoch nur mit der sogenannten additiven Methode gearbeitet wurde, wird auf die Vorstellung der regenerativen Methode verzichtet. Der geneigte Leser wird auf die Literatur verwiesen [1].

Die archäologische Dosis wird bestimmt, indem einige mit Probenmaterial belegten Plättchen unmittelbar nach der Herstellung gemessen werden (sogenannte N00 Messungen). Wobei das resultierende TL-Signal ausschließlich die archäologische Dosis repräsentiert.

Bei anderen Probenplättchen wird mittels einer in der Messanlage HVK integrierten β -Quelle zur natürlich akkumulierten Strahlung eine zusätzliche Bestrahlung mit bekannter Dosis induziert (Nb Messungen) und danach die gesamte Dosis gemessen. Die nun erhaltenen Messpunkte können nun zu einer Geraden extrapoliert werden und dadurch die β -Äquivalenzdosis erhalten werden (siehe Abb. 22)

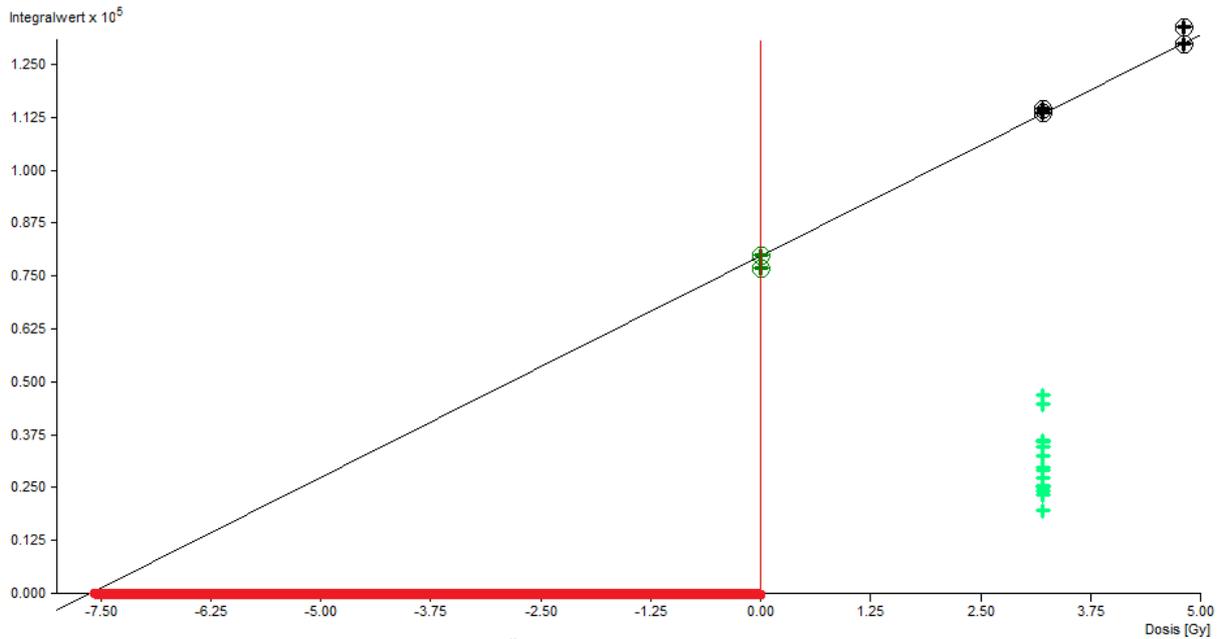


Abb. 22 Beispielbild zur additiven Methode, die β -Äquivalenzdosis kann durch den Schnittpunkt der Geraden mit der x -Achse abgelesen werden (roter Bereich)

Bei der additiven Methode muss von einem linearen Zusammenhang zwischen akkumulierter Dosis und dem gemessenen Thermolumineszenz-Signal ausgegangen werden. Diese Bedingung ist üblicherweise nicht ideal erfüllt, vielmehr tritt im Bereich kleiner Dosen eine progressive Abhängigkeit von der Dosis auf (supralinear), im Bereich meist sehr hoher Dosen kommt es immer zu Sättigungs- und daher Abflachungseffekten der Kurve.

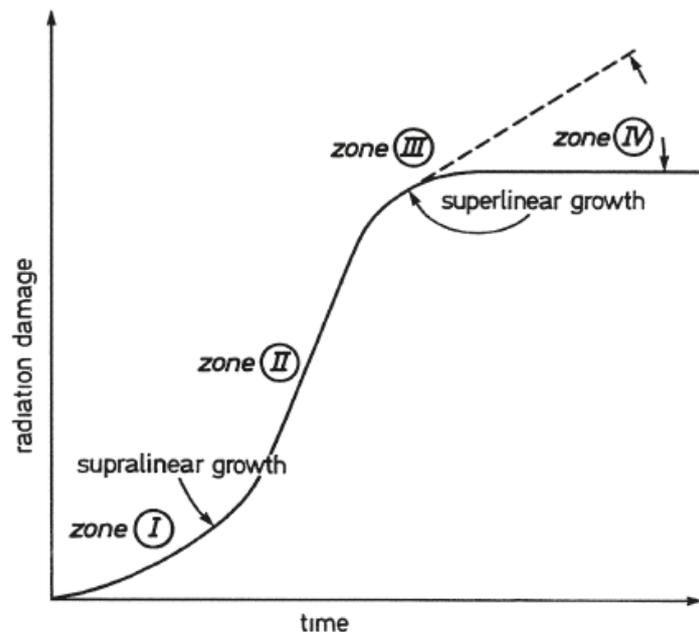


Abb. 23 Akkumulierter Strahlungsschaden über der Zeit, Supralinearität Zone 1; Sublinearität Zone 4 [50]

Um diese Effekte quantitativ erfassen zu können, wird mit den schon ausgemessenen Probenplättchen eine erneute Bestrahlung durchgeführt (Bezeichnung Sb), und wie schon oben eine Regressionsgerade in die nun gemessenen Punkte gelegt. Wie in Abb. 24 ersichtlich ist, entspricht der postulierte lineare Zusammenhang nicht der Realität. Es gibt eine Verschiebung des Nullpunktes der extrapolierten Geraden zur y-Achse, diese Verschiebung wird als Intercept bezeichnet.

Die archäologische Gesamtdosis setzt sich bei der additiven Methode also aus der β -Äquivalenzdosis Q_β und dem Intercept I zusammen, mit dem die Nicht-linearität der Thermolumineszenzempfindlichkeit ausgeglichen wird.

$$\text{Archäologische Dosis} = Q_\beta + I \quad (16)$$

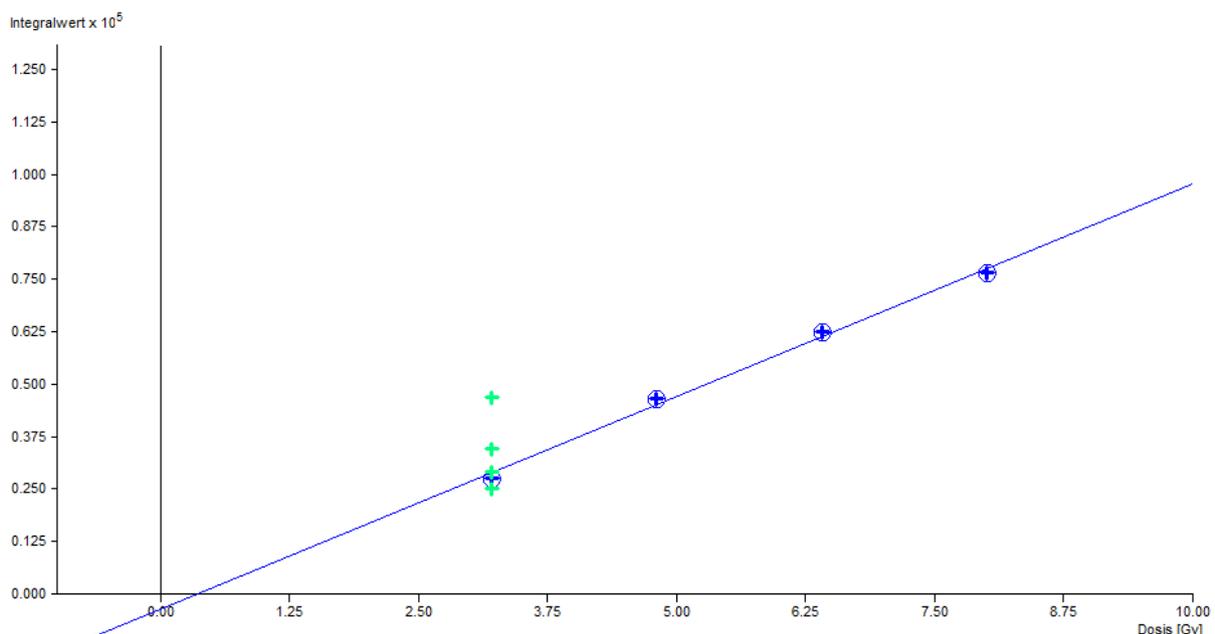


Abb. 24 Beispielbild zur additiven Methode, das Intercept kann durch den Schnittpunkt der Geraden mit der x-Achse abgelesen werden

Wie auch schon bei der β -Äquivalenzdosis Q_β wird ein Teil der Plättchen mit zusätzlicher Strahlung aus einer α -Quelle bestrahlt und danach ausgemessen um danach wie oben beschrieben eine Gerade durch die natürlichen Messpunkte (N00) und die nunmehr erhaltenen zu legen. Das Ergebnis ist die α -Äquivalenzdosis Q_α , welche zur Bestimmung der probenspezifischen α -Effektivität herangezogen werden kann:

$$a = \frac{Q_\beta}{Q_\alpha} \quad (17)$$

mit a ... probenspezifische α -Effektivität

2.4.1.3 Bestimmung der jährlichen Dosis

Bei der Bestimmung der jährlichen Dosis wurde die Methode der Feinkorntechnik angewandt (siehe 2.4.2 Probengewinnung) und folgende Formel verwendet:

$$\dot{D}_{fein} = \dot{D}_\alpha * a + \dot{D}_\beta + \dot{D}_\gamma + \dot{D}_K \quad (18)$$

mit \dot{D}_{fein} ... jährliche Dosisleistung für die Feinkorntechnik [Gy/a]
 \dot{D}_α ... interne Dosisleistung der α -Strahlung [Gy/a]
 a ... α -Effektivität
 \dot{D}_β ... interne Dosisleistung der β -Strahlung [Gy/a]
 \dot{D}_γ ... interne Dosisleistung der γ -Strahlung [Gy/a]
 \dot{D}_K ... Dosisleistung der kosmischen Strahlung [Gy/a]

Die Multiplikation der α -Äquivalenzdosis mit der α -Effektivität ist gerechtfertigt, weil die α -Strahlung vergleichsweise eine geringere TL-Ausbeute als β und γ -Strahlung hat. Dies ruht daher, weil α -Teilchen ihre Energie sehr konzentriert und schnell auf die Materie überträgt (Sättigungseffekte), β und γ -Strahlung hingegen sind weitreichender und nicht dicht ionisierend [40].

Die interne Dosisleistung der α -Strahlung kann wie folgt berechnet werden:

$$\dot{D}_\alpha = \frac{1,2728 * \alpha_{Th} + 1,2792 * \alpha_U}{1 + 1,5 * W * F} \quad (19)$$

mit α_{Th} ... Anzahl der α -Teilchen die durch Thoriumzerfälle entstehen
 α_U ... Anzahl der α -Teilchen die durch Uranzerfälle entstehen
 W ... Gewichtszunahme bei Feuchtigkeitssättigung
 F ... Feuchtigkeitsanteil

Sowie die interne Dosisleistung der β -Strahlung:

$$\dot{D}_\beta = b * \frac{0,057 * \alpha_{Th} + 0,087 * \alpha_U + 0,708 * m}{1 + 1,5 * W * F} \quad (20)$$

mit b ... Abschwächung der β -Strahlung
 m ... Gewichtsanteil von K_2O

Die Dosisleistung der γ -Strahlung setzt sich aus zwei Komponenten zusammen: jener Anteil, der durch die Strahlung im Inneren der Probe verursacht wird, und jener der von außen induziert wird. Der interne Anteil stammt, wie auch die oben beschriebenen α - und β -Strahlung, von den im Probenmaterial vorhandenen Radioisotopen. Der externe Anteil wird durch die vorhandenen Isotope im umgebenden Erdreich der Probe erzeugt und lässt sich durch eine Vor-Ort Messung durch Dosimeter hinreichend genau bestimmen (siehe 3.2).

$$\dot{D}_\gamma = \dot{D}_{\gamma,int} + \dot{D}_{\gamma,ext} \quad (21)$$

mit $\dot{D}_{\gamma,int}$... γ -Dosisleistung des internen Anteils [Gy/a]
 $\dot{D}_{\gamma,ext}$... γ -Dosisleistung des externen Anteils [Gy/a]

wobei sich die interne Komponente aus den Zerfällen der Thorium- sowie Uranzerfallsreihen und jenen des Kaliumisotops ^{40}K zusammensetzt:

$$\dot{D}_{\gamma,int} = \dot{D}_{\gamma,int(Th,U)} + \dot{D}_{\gamma,int(^{40}K)} \quad (22)$$

mit $\dot{D}_{\gamma,int(Th,U)}$... γ -Dosisleistung des internen Anteils von Th und U [Gy/a]
 $\dot{D}_{\gamma,int(^{40}K)}$... γ -Dosisleistung des internen Anteils von ^{40}K [Gy/a]

Die Dosisleistungen der Thorium- und Uranzerfallsreihen lassen sich durch bereits bekannte Größen berechnen:

$$\dot{D}_{\gamma,int(Th,U)} = \frac{0,103 * \alpha_{Th} + 0,068\alpha_U}{1 + 1,14 * W * F} \quad (23)$$

$$\dot{D}_{\gamma,int(K)} = \frac{0,241 * m}{1 + 1,14 * W * F} \quad (24)$$

Die Gleichungen wurden der umfangreichen Arbeit von Dr. Robert Bergmann entnommen, der Leser wird für weiterführende Information auf dessen Arbeit verwiesen [43].

Mit den Gleichungen (15) – (24) kann nun, insofern man alle benötigten Parameter ermittelt hat, das Alter der zu bestimmenden Probe ermittelt werden.

2.4.2 Probengewinnung

Bei der Probengewinnung aus den Keramikscherben wird nach der Feinkorntechnik vorgegangen. Bei dieser Methode werden nur Probenpartikel der Größen 1-8 μm verwendet, da so gewährleistet ist, dass die internen Strahlungskomponenten das Probenmaterial vollkommen durchdringen.

Bevor Probenmaterial gezogen werden kann, wird eine ca. 2 mm dicke Schicht abgetragen, sodass externe α - und β -Strahlung aufgrund ihrer geringen Durchdringbarkeit nicht mehr in die Berechnungen miteinbezogen werden müssen.

Im Folgenden soll nur ein sehr kurzer Abriss des Prozederes dargestellt werden, da die detaillierten Verfahren schon mannigfaltig in anderen Arbeiten wiedergegeben wurden, diese Literatur sollte auch zur Rate gezogen werden wenn man tieferen Einblick erlangen möchte [51] [5].

Alle Arbeitsschritte wurden unter Rotlicht durchgeführt, um eine Entleerung der Elektronenfallen durch einfallendes, weißes Licht zu verhindern.

1. Zuerst wird mit einem Fräser (Zylindrisch und Rundkopf) eine Schicht abgetragen, um Verschmutzungen der Probe und externe α - und β -Strahlung auszuschließen.
2. Danach wird mit niedriger Drehzahl, um eine relevante Erwärmung der Proben zu vermeiden, solange Probenmaterial gezogen, bis ein Reagenzglas ca. 0,5 cm gefüllt ist.
3. Dieses Probenmaterial wird nun mit Hilfe des Stokesschen Gesetzes solange mit Aceton fraktioniert, bis nur mehr Probenkörner von 1-8 μm im Reagenzglas zu finden sind. Im letzten Aufbereitungsschritt wird zur Reinigung der gewonnen Probenkörner auf Essigsäure, Ultraschallbad und eine Zentrifuge zurückgegriffen (**Fraktionierung**).
4. Dabei ist es immer wichtig, gewisse Zeiten einzuhalten, damit die Essigsäure die Teilchen „cracken“ kann oder damit die Teilchen im Reagenzglas sinken können.
5. Die so erhaltene Probenmenge wird nach erfolgreichem Fraktionieren in einem Ofen bei 40°C über Nacht getrocknet.
6. Am nächsten Tag wird der Prozess des **Sedimentierens** vollzogen: Ziel ist es, das fraktionierte Probenmaterial gleichmäßig auf Aluminiumplättchen aufzutragen. Diese werden vorher gereinigt, ebenso wie die Plättchenhalter.
7. Um im Idealfall eine Monolayer-Schicht an Probenmaterial auf die Probenträger aufzubringen wird das Probenmaterial mit 1,5 ml Aceton je 1 mg Probenstaub vermischt, und mittels einer Pipette in die Löcher mit den Aluminiumplättchen eingebracht. Dabei ist zu beachten, dass keine allzu großen Verwirbelungen entstehen, die dem gleichmäßigen Benetzen der Disks entgegenstehen.
8. Danach werden die Aluminiumständer wieder bei 40°C über Nacht im Ofen getrocknet.
9. Die so erhaltenen Probenplättchen (Abb. 25) können danach aus den Ständern gegeben und in Mappen sicher verstaut werden, bis sie ausgemessen werden.



Abb. 25 Mappe mit einer Probenplättchenserie für die Datierung

2.4.3 Neutronenaktivierungsanalyse (NAA)

Die Bestimmung des Kalium-40 bzw. K_2O Gehaltes ist von maßgeblicher Bedeutung für die Datierung, da dieser Wert einen hohen Einfluss auf die β - und γ -Äquivalenzdosis hat. Für die Messung des K_2O Anteils der jeweiligen Proben wird die Neutronenaktivierungsanalyse (NAA) genutzt. Dabei wird die zu untersuchende Probenmenge (meist einige mg in Form einer Pipettenspitze) mittels Neutroneneinfang radioaktiv aktiviert. Die danach folgende Messung der Aktivität der charakteristischen Strahlung und vergleichen mit einem bekannten Standard liefert die Konzentration in der Probe.

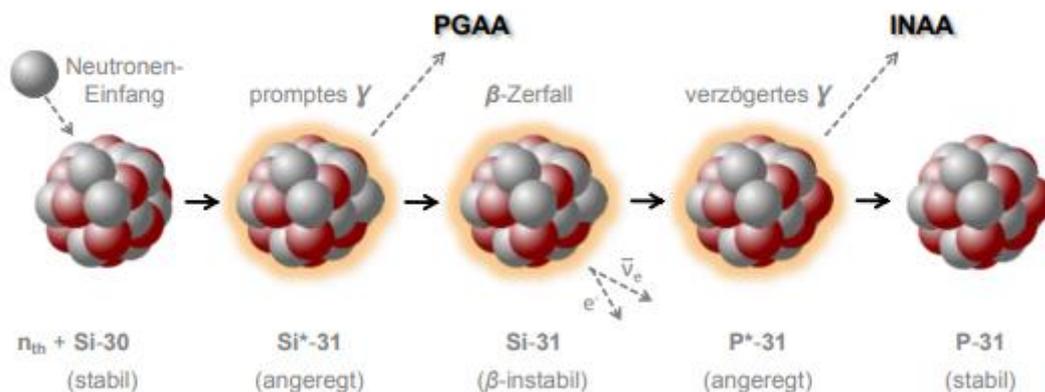


Abb. 26 Vereinfachtes Schema der Neutronenaktivierung am Beispiel der (n, γ) Einfangreaktion von Si-30 [52]

Wie in Abb. 28 dargestellt, wird zwischen Prompente-Gamma-Aktivierungs-Analyse (PGAA) und Instrumentelle Neutronenaktivierungsanalyse (INAA) unterschieden, wobei in dieser Arbeit zweiteres verwendet wird. Der Unterschied ist, dass bei der INAA die

Bestrahlung und folgende Messung zeitlich und räumlich getrennt werden kann, während bei der PGAA während der Bestrahlung bereits gemessen werden muss. Der Bestrahlungszeit folgt die Abklingphase und der Messvorgang.

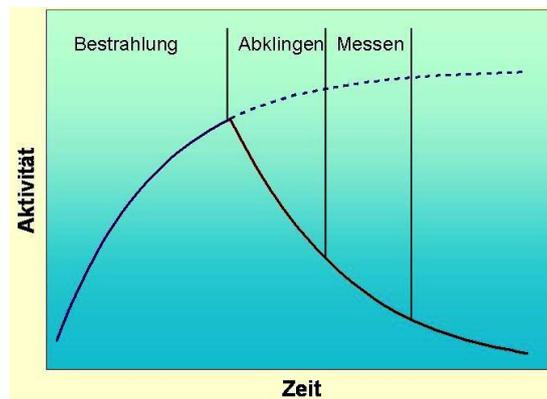


Abb. 27 Prinzipielle Vorgehensweise der INAA Neutronenaktivierungsanalyse [53]

Die Probenaufbereitung geschieht bei der INAA rein mechanisch (Mörser), jedoch muss darauf geachtet werden das zu gewinnende Probenmaterial während der Gewinnung nicht zu kontaminieren. Danach wird das Material in einem Ofen getrocknet und eingewogen. Der genaue Probenaufbereitungsvorgang und die nachfolgende Messung kann vertiefend bei Sterba [54] [55] nachgelesen werden.

Durch Bestrahlung entsteht mittels Neutroneneinfang aus ^{41}K das instabile ^{42}K :



Die Halbwertszeit von ^{42}K beträgt 12,36 h, dabei zerfällt es unter Ausstrahlung von β - und γ -Strahlung zu ^{42}Ca :



mit einer charakteristischen Photonenenergie von 1524 eV. Der Messvorgang wird mittels Gammaskopie durchgeführt, wobei die Fläche unter dem gemessenen Peak nach Abzug des Hintergrunds der Aktivität des zu bestimmenden Radionuklids proportional ist.

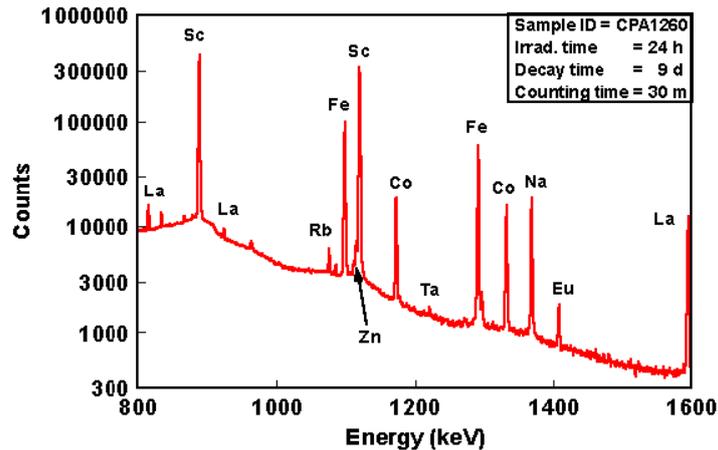


Abb. 28 Beispielmessung einer Neutronenaktivierungsanalyse [56]

Der zu benutzende Standard ist ein Referenzmaterial, dessen chemische Zusammensetzung hinreichend bekannt ist. Zusätzlich ist eine gute Homogenität wichtig. In dieser Arbeit wurden die Standards „Apple leaves“ (NIST® SRM® 1515) und Kaliumnitrat KNO_3 verwendet.

Die Proben werden gemeinsam mit den SRMs (Standard-Referenz-Material) via Rohrpostsystem in den Reaktor eingebracht (TRIGA Mark-II Reaktor an der TU Wien, Atominstitut) und eine definierte Zeit lang bestrahlt. Die Halbwertszeit und Zerfallskonstante von ^{42}K kann in der Literatur nachgeschlagen werden:

| Element | Halbwertszeit $T_{1/2}$ [h] | Zerfallskonstante λ [s^{-1}] |
|-----------------|-----------------------------|---|
| ^{42}K | 12,36 h | $15,58 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ |

Tab. 5 Halbwertszeit und Zerfallskonstante für das Element ^{42}K

Nach den folgenden Gleichungen wird mit obigen Daten der jeweilige ^{42}K -Anteil der Probe bestimmt:

$$A_E = \frac{N}{t} \quad (27)$$

- mit A_E ... Aktivität der gemessenen Probe [Bq]
 N ... Region of interest der Probe (Peakfläche) [counts]
 t ... Messzeit [s]

$$A_0 = A_E * e^{\lambda \Delta t} \quad (28)$$

- mit A_0 ... Aktivität der gemessenen Probe zum Zeitpunkt $t=0$ [Bq]
 λ ... Zerfallskonstante des Materials [s^{-1}]
 Δt ... Zeitdifferenz von Standard- und Probenmessung [s]

$$S = \frac{A_0}{m} = \frac{1}{m} A_E * e^{\lambda \Delta t} \quad (29)$$

mit S ... spezifische Aktivität der Probe [Bq/mg]
 m ... Masse der Probe [mg]

Die Ergebnisse der oben angeführten Gleichungen werden in das folgende Verhältnis eingesetzt um nach Umformung auf die Konzentration C_{Probe} zu kommen:

$$\frac{S_{Standard}}{C_{Standard}} = \frac{S_{Probe}}{C_{Probe}} \quad (30)$$

Da die MDA Auswertesoftware (siehe unter 2.4.7) jedoch mit dem probenspezifischen Kaliumoxidgehalt K_2O das Alter bestimmt, ist eine Umrechnung vom bestimmten K_2 auf den K_2O Gehalt vonnöten.

Die Atomgewichte von Kalium und Sauerstoff sind:

| Element | Atomgewicht [u] |
|---------|-----------------|
| K | 39,10 u |
| O | 16,00 u |

Tab. 6 Atomgewichte für Kalium und Sauerstoff

Mit den Atomgewichten lässt sich der Anteil von K_2O aus dem K_2 Anteil der Probe berechnen:

$$K_2O = \frac{K_2}{0,83} \quad (31)$$

Einer Kaliumoxidkonzentration von 100% entspricht daher einer Kaliumkonzentration von 83%.

2.4.4 Eigenaktivitätsmessung



Abb. 29 Alphazähler mit dem die Eigenaktivität der einzelnen Proben bestimmt wurde

Um bei der Datierung keine verfälschten Ergebnisse zu erhalten, muss die Eigenaktivität der Probe miteinbezogen werden. Diese ruht daher, weil primordiale Radionuklide in die Kristallmatrix der Proben eingebaut sind (Thorium/Uran). Die Messung geschieht mit der in Abb. 28 gezeigten Messapparatur der Fa. Daybreak inklusive Photomultiplier als Szintillationsdetektor.

Zuerst muss für eine hinreichende Zeit (um die 5 d) der Background der Szintillationsfolie gemessen werden. Die folgenden Gleichungen sind der Arbeit von Blamauer entnommen [57]:

$$a_B = \frac{a_{B,ges}}{t_B} * 1000 * \frac{42^2}{44^2} \quad (32)$$

mit a_B ... α - Zerfallsrate bei der Backgroundmessung [counts/s]
 t_B ... Messzeit der Backgroundmessung [s]
 $a_{B,ges}$... α - Zerfälle gesamt [counts]

$$d_B = \frac{d_{B,ges}}{t_B} * 1000 * \frac{42^2}{44^2} \quad (33)$$

mit d_B ... Paar - Zerfallsrate bei der Backgroundmessung [counts/ks]
 $d_{B,ges}$... Paar - Zerfälle gesamt [counts]

Nach der Backgroundmessung wird die Szintillationsfolie gleichmäßig mit einer etwa 1 mm dicken Schicht Probenmaterial bedeckt. Danach wird ein erneuter Messzyklus gestartet, der nun um die 3 d dauert. Die erhaltenen Messwerte werden mit den folgenden Formeln zu den schlussendlich relevanten Parametern für die Datierung berechnet:

$$a_a = \frac{a_{a,ges}}{t_a} * 1000 * \frac{42^2}{44^2} - a_B \quad (34)$$

mit a_a ... α - Zerfallsrate bei der Probenmessung [counts/ks]
 t_a ... Messzeit der Probenmessung [s]
 $a_{a,ges}$... α - Zerfälle gesamt netto [counts]

$$d_a = \frac{d_{a,ges}}{t_a} * 1000 * \frac{42^2}{44^2} - d_B - 0,38 * \frac{a_a^2}{1000} \quad (35)$$

mit d_a ... Paar - Zerfallsrate bei der Probenmessung [counts/ks]
 $d_{a,ges}$... Paar - Zerfälle gesamt netto [counts]

2.4.5 Feuchtigkeitsgehalt

Der Feuchtigkeitsgehalt einer Probe wird bestimmt, indem ein kleines Stück der zu untersuchenden Keramiken aus der luftdichten Folie entnommen und gewogen wird. Danach wird das Material vier Tage lang in einem Ofen bei ca. 40°C getrocknet und erneut gewogen. So erhält man das Trockengewicht.

Nach Deponierung der Probe für vier Tage in destilliertem Wasser, wird sie ein drittes Mal verwogen (Sättigungsgewicht). Mit den erhaltenen Messwerten kann leicht der Feuchtigkeitsgehalt und die Gewichtszunahme bei Sättigung berechnet werden.

$$F = \frac{M_F}{M_S} \quad (36)$$

mit F ... Feuchtigkeitsanteil [%]
 M_F ... Gewicht der feuchten Probe [kg]
 M_S ... Gewicht der gesättigten Probe [kg]

Sowie

$$W = \frac{M_S - M_T}{M_T} \quad (37)$$

mit W ... Gewichtszunahme bei Sättigung [%]
 M_T ... Gewicht der trockenen Probe [kg]

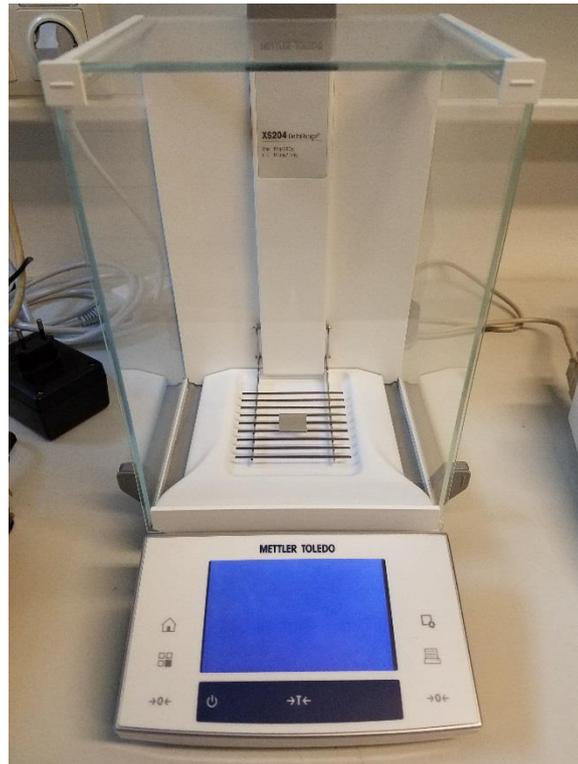


Abb. 30 Waage zur Bestimmung der Masse des Probenmaterials

2.4.6 Hardware

Die TL-Messungen der Keramikscherben wurden am Messgerät „HVK“ welches nach seinen Konstrukteuren Henzinger, Vana und Kubelik benannt wurde, durchgeführt. Die wesentlichen Bestandteile sind:

- Die Probenkammer / Messkammer
- Computer und zugehörige MDA – Auswertesoftware (siehe unten)
- α - und β -Strahlungsquellen (^{241}Am und $^{90}\text{Sr} / ^{90}\text{Y}$)
- Photomultiplier
- Vakuumpumpe für die Evakuierung der Messkammer
- Heizelemente
- Hochreines Stickstoffgas in einer Druckflasche

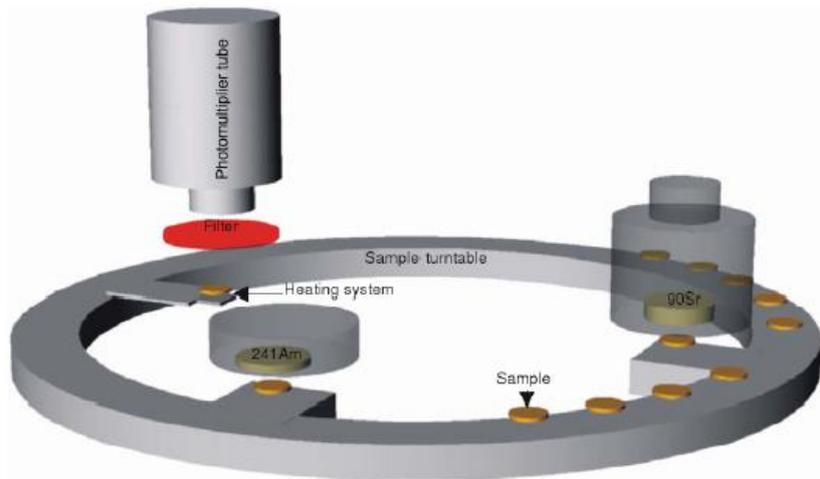


Abb. 31 Schematische Darstellung der „HVK“ Messanlage [58]

Zu Beginn des Messzyklus wird die Maschine durch das Messprogramm und den Experimentator auf ihre Funktionstüchtigkeit überprüft. Dazu wird ein „check and load“ durchgeführt, an dessen Ende am Bildschirm das OK ausgegeben wird falls alles funktioniert. Nachdem die Parameterfiles geladen worden sind (siehe unten), kann mit dem Bestücken der Probenkammer begonnen werden. Dazu werden die Probendisks einzeln in die auf Abb. 34 zu sehende Kammeröffnung in einer bestimmten Position eingelegt. Mit der Taste F5 am Messcomputer kann der innere Probenträgerring verschoben werden, sodass eine weitere Probendisk eingelegt werden kann.

Theoretisch kann die Messanlage mit bis zu 60 Plättchen auf einmal bestückt werden, aufgrund von etwaiger Fehlfunktionen sollten allerdings nicht mehr als 12 Proben gleichzeitig im Probenraum sein. Mit dem Klick auf „Process Cycles – Start Process Cycle“ wird der Messzyklus gestartet.

Die letzte Kalibrierung der α - und β -Strahlungsquellen wurden 20.6.2017 durchgeführt, und ergaben mit Kenntnis der Halbwertszeiten (^{241}Am 433 a; $^{90}\text{Sr} / ^{90}\text{Y}$ 28 a) folgende Dosisleistung für die Messung:

| Strahlungsquelle | Dosisleistung [Gy/min] |
|--|------------------------|
| ^{241}Am (α - Quelle) | ca. 3,079 Gy/min |
| $^{90}\text{Sr} / ^{90}\text{Y}$ (β - Quelle) | ca. 0,3203 Gy/min |

Für eine sehr detaillierte Beschreibung des Messzyklus, sowie der Vor- und Nacharbeiten wird wiederum auf vorherige Arbeiten verwiesen [51].

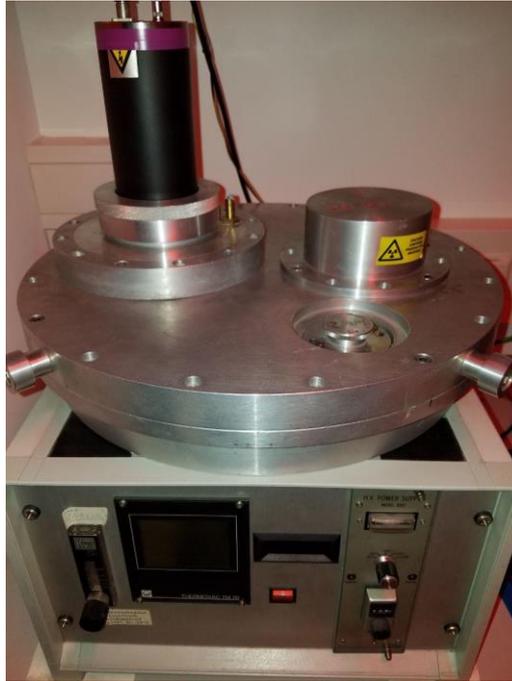


Abb. 32 „HVK“ Messgerät Frontalansicht, zu sehen ist das Kontrollpanel unten und die eigentliche Messvorrichtung oben



Abb. 33 Nahaufnahme des Photomultipliers



Abb. 34 Öffnung zum Bestücken der Probenkammer; Gasdichter Verschluss



Abb. 35 Radioaktive Quellen für die Bestrahlung der einzelnen Probendisks mit α - und β -Strahlung

2.4.7 Software

Zur Auswertung der erhaltenen Messergebnisse wird die Software MDA von WEGS Data benutzt. Diese steuert auch das „HVK“-Messinstrument. Bevor eine Messung gestartet werden kann, müssen die in den Dateien PARAHEAT.txt und PARATIME.txt die Parameter für den Messvorgang festgelegt werden. Dazu gehören etwa Heiztemperaturen und Heizraten, Bestrahlungszeitindizes und Dosisleistungen. Bei allen durchgeführten Messserien dieser Diplomarbeit wurden keine der schon vorgegebenen Parameter geändert, insofern können alle gewählten Werte in den jeweiligen Textdokumenten nachgelesen werden.

Einzig die Datei PARASAMP.txt wurde angepasst, siehe Abb. 36. Die erste Zeile beinhaltet den Probennamen (max. 4 Buchstaben) und die fortlaufende Nummer der ersten Probe dieses Messzyklus (in diesem Fall 10, weil 9 Plättchen schon beim ersten Zyklus ausgemessen wurden). In der zweiten Zeile sind die in diesem Zyklus zu messenden Probendisks eingetragen und in der dritten die Bestrahlungszeit für die Referenzmessungen definiert.

Danach kommen in Blöcken die Messparameter für die einzelnen Proben, jeder Block ist für eine Probe zuständig. Eine „1“ in der ersten Zeile bedeutet simpel, dass die Probe gemessen werden soll, daher das natürliche TL-Signal ausgemessen wird (N00). Befindet sich dort eine „0“, so wird das natürliche TL-Signal nicht gemessen, und stattdessen eine Nb oder Na (natürliche TL + definierte Strahlung) aufgenommen.

Steht wie im ersten Block eine „1“ und danach eine „5“ in einer weiteren Zeile an erster Stelle, bekommt man durch diese Parameter zuerst eine N00 Kurve und danach wird die Probe mit einer dem Probenindex 5 entsprechenden Bestrahlungszeit bestrahlt und erneut ausgemessen, wodurch eine Sb (Second Beta) Kurve aufgenommen wird. Alle Proben werden danach noch einmal mit einer definierten β -Dosis bestrahlt um die probenspezifische TL-Empfindlichkeit (=Massenkorrektur) zu bestimmen.

```
k152      10
5         Number of samples
2         1,2,3,4,...=Beta reference  0=no beta reference
0         1,2,3,4,...=Alpha reference  0=no alpha reference

1         Sample 1 to measure ?
0 0 0     Sample 1 to 1) alpha      3)temper  4) measure
5 0 1     Sample 1 to 1) beta1     3)temper  4) measure
0 0 0     Sample 1 to 1) beta2     3)temper  4) measure

0         Sample 2 to measure ?
0 0 0     Sample 1 to 1) alpha      3)temper  4) measure
2 0 1     Sample 1 to 1) beta1     3)temper  4) measure
0 0 0     Sample 1 to 1) beta2     3)temper  4) measure

0         Sample 3 to measure ?
0 0 0     Sample 1 to 1) alpha      3)temper  4) measure
3 0 1     Sample 1 to 1) beta1     3)temper  4) measure
0 0 0     Sample 1 to 1) beta2     3)temper  4) measure

0         Sample 4 to measure ?
0 0 0     Sample 1 to 1) alpha      3)temper  4) measure
4 0 1     Sample 1 to 1) beta1     3)temper  4) measure
0 0 0     Sample 1 to 1) beta2     3)temper  4) measure

0         Sample 5 to measure ?
0 0 0     Sample 1 to 1) alpha      3)temper  4) measure
5 0 1     Sample 1 to 1) beta1     3)temper  4) measure
0 0 0     Sample 1 to 1) beta2     3)temper  4) measure
```

Abb. 36 Parameter der Datei PARASAMP.txt für verschiedene Messprozedere und Messzeiten der Probe KI1-52

```

1 300      Number and Time for Alpha Irradiation (in seconds)
2 600
3 900
4 1200
5 1500
6 1800
7 1400
8 188
9 377

1 300      Number and Time for Beta Irradiation (in seconds)
2 600
3 900
4 1200
5 1500
6 1800
7 203
8 710
9 1015

3.079 0.3203 Alpha, Beta Doserate (Gy/min, cal. date 25_05_11)

0      Time before tempering (in minutes) alpha irradiated samples
0      Time before tempering (in minutes) beta1 irradiated samples
0      Time before tempering (in minutes) beta2 irradiated samples

3      Time before measuring (in minutes) alpha irradiated samples
3      Time before measuring (in minutes) beta1 irradiated samples
3      Time before measuring (in minutes) beta2 irradiated samples

1      Predose cycle (exacat timing before measuring) (1=yes, 0=no)
0      No measurement of background (1=yes, 0=no)

180 60    Time to evacuate, to flood with nitrogen (in seconds)

```

Abb. 37 Parameter der Datei PARATIME.txt

```

25 5 480 Starttemperature Heating-Rate Endtemperature
190 60    Preheat-Temperature Preheat-Time (in seconds)
80      Cool down to Temperature
1      1=Abort if glow curve is empty/0=Ignore empty glow curve
1      1=Abort if broken thermo element/0=Ignore broken thermo element
20      Kanäle <>0

```

Abb. 38 Parameter der Datei PARAHEAT.txt

3 Durchführung

3.1 Bestimmung der Flugdosis und etwaiger Röntgenscans via LIULIN

3.1.1 Motivation

Da die zu datierenden Proben aus Japan via UPS Flugzeug nach Wien geflogen wurden, musste zur genaueren Bestimmung der zusätzlich kumulierten Flugdosis ein Spektrometer jeweils einmal von Wien nach Japan (ohne Proben) und einmal von Japan nach Wien (im Probenpaket) geschickt werden. Die aufgezeichnete Dosis vom Flug und von etwaigen Röntgenscans sollte dazu dienen, den Fehler der vor-Ort-Dosis zu verringern bzw. eine korrigierte Nettodosisleistung (Dosis pro Jahr) an der Ausgrabungsstätte zu eruieren.

3.1.2 Experiment

Das dazu eingesetzte LET Spektrometer LIULIN-6A der Bulgarischen Akademie der Wissenschaften (Abb. 39), konnte mit Hilfe des mitgelieferten Programmes auf Messintervalle von 600 s initialisiert werden. Im Flashspeicher des Spektrometers werden einzelne Messzeilen mit je 10 min angelegt, in denen die im jeweiligen Zeitintervall gemessene Daten gespeichert werden.



Abb. 39 LIULIN-6A LET Spektrometer

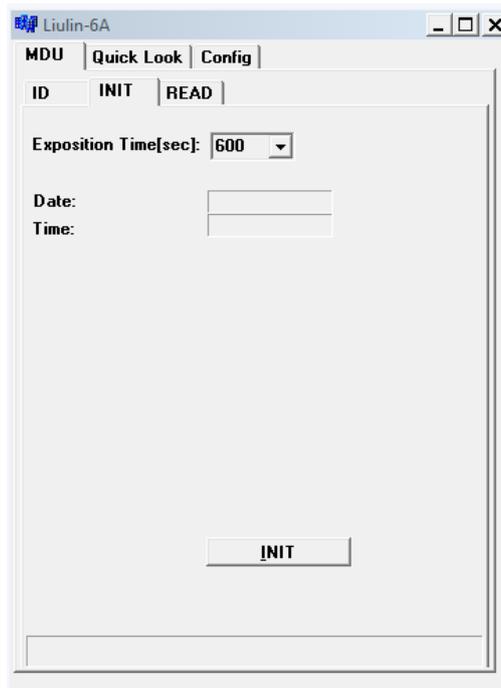


Abb. 40 Initialisierungsbildschirm des LIULIN Programmes

| MDU-01 EXPOSITION = 600[sec] | | | | | | | | |
|--|----------|----------|----------|-----------|-------------------------|-----------|----------|----------|
| Start:23/02/18 10:06:00 Stop:01/03/18 00:16:00 Duration:483600 Msr Num:806 | | | | | | | | |
| Num | Sec From | DD/MM/YY | HH/MM/SS | Dose[uGy] | Flux[/cm ²] | Mult.Coef | Part.Sum | Tot.Dose |
| 1 | 600 | 23/02/18 | 10:06:00 | 0.060429 | 0.033333 | 108 | 40 | 0.010071 |
| 2 | 1200 | 23/02/18 | 10:16:00 | 0.060989 | 0.040833 | 109 | 49 | 0.020236 |
| 3 | 1800 | 23/02/18 | 10:26:00 | 0.081691 | 0.039166 | 146 | 47 | 0.033851 |
| 4 | 2400 | 23/02/18 | 10:36:00 | 0.068822 | 0.033333 | 123 | 40 | 0.045322 |
| 5 | 3000 | 23/02/18 | 10:46:00 | 0.088965 | 0.045 | 159 | 54 | 0.060149 |
| 6 | 3600 | 23/02/18 | 10:56:00 | 0.097918 | 0.0475 | 175 | 57 | 0.076469 |
| 7 | 4200 | 23/02/18 | 11:06:00 | 0.075536 | 0.035 | 135 | 42 | 0.089059 |
| 8 | 4800 | 23/02/18 | 11:16:00 | 0.095120 | 0.043333 | 170 | 52 | 0.104912 |
| 9 | 5400 | 23/02/18 | 11:26:00 | 0.099037 | 0.045833 | 177 | 55 | 0.121419 |
| 10 | 6000 | 23/02/18 | 11:36:00 | 0.071060 | 0.038333 | 127 | 46 | 0.133262 |
| 11 | 6600 | 23/02/18 | 11:46:00 | 0.087287 | 0.035833 | 156 | 43 | 0.14781 |
| 12 | 7200 | 23/02/18 | 11:56:00 | 0.074417 | 0.0375 | 133 | 45 | 0.160213 |
| 13 | 7800 | 23/02/18 | 12:06:00 | 0.087287 | 0.039166 | 156 | 47 | 0.174761 |

Abb. 41 Messprotokoll für den Flug Wien - Japan

Die gemessenen Werte können nun einfach durch eine ausgegebene Textdatei visualisiert und danach ausgewertet werden.

Bevor das Spektrometer nach Japan versendet wurde, mussten einige Vorarbeiten durchgeführt werden, ausgewählte Ergebnisse der Testmessungen finden sich im Anhang:

1. Einlesen in die Funktionsweisen des LIULIN-6A und Programmes mit Hilfe des Manuals
2. Prüfen der Funktionstüchtigkeit durch Messreihen am Forschungsreaktor der TU Wien
3. Auswertung der Messreihe am Reaktor der TU Wien
4. Austausch des Akkus, um die Gesamtlaufzeit des LIULIN zu verbessern
5. Erneute Messreihe am Reaktor der TU Wien – Gescheitert
6. Erneute Messreihe im TL Labor des ATIs - Erfolgreich
7. Auswerten der maximalen Akku-Laufzeit
8. Schreiben einer Kurzanleitung für die Benutzung des LIULIN-6A in Japan
9. Initialisierung und Versendung nach Japan

3.1.3 Ergebnisse

3.1.3.1 Ergebnisse der Flüge Wien – Japan:

Das LIULIN Spektrometer wurde am 23.2.2018 um 09:56 aktiviert. Die Messintervalle wurden mit $600\text{ s} = 10\text{ min}$ initialisiert. Die Messzeit bis zur Totalentleerung des Akkus betrug genau 806 Messzyklen mit je 600 s Expositionszeit, daher also $134,33\text{ h}$ oder $5,6\text{ d}$. Danach wurde der Messvorgang durch ungenügende Stromversorgung abgebrochen. Daher endete die letzte Messung am 1.3.2018 um 00:16.

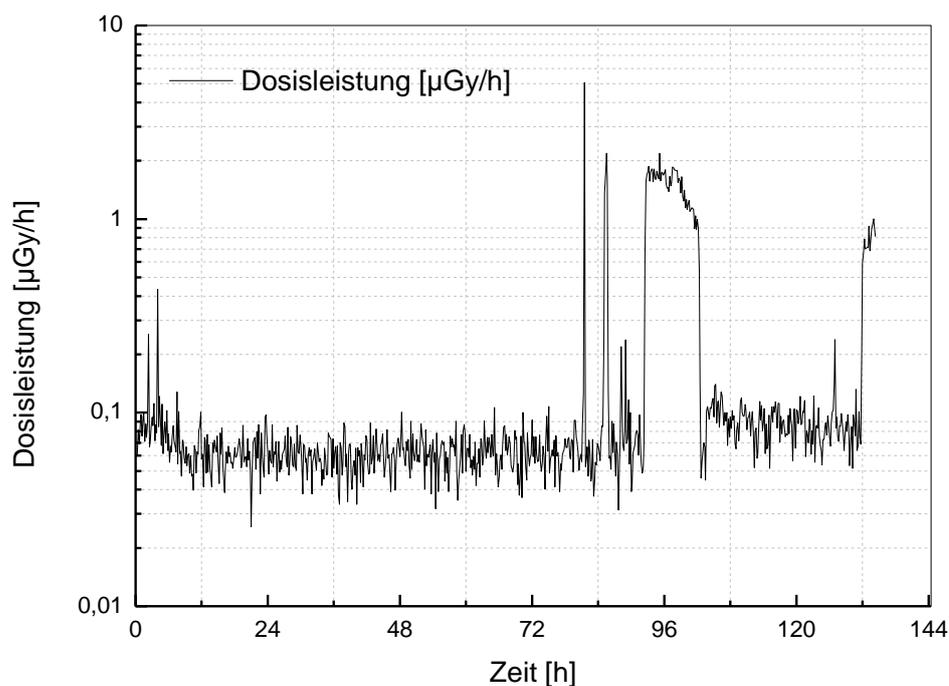


Abb. 42 Dosisleistung über der Zeit für den Flug Wien-Japan, logarithmisch aufgetragen

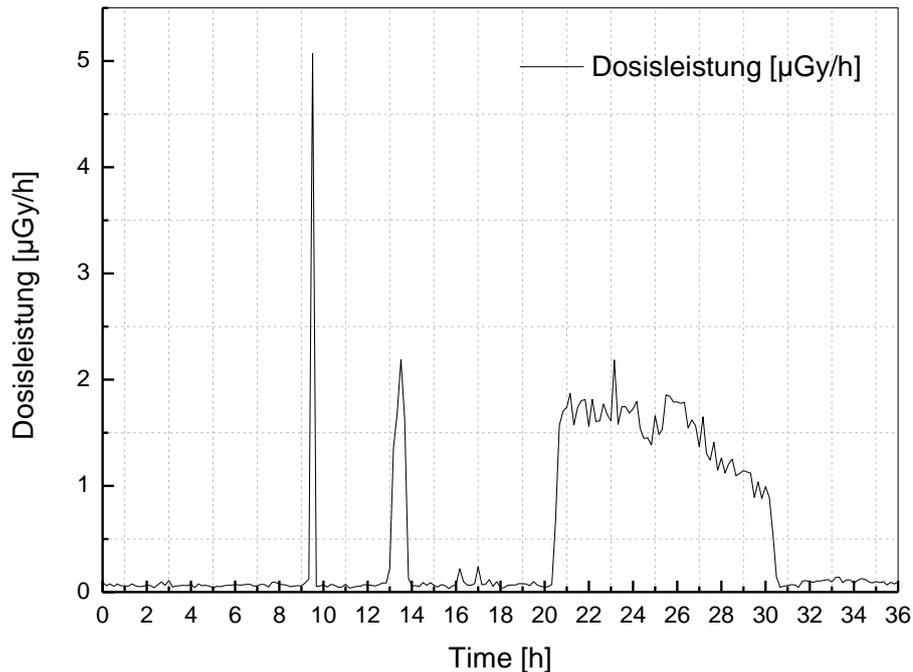


Abb. 43 Dosisleistung über der Zeit beginnend ab 26.2.2018; 10:06 für den Flug Wien-Japan, linear aufgetragen

Wie in Abb. 42 ersichtlich, brach die Stromversorgung vor der Ankunft in Japan ab, nämlich am Flug von Shenzhen (China) nach Japan/Narita. Diese Informationen ergeben sich aus den Trackingaufzeichnungen der UPS Website. Demnach fehlen insgesamt ca. 3 h Flugzeit, etwaige Röntgenscans konnten ebenso nicht mehr aufgezeichnet werden.

Tabelle Tab. 7 zeigt die letzten Einträge des LIULIN Spektrometers sowie die gesamte bis zum Messabbruch akkumulierte Dosis:

| Date | Dose [$\mu\text{Gy/h}$] | Flux [$\text{p/cm}^2\text{s}$] | Total Dose [μGy] |
|------------------|---------------------------|----------------------------------|-------------------------------|
| 28.02.2018 21:46 | 0.222134 | 0.134167 | 25.4076 |
| 28.02.2018 23:56 | 1.00212 | 0.4975 | 27.0942 |
| 01.03.2018 00:06 | 0.913157 | 0.461667 | 27.2464 |
| 01.03.2018 00:16 | 0.811322 | 0.426667 | 27.3816 |

Tab. 7 Die letzten Einträge des LIULIN Spektrometers vom Flug Wien-Japan

Nach den Messergebnissen scheint eine Schätzung von ca. 30 μGy zusätzlich akkumulierter Dosis bei einem Flug inklusive Röntgen von Wien nach Japan gerechtfertigt.

3.1.3.2 Ergebnisse der Flüge Japan - Wien:

Da das LIULIN Spektrometer bei einer Totalentladung erst wieder initialisiert werden muss, bevor eine erneute Messung gestartet werden kann und dies durch unsere japanischen Kollegen nicht erfolgt ist, konnten keine Messdaten für den Rückflug aufgezeichnet werden.

3.2 Vorort Messung der Umweltdosisleistung via TL – Dosimetrie

3.2.1 Motivation

Für die Bestimmung des Alters ist die Messung der Umweltdosisleistung vor Ort von maßgeblicher Bedeutung (siehe Gl. 18). Dazu wurden jeweils 7 TLD-200 Plättchen in drei verschiedene Dosimetermappen gelegt, eine bestimmte Zeit exponiert und die akkumulierte Gesamtdosis gemessen.

3.2.2 Experiment – Messung der TL-Dosimeter

Zur Quantifizierung der Umweltdosisleistung an der Ausgrabungsstätte, wurden zwei Dosimetermappen mit dem Flugzeug nach Japan geschickt. Eines wurde beim Schreibtisch von Prof. Maria Shinoto belassen, die andere Mappe wurde beim Fundort der Scherben vergraben. Zur Überprüfung der Dosimeteereigenschaften wurde das dritte bei Hr. Fugger am Atominstitut verwahrt. Alle Dosimeter wurden mit der gleichen thermischen Vorbehandlung initialisiert und auf null gesetzt.

Nach Ankunft der Proben und der Dosimetermappen aus Japan wurden alle Dosimeter mittels mit dem Dosimerauslesegerät Gerät TL-DAT II (Abb. 44) ausgelesen. Zuerst wurde das, durch die akkumulierte Dosis, hervorgerufene TL-Signal ähnlich dem Prozedere bei der Datierung gemessen. Nach der Messung der akkumulierten Dosis wurde jeweils eine Backgroundmessung durchgeführt, um die Schwarzkörperstrahlung vom Signal abzuziehen.



Abb. 44 Auswertegerät TL-DAT II des ATI der TU Wien

Um nun das Verhältnis von akkumulierter Dosis zu TL-Intensität (TL-Empfindlichkeit) zu bestimmen, mussten die Dosimeter wieder thermisch zurückgesetzt werden, um danach mit einer genau definierten Kalibrierungsdosis bestrahlt zu werden ($770,3 \mu\text{Gy}$). Nach der Kalibrierung werden die oben genannten Messungen erneut durchgeführt um so einen dosimeterspezifischen Zusammenhang zwischen TL-Intensität und Dosis zu berechnen.

Im Folgenden sind die einzelnen Messkurven für die natürliche und Kalibrierungsdosis dargestellt, in der jeweiligen Tabelle die Werte für die einzelnen Dosimeter.

3.2.3 Ergebnisse

3.2.3.1 TL Dosimeter ATI

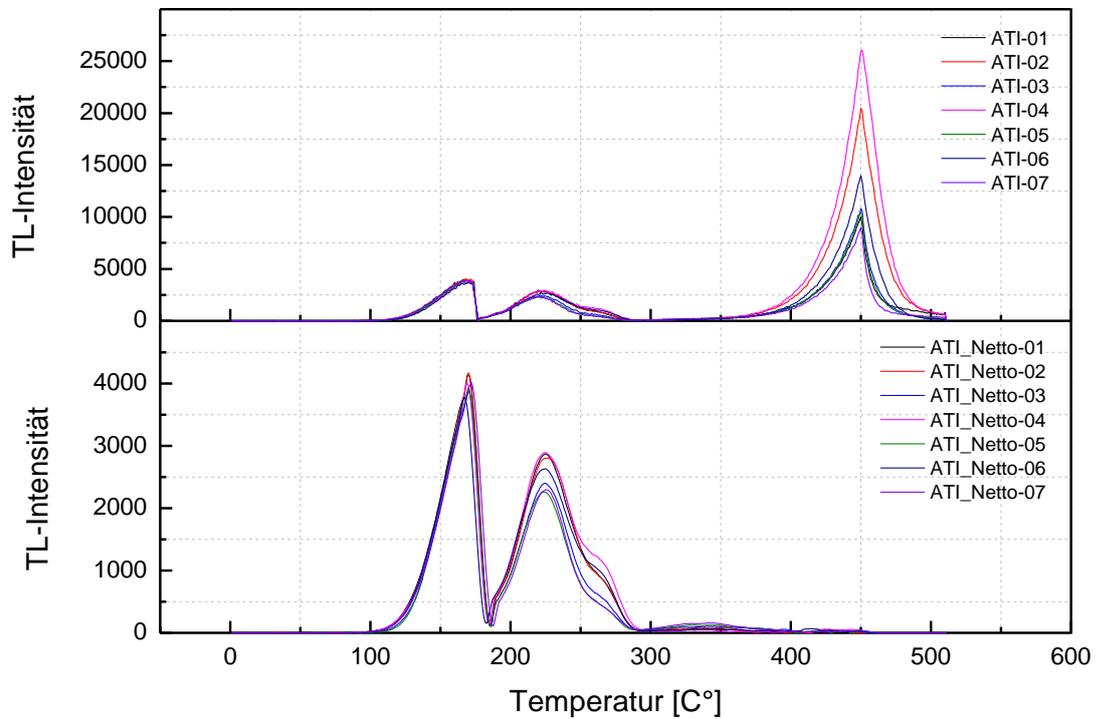


Abb. 45 Rohkurven (oben) und Nettokurven (unten) der TL200 Dosimeter am ATI

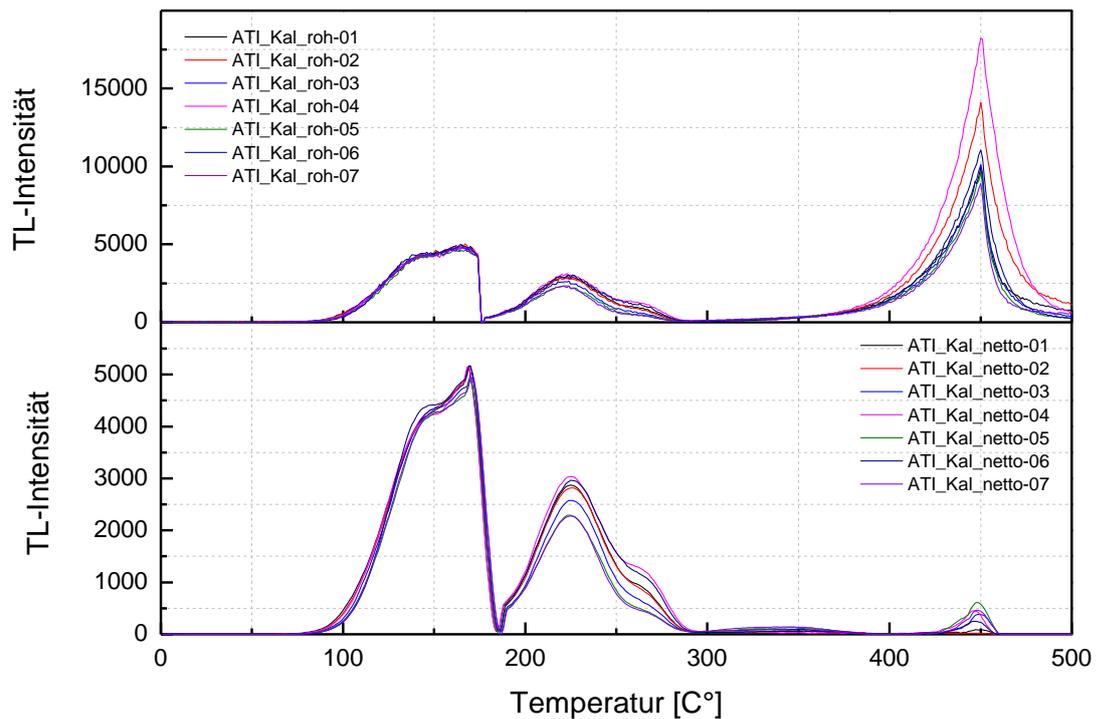


Abb. 46 Kalibrierungskurve der Dosimeterbox beim ATI mit Rohdaten (oben) und Nettodaten (unten)

| Chip Nr. | Kalibrierung | | Exposition | |
|----------|----------------------|---------------------------------|----------------------|-------------------|
| | TL Integral [counts] | Kalk. Faktor [counts/ μ Gy] | TL Integral [counts] | Dosis [μ Gy] |
| 1. | 118768 | 154,184 | 117196 | 760,104 |
| 2. | 116617 | 151,392 | 116904 | 772,196 |
| 3. | 103764 | 134,706 | 96577 | 716,947 |
| 4. | 127435 | 165,436 | 121572 | 734,860 |
| 5. | 91993 | 119,425 | 90382 | 756,810 |
| 6. | 123528 | 160,363 | 112356 | 700,633 |
| 7. | 90512 | 117,502 | 89304 | 760,019 |
| | | | Mittelwert | 743,081 |
| | | | Stdabw. | 24,393 |
| | | | Rel. % | 3,283 |

Tab. 8 Kalibrierung und gemessene Dosis der TL 200 Dosimeter am ATI

3.2.3.2 TL Dosimeter Japan Schreibtisch

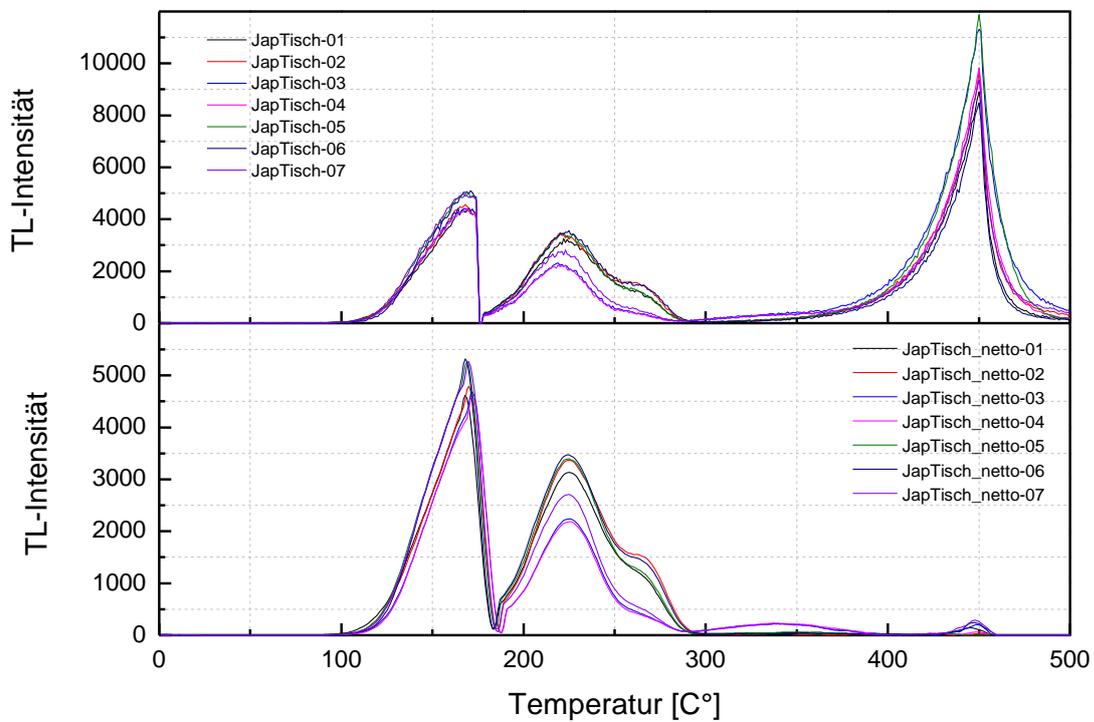


Abb. 47 Rohkurven (oben) und Nettokurven (unten) der TL200 Dosimeter in Japan/Schreibtisch

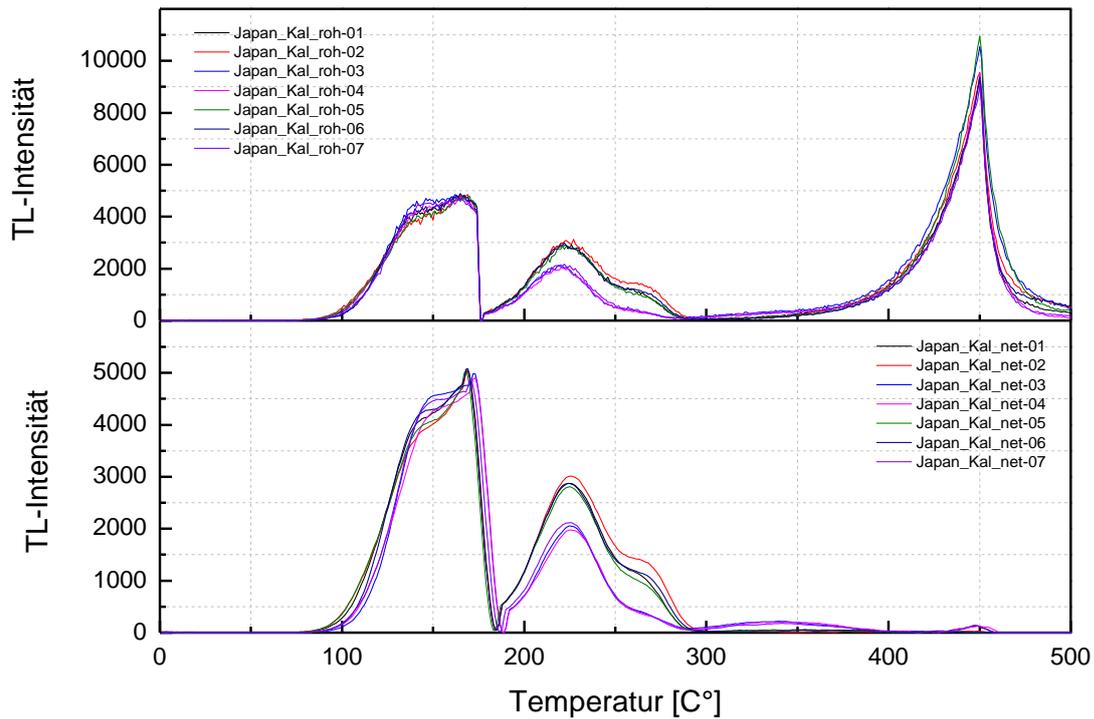


Abb. 48 Kalibrierungskurve der Dosimeterbox in Japan/Schreibtisch mit Rohdaten (oben) und Nettodaten (unten)

| Chip Nr. | Kalibrierung | | Exposition | |
|----------|----------------------|---------------------------------|----------------------|-------------------|
| | TL Integral [counts] | Kalk. Faktor [counts/ μ Gy] | TL Integral [counts] | Dosis [μ Gy] |
| 1. | 120770 | 156,783 | 132438 | 844,721 |
| 2. | 127022 | 164,899 | 141218 | 856,389 |
| 3. | 78906 | 102,435 | 88492 | 863,881 |
| 4. | 76903 | 99,835 | 86373 | 865,156 |
| 5. | 116979 | 151,862 | 142712 | 939,750 |
| 6. | 119637 | 155,312 | 147201 | 947,775 |
| 7. | 84131 | 109,218 | 108643 | 994,731 |
| | | | Mittelwert | 901,772 |
| | | | Stdabw. | 53,839 |
| | | | Rel. % | 5,970 |

Tab. 9 Kalibrierung und gemessene Dosis der TL 200 Dosimeter aus Japan (Schreibtisch)

3.2.3.3 TL Dosimeter Japan Ausgrabung

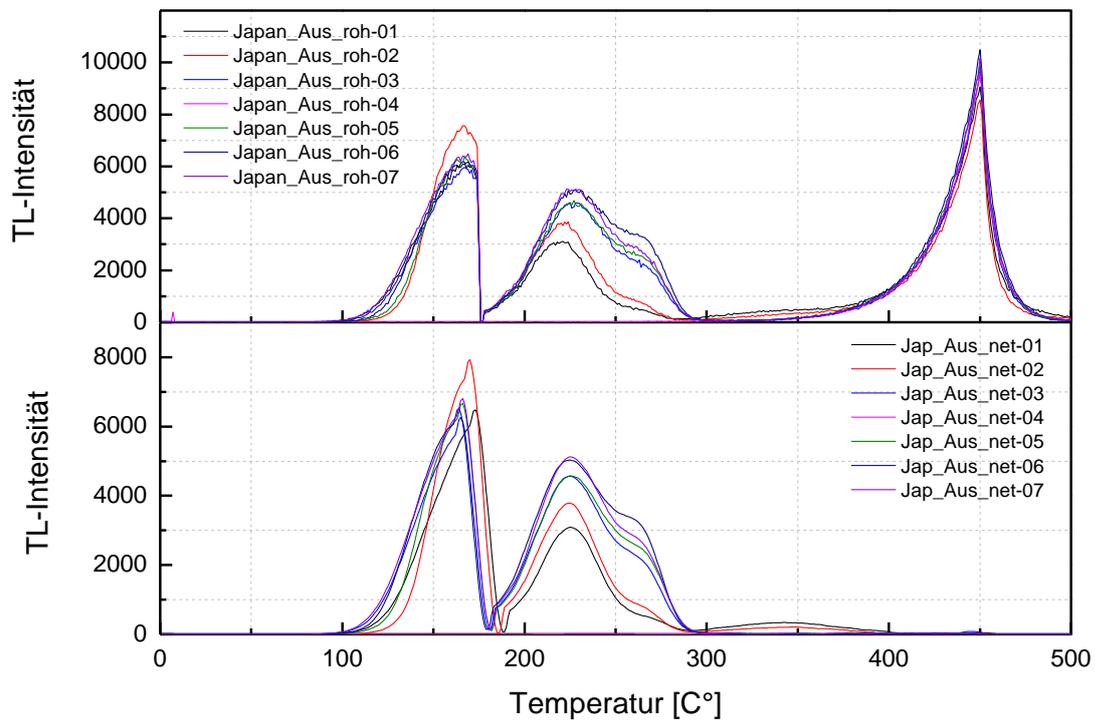


Abb. 49 Rohkurven (oben) und Nettokurven (unten) der TL200 Dosimeter in Japan/Ausgrabung

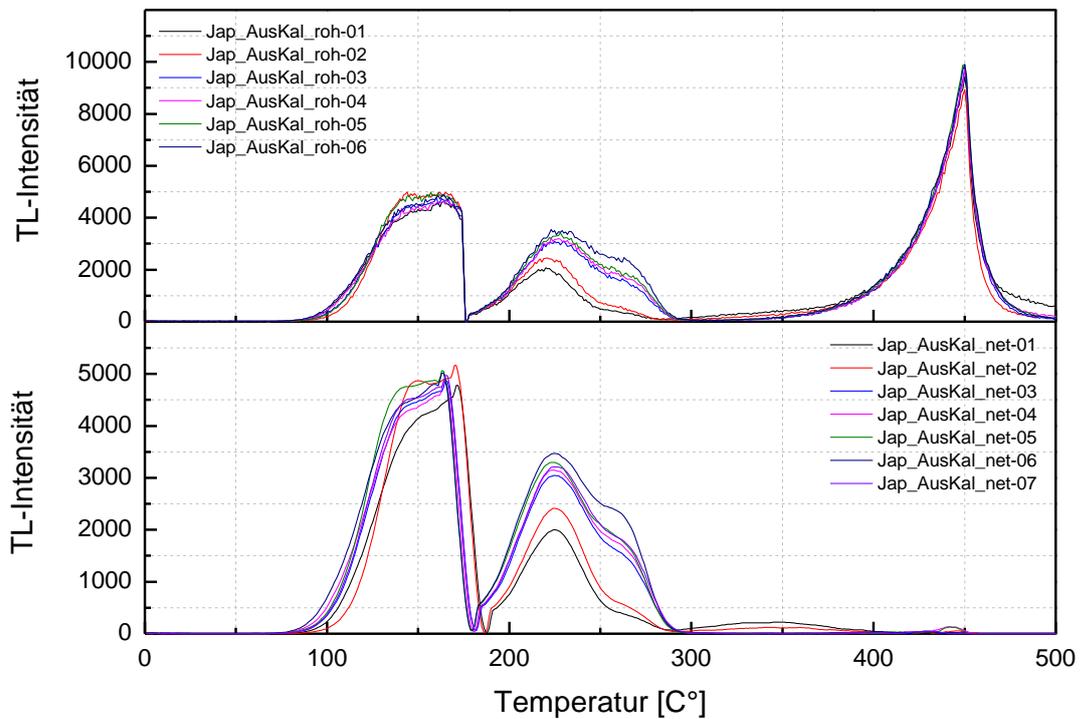


Abb. 50: Kalibrierungskurve der Dosimeterbox in Japan/Ausgrabung mit Rohdaten (oben) und Nettodaten (unten)

| Chip Nr. | Kalibrierung | | Exposition | |
|----------|-------------------------|------------------------------|-------------------------|-----------------|
| | TL Integral [counts] | Kalk. Faktor [counts/μGy] | TL Integral [counts] | Dosis [μGy] |
| 1. | 78184 | 101,498 | 120522 | 1187,431 |
| 2. | 95911 | 124,511 | 151424 | 1214,686 |
| 3. | 134160 | 174,166 | 199978 | 1148,204 |
| 4. | 139346 | 180,898 | - | - |
| 5. | 148346 | 192,582 | 202936 | 1053,764 |
| 6. | 160004 | 207,716 | 230244 | 1108,453 |
| 7. | 142434 | 184,907 | 224752 | 1215,486 |
| | | | Mittelwert | 1154,670 |
| | | | Stdabw. | 58,784 |
| | | | Rel. % | 5,091 |

Tab. 10 Kalibrierung und gemessene Dosis der TL 200 Dosimeter aus Japan (Ausgrabung)

Von den so erhaltenen Werten muss jedoch noch die unter 3.1 abgeschätzte Flugdosis abgezogen werden, da diese eine zusätzlich akkumulierte Dosis darstellt. Ebenso wurden die Dosimetermappen nicht sofort an der Ausgrabungsstätte vergraben, sondern verweilten vorher und nachher jeweils Zeit beim Schreibtisch von Prof. Shinoto. Die zur folgenden Berechnung notwendigen detaillierten Zeitangaben stammen ebenso von Prof. Shinoto.

Die tatsächliche akkumulierte Vor-Ort-Dosis setzt sich also folgendermaßen zusammen:

$$D_{G \text{ brutto}} - \frac{D_{S \text{ netto}}}{347} * t_s - D_F * 2 = D_{G \text{ netto}} \quad (38)$$

$$D_{S \text{ brutto}} - D_F * 2 = D_{S \text{ netto}} \quad (39)$$

mit $D_{G \text{ brutto}}$... Bruttogesamtdosis gemessen an der Grabung [μGy]
 $D_{G \text{ netto}}$... Nettogesamtdosis gemessen an der Grabung [μGy]
 $D_{S \text{ netto}}$... Nettogesamtdosis gemessen in Japan/Schreibtisch [μGy]
 t_s ... Zeit der Grabungsdosimeter beim Schreibtisch/Japan [d]
 D_F ... Flugdosis [μGy]

Demnach folgt mit der unter 3.1 abgeschätzten Flugdosis von ca. 30 mGy (one way) und einer Lagerzeit der Grabungsdosimeter beim Schreibtisch von 78 d:

$$D_{S \text{ netto}} = D_{S \text{ brutto}} - 2 * D_F = 901,8 - 60 = 841,8 \mu\text{Gy} \quad (40)$$

dies in Gl. 33 eingesetzt ergibt:

$$D_{G \text{ netto}} = 1154,7 - \frac{841,8}{347} * 78 - 60 = 904,9 \mu\text{Gy} \quad (41)$$

Damit ergibt sich eine Umweltdosis von 904,9 μGy welche über eine netto Expositionszeit von 269 d akkumuliert wurde. Die jährliche Netto-Umweltdosisleistung an der Ausgrabung ergibt sich zu:

$$\dot{D}_{G \text{ netto}} = \frac{904,9}{269} * 365 = 1,23 \text{ mGy/a} \quad (42)$$

3.3 Datierung

3.3.1 Experiment

Die Datierung der einzelnen Proben erfolgte mittels dem HVK Gerät und einem Mess-PC. Für die Probengewinnung wurde, wie unter 2.4.2 beschrieben vorgegangen und die dadurch gewonnenen Probenplättchen jeweils mit unten definierten Bestrahlungszeiten den geräteinternen Kalibrierquellen ausgesetzt und ausgelesen.

3.3.2 Proben

Analysiert wurden ein Übungsziegel und zwei keramische Proben (KI1-N5 und KI1-52), welche beide innerhalb eines Hangofens bei der Ausgrabung in Japan gefunden wurden.

Der Übungsziegel wurde datiert, um sich unter Anleitung von Hr. Fugger mit den jeweiligen Prozedere der Probengewinnung, der Messgeräte und des Ausleseverfahrens vertraut zu machen.

Der Ziegel ist um die 1000 Jahre alt, was durch zahlreiche Messserien auch bestätigt wurde. Demnach ist die Datierung auf ca. 1000 Jahre ein Indikator dafür, dass die Probenaufbereitung und das Messprozedere beherrscht wird.

3.3.3 Ergebnisse

3.3.3.1 Übungsziegel



Abb. 51 Foto der Probe „Übungsziegel“

| | Gemessener Wert |
|----------------------------------|------------------------|
| α - Zerfälle | 16,3 |
| Paarzerfälle | 0,33 |
| K ₂ O Anteil | 1% |
| Externe γ - Dosisleistung | $0,327 \pm 0,05$ mGy/a |
| Kosmische Dosisleistung | 0,281 mGy/a |
| Feuchtigkeitsgehalt | 80% |
| Probendicke | 2 cm |

Tab. 11 Ermittelte Daten für die Altersbestimmung der Probe Übungsziegel

| Probe Übungsziegel | | | |
|--------------------|-----------------------|-------------------------------|---------------------|
| Chip Nummer | Bestrahlungsdauer [s] | α / β Dosis [Gy] | Interne Bezeichnung |
| 1, 2, 3 | 0 | - | N00 |
| 4 | 300 | - / 1,60 | Nb1 |
| 5, 7 | 600 | 30,79 / 3,20 | Na2, Nb2 |
| 6 | 900 | 46,19 / 4,80 | Nb3 |
| 8 | 1200 | 61,58 / 6,41 | Na4 |

Tab. 12 Messparameter der einzelnen Proben für Probe Übungsziegel

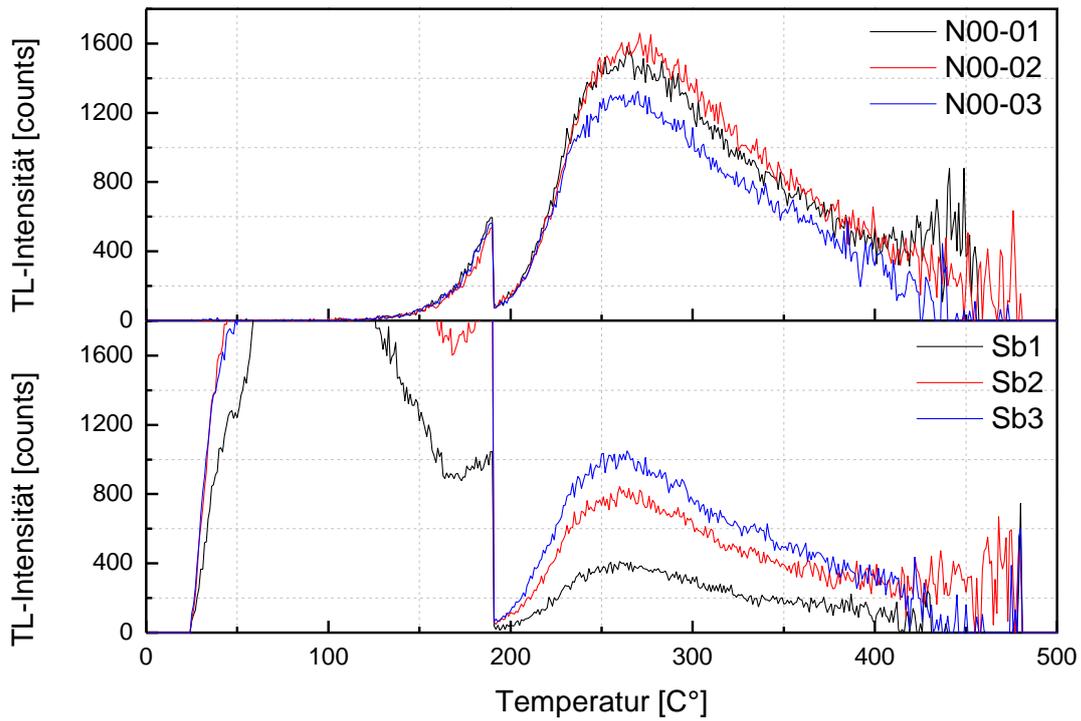


Abb. 52 Counts über Temperatur der N00 und Sb Messungen des Übungsziegels

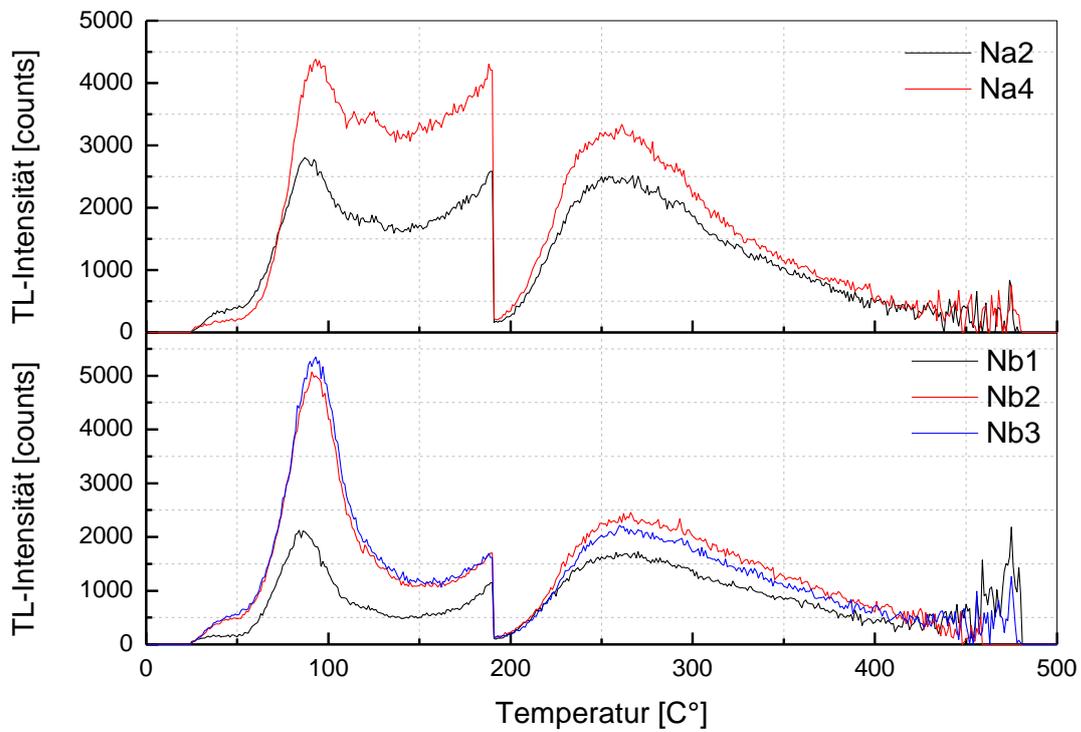


Abb. 53 Counts über Temperatur der Na und Nb Kurven für die Probe Übungsziegel

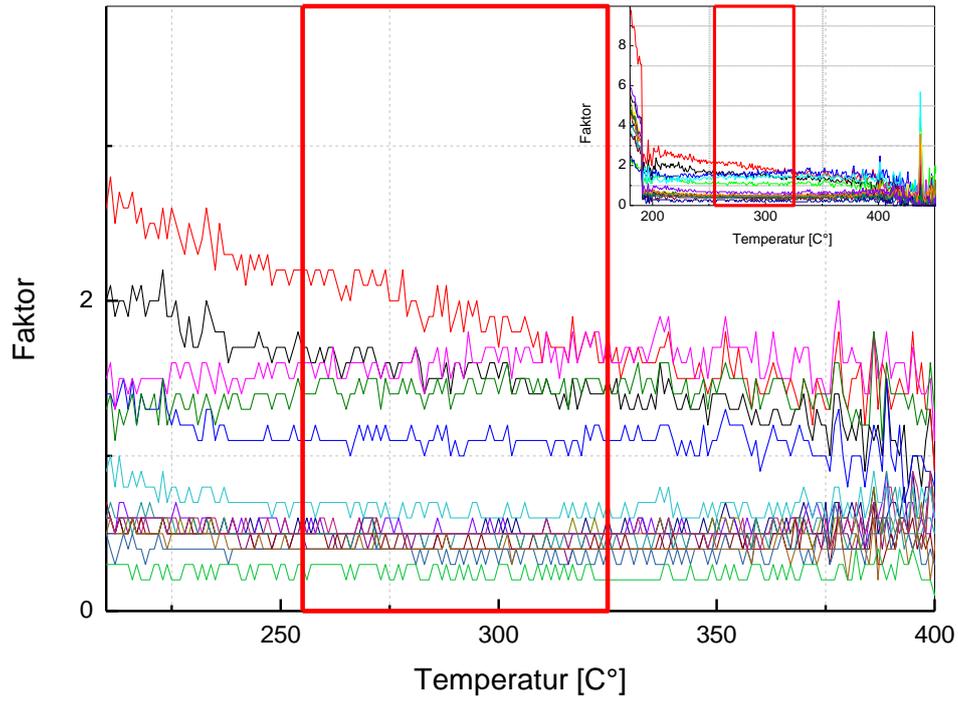


Abb. 54 Plateautest für alle Messungen mit ausgewähltem Intervall für die Probe Übungsziegel

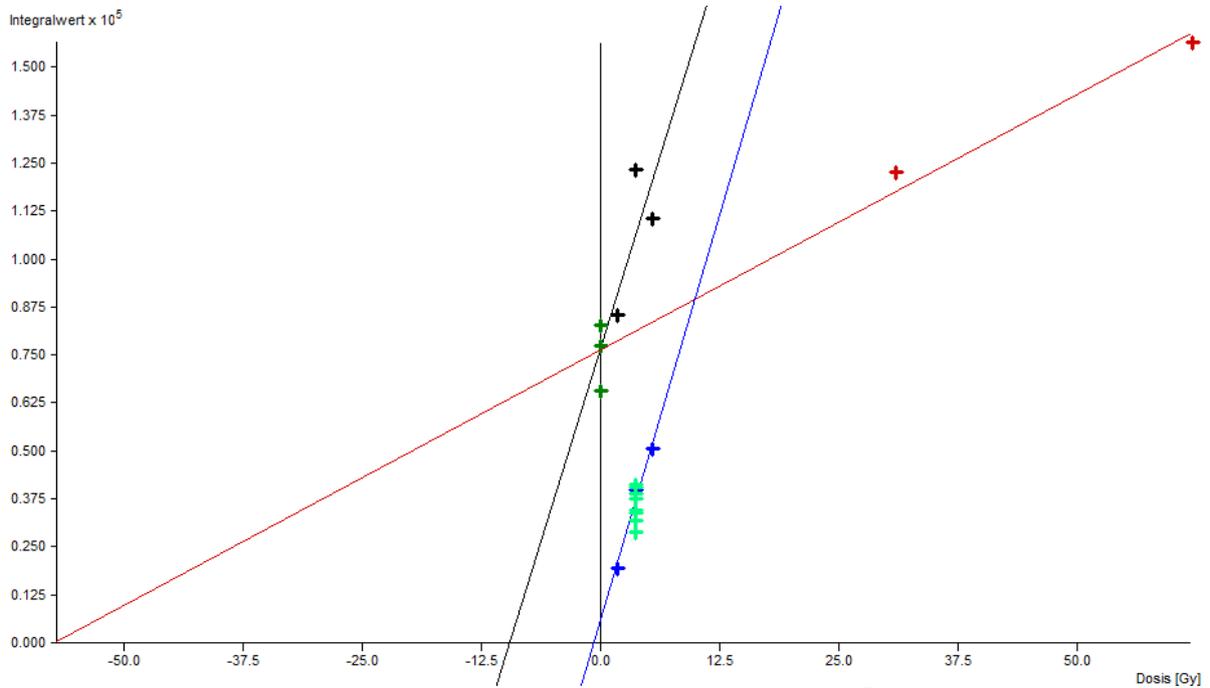


Abb. 55 Gemessene Punkte (N00, Na, Nb und Sb) ohne Massenkorrektur für die Probe Übungsziegel

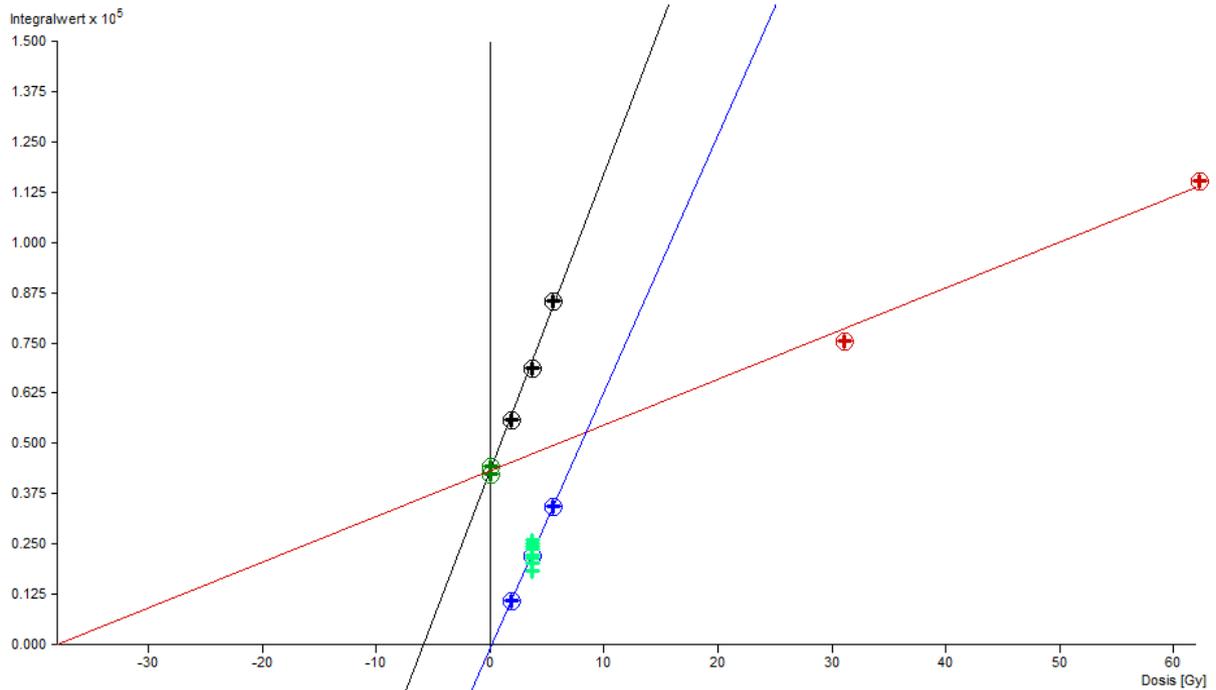


Abb. 56 Gemessene Punkte (N00, Na, Nb, Sb) mit Massenkorrektur für die Probe Übungziegel

| | | | | | |
|---|--|---|--|--|--|
| Messtechnik <input checked="" type="radio"/> Feinkorntechnik <input type="radio"/> Grobkorntechnik | | Titel Übungziegel | | Datum der Messung 27.2.2018 | |
| Q _α : 37.982 ± 1.526 Gy | | Q _β : 5.854 ± 0.162 Gy | | I: 0.164 ± 0.044 Gy | |
| A: 0.154 ± 0.002 | | | | | |
| α-Zerfälle: 16,57 Counts/ks | | Paarzerfälle: 0,33 Counts/ks | | Alpha-Zählrate Berechnen | |
| Gewichtszunahme bei Sättigung: 0,2 | | | | | |
| Feuchtigkeitsanteil: 0,8 ± 0 | | Effektive α-Dosisleistung (D' _α): 2,631 mGy/a 51,71 % | | | |
| Größen Berechnen | | | | | |
| K ₂ O-Anteil: 1 Wt % | | β-Abschwächung: 1 | | β-Dosisleistung (D _β): 1,673 mGy/a 32,88 % | |
| Kaliumoxidgehalt Berechnen | | | | | |
| Interne γ-Dosisleistung (D _{γ int}): 1,297 mGy/a | | γ-Dosisleistung (D _γ): 0,503 mGy/a 9,89 % | | | |
| Externe γ-Dosisleistung (D _{γ ext}): 0,327 ± 0,050 mGy/a | | Kosmische Dosisleistung (D _κ): 0,281 mGy/a 5,52 % | | | |
| Externe γ-Dosisleistung Berechnen | | Kosmische Dosisleistung Berechnen | | | |
| Probenform: flach | | Gesamtdosisleistung (D): 5,088 mGy/a | | | |
| Probindicke: 2 cm | | | | | |
| p: 18,13 % | | | | | |
| Sättigungsgewichtszunahme des Bodens: 0 | | | | | |
| | | TL Messung: 2,54 % | | Jährliche Dosis: 3,9 % | |
| | | Steinanteil: 0 % | | Fehler Steinanteil | |
| | | Gesamter statistischer Fehler: 4,66 % | | | |
| | | Kalibrierung: 5,27 % | | | |
| | | Th/U-Verhältnis: 0 % | | | |
| | | Feuchtigkeit: 0 % | | | |
| | | Gesamter systematischer Fehler: 5,27 % | | | |
| | | Gesamtfehler: 7,03 % | | | |
| | | Alter Alter: 1183 ± 83 Jahre (835 a.c.) | | | |
| OK | | Übernehmen | | Abbrechen | |
| Laden | | Laden Par. | | Speichern | |
| Drucken | | Defaultwerte | | E DE Hilfe | |

Abb. 57 Berechnete Werte und Alter für die Probe Übungziegel

3.3.3.2 Probenserie KI1-N5



Abb. 58 Foto der Probe „KI1 – N5“

| | Gemessener Wert |
|----------------------------------|------------------------|
| α – Zerfälle | 11,11 |
| Paarzerfälle | 0,239 |
| K ₂ O Anteil | 3,87% \pm 0,048% |
| Externe γ – Dosisleistung | 0,281 \pm 0,05 mGy/a |
| Kosmische Dosisleistung | 0,949 mGy/a |
| Feuchtigkeitsgehalt | 94,93% \pm 0,93% |
| Probendicke | 2 cm |

Tab. 13 Ermittelte Daten für die Altersbestimmung der Probe KI1 – N5

| Probe KI1 – N5 | | | |
|--|-----------------------|-------------------------------|---------------------|
| Chip Nummer | Bestrahlungsdauer [s] | α / β Dosis [Gy] | Interne Bezeichnung |
| 1, 2, 3, 10, 11, 17, 18, 23, 24, 28, 29 | 0 | - | N00 |
| - | 300 | - / - | - |
| 7, 16, 4, 15, 22, 30, 1, 10, 17 | 600 | 30,79 / 3,20 | Na2, Nb2, Sb2 |
| 5, 8, 14, 21, 25, 2, 11, 18, 24 | 900 | 46,19 / 4,80 | Na3, Nb3, Sb3 |
| 9, 31, 6, 13, 20, 26, 3, 28 | 1200 | 61,58 / 6,41 | Na4, Nb4, Sb4 |
| 12, 19, 27, 23, 29 | 1500 | 76,98 / 8,01 | Nb5, Sb5 |

Tab. 14 Messparameter der einzelnen Proben für Probe „KI1 – N5“

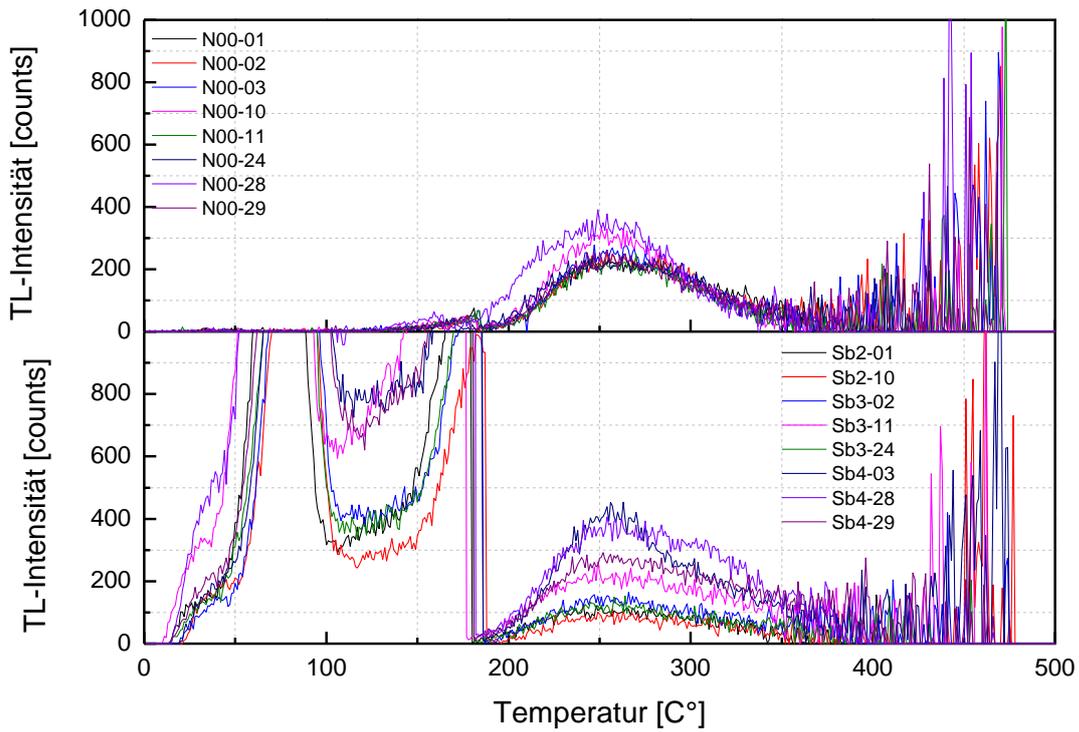


Abb. 59 Intensität über Temperatur für die bereinigten N00 und Sb Messungen der Probe „K11-N5“

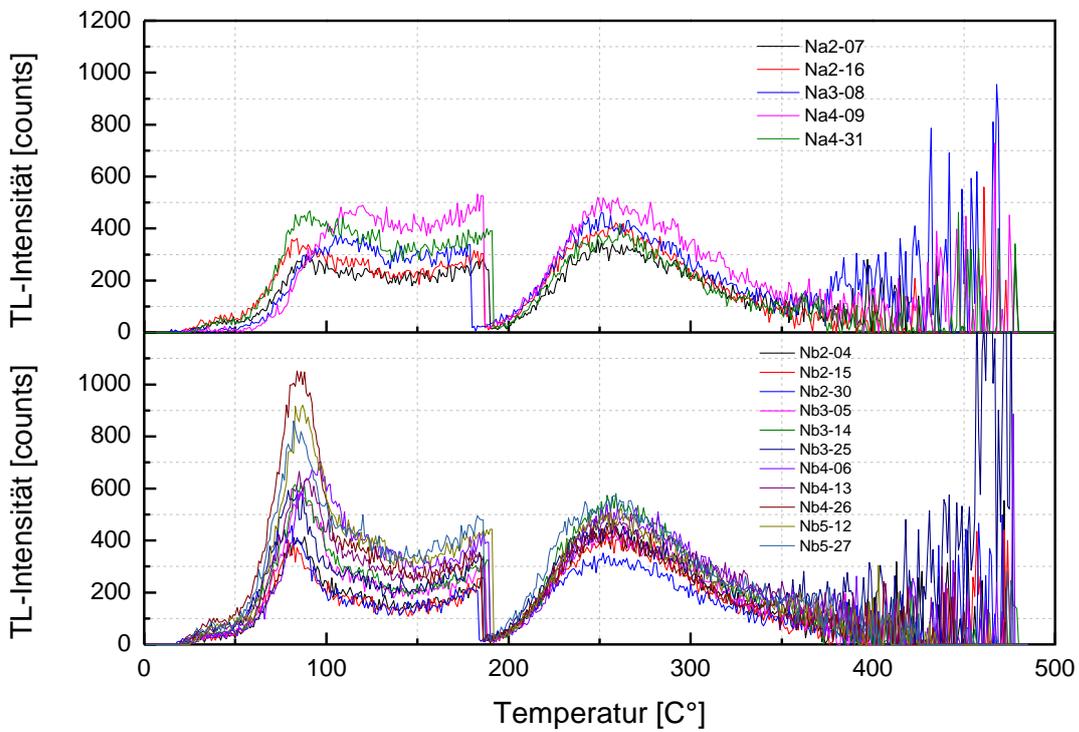


Abb. 60 Intensität über Temperatur für die bereinigten Na und Nb Messungen der Probe „K11-N5“

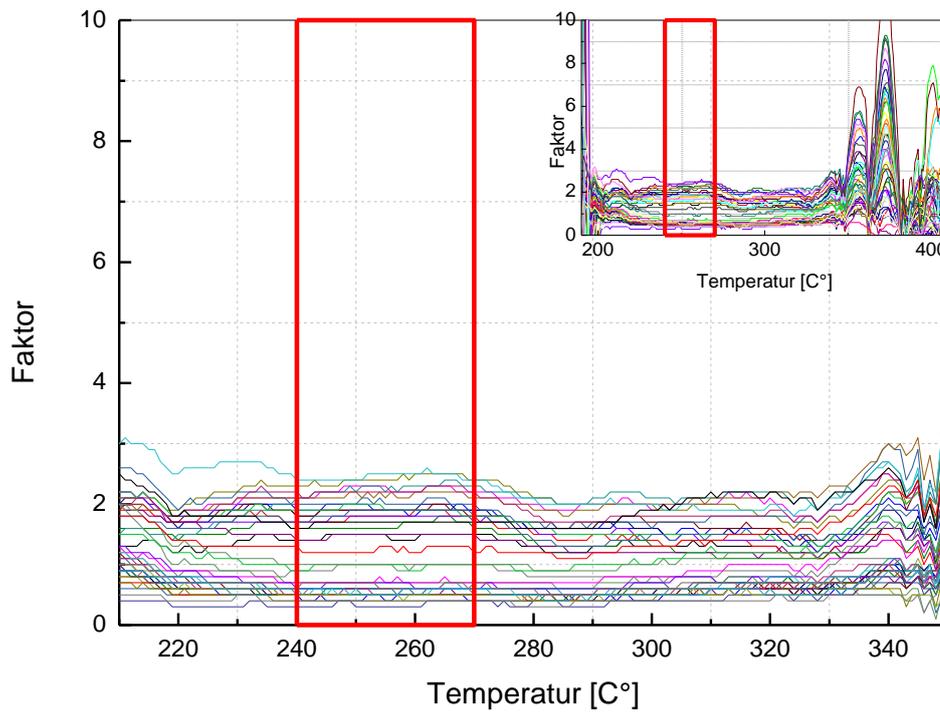


Abb. 61 Plateautest für alle Messungen mit ausgewähltem Intervall (rot eingezeichnet) für die Probe „KI1-N5“

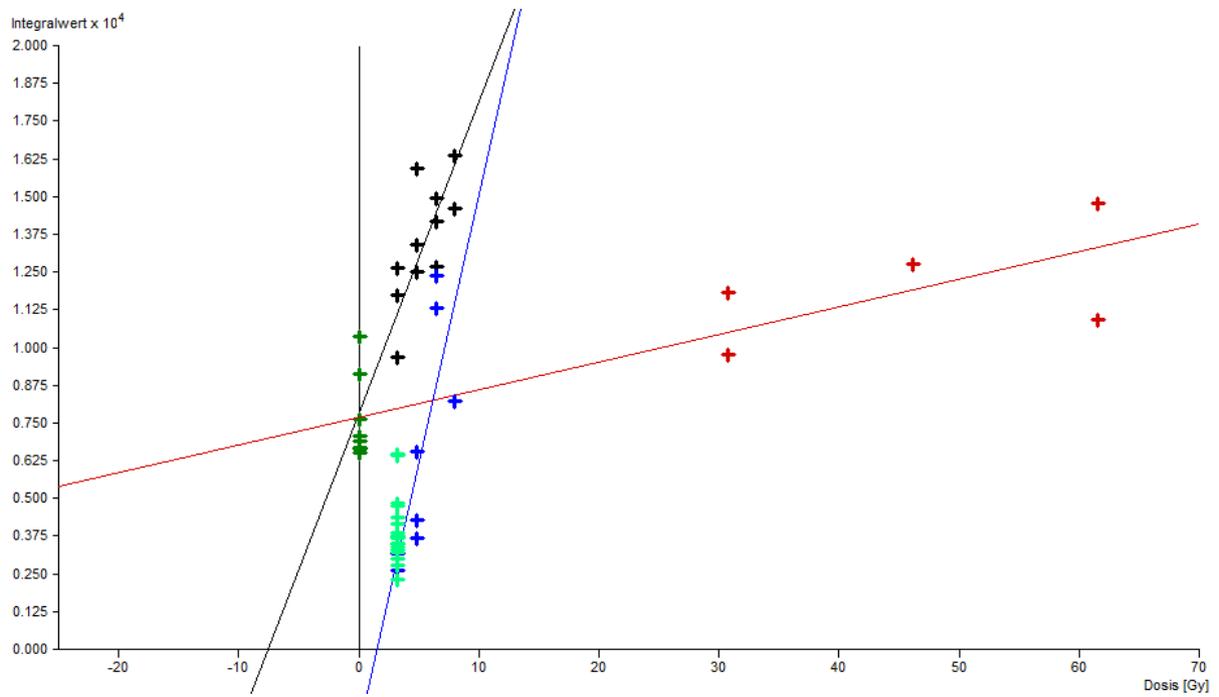


Abb. 62 Gemessene Punkte (N00, Na, Nb und Sb) ohne Massenkorrektur für die Probe „KI1-N5“

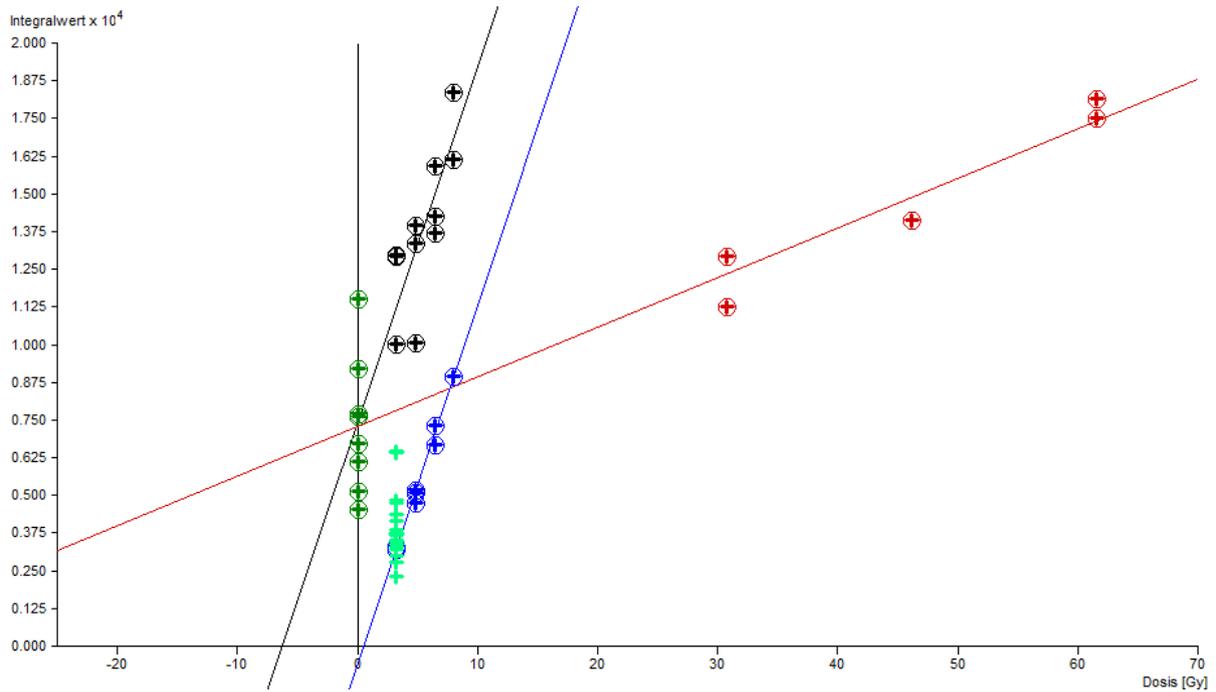


Abb. 63 Gemessene Punkte (N00, Na, Nb und Sb) mit Massenkorrektur für die Probe „KI1-N5“

| | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
|--|--|--|-------------------|---------------------|-------------|---------|------------------|--------|--------------|-----|--------------------|--|--------------------------------|--------|---------------|--------|------------------|-----|---------------|--------|---------------------------------|--------|---------------|---------|
| Messtechnik <input checked="" type="radio"/> Feinkontechnik <input type="radio"/> Grobkontechnik | Titel Probe N5 | | Datum der Messung | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Q _α : 83.937 ± 15.002 Gy | | Q _β : 7.558 ± 1.307 Gy | | I: 1.524 ± 1.244 Gy | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| A: 0.09 ± 0.001 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| α - Zerfälle: 11.111 Counts/ks | Paarzerfälle: 0.239 Counts/ks | Alpha-Zählrate Berechnen | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Gewichtszunahme bei Sättigung: 0,2 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Feuchtigkeitsanteil: 0,9492 ± 0,089 | Effektive α - Dosisleistung (D' _α): 0,994 mGy/a 18,6 % | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Größen Berechnen | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| K ₂ O-Anteil: 3,87 Wt % | β - Abschwächung: 1 | β - Dosisleistung (D _β): 2,898 mGy/a 54,23 % | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Kaliumoxidgehalt Berechnen | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Interne γ - Dosisleistung (D _{γ,int}): 1,504 mGy/a | γ - Dosisleistung (D _γ): 0,503 mGy/a 9,41 % | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Externe γ - Dosisleistung (D _{γ,ext}): 0,281 ± 0,050 mGy/a | Kosmische Dosisleistung (D _χ): 0,949 mGy/a 17,76 % | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Externe γ-Dosisleistung Berechnen | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Kosmische Dosisleistung Berechnen | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Probenform: flach | Gesamtdosisleistung (D): 5,344 mGy/a | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Probindicke: 2 cm | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| p: 18,13 % | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Sättigungsgewichtszunahme des Bodens: 0 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| <table border="1"> <tr> <td>TL Messung:</td> <td>17,99 %</td> </tr> <tr> <td>Jährliche Dosis:</td> <td>2,79 %</td> </tr> <tr> <td>Steinanteil:</td> <td>0 %</td> </tr> <tr> <td colspan="2">Fehler Steinanteil</td> </tr> <tr> <td>Gesamter statistischer Fehler:</td> <td>18,2 %</td> </tr> <tr> <td>Kalibrierung:</td> <td>5,02 %</td> </tr> <tr> <td>Th/U-Verhältnis:</td> <td>0 %</td> </tr> <tr> <td>Feuchtigkeit:</td> <td>1,81 %</td> </tr> <tr> <td>Gesamter systematischer Fehler:</td> <td>5,33 %</td> </tr> <tr> <td>Gesamtfehler:</td> <td>18,97 %</td> </tr> </table> | | | | | TL Messung: | 17,99 % | Jährliche Dosis: | 2,79 % | Steinanteil: | 0 % | Fehler Steinanteil | | Gesamter statistischer Fehler: | 18,2 % | Kalibrierung: | 5,02 % | Th/U-Verhältnis: | 0 % | Feuchtigkeit: | 1,81 % | Gesamter systematischer Fehler: | 5,33 % | Gesamtfehler: | 18,97 % |
| TL Messung: | 17,99 % | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Jährliche Dosis: | 2,79 % | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Steinanteil: | 0 % | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Fehler Steinanteil | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Gesamter statistischer Fehler: | 18,2 % | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Kalibrierung: | 5,02 % | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Th/U-Verhältnis: | 0 % | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Feuchtigkeit: | 1,81 % | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Gesamter systematischer Fehler: | 5,33 % | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Gesamtfehler: | 18,97 % | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Alter Alter: 1699 ± 322 Jahre (319 a.c.) | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| <input checked="" type="button" value="OK"/> <input checked="" type="button" value="Übernehmen"/> <input type="button" value="Abbrechen"/> <input type="button" value="Laden"/> <input type="button" value="Laden Par."/> <input type="button" value="Speichern"/> <input type="button" value="Drucken"/> <input type="button" value="Defaultwerte"/> <input type="button" value="E"/> <input type="button" value="DE"/> <input type="button" value="Hilfe"/> | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |

Abb. 64 Berechnete Werte und Alter für die Probe „KI1-N5“ ohne Massenkorrektur

Messtechnik: Feinkorntechnik Grobkorntechnik

Titel: Datum der Messung:

Q_α : ± Gy Q_β : ± Gy I : ± Gy A : ±

α - Zerfälle: Counts/ks Paarzerfälle: Counts/ks

Gewichtszunahme bei Sättigung:

Feuchtigkeitsanteil: ± Effektive α - Dosisleistung (\dot{D}_α): mGy/a 25,26 %

K_2O -Anteil: Wt % β - Abschwächung: 1 β - Dosisleistung (\dot{D}_β): mGy/a 49,79 %

Interne γ - Dosisleistung ($\dot{D}_{\gamma\text{int}}$): mGy/a γ - Dosisleistung (\dot{D}_γ): mGy/a 8,64 %

Externe γ - Dosisleistung ($\dot{D}_{\gamma\text{ext}}$): ± mGy/a Kosmische Dosisleistung (\dot{D}_x): mGy/a 16,31 %

Probenform: γ - Dosisleistung (\dot{D}_γ): mGy/a 8,64 %

Probendicke: cm β - Dosisleistung (\dot{D}_β): mGy/a 49,79 %

p : 18,13 % γ - Dosisleistung (\dot{D}_γ): mGy/a 8,64 %

Sättigungsgewichtszunahme des Bodens:

Gesamtdosisleistung (\dot{D}): mGy/a

TL Messung: 18,1 %
 Jährliche Dosis: 2,83 %
 Steinanteil: 0 %
 Gesamter statistischer Fehler: 18,32 %
 Kalibrierung: 4,85 %
 Th/U-Verhältnis: 0 %
 Feuchtigkeit: 1,88 %
 Gesamter systematischer Fehler: 5,2 %
 Gesamtfehler: 19,05 %

Alter
Alter: 1172 ± 223 Jahre
(846 a.c.)

Abb. 65 Berechnete Werte und Alter für die Probe „KI1-N5“ mit Massenkorrektur

3.3.3.3 Probenserie KI1-52



Abb. 66 Foto der Probe „KI1 - 52“

| | Gemessener Wert |
|----------------------------------|------------------------|
| α - Zerfälle | 12,525 |
| Paarzerfälle | 0,366 |
| K ₂ O Anteil | 4,51 % \pm 0,052% |
| Externe γ - Dosisleistung | 0,281 \pm 0,05 mGy/a |
| Kosmische Dosisleistung | 0,949 mGy/a |
| Feuchtigkeitsgehalt | 97,79% \pm 0,95% |
| Probendicke | 2 cm |

Tab. 15 Ermittelte Daten für die Altersbestimmung der Probe KI1 - 52

| Probe KI1 - 52 | | | |
|----------------|-----------------------|-------------------------------|---------------------|
| Chip Nummer | Bestrahlungsdauer [s] | α / β Dosis [Gy] | Interne Bezeichnung |
| 1, 2, 3, 10 | 0 | - | N00 |
| - | 300 | - / - | - |
| 7, 4, 11, 1 | 600 | 30,79 / 3,20 | Na2, Nb2, Sb2 |
| 8, 5, 11, 2 | 900 | 46,19 / 4,80 | Na3, Nb3, Sb3 |
| 9, 6, 13, 3 | 1200 | 61,58 / 6,41 | Na4, Nb4, Sb4 |
| 10, 14 | 1500 | 76,98 / 8,01 | Nb5, Sb5 |

Tab. 16 Messparameter der einzelnen Proben für Probe „KI1 - 52“

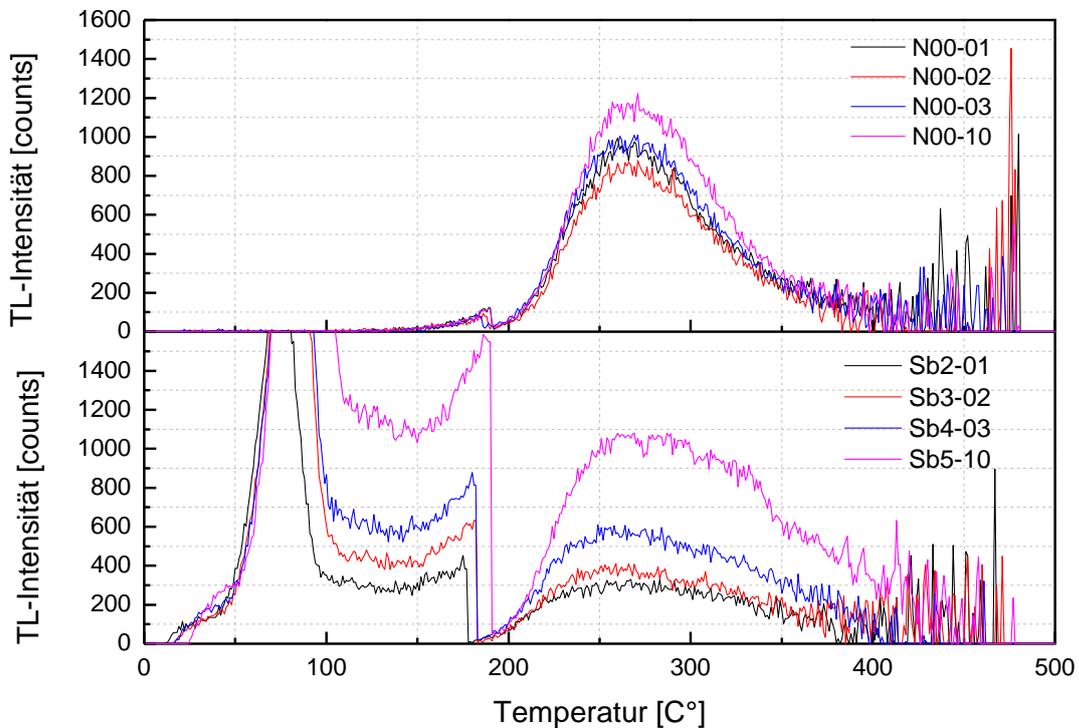


Abb. 67 Intensität über Temperatur der N00 und Sb Messungen der Probe „KI1-52“

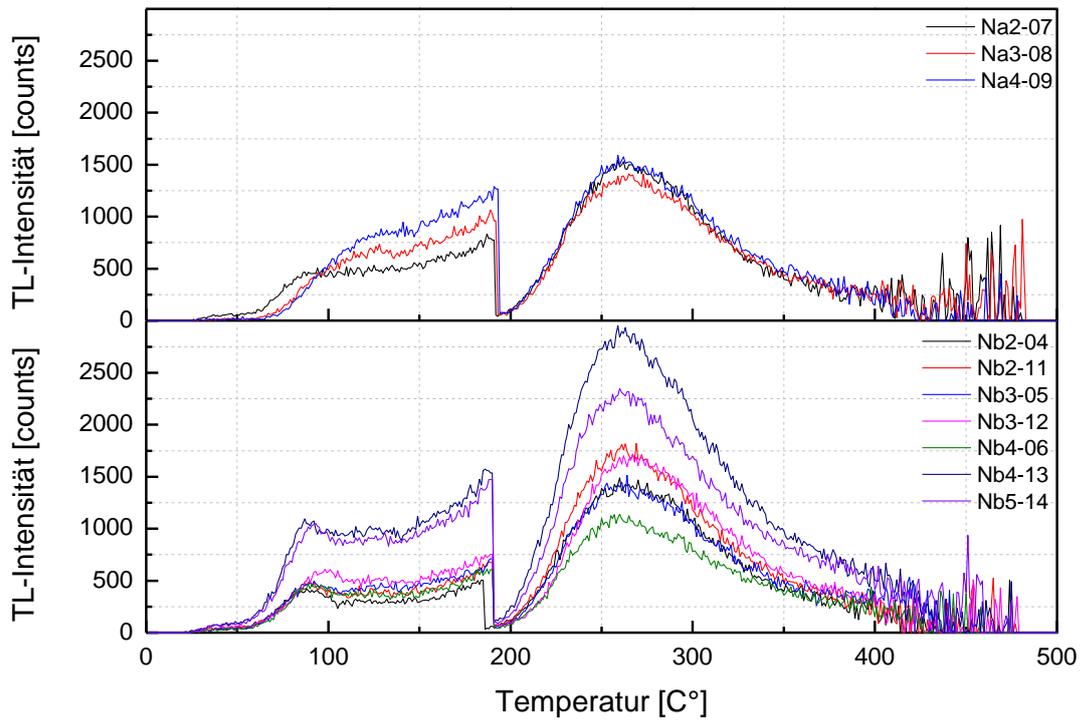


Abb. 68 Intensität über Temperatur der Na und Nb Messungen der Probe „K11-52“

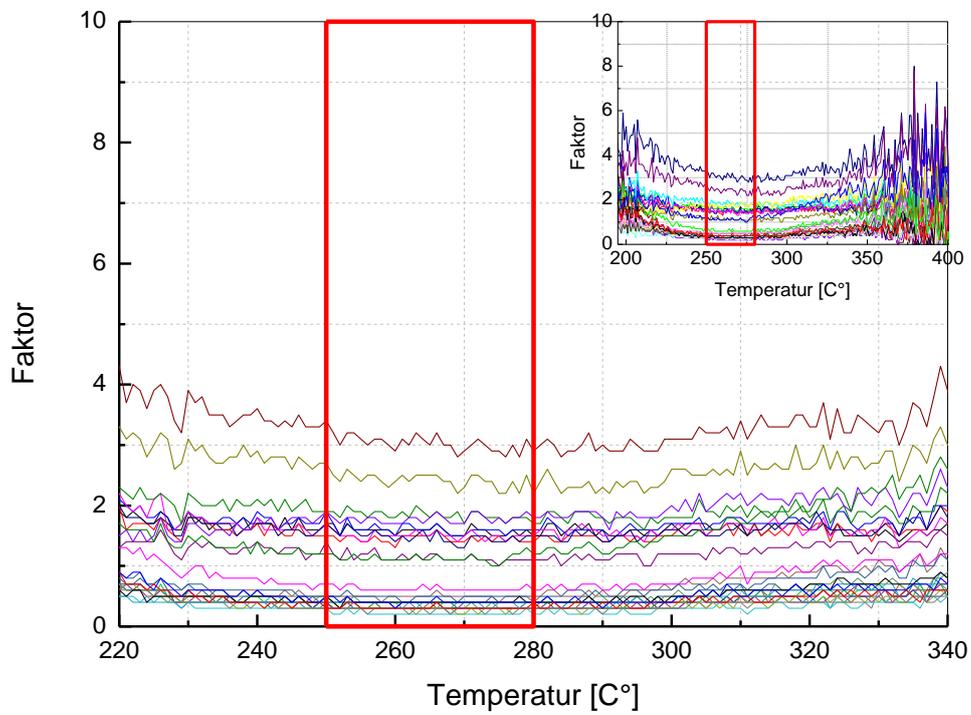


Abb. 69 Plateautest für alle Messungen mit ausgewähltem Intervall (rot eingezeichnet) für die Probe „K11-52“

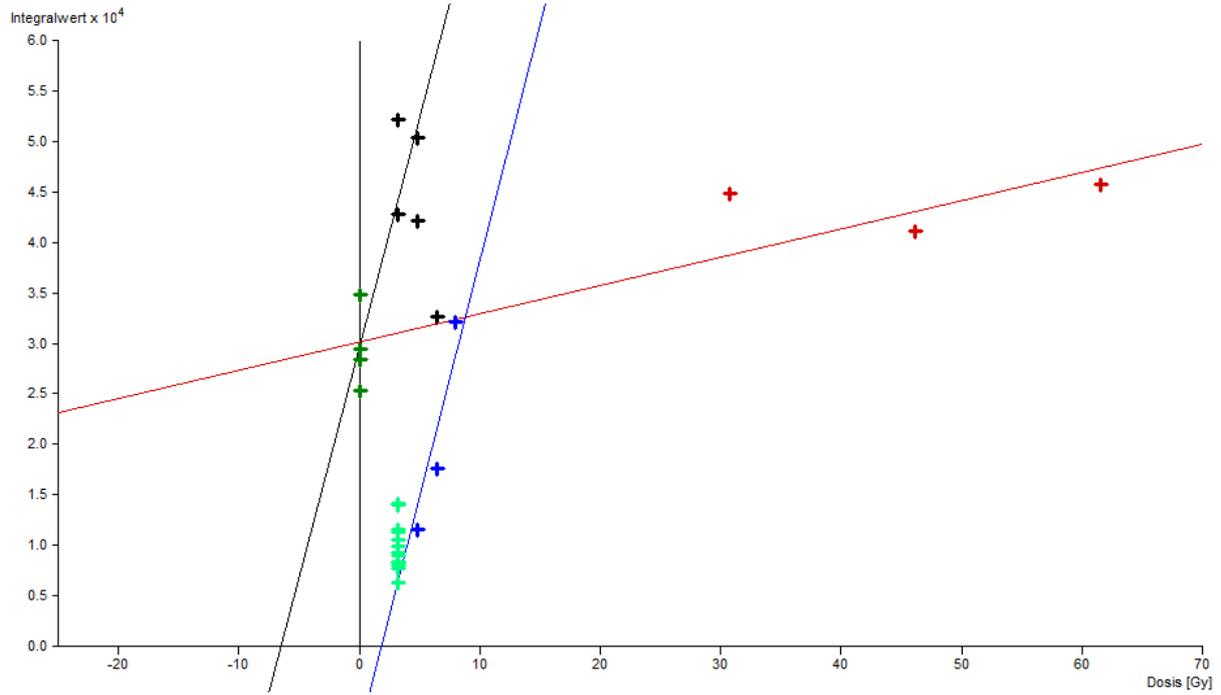


Abb. 70 Gemessene Punkte (N00, Na, Nb und Sb) ohne Massenkorrektur für die Probe „KI1-52“

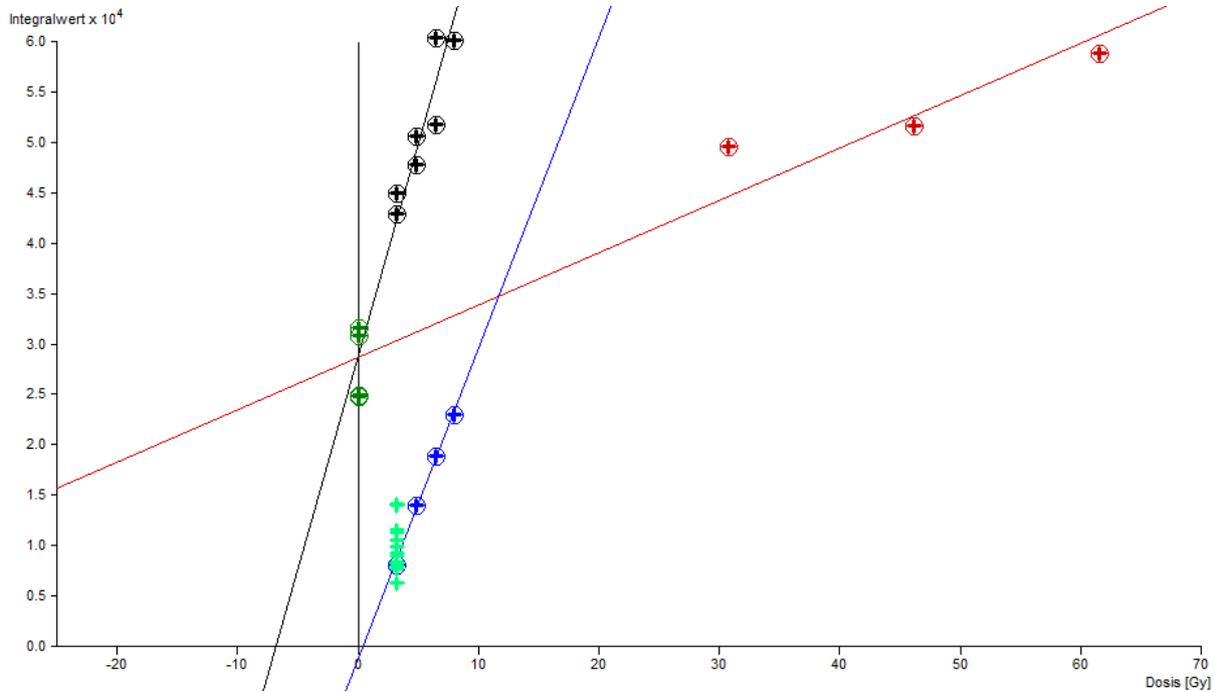


Abb. 71 Gemessene Punkte (N00, Na, Nb und Sb) mit Massenkorrektur für die Probe „KI1-52“

Messtechnik: Feinkorntechnik Grobkorntechnik

Titel: Datum der Messung:

Q_α : ± Gy Q_β : ± Gy I : ± Gy A : ±

α - Zerfälle: Counts/ks Paarzerfälle: Counts/ks

Gewichtszunahme bei Sättigung:

Feuchtigkeitsanteil: ± Effektive α - Dosisleistung (\dot{D}'_α): mGy/a 13,45 %

K_2O -Anteil: Wt % β - Abschwächung: 1 β - Dosisleistung (\dot{D}_β): mGy/a 59,42 %

Interne γ - Dosisleistung ($\dot{D}_{\gamma\text{int}}$): mGy/a γ - Dosisleistung (\dot{D}_γ): mGy/a 9,96 %

Externe γ - Dosisleistung ($\dot{D}_{\gamma\text{ext}}$): ± mGy/a Kosmische Dosisleistung (\dot{D}_k): mGy/a 17,16 %

Probenform: Gesamtdosisleistung (\dot{D}): 5,53 mGy/a

Probendicke: cm

p : 18,13 %

Sättigungsgewichtszunahme des Bodens:

TL Messung: 27,82 %
 Jährliche Dosis: 2,88 %
 Steinanteil: 0 %
 Gesamter statistischer Fehler: 27,97 %
 Kalibrierung: 5,24 %
 Th/U-Verhältnis: 0 %
 Feuchtigkeit: 1,92 %
 Gesamter systematischer Fehler: 5,58 %
 Gesamtfehler: 28,52 %

Alter: **Alter: 1506 ± 430 Jahre (512 a.c.)**

Abb. 72 Berechnete Werte und wahrscheinliches Alter für die Probe „KI1-52“ ohne Massenkorrektur

Messtechnik: Feinkorntechnik Grobkorntechnik

Titel: Datum der Messung:

Q_α : ± Gy Q_β : ± Gy I : ± Gy A : ±

α - Zerfälle: Counts/ks Paarzerfälle: Counts/ks

Gewichtszunahme bei Sättigung:

Feuchtigkeitsanteil: ± Effektive α - Dosisleistung (\dot{D}'_α): mGy/a 23,52 %

K_2O -Anteil: Wt % β - Abschwächung: 1 β - Dosisleistung (\dot{D}_β): mGy/a 52,51 %

Interne γ - Dosisleistung ($\dot{D}_{\gamma\text{int}}$): mGy/a γ - Dosisleistung (\dot{D}_γ): mGy/a 8,8 %

Externe γ - Dosisleistung ($\dot{D}_{\gamma\text{ext}}$): ± mGy/a Kosmische Dosisleistung (\dot{D}_k): mGy/a 15,16 %

Probenform: Gesamtdosisleistung (\dot{D}): 6,258 mGy/a

Probendicke: cm

p : 18,13 %

Sättigungsgewichtszunahme des Bodens:

TL Messung: 8,09 %
 Jährliche Dosis: 2,88 %
 Steinanteil: 0 %
 Gesamter statistischer Fehler: 8,59 %
 Kalibrierung: 4,93 %
 Th/U-Verhältnis: 0 %
 Feuchtigkeit: 2,03 %
 Gesamter systematischer Fehler: 5,33 %
 Gesamtfehler: 10,11 %

Alter: **Alter: 1168 ± 118 Jahre (850 a.c.)**

Abb. 73 Berechnete Werte und wahrscheinliches Alter für die Probe „KI1-52“ mit Massenkorrektur

| Probenbezeichnung | Alter [a] |
|-------------------|------------|
| Übungsziegel | 1183 ± 83 |
| KI1-N5 | 1172 ± 223 |
| KI1-52 | 1168 ± 118 |

Tab. 17 Alter für die Proben „Übungsziegel“, „KI1-N5“ sowie „KI1-52“

4 Diskussion

Im Folgenden werden die Ergebnisse, die unter Kapitel 3 dargestellt wurden, diskutiert und verglichen. Ebenso sollen subjektive Parameter, die zu den Ergebnissen in den Kap. 3 geführt haben, variiert werden, um zu zeigen, dass auch hier eine gewisse Objektivierung finden lässt. Dies ist besonders beim Plateautest notwendig, welcher der subjektivste Parameter der Auswertung darstellt.

Zuerst wird die Auswirkung der Verteilung von kosmischer zu terrestrischer Dosis untersucht, um die Variation des Alters bei verschiedenen Werten zu quantifizieren.

Da die Messung und Auswertung der Probe „Übungsziegel“ nur zur Verfestigung und zum Erlernen des Messprozederes durchgeführt wurde, wird auf eine Diskussion dieser Probe verzichtet, zumal die Ergebnisse den erwarteten Werten entsprachen (siehe unter 3.3.3.1).

4.1 Probenserien KI1-N5

4.1.1 Variation des Verhältnisses extern terrestrische/kosmische Dosis

Das Verhältnis der Strahlung wird bei einem festgehaltenen Temperaturintervall von 240-270 °C variiert.

The screenshot displays a software interface for radiometric dating. At the top, there are fields for 'Messtechnik' (Feinkorn- and Grobkorn-technik), 'Titel' (Probe N5), and 'Datum der Messung'. Below this, a summary row shows calculated values for Q_α , Q_β , I , and A in Gy. The main section contains several input fields and calculated results:

- α -Zerfälle: 11,111 Counts/ks; Paarzerfälle: 0,239 Counts/ks; Alpha-Zählrate Berechnen
- Gewichtszunahme bei Sättigung: 0,2
- Feuchtigkeitsanteil: 0,9492 ± 0,089; Effektive α -Dosisleistung (\dot{D}'_α): 1,569 mGy/a 27,06 %
- K_2O -Anteil: 3,87 Wt %; β -Abschwächung: 1; β -Dosisleistung (\dot{D}_β): 2,898 mGy/a 49,98 %
- Interne γ -Dosisleistung ($\dot{D}_{\gamma int}$): 1,504 mGy/a; γ -Dosisleistung (\dot{D}_γ): 1,05 mGy/a 18,11 %
- Externe γ -Dosisleistung ($\dot{D}_{\gamma ext}$): 0,949 ± 0,050 mGy/a; Kosmische Dosisleistung (\dot{D}_k): 0,281 mGy/a 4,85 %
- Probenform: flach; Probendicke: 2 cm; p: 18,13 %
- Sättigungsgewichtszunahme des Bodens: 0
- Gesamtdosisleistung (D): 5,798 mGy/a

On the right side, a table lists various error percentages:

| | |
|---------------------------------|---------|
| TL Messung: | 17,01 % |
| Jährliche Dosis: | 2,97 % |
| Steinanteil: | 0 % |
| Gesamter statistischer Fehler: | 17,27 % |
| Kalibrierung: | 4,89 % |
| Th/U-Verhältnis: | 0 % |
| Feuchtigkeit: | 1,93 % |
| Gesamter systematischer Fehler: | 5,26 % |
| Gesamtfehler: | 18,05 % |

At the bottom, the calculated age is shown: Alter: 1174 ± 212 Jahre (844 a.c.). A toolbar at the very bottom contains buttons for OK, Übernehmen, Abbrechen, Laden, Laden Par., Speichern, Drucken, Defaultwerte, E, DE, and Hilfe.

Abb. 74 Datierungsergebnisse mit Variation des Verhältnisses von terrestrischer/kosmischer Dosis für Probe KI1-N5

Messtechnik: Feinkorntechnik Grobkorntechnik

Titel: Datum der Messung:

Q_α : ± Gy Q_β : ± Gy I : ± Gy A : ±

α -Zerfälle: Counts/ks Paarzerfälle: Counts/ks

Gewichtszunahme bei Sättigung:

Feuchtigkeitsanteil: ± Effektive α -Dosisleistung (\dot{D}_α): mGy/a 26,78 %

K_2O -Anteil: Wt % β -Abschwächung: 1 β -Dosisleistung (\dot{D}_β): mGy/a 49,47 %

Interne γ -Dosisleistung ($\dot{D}_{\gamma\text{int}}$): mGy/a γ -Dosisleistung (\dot{D}_γ): mGy/a 13,25 %

Externe γ -Dosisleistung ($\dot{D}_{\gamma\text{ext}}$): ± mGy/a Kosmische Dosisleistung (\dot{D}_k): mGy/a 10,5 %

Probenform: cm ρ : 18,13 % p : 18,13 % Sättigungsgewichtszunahme des Bodens:

Gesamtdosisleistung (D): 5,858 mGy/a

TL Messung: 17,05 %
 Jährliche Dosis: 2,89 %
 Steinanteil: 0 %
 Gesamter statistischer Fehler: 17,29 %
 Kalibrierung: 4,85 %
 Th/U-Verhältnis: 0 %
 Feuchtigkeit: 1,91 %
 Gesamter systematischer Fehler: 5,22 %
 Gesamtfehler: 18,06 %

Alter: **Alter: 1161 ± 210 Jahre**
(857 a.c.)

Abb. 75 Datierungsergebnisse mit Variation des Verhältnisses von terrestrischer/kosmischer Dosis für Probe KI1-N5

| Probe KI1-N5 | | |
|-----------------------------|-------------------------|------------|
| Terrestrische Dosis [mGy/a] | Kosmische Dosis [mGy/a] | Alter [a] |
| 0,281 | 0,949 | 1172 ± 223 |
| 0,949 | 0,281 | 1174 ± 212 |
| 0,615 | 0,615 | 1161 ± 210 |

Tab. 18 Resultierendes Alter bei verschiedenen Dosisverhältnissen für Probe KI1-N5

4.1.2 Variation des Plateaus

Wie auf Abb. 61 erkennbar ist, teilt sich das durch Division der Glowkurven durch eine N00-Kurve erhaltene Plateau in zwei „Subplateaus“, wobei die Grenze bei ca. 280 °C gezogen werden kann. Es scheint schlüssig, jeweils ein Temperaturintervall unterhalb dieser Grenze (240-270 °C), eines darüber (290-320 °C) und ein kombiniertes Intervall zu untersuchen. Ersteres wurde bereits unter 3.3.3.2 grafisch dargestellt.

Die Veränderung des Temperaturintervalls wird bei einem festgehaltenen Verhältnis der externen (kosmisch/terrestrisch) Strahlung, wie aus Abb. 78 ersichtlich, vollzogen:

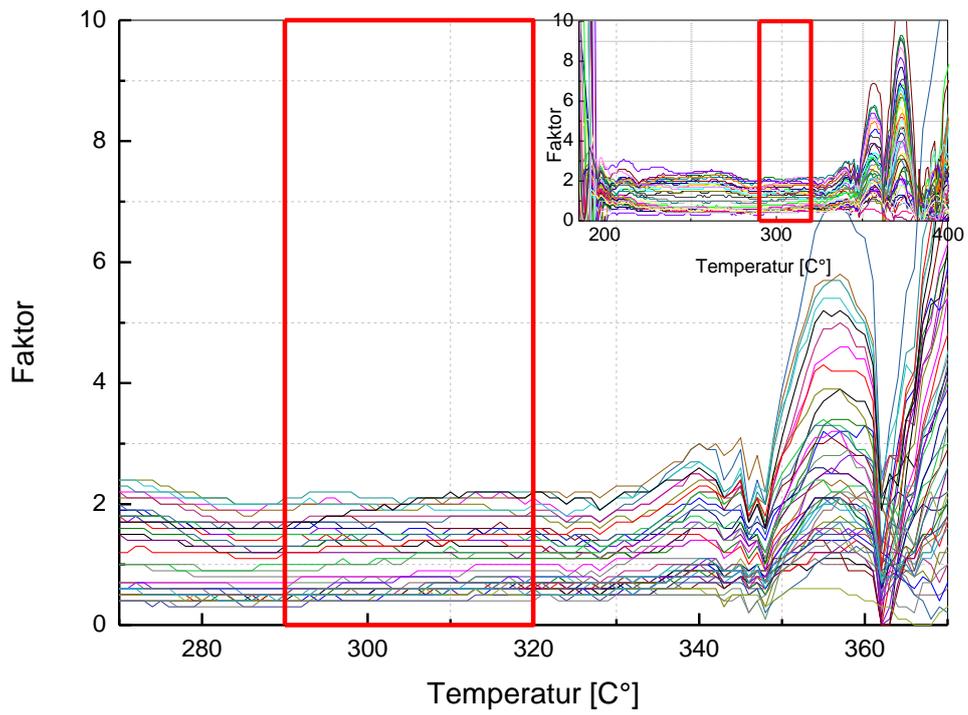


Abb. 76 Variation des Plateauintervalls von 290-320°C für die Probe KI1-N5

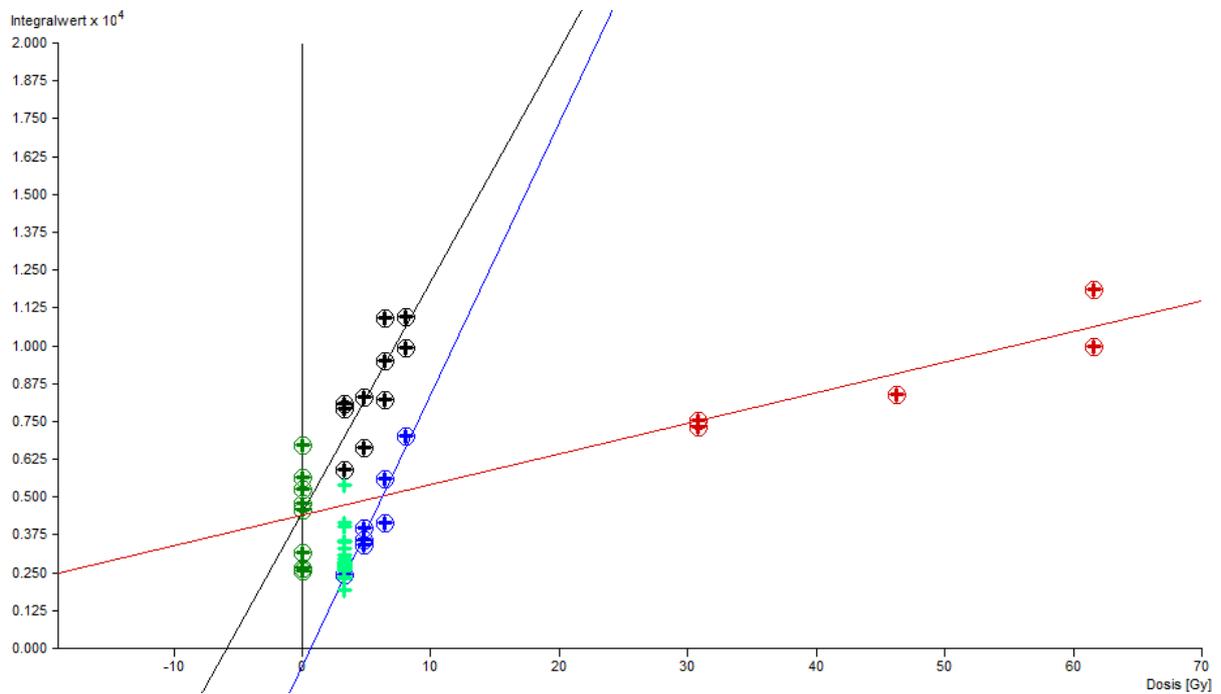


Abb. 77 Gemessene Punkte des Plateauintervalls 290-320°C für die Probe KI1-N5

Messtechnik: Feinkorntechnik Grobkorntechnik

Titel: Datum der Messung:

Q_α : ± Gy Q_β : ± Gy I : ± Gy A : ±

α - Zerfälle: Counts/ks Paarzerfälle: Counts/ks

Gewichtszunahme bei Sättigung:

Feuchtigkeitsanteil: ± Effektive α - Dosisleistung (\dot{D}_α): mGy/a 26,05 %

K_2O -Anteil: Wt % β - Abschwächung: 1 β - Dosisleistung (\dot{D}_β): mGy/a 49,27 %

Interne γ - Dosisleistung ($\dot{D}_{\gamma\text{int}}$): mGy/a γ - Dosisleistung (\dot{D}_γ): mGy/a 8,55 %

Externe γ - Dosisleistung ($\dot{D}_{\gamma\text{ext}}$): ± mGy/a Kosmische Dosisleistung (\dot{D}_k): mGy/a 16,13 %

Probenform: ρ : 18,13 %

Probindicke: cm Gesamtdosisleistung (D): 5,882 mGy/a

Sättigungsgewichtszunahme des Bodens:

TL Messung: 19,34 %
 Jährliche Dosis: 2,83 %
 Steinanteil: 0 %
 Gesamter statistischer Fehler: 19,55 %
 Kalibrierung: 4,84 %
 Th/U-Verhältnis: 0 %
 Feuchtigkeit: 1,89 %
 Gesamter systematischer Fehler: 5,19 %
 Gesamtfehler: 20,23 %

Alter: **Alter: 1134 ± 229 Jahre**
(884 a.c.)

Abb. 78 Datierungsergebnisse für Plateauintervall 290-320°C der Probe K11-N5

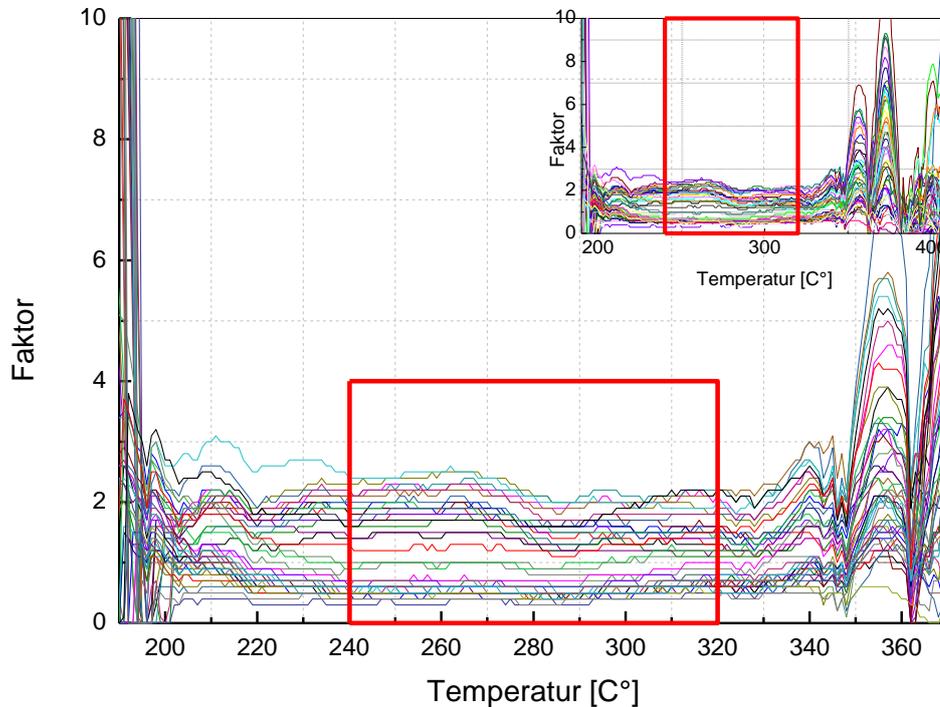


Abb. 79 Variation des Plateauintervalls von 240-320°C für die Probe K11-N5

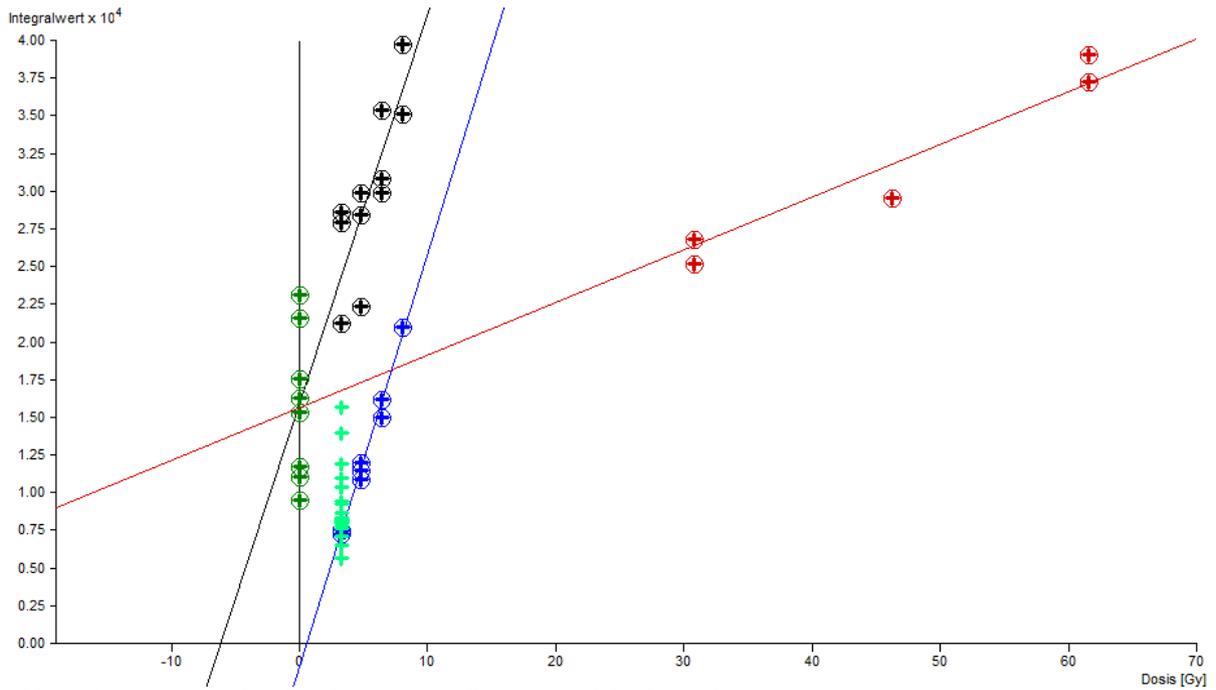


Abb. 80 Gemessene Punkte des Plateauintervalls 240-320°C für die Probe KI1-N5

Messtechnik: Feinkorntechnik Grobkorntechnik

Titel: Probe N5

Datum der Messung:

Q_{α} : 44,549 ± 10,271 Gy Q_{β} : 6,308 ± 1,474 Gy I : 0,614 ± 0,226 Gy A : 0,142 ± 0

α -Zerfälle: 11,111 Counts/ks Paarzerfälle: 0,239 Counts/ks

Gewichtszunahme bei Sättigung: 0,2

Feuchtigkeitsanteil: 0,9492 ± 0,089 Effektive α -Dosisleistung (D'_{α}): 1,564 mGy/a 26,45 %

K_2O -Anteil: 3,87 Wt % β -Abschwächung: 1 β -Dosisleistung (D_{β}): 2,898 mGy/a 49 %

Interne γ -Dosisleistung ($D_{\gamma int}$): 1,504 mGy/a γ -Dosisleistung (D_{γ}): 0,503 mGy/a 8,51 %

Externe γ -Dosisleistung ($D_{\gamma ext}$): 0,281 ± 0,050 mGy/a Kosmische Dosisleistung (D_k): 0,949 mGy/a 16,05 %

Probenform: flach

Probindicke: 2 cm

p : 18,13 %

Sättigungsgewichtszunahme des Bodens: 0

Gesamtdosisleistung (D): 5,914 mGy/a

TL Messung: 16,62 %
 Jährliche Dosis: 2,84 %
 Steinanteil: 0 %
 Gesamter statistischer Fehler: 16,86 %
 Kalibrierung: 4,83 %
 Th/U-Verhältnis: 0 %
 Feuchtigkeit: 1,89 %
 Gesamter systematischer Fehler: 5,19 %
 Gesamtfehler: 17,64 %

Alter: **Alter: 1171 ± 207 Jahre**
(847 a.c.)

Abb. 81 Datierungsergebnisse für Plateauintervall 240-320°C der Probe KI1-N5

| Probe KI1-N5 | |
|------------------------|------------|
| Temperaturbereich [C°] | Alter [a] |
| 240 – 270 | 1172 ± 223 |
| 290 – 320 | 1134 ± 229 |
| 240 - 320 | 1171 ± 207 |

Tab. 19 Resultierendes Alter bei verschiedenen Temperaturplateauintervallen für Probe KI1-N5

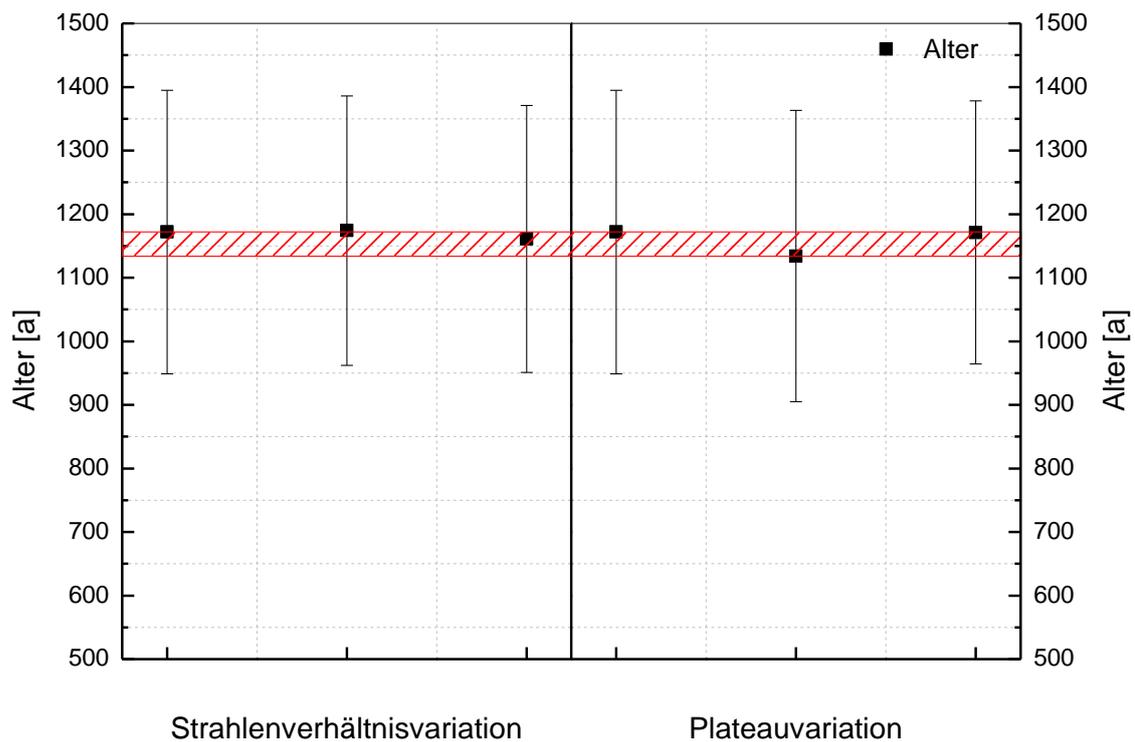


Abb. 82 Zusammenfassung aller Variationen mit eingezeichnetem Ergebnisintervall für Probe KI1-N5

Auf Abb. 82 sind die einzelnen Altersbestimmungen inkl. Fehler für die je unter 4.1.1 und 4.1.2 vorgenommenen Variationen zu sehen. Wie leicht erkennbar ist, variieren die berechneten Ergebnisse auch bei Veränderungen des Strahlungsverhältnisses oder des Plateauintervalls nur in einem kleinen Bereich. So liegen der Höchst- und Minimalwert der Strahlungsveränderung nur um 13 a auseinander, jene der Plateauvariation um 38 a (Fehler 13 a bzw. 22 a).

Damit lässt sich feststellen, dass die oben vermutete Subjektivität der Ergebnisse für die Probe KI1-N5 nur sehr bedingt zutrifft. Vielmehr kann durch Verschiebung der zur Disposition stehenden Parameter grundsätzlich ein „Vertrauensbereich“ geschaffen werden, welcher für eine solide Datierung eine gute Basis darstellt.

4.1.3 Verwerfung einzelner Messpunkte

Bei Probe KI1-N5 wurden insgesamt 31 Dosimeter Plättchen ausgemessen, aufgeteilt in drei Serien. Bei Serie zwei wurden jedoch Anomalitäten festgestellt: Wie in den Abb. 83 und Abb. 84 dargestellt, entsprechen einige Glowkurven nicht den erwarteten Verlauf (roter Kreis). Vielmehr zeigen sie bis auf ein messtechnisches Rauschen keine TL-Eigenschaft (Plättchen 17 bis 23).

Dies kann man besonders gut in Abb. 85 erkennen: Die N00 Punkte liegen de facto auf der x-Achse und weisen keine messtechnisch relevante TL-Intensität auf (roter Kreis).

Nach Absprache mit Hr. Amtsdir. Fugger und Dipl. -Ing. Bergmann wurde eine dritte Messserie durchgeführt, um etwaiges anomales Fading (siehe 2.3.2.2) auszuschließen oder zu bestätigen.

Nach Auswerten der dritten Messserie (Plättchen 18-31) kann ein anomales Fading ausgeschlossen werden: Die N00 Messungen zeigen die erwartete Glowkurvenstruktur und auch die TL-Intensität im gewählten Plateauintervall haben glaubwürdige Werte. Daher werden alle Messkurven der Plättchen 17-23 verworfen, wie es zum Auslöchen der TL-Dosis kommen konnte kann nur gemutmaßt werden (eventuelles Vertauschen der Plättchen in der Mappe, da drei KollegInnen parallel Proben gemessen haben).

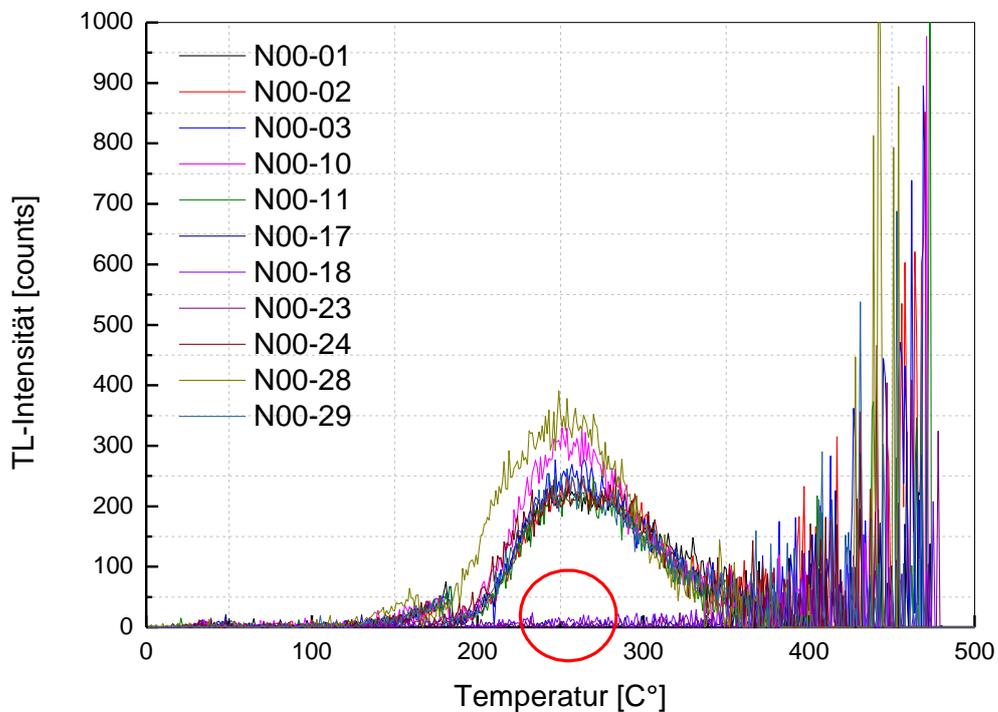


Abb. 83 Intensität über Temperatur der N00 Messungen für die Probe „K11-N5“

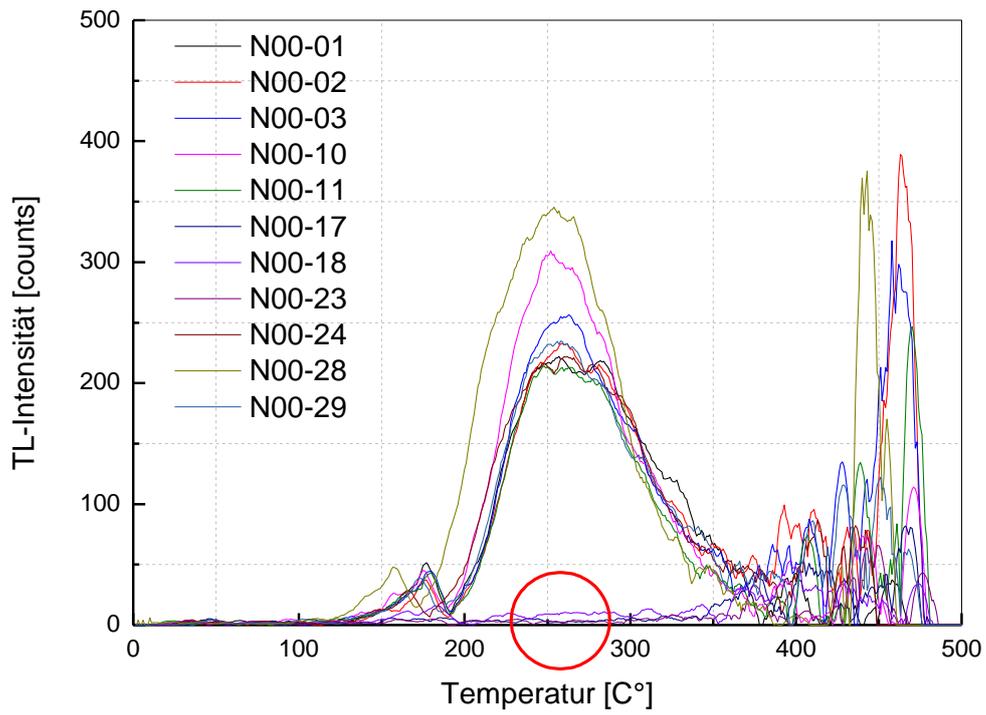


Abb. 84 Intensität über Temperatur der N00 Messungen für die Probe „KI1-N5“ mit 21 Punkt Glättung

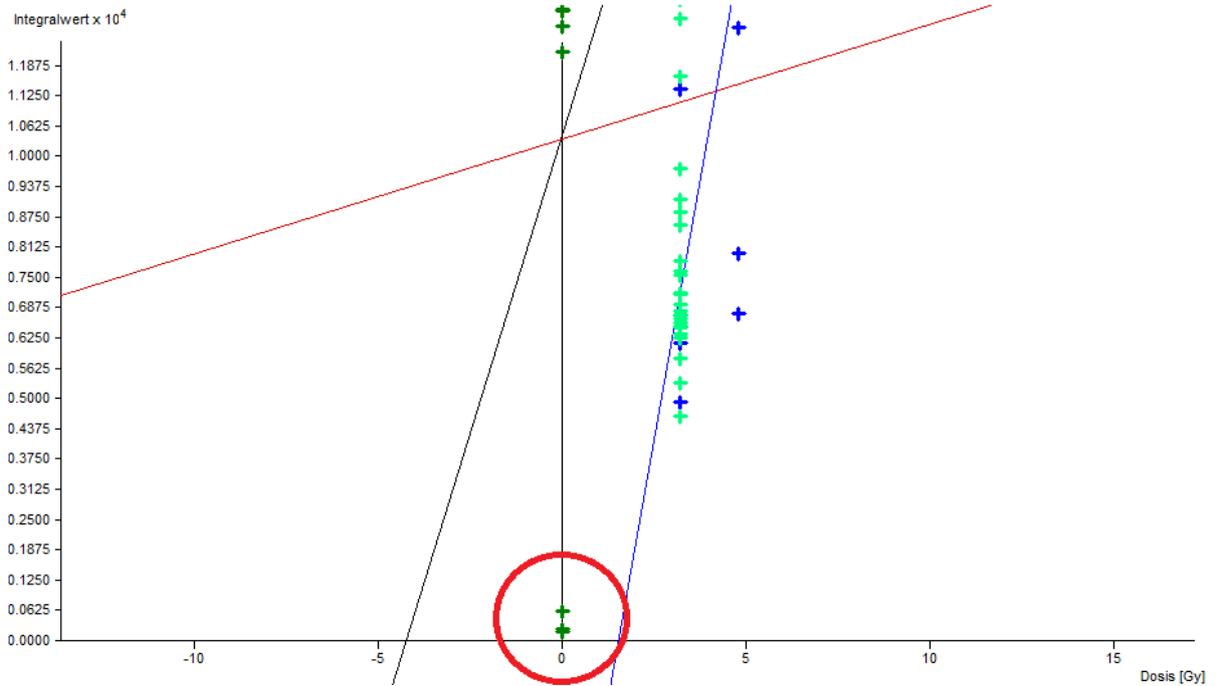


Abb. 85 Messergebnisse der 3ten Messreihe für die N00 und Probe „KI1-N5“ (roter Kreis)

4.2 Probenserien KI1-52

4.2.1 Variation des Verhältnisses von terrestrische/kosmische Dosis

Wie schon bei der Probe KI1-N5 muss auch hier das Verhältnis der terrestrischen zur kosmischen Strahlung variiert werden, da keine objektiven Daten von Messstationen zur Verfügung standen.

Die Variation wird unter einem festgehaltenen Temperaturintervall von 250-280 °C durchgeführt:

| | | | |
|--|---|---|--|
| Messtechnik <input checked="" type="radio"/> Feinkorntechnik <input type="radio"/> Grobkorntechnik | Titel Probe 52 | Datum der Messung 18.7.2018 | |
| Q_α : 55,074 ± 6,078 Gy | Q_β : 6,801 ± 0,709 Gy | I : 0,42 ± 0,15 Gy | A : 0,123 ± 0,001 |
| α - Zerfälle: 12,525 Counts/ks Gewichtszunahme bei Sättigung: 0,2 Feuchtigkeitsanteil: 0,9779 ± 0,095 Größen Berechnen | Paarzerfälle: 0,366 Counts/ks Alpha-Zählrate Berechnen | Effektive α - Dosisleistung (\dot{D}'_α): 1,526 mGy/a 24,65 % | TL Messung: 8,02 % Jährliche Dosis: 3 % Steinanteil: 0 % Fehler Steinanteil |
| K_2O -Anteil: 4,51 Wt % Kaliumoxidgehalt Berechnen | β - Abschwächung: 1 | β - Dosisleistung (\dot{D}'_β): 3,286 mGy/a 53,08 % | Gesamter statistischer Fehler: 8,56 % |
| Interne γ - Dosisleistung ($\dot{D}'_{\gamma\text{int}}$): 1,769 mGy/a | | γ - Dosisleistung (\dot{D}'_γ): 1,098 mGy/a 17,74 % | Kalibrierung: 4,97 % Th/U-Verhältnis: 0 % Feuchtigkeit: 2,08 % |
| Externe γ - Dosisleistung ($\dot{D}'_{\gamma\text{ext}}$): 0,949 ± 0,050 mGy/a | | Kosmische Dosisleistung (\dot{D}'_k): 0,281 mGy/a 4,54 % Kosmische Dosisleistung Berechnen | Gesamter systematischer Fehler: 5,39 % |
| Externe γ -Dosisleistung Berechnen | | Gesamtdosisleistung (\dot{D}): 6,191 mGy/a | Gesamtfehler: 10,12 % |
| Probenform: flach | | | Alter Alter: 1166 ± 118 Jahre (852 a.c.) |
| Probendicke: 2 cm p: 18,13 % | | | |
| Sättigungsgewichtszunahme des Bodens: 0 | | | |
| <input checked="" type="button"/> OK | <input checked="" type="button"/> Übernehmen | <input checked="" type="button"/> Abbrechen | <input type="button"/> Laden |
| <input type="button"/> Laden Par. | <input type="button"/> Speichern | <input type="button"/> Drucken | <input type="button"/> Defaultwerte |
| <input type="button"/> E | <input type="button"/> DE | <input type="button"/> Hilfe | |

Abb. 86 Datierungsergebnisse mit Variation des Verhältnisses von terrestrischer/kosmischer Dosis für Probe KI1-52

Messtechnik: Feinkorntechnik Grobkorntechnik

Titel: Datum der Messung:

Q_α : ± Gy Q_β : ± Gy I : ± Gy A : ±

α - Zerfälle: Counts/ks Paarzerfälle: Counts/ks

Gewichtszunahme bei Sättigung:

Feuchtigkeitsanteil: ± Effektive α - Dosisleistung (\dot{D}_α): mGy/a 24,41 %

K_2O -Anteil: Wt % β - Abschwächung: 1 β - Dosisleistung (\dot{D}_β): mGy/a 52,57 %

Interne γ - Dosisleistung ($\dot{D}_{\gamma\text{int}}$): mGy/a γ - Dosisleistung (\dot{D}_γ): mGy/a 13,18 %

Externe γ - Dosisleistung ($\dot{D}_{\gamma\text{ext}}$): ± mGy/a Kosmische Dosisleistung (\dot{D}_k): mGy/a 9,84 %

Probenform: β - Dosisleistung (\dot{D}_β): mGy/a 52,57 %

Probindicke: cm Gesamtdosisleistung (D): mGy/a

p : 18,13 %

Sättigungsgewichtszunahme des Bodens:

TL Messung: 8,03 %
 Jährliche Dosis: 2,94 %
 Steinanteil: 0 %
 Gesamter statistischer Fehler: 8,55 %
 Kalibrierung: 4,94 %
 Th/U-Verhältnis: 0 %
 Feuchtigkeit: 2,06 %
 Gesamter systematischer Fehler: 5,35 %
 Gesamtfehler: 10,09 %

Alter: **Alter: 1155 ± 117 Jahre (863 a.c.)**

Abb. 87 Datierungsergebnisse mit Variation des Verhältnisses von terrestrischer/kosmischer Dosis für Probe K11-52

| Probe K11-52 | | |
|-----------------------------|-------------------------|------------|
| Terrestrische Dosis [mGy/a] | Kosmische Dosis [mGy/a] | Alter [a] |
| 0,281 | 0,949 | 1168 ± 118 |
| 0,949 | 0,281 | 1166 ± 118 |
| 0,615 | 0,615 | 1155 ± 117 |

Tab. 20 Resultierendes Alter bei verschiedenen Dosisverhältnissen für Probe K11-52

4.2.2 Variation des Plateaus

Wie in Abb. 69 ersichtlich ist, kann kein „reines“ Plateau gefunden werden, da sich die durch N00 dividierten Messkurven wie eine Parabel darstellen. Demnach kann die Auswahl eines Plateaus mit einer hohen Subjektivität behaftet sein. Im Folgenden wird versucht diese vermutete Subjektivität durch eine Variation des Auswahlbereiches zu objektivieren.

Die gewählten Temperaturintervalle umfassen der Reihe nach je das geringstmögliche Intervall (250-280 °C), das höchstmögliche (280-320 °C) sowie deren Kombination (250-320 °C), wobei das erste Intervall unter 3.3.3.3 zu finden ist:

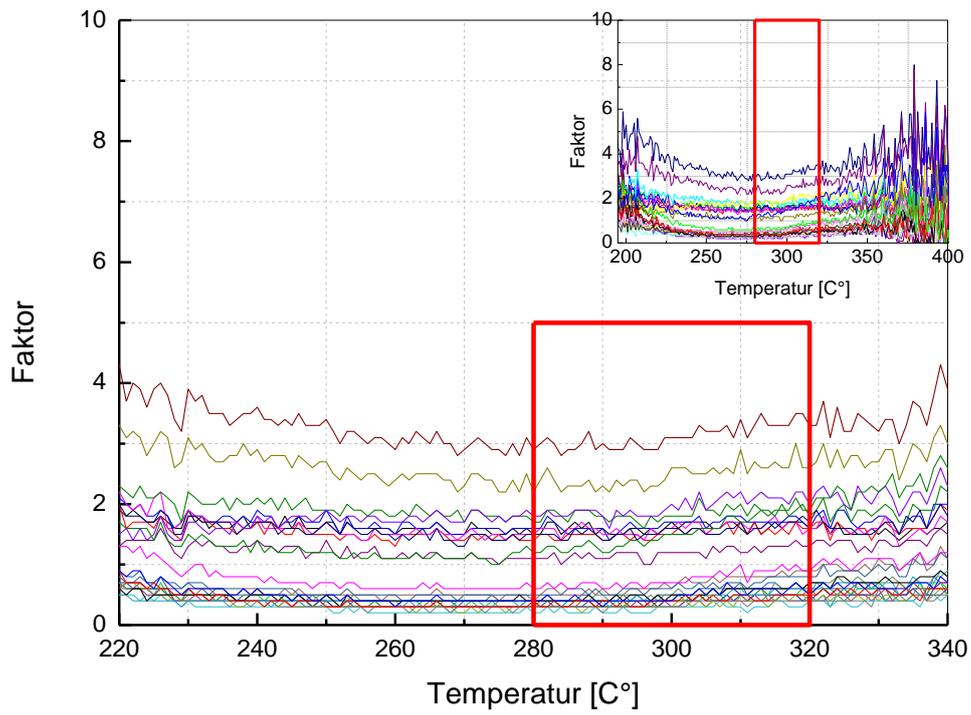


Abb. 88 Variation des Plateauintervalls von 280-320°C für die Probe KI1-52

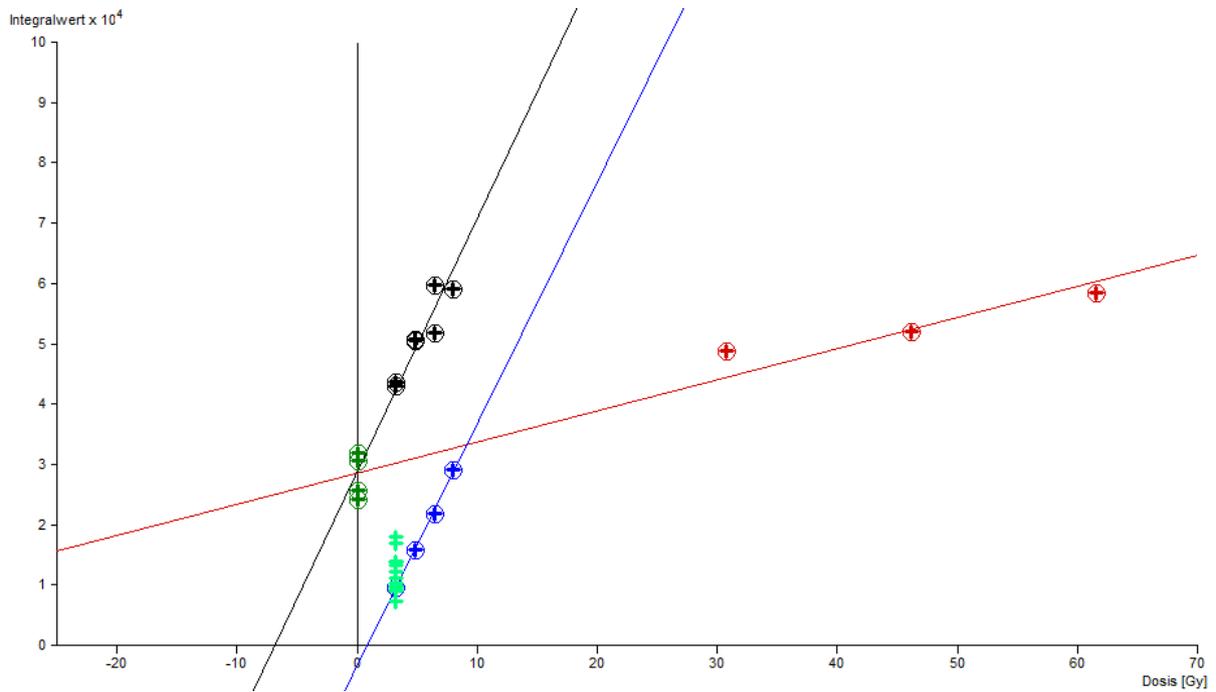


Abb. 89 Gemessene Punkte des Plateauintervalls 280-320°C für die Probe „KI1-52“

Messtechnik: Feinkorntechnik Grobkorntechnik

Titel: Datum der Messung:

Q_α : ± Gy Q_β : ± Gy I : ± Gy A : ±

α -Zerfälle: Counts/ks Paarzerfälle: Counts/ks

Gewichtszunahme bei Sättigung:

Feuchtigkeitsanteil: ± Effektive α -Dosisleistung (\dot{D}_α): mGy/a 24,24 %

K_2O -Anteil: Wt % β -Abschwächung: 1 β -Dosisleistung (\dot{D}_β): mGy/a 52,02 %

Interne γ -Dosisleistung ($\dot{D}_{\gamma\text{int}}$): mGy/a γ -Dosisleistung (\dot{D}_γ): mGy/a 8,72 %

Externe γ -Dosisleistung ($\dot{D}_{\gamma\text{ext}}$): ± mGy/a Kosmische Dosisleistung (\dot{D}_k): mGy/a 15,02 %

Probenform: β -Dosisleistung (\dot{D}_β): mGy/a 52,02 %

Probindicke: cm Gesamtdosisleistung (D): mGy/a

p: 18,13 %

Sättigungsgewichtszunahme des Bodens:

| | |
|---|--------|
| TL Messung: | 7,16 % |
| Jährliche Dosis: | 2,89 % |
| Steinanteil: | 0 % |
| <input type="button" value="Fehler Steinanteil"/> | |
| Gesamter statistischer Fehler: | 7,72 % |
| Kalibrierung: | 4,91 % |
| Th/U-Verhältnis: | 0 % |
| Feuchtigkeit: | 2,04 % |
| Gesamter systematischer Fehler: | 5,32 % |
| Gesamtfehler: | 9,38 % |

Alter: **Alter: 1221 ± 114 Jahre (797 a.c.)**

Abb. 90 Datierungsergebnisse für Plateauintervall 280-320°C der Probe K11-52

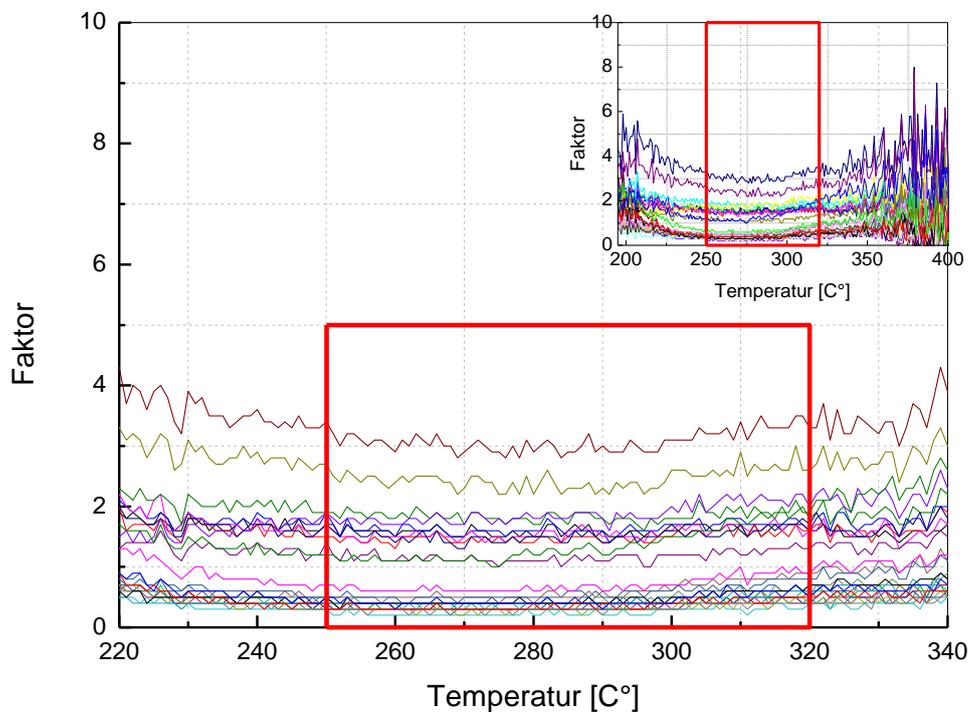


Abb. 91 Variation des Plateauintervalls von 250-320°C für die Probe K11-N5

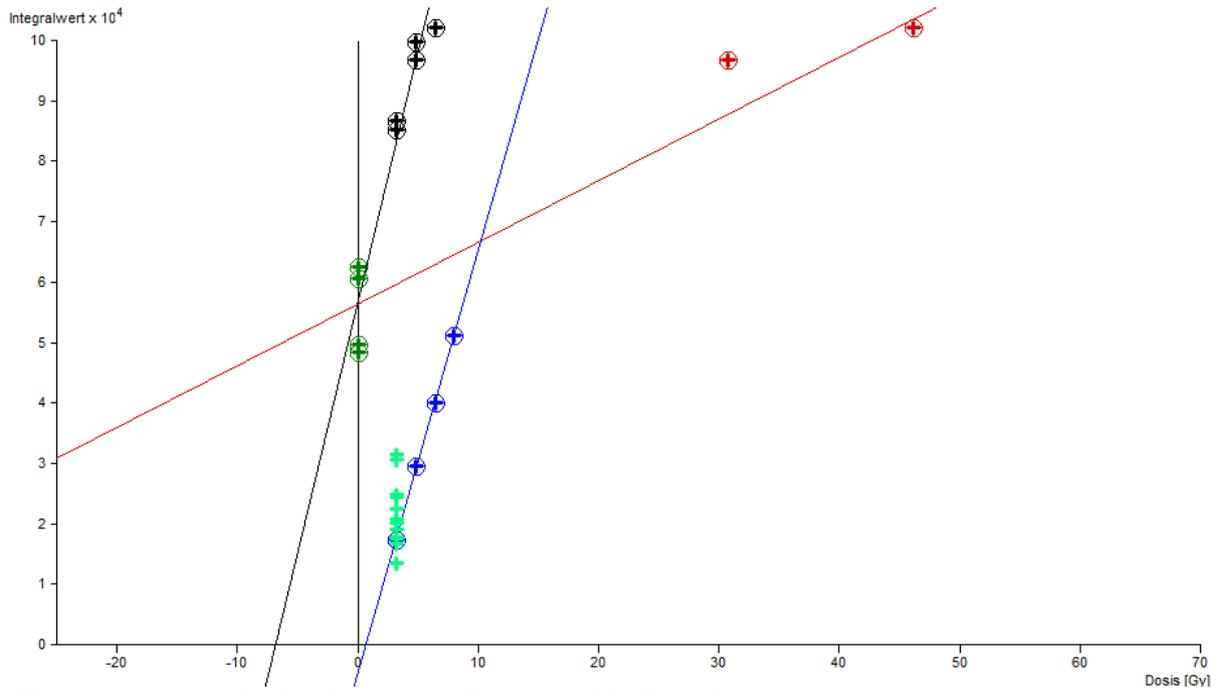


Abb. 92 Gemessene Punkte des Plateauintervalls 250-320°C für die Probe „KI1-52“

| | | | | | |
|---|--|--|---|--------------------------------|--------|
| Messtechnik <input checked="" type="radio"/> Feinkorntechnik <input type="radio"/> Grobkorntechnik | | Titel Probe 52 | | Datum der Messung 18.7.2018 | |
| Q_α : 55,195 ± 5,972 Gy | Q_β : 6,824 ± 0,69 Gy | I : 0,668 ± 0,05 Gy | A : 0,124 ± 0,001 | | |
| α - Zerrfälle: 12,525 Counts/ks | Paarzerfälle: 0,366 Counts/ks | Alpha-Zählrate Berechnen | | TL Messung: | 7,28 % |
| Gewichtszunahme bei Sättigung: 0,2 | Effektive α - Dosisleistung (\dot{D}'_α): 1,528 mGy/a 24,2 % | | Jährliche Dosis: | 2,89 % | |
| Feuchtigkeitsanteil: 0,9779 ± 0,095 | Größen Berechnen | | Steinanteil: | 0 % | |
| K_2O -Anteil: 4,51 Wt % | β - Abschwächung: 1 | β - Dosisleistung (\dot{D}_β): 3,286 mGy/a 52,04 % | Gesamter statistischer Fehler: 7,83 % | | |
| Kaliumoxidgehalt Berechnen | | Interne γ - Dosisleistung ($\dot{D}_{\gamma, \text{int}}$): 1,769 mGy/a | γ - Dosisleistung (\dot{D}_γ): 0,551 mGy/a 8,73 % | Kalibrierung: 4,92 % | |
| Externe γ - Dosisleistung ($\dot{D}_{\gamma, \text{ext}}$): 0,281 ± 0,050 mGy/a | | Kosmische Dosisleistung (\dot{D}_k): 0,949 mGy/a 15,03 % | | Th/U-Verhältnis: 0 % | |
| Externe γ -Dosisleistung Berechnen | | Kosmische Dosisleistung Berechnen | | Feuchtigkeit: 2,04 % | |
| Probenform: flach | Gesamtdosisleistung (\dot{D}): 6,314 mGy/a | | Gesamter systematischer Fehler: 5,32 % | | |
| Probendicke: 2 cm | p: 18,13 % | | Gesamtfehler: 9,47 % | | |
| Sättigungsgewichtszunahme des Bodens: 0 | | Alter Alter: 1187 ± 112 Jahre (831 a.c.) | | | |
| <input type="button" value="OK"/> <input type="button" value="Übernehmen"/> <input type="button" value="Abbrechen"/> <input type="button" value="Laden"/> <input type="button" value="Laden Par."/> <input type="button" value="Speichern"/> <input type="button" value="Drucken"/> <input type="button" value="Defaultwerte"/> <input type="button" value="E"/> <input type="button" value="DE"/> <input type="button" value="Hilfe"/> | | | | | |

Abb. 93 Datierungsergebnisse für Plateauintervall 250-320°C der Probe KI1-52

| Probe KI1-52 | |
|------------------------|------------|
| Temperaturbereich [C°] | Alter [a] |
| 250 - 280 | 1168 ± 118 |
| 280 - 320 | 1221 ± 114 |
| 250 - 320 | 1187 ± 112 |

Tab. 21 Resultierendes Alter bei verschiedenen Temperaturplateauintervallen für Probe KI1-52

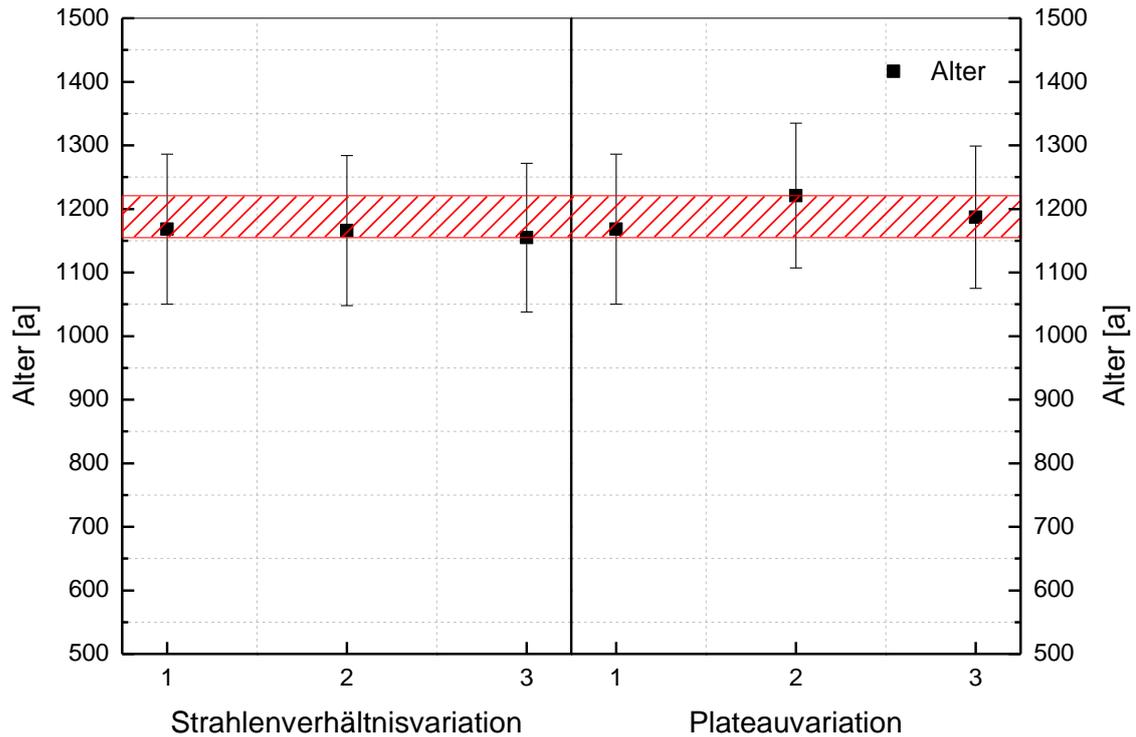


Abb. 94 Zusammenfassung aller Variationen mit eingezeichnetem Ergebnisintervall für Probe KI1-52

Abb. 94 zeigt alle Datierungsergebnisse der Probe KI1-52 für die vorangegangenen Variationen inkl. Fehler. Wie leicht ersichtlich ist, variieren die Werte der Strahlenverhältnisvariation weniger stark als jene der Plateauvariation, auch im Vergleich mit der Probe KI1-N5. Dies kann vor allem dadurch erklärt werden, als dass das Plateau der Probe KI1-52 parabelförmig ist, während jenes der Probe N5 „Terrassen“ zeigt.

Trotzdem halten sich die Differenzen der Absolutwerte für Probe 52 (Strahlungsverhältnisvariation 13 a, Plateauvariation 53 a) und deren Fehler (1 a bzw. 6a) in Grenzen.

5 Interpretation

Da beide Probenstücke innerhalb des Hangofens gefunden wurden, kann davon ausgegangen werden, dass beide das gleiche Alter aufweisen sollten (die thermische Uhr durch den Brennvorgang zum gleichen Zeitpunkt zurückgesetzt wurde). Deshalb werden in Abb. 95 auch alle Parametervariationen für beide Proben gezeigt, wobei die dargestellten Datenpunkte 1-5 für die Probe KI1-N5 gelten und die Messpunkte 6-10 für Probe KI1-52.

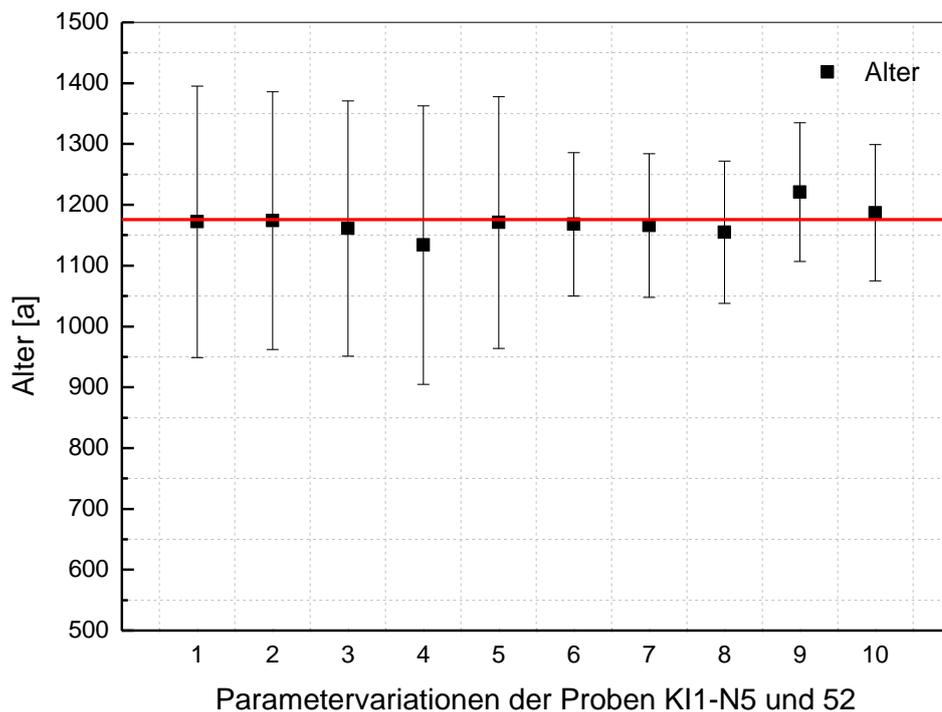


Abb. 95 Ermitteltes Alter für beide Proben bei Variation der Parameter inkl. Fehler

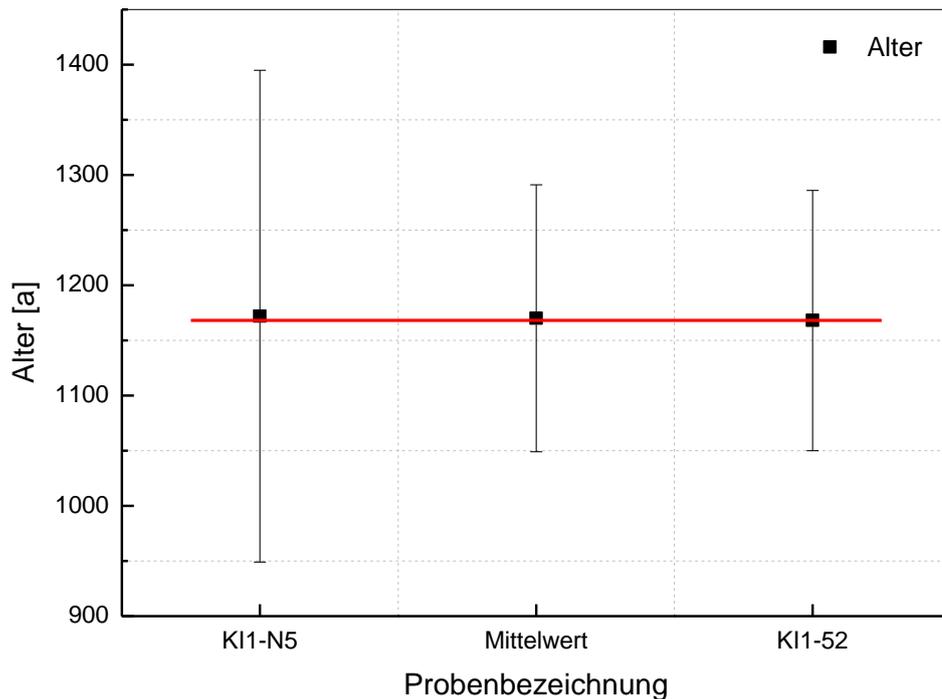


Abb. 96 Ermitteltes Probenalter für beide Proben und Mittelwert inkl. mittlerer Fehler des Mittelwertes

| Zusammenfassung | | |
|-----------------|------------|-------------------|
| | Probenname | Alter [a] |
| | KI1-N5 | 1172 ± 223 |
| | KI1-52 | 1168 ± 118 |
| | | 1170 ± 121 |

Tab. 22 Zusammenfassung der Ergebnisse mit den Parametern der einzelnen Proben wie unter 3 angegeben

Zusammenfassend kann also eine Schätzung über das Alter der zu bestimmenden Proben unternommen werden, nämlich dass beide über 1000 a alt sind. Der Zahlenwert $1168 \pm 8,9\%$ liegt in diesem Bereich und kann auch durch zahlreiche archäologische Funde in Verbindungen mit historischen Belegen einer Überprüfung standhalten.

Weiters konnte festgestellt werden, dass die zusätzlich akkumulierte Flugdosis eines Fluges von Japan nach Wien $30 \mu\text{Gy}$ beträgt. Dies ist zwar nahezu vernachlässigbar sollte jedoch bei nachfolgenden Messserien berücksichtigt werden.

Zu guter Letzt konnte mit Hilfe der Dosimeterkarten eine Vor-Ort-Dosisleistung von $1,23 \text{ mGy/a}$ ermittelt werden.

6 Anhang

6.1 Messergebnisse Alphazähler

| | Backgroundmessung | Probenmessung |
|--------------------------|-------------------|---------------|
| Gesamte Zerfälle | 114 | 3467 |
| Langsame / Schnell Paare | 0 / 0 | 116 / 0 |
| Messzeit | 138 h 34 min | 69 h 30 min |

Tab. 23 Daten der Alpha - Messung für die Probe KI1-52

| | Backgroundmessung | Probenmessung |
|---------------------------|-------------------|---------------|
| Gesamte Zerfälle | 122 | 3101 |
| Langsame / Schnelle Paare | 0 / 0 | 078 / 2 |
| Messzeit | 116 h 52 min | 69 h |

Tab. 24 Daten der Alpha - Messung für die Probe KI1-N5

6.2 LIULIN Testmessungen

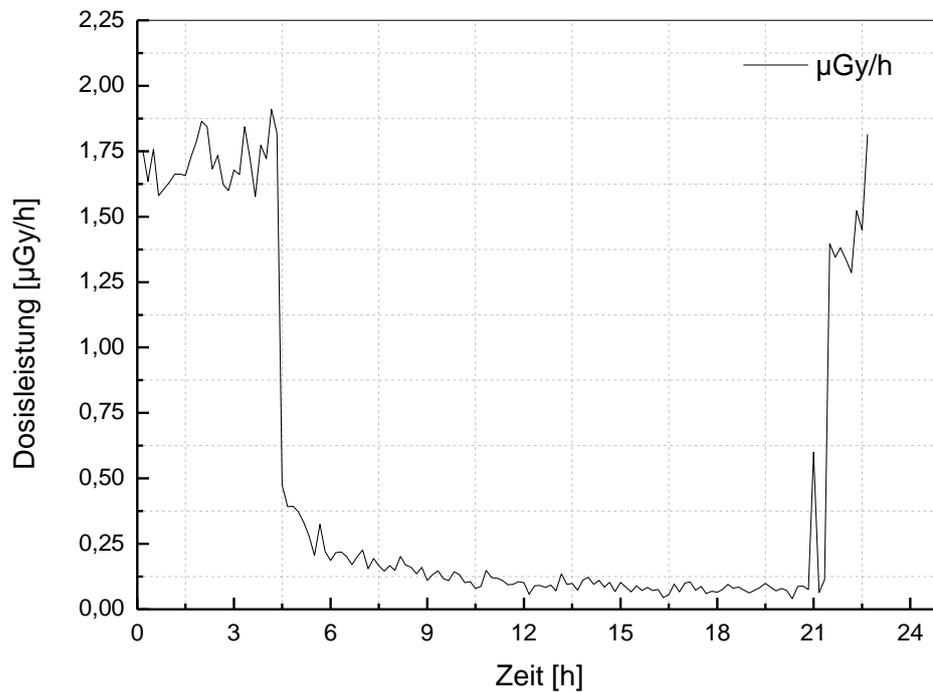


Abb. 97 Dosisleistung über Zeit für die erste Messserie des LIULIN am Forschungsreaktor des ATI

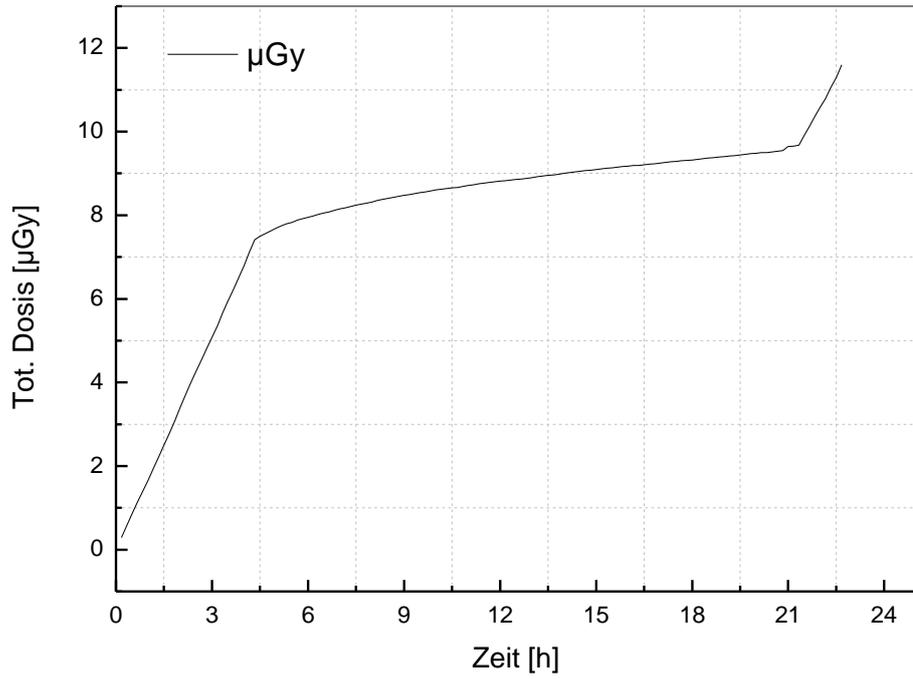


Abb. 98 Total akkumulierte Dosis über Zeit für die erste Messserie des LIULIN am Forschungsreaktor des ATI

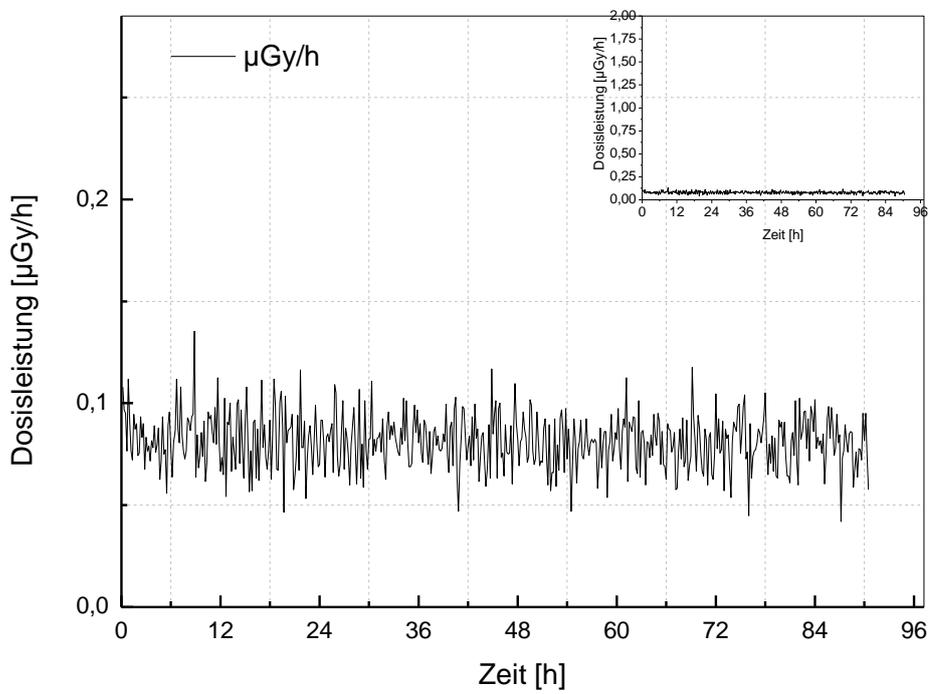


Abb. 99 Dosisleistung über Zeit für die erste Messserie des LIULIN im TL Labor des ATI

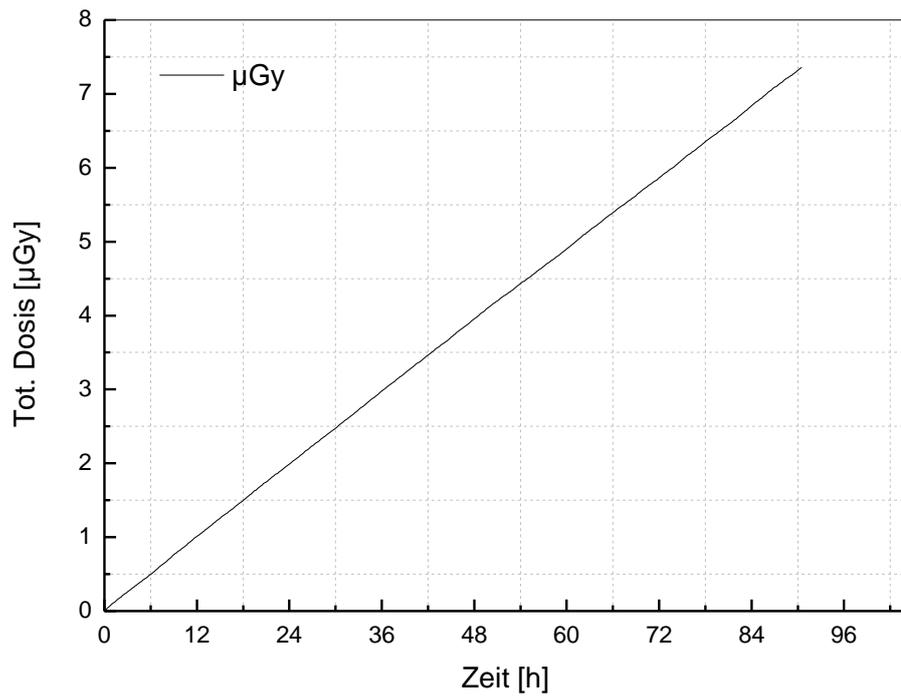


Abb. 100 Total akkumulierte Dosis über Zeit für die erste Messserie des LIULIN im TL Labor des ATI

7 Abbildungsverzeichnis

| | |
|---|----|
| Abb. 1 Die Archäometrie als interdisziplinäres Fach [1] | 1 |
| Abb. 2 Ausgrabungsstätte am Mt. Nakadake in Südkyūshū (rote Pinnadel) [3] | 2 |
| Abb. 3 Elektromagnetisches Wellenspektrum mit dem Farbspektrum des sichtbaren Lichts [6] | 4 |
| Abb. 4 Einteilung der verschiedenen Strahlungsarten [10] | 5 |
| Abb. 5 Wechselwirkung von direkt und indirekt ionisierender Strahlung mit Materie; α , γ , p^+ direkt, n indirekt [11] | 6 |
| Abb. 6 Wirkung von direkt und indirekte ionisierender Strahlung auf DNA [13] | 7 |
| Abb. 7 Exponentieller Abfall für den Zerfall von radioaktiven Atomkernen [15] | 8 |
| Abb. 8 Schematische Darstellung der primären und sekundären kosmischen Strahlung [19] | 11 |
| Abb. 9 Karte der terrestrischen Strahlung in Deutschland [26] | 12 |
| Abb. 10 Verlauf der Ionisationsstärke für Elektronen, π -Mesonen und Protonen über ihrer kinetischen Energie [30] | 14 |
| Abb. 11 Schematischer Aufbau eines Zählrohres mit Zylinder als Kathode und Draht im Inneren als Anode [31] | 16 |
| Abb. 12 Schematische Charakteristik eines Zählrohrs, Impulshöhe über angelegte Spannung [32] | 16 |
| Abb. 13 Schematische Darstellung eines Halbleiterzählers mit verarmter Übergangsschicht [33] | 17 |
| Abb. 14 Beispielbild einer medizinischen Röntgenaufnahme [34] | 18 |
| Abb. 15 Exemplarische Darstellung verschiedener Gitterfehler [41] | 21 |
| Abb. 16 Valenz- und Leitungsband eines realen Kristallgitters mit Gitterfehlern [1] | 21 |
| Abb. 17 Prozess der Lumineszenz bei nichtleitenden Festkörpern [42] | 22 |
| Abb. 18 Lumineszenz-Prozess schematisch dargestellt für Quarz [1] | 23 |
| Abb. 19 Beispiel einer Glowkurve | 24 |
| Abb. 20 Verteilungen der Übergangswahrscheinlichkeit, der Besetzungsdichte und der daraus erhaltene TL-Peak [44] | 25 |
| Abb. 21 Schematische Glow-Kurve für TLD-200 mit bis zu neun Peaks [47] | 27 |
| Abb. 22 Beispielbild zur additiven Methode, die β -Äquivalenzdosis kann durch den Schnittpunkt der Geraden mit der x-Achse abgelesen werden (roter Bereich) | 30 |
| Abb. 23 Akkumulierter Strahlungsschaden über der Zeit, Supralinearität Zone 1; Sublinearität Zone 4 [50] | 30 |
| Abb. 24 Beispielbild zur additiven Methode, das Intercept kann durch den Schnittpunkt der Geraden mit der x-Achse abgelesen werden | 31 |
| Abb. 25 Mappe mit einer Probenplättchenserie für die Datierung | 35 |
| Abb. 26 Vereinfachtes Schema der Neutronenaktivierung am Beispiel der (n, γ) Einfangreaktion von Si-30 [52] | 35 |
| Abb. 27 Prinzipielle Vorgehensweise der INAA Neutronenaktivierungsanalyse [53] | 36 |
| Abb. 28 Beispielmessung einer Neutronenaktivierungsanalyse [56] | 37 |
| Abb. 29 Alphazähler mit dem die Eigenaktivität der einzelnen Proben bestimmt wurde | 39 |
| Abb. 30 Waage zur Bestimmung der Masse des Probenmaterials | 41 |
| Abb. 31 Schematische Darstellung der „HVK“ Messanlage [58] | 42 |
| Abb. 32 „HVK“ Messgerät Frontalansicht, zu sehen ist das Kontrollpanel unten und die eigentliche Messvorrichtung oben | 43 |
| Abb. 33 Nahaufnahme des Photomultipliers | 43 |
| Abb. 34 Öffnung zum Bestücken der Probenkammer; Gasdichter Verschluss | 44 |

| | |
|---|----|
| Abb. 35 Radioaktive Quellen für die Bestrahlung der einzelnen Probendisks mit α - und β -Strahlung | 44 |
| Abb. 36 Parameter der Datei PARASAMP.txt für verschiedene Messprozedere und Messzeiten der Probe KI1-52 | 45 |
| Abb. 37 Parameter der Datei PARATIME.txt | 46 |
| Abb. 38 Parameter der Datei PARAHEAT.txt..... | 46 |
| Abb. 39 LIULIN-6A LET Spektrometer | 47 |
| Abb. 40 Initialisierungsbildschirm des LIULIN Programmes | 48 |
| Abb. 41 Messprotokoll für den Flug Wien - Japan | 48 |
| Abb. 42 Dosisleistung über der Zeit für den Flug Wien-Japan, logarithmisch aufgetragen | 49 |
| Abb. 43 Dosisleistung über der Zeit beginnend ab 26.2.2018; 10:06 für den Flug Wien-Japan, linear aufgetragen..... | 50 |
| Abb. 44 Auswertegerät TL-DAT II des ATI der TU Wien..... | 51 |
| Abb. 45 Rohkurven (oben) und Nettokurven (unten) der TL200 Dosimeter am ATI..... | 52 |
| Abb. 46 Kalibrierungskurve der Dosimeterbox beim ATI mit Rohdaten (oben) und Nettodaten (unten) | 52 |
| Abb. 47 Rohkurven (oben) und Nettokurven (unten) der TL200 Dosimeter in Japan/Schreibtisch..... | 53 |
| Abb. 48 Kalibrierungskurve der Dosimeterbox in Japan/Schreibtisch mit Rohdaten (oben) und Nettodaten (unten) | 54 |
| Abb. 49 Rohkurven (oben) und Nettokurven (unten) der TL200 Dosimeter in Japan/Ausgrabung | 55 |
| Abb. 50: Kalibrierungskurve der Dosimeterbox in Japan/Ausgrabung mit Rohdaten (oben) und Nettodaten (unten) | 55 |
| Abb. 51 Foto der Probe „Übungsziegel“ | 58 |
| Abb. 52 Counts über Temperatur der N00 und Sb Messungen des Übungsziegels..... | 59 |
| Abb. 53 Counts über Temperatur der Na und Nb Kurven für die Probe Übungsziegel | 59 |
| Abb. 54 Plateautest für alle Messungen mit ausgewähltem Intervall für die Probe Übungsziegel | 60 |
| Abb. 55 Gemessene Punkte (N00, Na, Nb und Sb) ohne Massenkorrektur für die Probe Übungsziegel | 60 |
| Abb. 56 Gemessene Punkte (N00, Na, Nb, Sb) mit Massenkorrektur für die Probe Übungsziegel | 61 |
| Abb. 57 Berechnete Werte und Alter für die Probe Übungsziegel | 61 |
| Abb. 58 Foto der Probe „KI1 – N5“ | 62 |
| Abb. 59 Intensität über Temperatur für die bereinigten N00 und Sb Messungen der Probe „KI1-N5“ | 63 |
| Abb. 60 Intensität über Temperatur für die bereinigten Na und Nb Messungen der Probe „KI1-N5“ | 63 |
| Abb. 61 Plateautest für alle Messungen mit ausgewähltem Intervall (rot eingezeichnet) für die Probe „KI1-N5“ | 64 |
| Abb. 62 Gemessene Punkte (N00, Na, Nb und Sb) ohne Massenkorrektur für die Probe „KI1-N5“ | 64 |
| Abb. 63 Gemessene Punkte (N00, Na, Nb und Sb) mit Massenkorrektur für die Probe „KI1-N5“ | 65 |
| Abb. 64 Berechnete Werte und Alter für die Probe „KI1-N5“ ohne Massenkorrektur..... | 65 |
| Abb. 65 Berechnete Werte und Alter für die Probe „KI1-N5“ mit Massenkorrektur..... | 66 |
| Abb. 66 Foto der Probe „KI1 – 52“ | 66 |
| Abb. 67 Intensität über Temperatur der N00 und Sb Messungen der Probe „KI1-52“ | 67 |

| | |
|---|----|
| Abb. 68 Intensität über Temperatur der Na und Nb Messungen der Probe „KI1-52“ | 68 |
| Abb. 69 Plateautest für alle Messungen mit ausgewähltem Intervall (rot eingezeichnet) für die Probe „KI1-52“ | 68 |
| Abb. 70 Gemessene Punkte (N00, Na, Nb und Sb) ohne Massenkorrektur für die Probe „KI1-52“ | 69 |
| Abb. 71 Gemessene Punkte (N00, Na, Nb und Sb) mit Massenkorrektur für die Probe „KI1-52“ | 69 |
| Abb. 72 Berechnete Werte und wahrscheinliches Alter für die Probe „KI1-52“ ohne Massenkorrektur | 70 |
| Abb. 73 Berechnete Werte und wahrscheinliches Alter für die Probe „KI1-52“ mit Massenkorrektur | 70 |
| Abb. 74 Datierungsergebnisse mit Variation des Verhältnisses von terrestrischer/kosmischer Dosis für Probe KI1-N5 | 71 |
| Abb. 75 Datierungsergebnisse mit Variation des Verhältnisses von terrestrischer/kosmischer Dosis für Probe KI1-N5 | 72 |
| Abb. 76 Variation des Plateauintervalls von 290-320°C für die Probe KI1-N5..... | 73 |
| Abb. 77 Gemessene Punkte des Plateauintervalls 290-320°C für die Probe KI1-N5..... | 73 |
| Abb. 78 Datierungsergebnisse für Plateauintervall 290-320°C der Probe KI1-N5 | 74 |
| Abb. 79 Variation des Plateauintervalls von 240-320°C für die Probe KI1-N5..... | 74 |
| Abb. 80 Gemessene Punkte des Plateauintervalls 240-320°C für die Probe KI1-N5..... | 75 |
| Abb. 81 Datierungsergebnisse für Plateauintervall 240-320°C der Probe KI1-N5 | 75 |
| Abb. 82 Zusammenfassung aller Variationen mit eingezeichnetem Ergebnisintervall für Probe KI1-N5..... | 76 |
| Abb. 83 Intensität über Temperatur der N00 Messungen für die Probe „KI1-N5“ | 77 |
| Abb. 84 Intensität über Temperatur der N00 Messungen für die Probe „KI1-N5“ mit 21 Punkt Glättung..... | 78 |
| Abb. 85 Messergebnisse der 3ten Messreihe für die N00 und Probe „KI1-N5“ (roter Kreis)..... | 78 |
| Abb. 86 Datierungsergebnisse mit Variation des Verhältnisses von terrestrischer/kosmischer Dosis für Probe KI1-52 | 79 |
| Abb. 87 Datierungsergebnisse mit Variation des Verhältnisses von terrestrischer/kosmischer Dosis für Probe KI1-52 | 80 |
| Abb. 88 Variation des Plateauintervalls von 280-320°C für die Probe KI1-52 | 81 |
| Abb. 89 Gemessene Punkte des Plateauintervalls 280-320°C für die Probe „KI1-52“ | 81 |
| Abb. 90 Datierungsergebnisse für Plateauintervall 280-320°C der Probe KI1-52..... | 82 |
| Abb. 91 Variation des Plateauintervalls von 250-320°C für die Probe KI1-N5..... | 82 |
| Abb. 92 Gemessene Punkte des Plateauintervalls 250-320°C für die Probe „KI1-52“ | 83 |
| Abb. 93 Datierungsergebnisse für Plateauintervall 250-320°C der Probe KI1-52..... | 83 |
| Abb. 94 Zusammenfassung aller Variationen mit eingezeichnetem Ergebnisintervall für Probe KI1-52 | 84 |
| Abb. 95 Ermitteltes Alter für beide Proben bei Variation der Parameter inkl. Fehler | 85 |
| Abb. 96 Ermitteltes Probenalter für beide Proben und Mittelwert inkl. mittlerer Fehler des Mittelwertes | 86 |
| Abb. 97 Dosisleistung über Zeit für die erste Messserie des LIULIN am Forschungsreaktor des ATI | 87 |
| Abb. 98 Total akkumulierte Dosis über Zeit für die erste Messserie des LIULIN am Forschungsreaktor des ATI | 88 |
| Abb. 99 Dosisleistung über Zeit für die erste Messserie des LIULIN im TL Labor des ATI | 88 |

Abb. 100 Total akkumulierte Dosis über Zeit für die erste Messserie des LIULIN im TL Labor des ATI..... 89

8 Tabellenverzeichnis

| | |
|--|----|
| Tab. 1 Beispiele für die spezifische Aktivität von Elementen | 9 |
| Tab. 2 Zusammenfassung der verschiedenen relevanten Dosisgrößen | 10 |
| Tab. 3 Zusammenfassung verschiedener Methoden und Nachweisgrößen für die Untersuchung von Strahlung [35]..... | 19 |
| Tab. 4 Unterschiedliche mittlere Lebensdauern für verschiedene Temperaturen und Aktivierungsenergien für Quarz [43] | 23 |
| Tab. 5 Halbwertszeit und Zerfallskonstante für das Element ^{42}K | 37 |
| Tab. 6 Atomgewichte für Kalium und Sauerstoff | 38 |
| Tab. 7 Die letzten Einträge des LIULIN Spektrometers vom Flug Wien-Japan | 50 |
| Tab. 8 Kalibrierung und gemessene Dosis der TL 200 Dosimeter am ATI | 53 |
| Tab. 9 Kalibrierung und gemessene Dosis der TL 200 Dosimeter aus Japan (Schreibtisch) | 54 |
| Tab. 10 Kalibrierung und gemessene Dosis der TL 200 Dosimeter aus Japan (Ausgrabung) | 56 |
| Tab. 11 Ermittelte Daten für die Altersbestimmung der Probe Übungsziegel..... | 58 |
| Tab. 12 Messparameter der einzelnen Proben für Probe Übungsziegel..... | 58 |
| Tab. 13 Ermittelte Daten für die Altersbestimmung der Probe KI1 - N5..... | 62 |
| Tab. 14 Messparameter der einzelnen Proben für Probe „KI1 - N5“ | 62 |
| Tab. 15 Ermittelte Daten für die Altersbestimmung der Probe KI1 - 52 | 67 |
| Tab. 16 Messparameter der einzelnen Proben für Probe „KI1 - 52“..... | 67 |
| Tab. 17 Alter für die Proben „Übungsziegel“, „KI1-N5“ sowie „KI1-52“ | 70 |
| Tab. 18 Resultierendes Alter bei verschiedenen Dosisverhältnissen für Probe KI1-N5.. | 72 |
| Tab. 19 Resultierendes Alter bei verschiedenen Temperaturplateauintervallen für Probe KI1-N5..... | 75 |
| Tab. 20 Resultierendes Alter bei verschiedenen Dosisverhältnissen für Probe KI1-52 .. | 80 |
| Tab. 21 Resultierendes Alter bei verschiedenen Temperaturplateauintervallen für Probe KI1-52 | 84 |
| Tab. 22 Zusammenfassung der Ergebnisse mit den Parametern der einzelnen Proben wie unter 3 angegeben | 86 |
| Tab. 23 Daten der Alpha - Messung für die Probe KI1-52 | 87 |
| Tab. 24 Daten der Alpha - Messung für die Probe KI1-N5..... | 87 |

9 Quellenverzeichnis

- [1] G. Wagner, Age determination of young rocks and artifacts, Heidelberg: Springer-Verlag, 1998, p. 222ff.
- [2] Wikipedia, „Kyūshū,“ [Online]. Available: <https://de.wikipedia.org/wiki/Ky%C5%ABsh%C5%AB>. [Zugriff am 29 9 2018].
- [3] Google, „Google Maps,“ [Online]. Available: <https://www.google.com/maps/place/Ky%C5%ABsh%C5%AB>. [Zugriff am 30 9 2018].
- [4] M. Shinoto und N. Nakamura, „Nakadake: Forschungen in einem japanischen Töpferzentrum,“ *Blickpunkt Archäologie*, Bd. 4, pp. 298-307, 2016.
- [5] L. Neidhart, „Überprüfung der Einsetzbarkeit eines Saphirbohrers, bei der Probennahme zur TL-Datierung, anhand einer japanischen Probe,“ TU Wien, Wien, 2016.
- [6] Wikipedia, „Elektromagnetische Welle,“ [Online]. Available: https://de.wikipedia.org/wiki/Elektromagnetische_Welle. [Zugriff am 30 9 2018].
- [7] G. Lewis, „Light Waves and Light Corpuscles,“ *Nature*, pp. 236-238, 13 2 1926.
- [8] I. Newton, „A Letter of Mr. Isaac Newton, Professor of the Mathematicks in the University of Cambridge; Containing His New Theory about Light and Colors,“ *Philosophical Transactions*, Bd. 6, Nr. 80, pp. 3075-3087, 19 2 1672.
- [9] H. Krieger, Grundlagen der Strahlungsphysik und des Strahlenschutzes, 5th Hrsg., Heidelberg: Springer Verlag, 2017.
- [10] „Strahlenschutz - Übersicht,“ [Online]. Available: https://www.gewerbeaufsicht.niedersachsen.de/gefahenschutz/strahlenschutz_schutz_vor_verschiedener_strahlung/strahlenschutz---uebersicht-133240.html. [Zugriff am 30 9 2018].
- [11] Wikipedia, „Ionisierende Strahlung,“ [Online]. Available: https://de.wikipedia.org/wiki/Ionisierende_Strahlung. [Zugriff am 30 9 2018].
- [12] E. Dikomey, J. Dahm-Daphi und U. Kasten, „Biologische Strahlenwirkungen,“ in *Handbuch diagnostische Radiologie: Strahlenphysik Strahlenbiologie Strahlenschutz*, Heidenberg, Springer-Verlag, 2003, pp. 203-257.
- [13] VetSuisse, „Indirekte und direkte Strahlenwirkung,“ [Online]. Available: <https://vetsuisse.com/vet-impl/lernmodule/htmls/slide.html?radiosurfvet|radgeneral|radbio|cellularradbio|4>. [Zugriff am 30 9 2018].
- [14] J. Wagner, „Kernphysik,“ in *Physik für Wissenschaftler und Ingenieure*, Heidelberg, Springer-Verlag, 2015, pp. 1320-1345.
- [15] Physikunterricht-online, „Halbwertszeit und Zerfallsgesetz,“ 2012. [Online]. Available: <https://physikunterricht-online.de/jahrgang-12/halbwertszeit-und-zerfallsgesetz/>. [Zugriff am 19 10 2018].
- [16] A. Unsöld und B. Baschek, Der neue Kosmos, Heidelberg: Springer-Verlag, 2005.
- [17] C. Grupen, Einstieg in die Astroteilchenphysik, Siegen: Springer-Verlag, 2018.
- [18] J. Prescott und J. Hutton, „Cosmic ray contributions to dose rates for luminescence and ESR dating: Large depths and long-term time variations,“ *Radiation Measurements*, pp. 497-500, 1994.

- [19] U. Kiel, „Wechselwirkung der kosmischen Strahlung mit der Atmosphäre,“ 24 8 2017. [Online]. Available: <https://www.physik.uni-kiel.de/de/institute/ieap/agheber/wechselwirkung-der-kosmischen-strahlung-mit-der-atmosphaere>. [Zugriff am 30 9 2018].
- [20] M. Ditto, K. Stangl, L. Claudia, M. Korner und M. Dauke, „Radioaktivität und Strahlung in Österreich,“ Bundesministerium für Gesundheit , Wien, 2012.
- [21] Wikipedia, „Terrestrische Strahlung (Radionuklide),“ [Online]. Available: [https://de.wikipedia.org/wiki/Terrestrische_Strahlung_\(Radionuklide\)](https://de.wikipedia.org/wiki/Terrestrische_Strahlung_(Radionuklide)). [Zugriff am 30 9 2018].
- [22] M. Bartholomäus, „Strahlung und Strahlenschutz,“ Bundesamt für Strahlenschutz, Salzgitter, 2018.
- [23] B. f. Strahlenschutz, „Wie hoch ist die natürliche Strahlenbelastung in Deutschland?,“ 2018. [Online]. Available: http://www.bfs.de/DE/themen/ion/umwelt/natuerliche-strahlenbelastung/natuerliche-strahlenbelastung_node.html. [Zugriff am 20 08 2018].
- [24] N. Schweiz, „Strahlung im Alltag,“ 2017. [Online]. Available: https://www.nuklearforum.ch/sites/default/files/folder-pdf/170508_Faktenblatt-Strahlung-d_Web.pdf. [Zugriff am 20 8 2018].
- [25] R. Michel, „Strahlenexposition in Japan zwei Jahre nach dem Unfall von Fukushima,“ 2013. [Online]. Available: https://www.irs.uni-hannover.de/uploads/tx_tkpublikationen/strijz13_03.pdf. [Zugriff am 20 8 2018].
- [26] P. Binder, „RADIOAKTIVITÄT - FACHARBEIT,“ 2008. [Online]. Available: <https://radioaktivitaet.hpage.de/terrestrische-strahlen.html>. [Zugriff am 30 9 2018].
- [27] G. Kessler, A. Vesper, F.-H. Schlüter, W. Raskob, C. Landman und J. Päsler-Sauer, „Die schweren Reaktorunfälle von Three Mile Island, Tschernobyl und Fukushima,“ in *Sicherheit von Leichtwasserreaktoren*, Stutensee, Springer-Verlag, 2012, pp. 145-159.
- [28] W. Demtröder, *Experimentalphysik 4 Kern-, Teilchen-, und Astrophysik*, 5th Hrsg., Springer Spektrum, 2017.
- [29] G. Shani, *Radiation Dosimetry*, 2nd Hrsg., Israel: CRC Press L.L.C., 2001.
- [30] Spektrum, „Ionisationsstärke,“ 1998. [Online]. Available: <https://www.spektrum.de/lexikon/physik/ionisationsstaerke/7493>. [Zugriff am 19 10 2018].
- [31] Wikipedia, „Zählrohr,“ 20 9 2018. [Online]. Available: <https://de.wikipedia.org/wiki/Zählrohr>. [Zugriff am 30 9 2018].
- [32] Mineralium, „Geiger-Mueller-Zaehrohr,“ [Online]. Available: <https://www.mineralium.de/mineralien-blog/wie-funktioniert-ein-geigerzaehler>. [Zugriff am 30 9 2018].
- [33] M. Krammer, „Halbleiterdetektoren,“ Institut für Hochenergiephysik der ÖWA, Wien, 2005.
- [34] S. Zürich, „Klassisches digitales Röntgen,“ 2018. [Online]. Available: https://www.stadt-zuerich.ch/triemli/de/index/kliniken_institute/radiologie_nuklearmedizin/untersuchungen/roentgen.html. [Zugriff am 19 10 2018].

- [35] H. Krieger, Strahlungsmessung und Dosimetrie, 2nd Hrsg., Ingolstadt: Springer-Verlag, 2013.
- [36] L. Botter-Jensen, S. McKeever und A. Wintle, Optically stimulated luminescence dosimetry, Amsterdam: Elsevier Science, 2003.
- [37] J. Wertz und J. Bolton, ELECTRON SPIN RESONANCE Elementary Theory and Practical Applications, New York: Chapman and Hall , 1986.
- [38] F. Daniels, C. Boyd und D. Saunders, „Thermoluminescence as a Research Tool,“ *Science*, Bd. 117, pp. 343-349, 1953.
- [39] Wikipedia, „Thermolumineszenzdatierung,“ 4 3 2018. [Online]. Available: <https://de.wikipedia.org/wiki/Thermolumineszenzdatierung>. [Zugriff am 30 9 2018].
- [40] M. J. Aitken, Thermoluminescence Dating, London: Academic Press, 1985.
- [41] A. Höfler, „Gittereffekte Übersicht,“ [Online]. Available: <https://www.ahoefer.de/maschinenbau/werkstoffkunde/aufbau-der-metalle/gitterdefekte/38-uebersicht.html>. [Zugriff am 30 9 2018].
- [42] M. Geyh und H. Schleicher, Absolute Age Determination, Hannover: Springer-Verlag, 1990.
- [43] R. Bergmann, „Vergleichende Untersuchungen der optisch stimulierten Lumineszenz und der Thermolumineszenz von Keramiken zum Zweck der Altersbestimmung,“ TU Wien, Wien, 2005.
- [44] S. Greilich, „Über die Datierung von Gesteinsoberflächen mittels optisch stimulierter Lumineszenz,“ Universität Heidelberg, Heidelberg, 2044.
- [45] C. Furetta, Handbook of Thermoluminescence, 2nd Hrsg., Italien: World Scientific, 2010.
- [46] M. Bhadane, K. Hareesh, S. Dahiwal, K. Sature , B. Patil, K. Asokan, D. Kanjilal, V. Bhoraskar und S. Dhole, „A highly sensitive CaF₂:Dy nanophosphor as an efficient low energy ion dosimetry,“ *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Nr. 386, pp. 61-69, 2016.
- [47] J. Harvey, N. Haverland und K. Kearfott, „Characterization of the glow-peak fading properties of six common thermoluminescent materials,“ *Applied Radiation and Isotopes*, Nr. 68, pp. 1988-2000, 26 4 2010.
- [48] S. Numan, P. Sahare und A. Rupasov, „Thermoluminescence of nanocrystalline LiF:Mg, Cu, P,“ *Journal of Luminescence*, Nr. 124, pp. 357-364, 2007.
- [49] S. Guggenheim und R. T. Martin, „DEFINITION OF CLAY AND CLAY MINERAL: JOINT REPORT OF THE AIPEA NOMENCLATURE AND CMS NOMENCLATURE COMMITTEES,“ *Clays and Clay Minerals*, Bd. 43, Nr. 2, pp. 255-256, 1995.
- [50] M. J. Aitken, „Physics and Archaeology,“ *American Journal of Physics*, Bd. 30, Nr. 2, p. 42, 1961.
- [51] V. Grill, „Datierung eines Hauses in Krems an der Donau mit der Annahme einer linearen und einer nichtlinearen Dosischarakteristik,“ TU Wien, Wien, 2015.
- [52] C. Stieghorst, „Neutronenaktivierungsanalyse in Archäometrie und Solarenergieforschung,“ Johannes Gutenberg-Universität Mainz, Mainz, 2016.
- [53] Wikipedia, „Neutronenaktivierungsanalyse,“ 5 8 2018. [Online]. Available: <https://de.wikipedia.org/wiki/Neutronenaktivierungsanalyse>. [Zugriff am 19 10 2018].

- [54] J. H. Sterba, „A workflow for neutron activation analysis of archaeological ceramics at the Atominstitut in Vienna, Austria,“ *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Bd. 316, Nr. 2, pp. 753-759, 2018.
- [55] G. Steinhauser, J. H. Sterba, M. Bichler und H. Huber, „Neutron activation analysis of Mediterranean volcanic rocks – An analytical database for archaeological stratigraphy,“ *Applied Geochemistry*, Bd. 21, Nr. 8, pp. 1362-1375, 2006.
- [56] U. o. Missouri–Columbia, „NAA-Overview,“ 2 6 2017. [Online]. Available: http://archaeometry.missouri.edu/naa_overview.html. [Zugriff am 30 9 2018].
- [57] P. Blamauer, „Software module for automated thermoluminescence dating,“ TU Wien, Wien, 2010.
- [58] H. Tatlisu, „Sediment dating by thermoluminescence and optical stimulated luminescence,“ TU Wien, Wien, 2004.
- [59] G. A. Wagner, Einführung in die Archäometrie, Heidelberg: Springer-Verlag, 2007, pp. 3-6.
- [60] Greenpeace, „Was ist Radioaktivität und wie wirkt sie?,“ 18 1 2007. [Online]. Available: <https://www.greenpeace.de/themen/energiewende/atomkraft/was-ist-radioaktivitaet-und-wie-wirkt-sie>. [Zugriff am 30 9 2018].
- [61] F. Berlin, „Radioaktiver Zerfall und Halbwertszeit,“ [Online]. Available: https://www.osa.fu-berlin.de/geologie/beispielaufgaben/04_radioaktiver_zerfall/index.html. [Zugriff am 30 9 2018].