

INAUGURAL – DISSERTATION  
zur  
Erlangung der Doktorwürde  
der  
Naturwissenschaftlich – Mathematischen  
Gesamtfakultät  
der  
Ruprecht – Karls – Universität  
Heidelberg

vorgelegt von  
Dipl.-Phys. Regina Kalchgruber  
aus Ottobeuren

Tag der mündl. Prüfung 13. Februar 2002



$\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C als Dosimeter zur  
Bestimmung der Dosisleistung bei  
der Lumineszenzdatierung

Gutachter: Prof. Dr. Günther A. Wagner  
Prof. Dr. Kurt Roth



### **$\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C als Dosimeter zur Bestimmung der Dosisleistung bei der Lumineszenzdatierung**

Bei der Lumineszenzdatierung wird aus der in Mineralkörnern gespeicherten Dosis und der Dosisleistung des umgebenden Materials auf das Alter einer Probe geschlossen. Die hauptsächlich aus den Zerfällen natürlicher radioaktiver Nuklide stammende Dosisleistung wird im Labor über gammaspektrometrische Messungen anhand einer repräsentativen Umgebungsprobe ermittelt. Bei inhomogenen Probenumfeldern werden zusätzlich Dosimeter am Ort der Probenentnahme eingesetzt; um die bis jetzt notwendige Expositionsdauer von einem Jahr stark zu verkürzen, wurde das hochsensitive Dosimetermaterial  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C im Hinblick auf eine Verwendung bei der Lumineszenzdatierung untersucht.

Das Material eignet sich besonders für eine thermische Stimulation des Lumineszenzsignals. Es wurde ein routinemäßig einsetzbares Verfahren zur getrennten Bestimmung der  $\beta$ - und  $\gamma$ -Dosisleistung im Gelände entwickelt. Die Unsicherheit der Ergebnisse liegt bei 7 %, so daß in einer homogenen Probenumgebung die Gammaspektrometrie genauer ist. In einem inhomogenen Umfeld jedoch sind Teilproben nicht mehr repräsentativ, während mit den Dosimetern die lokale Dosisleistung bestimmt wird, der die Probe tatsächlich ausgesetzt war. Die Expositionszeiten liegen bei wenigen Tagen.

Wenn für eine Datierung nur noch einzelne Mineralkörner verwendet werden, wirken sich lokale Schwankungen der Dosisleistung auf das Ergebnis aus. Durch einzelne, mit einem Sediment vermischte Dosimeterkörner kann auf die Variation der Dosisleistung geschlossen werden.

### **Dose-Rate Assessment in Luminescence Dating with $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C Dosemeters**

In luminescence dating the age of a sample is determined from the dose in mineral grains and the dose-rate of the surrounding medium. The dose-rate mainly is caused by the radioactive decay of natural nuclides and is measured in the laboratory by gamma-ray spectrometry of a selected sample. In an inhomogeneous medium additionally dosemeters are used for in situ measurements; in order to reduce the one year exposure times, the usage of highly sensitive  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C dosemeters for luminescence dating was investigated.

The material is most suited for thermal stimulation of the luminescence signal. A procedure was developed to measure  $\beta$ - and  $\gamma$ -dose-rates separately in the field. The uncertainty of the results is 7 %; therefore in a homogeneous medium the results of gamma-ray spectrometry are more precise. However, an inhomogeneous medium is not well represented by selected samples, whereas with dosemeters one can assess the actual local dose-rate to the sample. Exposure times of few days are sufficient.

Using single mineral grains for dating, local fluctuations of dose-rate affect the results. Therefore single grains of  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C were mixed with soil. From the dose accumulated in every single grain the variation of the dose-rate can be assessed.



... heaven and earth, centre and circumference, were created all together, in the same instant, and clouds full of water ... this work took place and man was created by the Trinity on October 23, 4004 B.C., at nine o'clock in the morning.

*John Lightfoot (1602-1675), Vice-Chancellor of Cambridge University*





# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Die Methode der Lumineszenzdatierung</b>	<b>3</b>
2.1	Physikalische Grundlagen . . . . .	3
2.2	Die Bestimmung der Äquivalenzdosis . . . . .	5
2.3	Geräte . . . . .	7
<b>3</b>	<b>Die natürliche Dosisleistung</b>	<b>9</b>
3.1	Prinzip und Unsicherheiten der Dosisleistungsbestimmung . . . . .	9
3.1.1	Natürliche radioaktive Nuklide . . . . .	10
3.1.2	Radioaktive Ungleichgewichte . . . . .	10
3.1.3	Wassergehalt . . . . .	12
3.2	Beta-Zählung . . . . .	13
3.2.1	Funktionsweise eines Geiger-Müller-Zählrohres . . . . .	13
3.2.2	Bestimmung der $\beta$ -Dosisleistung . . . . .	14
3.3	Alpha-Zählung . . . . .	14
3.4	Kosmische Dosisleistung . . . . .	15
3.5	Berechnung der effektiven Gesamtdosisleistung . . . . .	17
<b>4</b>	<b>Gammaskpektrometrie</b>	<b>19</b>
4.1	Hochauflösende Germanium-Gammaskpektrometrie . . . . .	19
4.1.1	Funktionsweise . . . . .	19
4.1.2	Auswahl der bei der Auswertung berücksichtigten $\gamma$ -Linien . . . . .	22
4.1.3	Auswertung der Spektren . . . . .	24
4.2	Das tragbare NaI-Gammaskpektrometer . . . . .	27
4.2.1	Funktionsweise von Szintillations-Gammaskpektrometern . . . . .	27
4.2.2	Grundlegende Eigenschaften des Geräts und Auswertung der Spektren . . . . .	27
<b>5</b>	<b>Charakterisierung von <math>\alpha</math>-<math>\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}</math> als Dosimetermaterial</b>	<b>33</b>
5.1	Kristallaufbau und Form der Dosimeter . . . . .	34
5.2	Thermolumineszenzeigenschaften . . . . .	35
5.2.1	Emission . . . . .	35
5.2.2	Leuchtkurve . . . . .	37
5.2.3	Abhängigkeit des Signals von der Heizrate . . . . .	37
5.3	Lichtempfindlichkeit . . . . .	38
5.3.1	Bleichen des Signals . . . . .	39
5.3.2	Phototransfer . . . . .	40

5.4	Wachstumskurven und Dosisreproduktion . . . . .	43
5.4.1	Thermolumineszenz . . . . .	43
5.4.2	Blaustimulation . . . . .	45
<b>6</b>	<b>Einfluß der blauen LEDs und der Quellen im Risø TL/OSL-DA-15 auf die Dosisrekonstruktion</b>	<b>47</b>
6.1	Die blauen Leuchtdioden . . . . .	47
6.2	Der Einfluß der $\beta$ -Quelle . . . . .	48
6.2.1	Zeitoffset . . . . .	48
6.2.2	Crosstalk . . . . .	49
6.2.3	Leakage . . . . .	52
6.2.4	Applikation niedriger Dosen mit der eingebauten $\beta$ -Quelle . . . . .	54
<b>7</b>	<b>Testmessungen zur Bestimmung der natürlichen Dosisleistung</b>	<b>57</b>
7.1	Wachstumskurven bei natürlichen Strahlungsfeldern . . . . .	57
7.2	Testmessungen mit thin layer Dosimetern . . . . .	59
7.2.1	Künstliche Bestrahlung . . . . .	59
7.2.2	Messung einer natürlichen $\beta$ -Dosisleistung . . . . .	61
<b>8</b>	<b>Bestimmung der <math>\beta</math>- und <math>\gamma</math>-Dosisleistung im Gelände</b>	<b>65</b>
8.1	Vorüberlegungen zur praktischen Vorgehensweise . . . . .	65
8.2	Die Probenlokalitäten . . . . .	66
8.3	Vergleichsdaten aus der Gammaskpektrometrie . . . . .	70
8.4	Ergebnisse der $\gamma$ -Dosisleistungsbestimmung . . . . .	72
8.5	Ergebnisse der $\beta$ -Dosisleistungsbestimmung . . . . .	75
<b>9</b>	<b>Die Dosisleistung an einer Gesteinsoberfläche</b>	<b>81</b>
<b>10</b>	<b>Bestimmung der Dosisleistungsverteilung in einem Sediment mit einzelnen <math>\alpha</math>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C-Körnern</b>	<b>85</b>
10.1	Lumineszenzeigenschaften der Einzelkörner . . . . .	85
10.2	Praktische Vorgehensweise bei der Bestimmung einer Dosisleistungsverteilung . .	88
10.3	Empfindlichkeit gegenüber $\alpha$ -Strahlung . . . . .	89
10.4	Variation der Dosisleistung in Nussi . . . . .	90
<b>11</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>93</b>
<b>A</b>	<b>Referenzmaterialien</b>	<b>97</b>
<b>B</b>	<b>Fehlerrechnung</b>	<b>99</b>
B.1	Statistische und systematische Fehler . . . . .	99
B.2	Das Fehlerfortpflanzungsgesetz nach Gauß . . . . .	101
B.3	Wiederholte Messung einer einzelnen Größe . . . . .	102
<b>C</b>	<b>Beispiele für die Auswertung bei Beta- und Alpha-Zählung</b>	<b>105</b>
C.1	Beta-Zählung . . . . .	105
C.2	Alpha-Zählung . . . . .	107

<b>D</b>	<b>Ergänzungen zur Gammaspektrometrie</b>	<b>109</b>
D.1	Chemische Zusammensetzungen der Proben und Referenzmaterialien aus Abbildung 4.6 . . . . .	109
D.2	Beispiele für die Auswertung bei der Gammaspektrometrie . . . . .	110
<b>E</b>	<b>Berechnung der Geometriefaktoren bei der Gammaspektrometrie</b>	<b>115</b>
E.1	Analytisches Verfahren . . . . .	115
E.2	Monte-Carlo-Programm zur Berechnung der Geometriefaktoren . . . . .	117
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>123</b>



# Abbildungsverzeichnis

2.1	Additive und regenerative Wachstumskurve . . . . .	6
2.2	Reintransmissionen der verwendeten Filter . . . . .	7
2.3	Spektrale Strahlungsverteilung von SOL2 und Tageslicht . . . . .	8
3.1	Natürliche Radionuklide und ihre Zerfälle . . . . .	11
4.1	Funktionsprinzip eines Ge-Gammaspektrometers . . . . .	20
4.2	Mit einem Ge-Gammaspektrometer gemessenes Gammaspektrum . . . . .	21
4.3	Kaliumpeak im Gammaspektrum . . . . .	22
4.4	Geometriefaktor . . . . .	24
4.5	Weglängenverteilung bei unterschiedlichen Füllhöhen . . . . .	26
4.6	Massenschwächungskoeffizienten für verschiedene Proben . . . . .	26
4.7	Signalstabilität bei zunehmender Belastungsdauer des Akkus . . . . .	28
4.8	Signalstabilität bei verschiedenen Sondentemperaturen . . . . .	29
4.9	Ausschnitt aus einem mit dem Easyspec-Gerät aufgenommenen Spektrum . . . . .	30
4.10	Kalium-Peak und Gauß-Fit . . . . .	31
4.11	Mit dem Easyspec-Gerät bestimmte Gehalte bei verschiedenen langen Messungen. . . . .	31
5.1	Schematische Darstellung des $\alpha$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> Kristallgitters . . . . .	34
5.2	$\alpha$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :C-Tabletten und thin layer Dosimeter . . . . .	35
5.3	TL-Emissionsspektrum einer mit 1 Gy bestrahlten $\alpha$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :C-Tablette . . . . .	36
5.4	Emissionsspektrum einer mit 1 Gy bestrahlten $\alpha$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :C-Tablette bei 60 °C und 200 °C . . . . .	36
5.5	Leuchtkurve einer $\alpha$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :C-Tablette . . . . .	37
5.6	Leuchtkurven bei verschiedenen Heizraten . . . . .	38
5.7	Maximumcounts und Peakfläche bei unterschiedlichen Heizraten. . . . .	38
5.8	Bleichwirkung von Licht unterschiedlicher Wellenlänge . . . . .	39
5.9	OSL einer $\alpha$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :C-Tablette . . . . .	39
5.10	TL-Signal nach verschiedenen Belichtungsdauern . . . . .	40
5.11	Blau stimuliertes Signal und PTTL-Signal nach dem Bestrahlen und Erhitzen eines $\alpha$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :C-Dosimeters . . . . .	41
5.12	PTTL nach verschiedenen Vorheiztemperaturen. . . . .	41
5.13	Abnahme von PTTL und OSL bei wiederholter Messung ohne weitere Bestrahlung . . . . .	42
5.14	Zunahme von PTTL und OSL bei wiederholter Messung mit Bestrahlung . . . . .	43
5.15	Mit einer $\alpha$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :C-Tablette gemessene TL-Wachstumskurve . . . . .	44
5.16	Mit einer $\alpha$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :C-Tablette gemessene OSL-Wachstumskurven (Blaustimulation) . . . . .	45
6.1	Einfluß der blauen LEDs auf die benachbarte Position. . . . .	48

6.2	Bestimmung des Zeitoffset der $\beta$ -Quelle im Risø TL/OSL-DA-15 . . . . .	49
6.3	Bestimmung der Crosstalk-Dosisleistung der $\beta$ -Quelle im Risø TL/OSL-DA-15 . . . . .	50
6.4	Crosstalk-Dosis auf den anderen Positionen, wenn Position 1 mit 1 Gy bestrahlt wird . . . . .	50
6.5	Effektivität der Lumineszenzerzeugung in $\alpha$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :C bei unterschiedlicher Strahlungsenergie . . . . .	52
6.6	Leakage-Dosis auf den anderen Positionen, wenn sich Position 1 für 10 min auf der Meßposition befindet. . . . .	53
6.7	Wachstumskurve einer $\alpha$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :C-Tablette mittels indirekter Bestrahlung . . . . .	55
7.1	TL-Signale einer einzelnen $\alpha$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :C-Tablette, nach unterschiedlichen Zeiten in Nussi. . . . .	58
7.2	Normierte TL-Signale mehrerer $\alpha$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :C-Tabletten, nach unterschiedlichen Zeiten in Nussi . . . . .	59
7.3	Mit thin layer Dosimetern gemessene TL-Wachstumskurven mit und ohne Korrekturmessungen . . . . .	60
7.4	Mit thin layer Dosimetern gemessene TL-Wachstumskurve (Nussi-Exposition). . . . .	61
7.5	Mit thin layer Dosimetern bestimmte $\beta$ -Dosisleistungen in Abhängigkeit von der Expositionsdauer . . . . .	62
8.1	Lage der Probenlokalitäten . . . . .	67
8.2	Profil 2 . . . . .	68
8.3	Profil 3 . . . . .	68
8.4	Profil 4 . . . . .	69
8.5	Profil 1 . . . . .	69
9.1	Granitfließen als Beispiele für Oberflächen zur Dosisleistungsbestimmung. . . . .	82
10.1	$\alpha$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :C-Körner der Größen 200 bis 300 $\mu$ m . . . . .	86
10.2	Leuchtkurven von zwei einzelnen $\alpha$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :C-Körnern. . . . .	86
10.3	Wachstumskurve und Reproduzierbarkeitstests eines einzelnen $\alpha$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :C-Korns. . . . .	87
10.4	OSL- und TL-Signale von Zirkon- und Apatit-Körnern. . . . .	89
10.5	Verteilung der mit den Einzelkörnern gemessenen Dosen. . . . .	91
B.1	Normalverteilung . . . . .	100
B.2	Rechteckverteilung . . . . .	100
E.1	Überlegungen zur analytischen Berechnung des Geometriefaktors . . . . .	115

# Tabellenverzeichnis

3.1	Faktoren für die Umrechnung eines Nuklidgehalts in die strahlungsspezifische Dosisleistung. . . . .	18
4.1	Für die Auswertung ausgewählte $\gamma$ -Linien der $^{232}\text{Th}$ -Reihe und $^{238}\text{U}$ -Reihe . . . .	23
4.2	Geometriefaktoren für das alte Gammaskpektrometer . . . . .	25
4.3	Gauß-Fits an den Kalium-Peak für verschiedene Kanalbereiche. . . . .	30
5.1	Mit $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Tabletten reproduzierte Bestrahlungsdauern (TL) . . . . .	44
5.2	Mit $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Tabletten reproduzierte Bestrahlungsdauern (OSL) . . . . .	46
6.1	Crosstalk-Dosis auf den anderen Positionen, wenn Position 1 mit 1 Gy bestrahlt wird. . . . .	51
6.2	Leakage-Dosis auf den anderen Positionen, wenn sich Position 1 für 10 min auf der Meßposition befindet. . . . .	53
7.1	Mit thin layer Dosimetern reproduzierte Bestrahlungsdauern . . . . .	60
7.2	Mit thin layer Dosimetern reproduzierte $\beta$ -Dosisleistungen. . . . .	63
8.1	Vergleich der Ergebnisse von Gelände- und Labor-Gammaskpektrometrie . . . . .	71
8.2	Vergleich der mit den Gammaskpektrometern und den Dosimetern bestimmten $\gamma$ -Dosisleistung . . . . .	73
8.3	Vergleich der mit den Gammaskpektrometern und den Dosimetern bestimmten $\gamma$ -Dosisleistung . . . . .	74
8.4	Vergleich der mit den Gammaskpektrometern und den Dosimetern bestimmten Summe aus $\beta$ - und $\gamma$ -Dosisleistung . . . . .	76
8.5	Vergleich der mit den Gammaskpektrometern und den Dosimetern bestimmten Summe aus $\beta$ - und $\gamma$ -Dosisleistung . . . . .	77
8.6	Vergleich der mit den Gammaskpektrometern und den Dosimetern bestimmten $\beta$ -Dosisleistung . . . . .	78
8.7	Vergleich der mit den Gammaskpektrometern und den Dosimetern bestimmten $\beta$ -Dosisleistung . . . . .	79
9.1	Mit $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Tabletten gemessene Dosisleistungen an verschiedenen Stellen von Granitfließen. . . . .	82
10.1	Mit $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Körnern reproduzierte Bestrahlungsdauern. . . . .	88
10.2	Durch $\alpha$ -Strahlung erzeugtes Signal in $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Dosimetern. . . . .	90
A.1	Nuklidgehalte und Dosisleistungen einiger Referenzmaterialien . . . . .	97

D.1	Chemische Zusammensetzung einiger Referenzmaterialien . . . . .	109
D.2	Chemische Zusammensetzung einiger Proben . . . . .	109



# Kapitel 1

## Einleitung

Wer war nicht schon einmal vor den beeindruckenden Überresten vergangener Kulturen gestanden und hat sich gefragt, wann Menschen dort Handel getrieben, ihre Religion ausgeübt haben oder einfach ihrem alltäglichen Leben nachgegangen sind? Teilweise finden sich Hinweise darüber in schriftlichen Quellen. Was aber, wenn Aufzeichnungen verloren gingen, unvollständig sind oder nie vorhanden waren? Wie beantworten wir unsere Frage, seit wann es überhaupt Menschen gibt? Wie hat sich ihre Umgebung gewandelt? Seit wann hat die Landschaft um uns selbst ihre heutige Gestalt, verändert sich diese vielleicht auf langen Zeitskalen so, daß auch unser Leben dadurch beeinflußt werden wird? So vielfältig wie die Fragestellungen sind auch die als Antworten entwickelten Datierungsmethoden (siehe z. B. Wagner (1995)).

Die Lumineszenzdatierung beruht auf der Messung der Energie, die über den Datierungszeitraum in bestimmten Mineralen aufgrund von ionisierender Strahlung akkumuliert wurde. Die Strahlung stammt dabei hauptsächlich von Zerfällen der in der Umgebung vorhandenen natürlichen radioaktiven Nuklide. Bei Stimulation durch Belichten oder Erwärmen wird die Energie durch Emission von Licht wieder freigesetzt. Die Intensität dieses Lumineszenzsignals ist mit der gespeicherten Dosis korreliert. Bei bekannter Dosisleistung der Umgebung kann die Akkumulationsdauer im Mineral festgestellt werden. Damit läßt sich bestimmen, wann das Mineral zum letzten Mal belichtet oder erhitzt wurde, also wann ein Keramikgefäß gebrannt wurde oder ein Sediment bei der Umlagerung dem Sonnenlicht ausgesetzt war. Die Methode findet dadurch sowohl Anwendung in der Archäologie als auch in den Geowissenschaften und in der Anthropologie. Es lassen sich Aussagen treffen über die Echtheit eines Keramikgefäßes oder den erosionsbedingten Wandel einer Landschaft. Auch der Unterkiefer des *Homo heidelbergensis* aus Mauer wurde mittels Lumineszenz datiert, indem das Ablagerungsalter der umgebenden Sedimentschicht bestimmt wurde (Wagner und Beinbauer 1997).

Die Mehrzahl der Forschungsgruppen beschäftigt sich mit einer immer genaueren Messung der im Mineral gespeicherten Dosis. Teilweise wird sogar versucht, die Datierung einer Probe anhand einzelner Mineralkörner vorzunehmen. Gleichzeitig soll die Methode auf schwierigere Fragestellungen angewandt werden, wie z. B. die Datierung einer Gesteinsoberfläche, bei der die sonst notwendige Probenaufbereitung nicht mehr durchgeführt werden kann. Auch die Datierung von Sedimenten auf dem Mars bei einer der nächsten Marsmissionen ist geplant (Lepper und McKeever 2000). Die Genauigkeit einer Datierung hängt allerdings in gleichem Maß von den Unsicherheiten der Dosis und der Dosisleistung ab. Komplexere Aufgaben machen auch eine Weiterentwicklung in der Dosisleistungsbestimmung notwendig, zu der diese Arbeit einen Beitrag leisten soll.

Routinemäßig wird die Dosisleistung über den Gehalt an radioaktiven Nukliden mittels ausgewählter Teilproben im Labor gemessen. Besonders bei archäologischen Grabungen ist aber fast immer mit einer inhomogenen Probenumgebung zu rechnen, so daß Teilproben oft nicht repräsentativ sind. Deshalb werden zusätzlich Lumineszenzdosimeter am Ort der Probenentnahme vergraben. Mit den gegenwärtig verwendeten Dosimetern kann nach ca. einem Jahr die gespeicherte Dosis und mit der bekannten Expositionsdauer auch die Dosisleistung der Probenumgebung bestimmt werden. Allerdings steht, z. B. im Fall einer zeitlich eingeschränkten Notgrabung, nicht immer ausreichend Zeit für ein solches Verfahren zur Verfügung.

Das von Akselrod et al. (1990a) entwickelte Dosimeter  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$  ist 50 mal empfindlicher als die bis jetzt verwendeten. Ziel dieser Arbeit war es, das Material für die Lumineszenzdatierung einzusetzen und die Expositionsdauer auf wenige Wochen bis Tage zu verringern. Die Materialeigenschaften sollten im Hinblick auf die Datierungsanwendung untersucht und Messungen von Dosisleistungen im Gelände durchgeführt werden. Das besondere Interesse galt dabei inhomogenen Sedimenten und dem Vergleich mit den Ergebnissen von Labormessungen. Eine weiterführende mögliche Anwendung stellte die Datierung von Gesteinsoberflächen dar, bei der die Dosisleistung lokal am Ort von ausgewählten Körnern bestimmt werden muß. In Zusammenhang damit stellte sich die Frage, ob alle Körner eines Sediments derselben Dosisleistung ausgesetzt sind, bzw. wie groß die auftretenden lokalen Variationen sind. Dies ist vor allem dann wichtig, wenn für eine Datierung nur noch einzelne Körner verwendet werden.

In den Kapiteln 2 bis 4 werden die physikalischen Grundlagen der Lumineszenzdatierung und insbesondere der Dosisleistungsbestimmung erläutert. Aufgrund der besonderen Stellung im Rahmen dieser Arbeit ist der Gammaskpektrometrie ein eigenes Kapitel gewidmet. Die Untersuchung der Materialeigenschaften von  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$  folgt in Kapitel 5. Aufgrund der großen Empfindlichkeit der Dosimeter wird in Kapitel 6 überprüft, inwieweit die bei den Messungen verwendeten Geräte einen Einfluß auf die Meßergebnisse ausüben. Während bei den vorangehenden Untersuchungen zur Bestrahlung künstliche radioaktive Präparate verwendet werden, wird in Kapitel 7 das Verhalten in natürlichen Strahlungsfeldern betrachtet. Die Ergebnisse der Dosisleistungsmessungen sowohl im Gelände, als auch an Oberflächen, und die Variation der Dosisleistung in Sedimenten werden in den Kapiteln 8 bis 10 vorgestellt.

## Kapitel 2

# Die Methode der Lumineszenzdatierung

Manche kristalline Materialien emittieren beim Erwärmen zusätzlich zur Wärmestrahlung Licht in verschiedenen Farben. Die Intensität nimmt zu, wenn die Minerale künstlich mit radioaktiven Präparaten bestrahlt werden. Daniels et al. (1953) machten vor fast 50 Jahren den Vorschlag, diese Lumineszenz für die Datierung von archäologischen Objekten zu nutzen. Die Methode der Lumineszenzdatierung, die im ersten Abschnitt dieses Kapitels erläutert wird, basiert darauf, daß die Energie ionisierender Strahlung in manchen Mineralen über lange Zeiträume gespeichert werden kann. Durch geeignete Stimulation wird die Energie in Form eines Lumineszenzsignals freigesetzt, dessen Intensität mit der gespeicherten Dosis korreliert ist. Bei bekannter Dosisleistung kann die Akkumulationsdauer der Dosis im Mineral festgestellt werden.

Entwickelt und angewandt wurde die Methode zunächst für Keramik, indem mittels des thermisch stimulierten Lumineszenzsignals der Brennzeitpunkt bestimmt wurde (Grogler et al. 1960; Kennedy und Knopff 1960; Aitken et al. 1964). Fortschritte wurden durch die Einführung der optischen Stimulation erzielt (Huntley et al. 1985), nachdem festgestellt worden war, daß sich damit die letzte Tageslichtexposition von feldspat- und quarzhaltigen Sedimenten bestimmen ließ. Zusätzlich zu archäologischen konnten nun auch quartärgeologische Fragestellungen mit der Lumineszenzdatierung beantwortet werden. Im Laufe der Zeit wurden unterschiedliche Verfahren entwickelt, die eine möglichst genaue Bestimmung der im Mineral gespeicherten Dosis ermöglichen sollen. Einen Überblick über die wichtigsten Techniken gibt der zweite Abschnitt. Im letzten Teil des Kapitels werden die bei den Messungen verwendeten Geräte vorgestellt.

Eine ausführliche Beschreibung sowohl der theoretischen Grundlagen als auch der praktischen Durchführung der Lumineszenzdatierung geben Aitken (1985) und Aitken (1998).

### 2.1 Physikalische Grundlagen

Die ionisierende Strahlung aus Zerfällen natürlicher radioaktiver Nuklide und die kosmische Strahlung setzen in Mineralen Ladungsträger frei. Die Elektronen und Löcher werden in Kristalldefekten lokal eingefangen, deren Energiezustände sich in der Bandlücke zwischen Valenz- und Leitungsband befinden. Die Aufenthaltsdauer der Ladungsträger in den Fallen hängt ohne äußere Stimulation vom energetischen Abstand zum Valenz- oder Leitungsband ab. In Quarz oder Feldspat ist die Lebensdauer dieser Zustände so hoch, daß sich über geologische Zeiträume immer mehr Ladungsträger in den Fallen ansammeln. Durch Stimulation von außen, wie z. B.

Licht oder Hitze, werden die Elektronen und Löcher „freigesetzt“ und rekombinieren unter Emission von Licht. Dieses Lumineszenzsignal wächst mit der im Material absorbierten Dosis. (Die Dosis ist die pro Masseneinheit absorbierte Energie; Einheit: Gray,  $1\text{Gy} = 1\text{ J/kg}$ ).

Werden Mineralkörner z. B. bei äolischen Prozessen dem Sonnenlicht ausgesetzt, werden die Fallen entleert und die „Lumineszenzuhr“ wird auf Null gestellt. In gleicher Weise bewirkt auch das Brennen von Keramik oder das Erhitzen von Feuerstein eine Rückstellung des Signals. Nachdem die Mineralkörner bei der Ablagerung wieder vom Sonnenlicht abgeschirmt wurden, oder die Keramik sich nach dem Brennen abgekühlt hat, können sich die Fallen durch ionisierende Strahlung wieder füllen, und es baut sich ein latentes Lumineszenzsignal auf. Die Anzahl der Ladungsträger ist ein Maß für die Zeitdauer, die seit der letzten Belichtung oder Erhitzung des Materials vergangen ist.

Um im Labor die Population der Fallen zu bestimmen, werden natürliche Prozesse imitiert. Die feldspat- oder quarzhaltige Probe wird erhitzt oder belichtet und das thermisch (TL) oder optisch stimulierte Lumineszenzsignal (OSL) wird gemessen. Anschließend wird festgestellt, welche im Labor künstlich applizierte Dosis ein Signal gleicher Intensität hervorruft. Da sich die Strahlung einer Laborquelle hinsichtlich der Strahlungsarten, der Leistung und der Energiespektren vom natürlichen Strahlungsfeld unterscheidet, wird die gemessene Dosis als Äquivalenzdosis  $D_e$  bezeichnet.

Die Anzahl der Ladungsträger, die in einem bestimmten Zeitraum erzeugt werden, hängt von der Energie ab, die die Umgebung an ein Mineralkorn abgibt. Je höher die Dosisleistung  $\dot{D}$  (Einheit: Gy/a) des Umgebungsmaterials ist, um so schneller baut sich ein latentes Lumineszenzsignal auf. Aus Äquivalenzdosis und Dosisleistung kann das Alter der Probe nach der fundamentalen Gleichung der Lumineszenzdatierung berechnet werden:

$$\text{Alter } A[a] = \frac{D_e[\text{Gy}]}{\dot{D}[\text{Gy/a}]}.$$

Das gemessene Alter entspricht bei Sedimenten der Zeit, die seit der letzten Belichtung bzw. Ablagerung vergangen ist. Bei Keramik wird der Zeitpunkt des Brennens bestimmt. Dem mittels Lumineszenz datierbaren Zeitbereich sind natürliche Grenzen gesetzt. Die Anzahl der Ladungsträger in den Fallen muß ausreichend groß sein, um ein nachweisbares Lumineszenzsignal zu garantieren. Eine Obergrenze ergibt sich einerseits aus der Lebensdauer der Zustände und andererseits aus der begrenzten Anzahl von Kristalldefekten, die Elektronen und Löcher einfangen können. Der mit der Lumineszenzdatierung zugängliche Zeitraum ist daher von der Mineralogie der Probe und der lokalen Rate der ionisierenden Strahlung abhängig. Als Faustregel kann der Bereich von wenigen hundert bis hunderttausend Jahren genommen werden (Duller 1996b). Yoshida et al. (2000) gehen sogar davon aus, daß bei Körnern mit geeigneten Eigenschaften Alter bis zu 1 Mio. Jahre bestimmt werden können. Der Fehler des Alters liegt zwischen 5 und 10 %.

Zusätzlich zur Äquivalenzdosisbestimmung kann die Lumineszenz auch dazu benutzt werden, die Dosisleistung zu messen. Neben den natürlichen Dosimetermaterialien Quarz und Feldspat existiert eine Reihe von Stoffen, wie z. B.  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$  die für diese Anwendung optimiert wurden. Setzt man diese künstlichen Dosimeter einem Strahlungsfeld aus, so baut sich ebenfalls ein latentes Lumineszenzsignal auf. Allerdings ist das Signal schon nach Tagen bis Monaten ausreichend groß, um im Labor nachgewiesen zu werden. Aus der im Dosimeter gespeicherten Dosis kann man bei bekannter Expositionsdauer die Dosisleistung des Strahlungsfeldes bestimmen.

Für die Lumineszenzdatierung geeignete Proben müssen drei Grundvoraussetzungen erfüllen:

- **Signalwachstum:** Das Lumineszenzsignal muß monoton mit der absorbierten Dosis zunehmen. Bei hohen Dosen wird aufgrund der begrenzten Anzahl von Kristalldefekten eine Sättigungswirkung erreicht.
- **Signalstabilität:** Die Aufenthaltsdauer der Ladungsträger in den Fallen muß größer sein als der Datierungszeitraum. Ein Signalverlust ohne externe Stimulation, wie er z. B. bei manchen Feldspäten beobachtet wird („anomalous fading“) führt zu einer Altersunterschätzung.
- **Signalnullstellung:** Das Lumineszenzsignal muß durch das zu datierende Ereignis vollständig gelöscht werden. Werden nicht alle Ladungsträger aus den Fallen freigesetzt, kommt es zu einer Altersüberschätzung.

## 2.2 Die Bestimmung der Äquivalenzdosis

Während kaum Anstrengungen zu einer verbesserten Dosisleistungsbestimmung erfolgten, wurden verschiedene Methoden entwickelt, die eine immer genauere Messung der Äquivalenzdosis ermöglichen sollen. Unterschiede bestehen in der Art der Stimulation, in der verwendeten Korngröße, in der Applikation der künstlichen Dosis und in der zur Messung verwendeten Probenmenge. Eine ausführliche Darstellung aller Methoden gibt Wintle (1997). Da das Augenmerk dieser Arbeit auf der Dosisleistungsbestimmung liegt, wird hier nur ein zum Verständnis der folgenden Kapitel nötiger Überblick gegeben.

### TL, OSL und Radiolumineszenz

Anfänglich wurde das latente Lumineszenzsignal durch Erwärmen einer Probe stimuliert. Mißt man das Signal in Abhängigkeit von der Temperatur, stellt man bei bestimmten Temperaturen eine besonders starke Emission (Leuchtpeak) fest: Reicht die thermische Energie aus, werden Elektronen aus den Fallen ins Leitungsband gehoben und rekombinieren unter Emission von Lumineszenz mit Löchern, bis alle Fallen entleert sind. Da oft verschiedene Kristalldefekte mit unterschiedlichen Energien vorhanden sind, weist eine solche Leuchtkurve meist mehrere Peaks auf. Die Thermolumineszenzdatierung (TL-Datierung) etablierte sich besonders bei gebrannten Objekten.

Ab Mitte der 80er Jahre wurde zur Datierung der Ablagerung eines Sediments zusätzlich die OSL verwendet, bei der Licht im sichtbaren Wellenlängenbereich zur Stimulation eingesetzt wird. Die Photonen stimulieren nur eine bestimmte Elektronenpopulation, so daß das resultierende Lumineszenzsignal mit der Zeit immer mehr abnimmt. In ihrer einfachsten Form gleicht die Ausleuchtkurve einem exponentiellen Zerfall. Hütt et al. (1988) entdeckten zusätzlich die Möglichkeit, Feldspäte infrarot zu stimulieren (IR-OSL bzw. IRSL).

Einen anderen Ansatz bietet die IR-Radiolumineszenz, die von Trautmann et al. (1999) erstmals vorgeschlagen sowie von Schilles (2002) an der Forschungsstelle Archäometrie weiterentwickelt wurde. Anstatt die latente Lumineszenz zu stimulieren und die Zahl der Ladungsträger in den Fallen zu messen, wird die Probe bestrahlt. Das dabei beim Einfang der Ladungsträger in den Fallen emittierte Infrarotsignal ist ein Maß für die Anzahl der Defekte, in denen sich noch keine Ladungsträger befanden.

## Feinkorn- und Grobkorntechnik

Während  $\gamma$ -Strahlung im Boden eine mittlere Reichweite von ca. 40 cm hat, liegt der Wert für  $\beta$ -Strahlung nur noch bei ca. 2 mm, und  $\alpha$ -Strahlung wird in einem Quarzkorn bereits innerhalb ca. 20  $\mu\text{m}$  stark abgeschwächt. Dementsprechend ist der Dosisanteil, der in einem Korn von einer der Strahlungsarten aufgebaut wird, von der Korngröße abhängig. Zur Datierung werden Körner verwendet, bei denen eine möglichst einfache Trennung der Beiträge der einzelnen Strahlungsarten möglich ist.

Bei der *Feinkorntechnik* werden Körner der Größen 4-11  $\mu\text{m}$  datiert, da diese von allen Strahlungsarten vollständig und gleichmäßig durchdrungen werden. Körner der Größen 90-200  $\mu\text{m}$  werden bei der *Grobkorndatierung* verwendet. Die  $\alpha$ -Strahlung hat hier nur eine Wirkung auf eine 20  $\mu\text{m}$  breite Rinde, die durch ätzen mit Flußsäure entfernt wird. Allerdings wird auch die  $\beta$ -Strahlung auf ihrem Weg durch das Korn geschwächt, was nach Mejdahl (1979) durch einen korngrößenabhängigen Korrekturfaktor bei der  $\beta$ -Dosisleistung berücksichtigt wird.

## Regenerative und additive Verfahren

Zur Bestimmung der Äquivalenzdosis wird die Probe im Labor mit bekannten Dosen bestrahlt. Das Signal wird in Abhängigkeit von der applizierten Dosis gemessen, und die Äquivalenzdosis ergibt sich dann durch einen Vergleich des natürlichen Signals mit dieser Wachstumskurve. Es gibt dabei zwei mögliche Vorgehensweisen, wobei die Probe in identische Teilproben aufgeteilt wird.

Beim additiven Verfahren (siehe Abbildung 2.1 links) wird das natürliche Signal einer Teilprobe gemessen. Die anderen natürlich belassenen Proben erhalten zusätzlich Dosen zunehmender Höhe. Ausgehend vom natürlichen Signal wird eine Wachstumskurve in Abhängigkeit von der künstlichen Dosis aufgenommen. Durch Extrapolation zum Schnittpunkt mit der Abszisse wird die Äquivalenzdosis bestimmt.

Im Gegensatz dazu werden beim regenerativen Verfahren (Abbildung 2.1 rechts) die restlichen Teilproben vor der Bestrahlung zurückgestellt. Über eine Interpolation der Wachstumskurve wird dann aus dem natürlichen Signal die Äquivalenzdosis bestimmt.

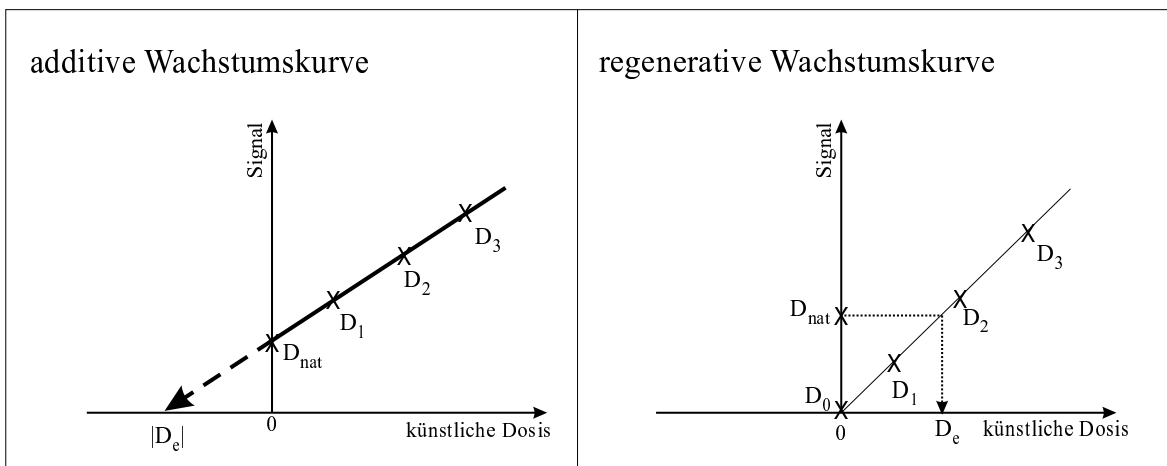


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung einer additiven und regenerativen Wachstumskurve.

## Multiple-Aliquot-, Single-Aliquot- und Single-Grain-Techniken

Bei den Datierungen werden zur Messung jedes einzelnen Dosispunktes der Wachstumskurve mehrere Teilproben (Aliquots) herangezogen. Da es nicht möglich ist, wirklich identische Aliquots zu erzeugen, müssen die einzelnen Messungen z. B. mit dem Signal einer Testdosis normiert werden.

Kleinere Probenmengen als bei der Multiple-Aliquot-Methode werden bei den Single-Aliquot-Techniken benötigt, die von Duller (1996a) und Murray et al. (1995) zur Sedimentdatierung entwickelt wurden. Dabei wird eine OSL-Wachstumskurve mit einer einzelnen Teilprobe aufgebaut. Gegenwärtig wird an der Forschungsstelle von Carola Busse ein Projekt durchgeführt, das es ermöglichen soll, auch kleine Keramikscherben mit einer Single-Aliquot-Technik zu datieren.

Bei Single-Grain-Techniken wird die Wachstumskurve nur noch mit einzelnen Körnern bestimmt. Dabei ist es möglich, die Häufigkeitsverteilung der Äquivalenzdosen in einer Probe festzustellen. Schlecht oder nur teilweise gebleichte Proben können erkannt und eine resultierende Altersüberschätzung kann erklärt werden (Murray und Roberts 1997).

## 2.3 Geräte

Zur Stimulation und Detektion des Lumineszenzsignals wurden in dieser Arbeit zwei verschiedene Geräte verwendet.

Das Thermolumineszenz-Datierungssystem Typ 7188 der Firma ELSEC besteht aus einer Heizplatteneinheit, mit der die Probe thermisch stimuliert wird. Das Signal wird mit einem Photomultiplier detektiert und mit einem PC aufgezeichnet. Die Probe wird automatisch zweimal erhitzt, und die Zählereignisse aus dem zweiten Zyklus werden als Untergrund vom Lumineszenzsignal abgezogen. Es kann nur jeweils ein einzelnes Probenscheibchen gemessen werden und der Wechsel muß von Hand erfolgen. Für Messungen im Blau- und UV-Bereich stehen die Blaufilter 5-58 und 7-59 der Firma Corning (Kopp) mit jeweils 3 mm Dicke zur Verfügung (siehe Abbildung 2.2).

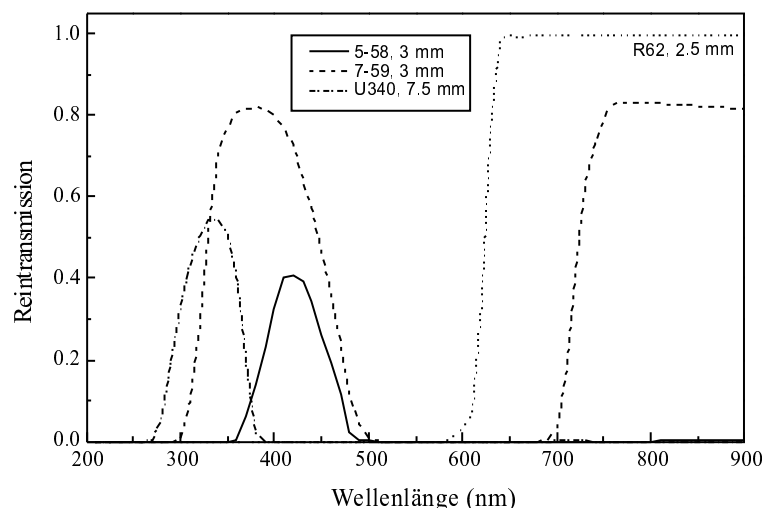


Abbildung 2.2: Reintransmissionen der verwendeten Filter bezogen auf die angegebenen Filterdicken.

Beim Risø TL/OSL-DA-15 besteht zusätzlich die Möglichkeit zur Bestrahlung und optischen Stimulation (Markey et al. 1997). Bis zu 48 Probenscheibchen befinden sich auf einem drehbar gelagerten Tablett. Gemäß einer Sequenz, die vom Benutzer selbst erstellt wird, werden die Scheibchen vollautomatisch an die Bestrahlungs- oder Meßposition gebracht. In das Gerät sind eine  $^{241}\text{Am}$   $\alpha$ -Quelle (10.7 MBq) und eine  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$   $\beta$ -Quelle mit einer Aktivität von 1.48 GBq eingebaut. Letztere ist auf einem Edelstahlrad befestigt, das die Quelle nach Ende einer Bestrahlung nach oben dreht und so gleichzeitig zur Abschirmung dient. Die Dosisleistung der Quelle bezogen auf Grobkorn Quarz beträgt etwa 0.1 Gy/s. Die infrarote Stimulation erfolgt mit einer Laserdiode (Wellenlänge 830 nm); zur Blaustimulation stehen LEDs mit einer Wellenlänge von 470 nm und einem Energiefluß von 18 mW/cm<sup>2</sup> am Ort der Probe zur Verfügung. Für Messungen von Blau- und UV-Emissionen wurden in dieser Arbeit vor den Photomultiplier ein Blaufilter (Corning 5-58, 3 mm) oder ein UV-Filter (Hoya U340, 7.5 mm) eingebaut. Die von den Firmen angegebenen Reintransmissionen der Filter sind in Abbildung 2.2 dargestellt.

Beim Bestücken der Geräte wurde eine rote Taschenlampe mit Filter Hoya R62 verwendet. Um festzustellen, ob das Licht dieser Lampe eine Bleichwirkung auf die Dosimeter hat, wurden die Dosimeter bestrahlt und anschließend für 1 min, 2 min und 6 min direkt unter die Lampe gelegt. Zusätzlich wurde direkt vor dem Experiment die Batterie der Lampe erneuert, um eine maximale Bleichwirkung zu garantieren. Beim Vergleich mit dem Signal, das direkt nach der Bestrahlung und ohne Belichtung gemessen wurde, konnte im Rahmen der Meßgenauigkeit kein Unterschied festgestellt werden. Da bei einem normalen Einsatz der Lampe die Dosimeter kaum länger als 6 min dem Licht ausgesetzt sind und zusätzlich die Lampe nicht direkt auf die Dosimeter gerichtet ist, kann davon ausgegangen werden, daß das Licht der roten Taschenlampe nicht zu einer Verfälschung der Meßergebnisse führt.

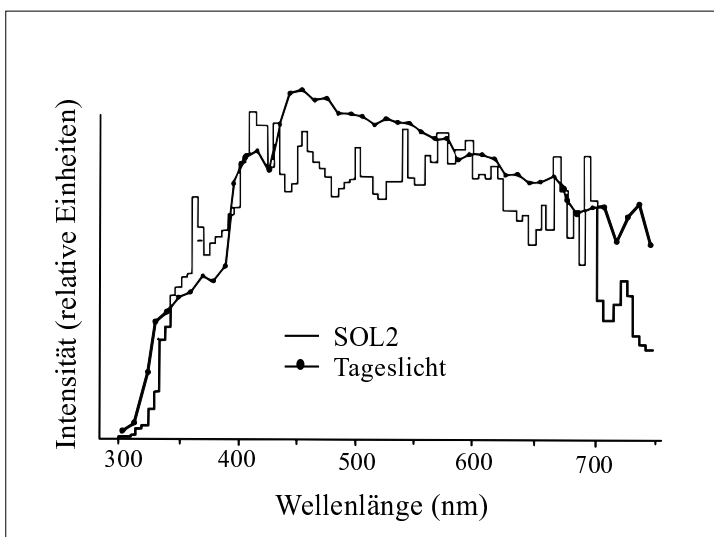


Abbildung 2.3: *Spektrale Strahlungsverteilung von SOL2 und Tageslicht (vom Hersteller angegeben).*

Um die Lichtempfindlichkeit der Dosimeter bei verschiedenen Wellenlängen zu testen, wurde ein Sonnenlichtsimulator vom Typ SOL2 der Dr. K. Hönle GmbH verwendet. Einzelne Wellenlängenbereiche wurden aus dem Spektrum (siehe Abbildung 2.3) mit Interferenzfiltern ausgewählt.



## Kapitel 3

# Die natürliche Dosisleistung

Als natürliche Dosisleistung  $\dot{D}$  bezeichnet man die Dosis, die in einer bestimmten Zeiteinheit in einer Probe gespeichert wird und damit zum Aufbau eines latenten Lumineszenzsignals führt (Einheit: Gy/s). Dazu tragen zum einen die bei den Zerfällen der natürlichen radioaktiven Nuklide freigesetzte  $\alpha$ -,  $\beta$ - und  $\gamma$ -Strahlung und zum anderen die kosmische Strahlung bei. Gemäß den unterschiedlichen Strahlungsarten werden vier verschiedene Beiträge zur Gesamtdosisleistung  $\dot{D}$  unterschieden:  $\dot{D}_\alpha$ ,  $\dot{D}_\beta$ ,  $\dot{D}_\gamma$  und  $\dot{D}_{cosm}$ . Im ersten Abschnitt werden die natürliche Radioaktivität und resultierende Unsicherheiten in der Dosisleistungsbestimmung beschrieben. An der Forschungsstelle Archäometrie werden unterschiedliche Methoden zur Feststellung der Nuklidgehalte und Einzeldosisleistungen verwendet. Aufgrund ihrer Wichtigkeit für die Ergebnisse dieser Arbeit wird die Gammaskpektrometrie in einem eigenen Kapitel beschrieben. Die Alpha- und Beta-Zählung werden in den folgenden Abschnitten näher erläutert. Ein weiterer Teil des Kapitels beschäftigt sich mit der kosmischen Strahlung. Im letzten Abschnitt wird erklärt, wie sich aus den Ergebnissen der Einzelmessungen die Gesamtdosisleistung berechnen läßt. Einen ausführlichen Überblick über Dosisleistungsbestimmung gibt Aitken (1985).

### 3.1 Prinzip und Unsicherheiten der Dosisleistungsbestimmung

Bei der Bestimmung der Dosisleistung wird vorausgesetzt, daß die in einem unendlichen Volumen freigesetzte Energie auch in diesem Volumen wieder absorbiert wird (Energieerhaltungssatz). Wenn das Medium homogen ist, muß dieselbe Annahme auch für ein Volumenelement gelten, und damit auch für die Dosis (= pro Masseneinheit emittierte / absorbierte Energie) bzw. Dosisleistung (= Dosis pro Zeiteinheit). Für  $\gamma$ -Strahlung wird in einem Sediment eine Mittlere Reichweite von 40 cm angenommen. Wird deshalb eine Probe aus der Mitte einer homogenen Kugel mit diesem Radius entnommen, so kann die Kugel als unendliches Volumen betrachtet werden und es kann aus der von der Probe abgegebenen Dosisleistung auch auf die absorbierte Dosisleistung geschlossen werden. Bei  $\alpha$ - und  $\beta$ -Strahlung verringert sich der Radius entsprechend den Reichweiten von 2 mm bzw. 20  $\mu\text{m}$ . Um die Dosisleistung einer Probe zu bestimmen, muß deshalb festgestellt werden, wieviel Energie eine bestimmte Menge der Probe in einem Zeitintervall abgibt. Diese Energie stammt aus dem Zerfall natürlicher radioaktiver Nuklide.

### 3.1.1 Natürliche radioaktive Nuklide

Die interstellare Materie, aus der sich die Erde gebildet hat, enthielt extrem langlebige radioaktive Nuklide. Obwohl ihre Teilchenzahl entsprechend ihren Halbwertszeiten abnahm, sind sie noch überall vorhanden und leisten den größten Beitrag zur natürlichen Dosisleistung. Bedeutend sind dabei  $^{40}\text{K}$  und  $^{87}\text{Rb}$  sowie die Radionuklide der Zerfallsreihen von  $^{232}\text{Th}$  und  $^{238}\text{U}$  bzw.  $^{235}\text{U}$ . Da bei jedem Zerfall eines Nuklids eine bekannte Energiemenge frei wird, kann aus der Halbwertszeit des Zerfalls und der Anzahl der Nuklide in der Probe die Dosisleistung berechnet werden.

Kalium ist mit 2.3 % Gewichtanteil das siebthäufigste Element der Erdkruste. Das radioaktive Isotop  $^{40}\text{K}$  nimmt einen Anteil von 0.0117 % am gesamten Kalium-Gehalt ein. In 89 % aller Fälle zerfällt das Isotop in  $^{40}\text{Ca}$  (Halbwertszeit  $1.4 \cdot 10^9$  a). Zusätzlich besteht die Möglichkeit des Elektroneneinfangs, wobei  $^{40}\text{Ar}$  entsteht (Halbwertszeit  $1.2 \cdot 10^{10}$  a). Aufgrund ihrer geochemischen Ähnlichkeit findet man in den meisten Proben ein konstantes Konzentrationsverhältnis zwischen Kalium und Rubidium. Rubidium besteht zu annähernd 27.8 % aus dem  $\beta$ -Strahler  $^{87}\text{Rb}$ , der mit einer Halbwertszeit von  $4.8 \cdot 10^{10}$  a in  $^{87}\text{Sr}$  zerfällt. Bei der Berechnung der Dosisleistung aus dem Kaliumgehalt wird Rubidium mit einem Verhältnis von 200:1 berücksichtigt (Warren 1978).

Ebenso kann davon ausgegangen werden, daß  $^{235}\text{U}$  einen Anteil von 0.71 Gewichtsprozent am gesamten Urangehalt einnimmt. Bei den Zerfällen von  $^{232}\text{Th}$  und  $^{238}\text{U}$  bzw.  $^{235}\text{U}$  besteht die Besonderheit darin, daß die entstehenden Tochternuklide nicht stabil sind und erst nach einer ganzen Kette von Zerfällen stabile Bleisotope entstehen.

Ausgehend von den Mutternukliden der Ketten bilden sich mit der Zeit die Tochternuklide. Deren Halbwertszeit ist meist wesentlich kürzer, so daß die Aktivität des Mutternuklids über mehrere Halbwertszeiten des Tochternuklids als konstant gesehen werden kann. Mit Hilfe des Zerfallsgesetzes kann dann gezeigt werden, daß nach einem bestimmten Zeitraum, abhängig von den Halbwertszeiten der Tochternuklide, die Aktivität aller Nuklide in einer Kette gleich ist. Man sagt, die Kette befindet sich im säkularen Gleichgewicht. Eine mathematische Herleitung dieses Effekts findet sich in Lieser (1997). Nach ihren Mutternukliden werden die Ketten als Thorium- ( $^{232}\text{Th}$ ), Uran-Actinium- ( $^{235}\text{U}$ ) und Uran-Radium-Reihe ( $^{238}\text{U}$ ) bezeichnet.

Alle radioaktiven Nuklide einer Kette tragen mit ihrer Strahlung zur natürlichen Dosisleistung bei. Nicht alle Zerfälle können mit den zur Verfügung stehenden Geräten nachgewiesen werden. Deshalb wird das radioaktive Gleichgewicht der Ketten ausgenutzt: Kann die Aktivität eines einzigen Nuklids gemessen werden, kann daraus der Gehalt an allen anderen Nukliden der Kette berechnet werden. Probleme treten dann auf, wenn sich eine Kette nicht mehr im Gleichgewicht befindet.

### 3.1.2 Radioaktive Ungleichgewichte

Unterschiedliche Elemente einer Zerfallskette besitzen oft unterschiedliche geochemische Eigenschaften, so daß die Nuklide durch natürliche Prozesse getrennt werden. Die Kette befindet sich dann im radioaktiven Ungleichgewicht. Ursachen können unterschiedliche Löslichkeiten, Diffusions- und Leckraten sein. Einen starken Einfluß besitzt aber auch die Halbwertszeit des jeweiligen Nuklids, da sie die Transportstrecke maßgeblich bestimmt. In Abbildung 3.1 sind alle Zerfälle der Ketten und zusätzlich die Zerfälle von  $^{40}\text{K}$  und  $^{87}\text{Rb}$  aufgelistet.

THORIUM-232						Ra-228	←	Th-232		
								Ac-228		
		Pb-212	←	Po-216	←	Rn-220	←	Ra-224	←	Th-228
		10,6h		0,15s		55,6s		3,64d		1,9a
	Tl-208	←	Bi-212							
	3,1min		60,6min							
		Pb-208	←	Po-212						
		stabil		0,3ps						

URAN-235									Th-231	←	U-235
			Bi-215	←	At-219	←	Fr-223	←	Ac-227	←	Pa-231
			7,4min	97%	0,9min	3%	4*10 <sup>-3</sup> %	100%	1,2%	98,8%	3,3*10 <sup>4</sup> a
		Pb-211	←	Po-215	←	Rn-219	←	Ra-223	←	Th-227	
		36,1min	~100%	1,8ms		3,9s		11,4d		18,7d	
	Tl-207	←	Bi-211	←	At-215						
	4,8min	99,68%	2,15min	0,32%	~100 s						
		Pb-207	←	Po-211							
		stabil		0,52s							

URAN-238									Th-234	←	U-238	
										Pa-234		
		Pb-214	←	Po-218	←	Rn-222	←	Ra-226	←	Th-230	←	U-234
		26,8min	99,98%	3,05min	0,02%	3,8d		1600a		8*10 <sup>4</sup> a		2,5*10 <sup>5</sup> a
	Tl-210	←	Bi-214	←	At-218							
	1,3min	0,04%	19,8min	99,96%	~2s							
Hg-206	←	Pb-210	←	Po-214								
8,1min	7,5*10 <sup>-3</sup> %	22a	~100%	162 s								
	Tl-206	←	Bi-210	←								
	4,3min	5*10 <sup>-5</sup> %	5,0d	~100%								
		Pb-206	←	Po-210								
		stabil		138,4d								

natürliche primordiale Radionuklide außerhalb der Zerfallsreihen:

$^{40}\text{K}$  (1,2\*10<sup>10</sup> a) →  $^{40}\text{Ca}$  (89%)  
 $^{40}\text{K}$  (1,2\*10<sup>10</sup> a) →  $^{40}\text{Ar}$  (11%)  
 $^{87}\text{Rb}$  (4,8\*10<sup>10</sup> a) →  $^{87}\text{Sr}$

Abbildung 3.1: Zerfallsreihen der Radionuklide <sup>232</sup>Th, <sup>235</sup>U und <sup>238</sup>U, sowie Zerfälle von <sup>40</sup>K und <sup>87</sup>Rb. (nach Kuhn (2000))

Nach Olley et al. (1996) und Olley et al. (1997) treten in der  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihe im allgemeinen keine Ungleichgewichte auf, weil die Halbwertszeiten der mobilen Nuklide zu kurz sind. Auch die Konzentration von  $^{40}\text{K}$  wird über den Datierungszeitraum als konstant betrachtet. Die beiden Uranzerfallsreihen weisen jedoch mobile Nuklide auf, die Ursache für ein Ungleichgewicht sein können. Ungleichgewichte in der Zerfallsreihe von  $^{235}\text{U}$  werden nicht berücksichtigt, da der Beitrag zur Dosisleistung aufgrund des geringen Gewichtsanteils am Gesamturan (Kapitel 3.1.1) vernachlässigbar ist.

Ungleichgewichte in der  $^{238}\text{U}$ -Zerfallsreihe treten jedoch häufig auf und können nicht vernachlässigt werden. Eine detaillierte Beschreibung geben Ivanovich und Harmon (1992). Der  $\alpha$ -Zerfall von  $^{238}\text{U}$  führt zu einem Rückstoß, durch den ein lokaler Schaden im Kristallgitter verursacht wird. Das später entstehende  $^{234}\text{U}$  ist dann schwächer gebunden. Es kann sich leichter in Wasser lösen und dadurch ein- oder ausgetragen werden. Das nachfolgende Tochternuklid  $^{230}\text{Th}$  dagegen gilt als stark partikeladhäsiv und wird nur partikelgebunden transportiert. In Stau- oder Grundwasserbereichen können Ungleichgewichte durch das wiederum leicht lösliche  $^{226}\text{Ra}$  verursacht werden.

Ein weiterer Kandidat für Ungleichgewichte in der  $^{238}\text{U}$ -Zerfallsreihe ist  $^{222}\text{Rn}$ , das als Edelgas zur Diffusion neigt. Durch die im Vergleich zu den anderen Ketten um Größenordnungen höhere Halbwertszeit von 3.8 d kann das Edelgas bei der Diffusion weitere Strecken zurücklegen und sogar die Probe völlig verlassen. In inhomogenen Sedimenten ist es dadurch möglich, daß sich in uranarmen Schichten Radontochternuklide anreichern und umgekehrt. Dies macht sich auch bemerkbar, wenn die Proben zur Messung in die jeweiligen Behälter abgefüllt werden. Es muß dann von einem fast völligen Radonverlust ausgegangen werden. Bei einem völligen Verlust des Tochternuklids kann sich nach ca. 5 Halbwertszeiten ein neues Gleichgewicht einstellen. Deshalb werden alle Proben vor einer Messung 4 Wochen gelagert, um den Verlust des Radon auszugleichen.

Bei der Gammaspektrometrie können Ungleichgewichte festgestellt werden, wenn die Aktivitäten der gemessenen Nuklide verschieden sind. Aus den Unterschieden muß dann auf die Art des Ungleichgewichts geschlossen werden. Aus den Daten läßt sich aber nicht feststellen, ob die Ursache für das Ungleichgewicht schon lange zurück liegt, und sich bereits wieder langsam ein Gleichgewicht einstellt, oder ob das Ungleichgewicht erst vor kurzer Zeit entstand. Dies kann nur aus dem geochemischen Zusammenhang der Probe erschlossen werden und wirkt sich stark auf die zu bestimmende Dosisleistung aus.

Verschiedene Ansätze, Ungleichgewichte bei der Bestimmung der Dosisleistung zu berücksichtigen, werden von Krbetschek et al. (1994), Readhead (1987) und Mangini et al. (1983) vorgestellt. Statt nur den Gehalt des Mutternuklids zu verwenden, wird z. B. jedes Nuklid einzeln mit der zugehörigen Aktivität in die Berechnung mit einbezogen.

### 3.1.3 Wassergehalt

Fast alle Proben, egal ob Keramik oder Sediment, enthalten in ihren Poren Wasser. Dieses enthält keine radioaktiven Nuklide in nennenswerten Mengen und trägt dadurch nur vernachlässigbar zur natürlichen Dosisleistung bei. Gleichzeitig absorbiert das Wasser aber die Strahlung der Probe, so daß sie nur noch in verringertem Maße zur Lumineszenzerzeugung zur Verfügung steht. Da die Bestimmung der Dosisleistung an getrocknetem Probenmaterial durchgeführt wird, muß eine Korrektur bezüglich des Wassergehalts der Probe angebracht werden.

Aus einer anderen Perspektive betrachtet hat das Wasser in den Poren zur Folge, daß die pro Masseneinheit emittierte Energie geringer wird. Das Verhältnis der Dosisleistung  $\dot{D}_t$  einer trockenen Probe zu der Dosisleistung  $\dot{D}_f$  einer feuchten, läßt sich dadurch mit den Massenschwächungskoeffizienten  $\mu$  (Index p für Probe, Index w für Wasser) in der gebräuchlichen Notation nach Aitken (1985) beschreiben:

$$\dot{D}_f = \frac{\dot{D}_t}{1 + x \cdot W F} \quad \text{mit } x = \frac{\mu_w}{\mu_p}.$$

$W$  ist der sogenannte Wassersättigungsgehalt, das Gewicht des Wassers bei Wassersättigung im Verhältnis zum Trockengewicht der Probe. Der mittlere Wassergehalt über den Datierungszeitraum wird durch den Faktor  $F$  ( $0 \leq F \leq 1$ ) berücksichtigt.

Das Verhältnis  $x$  der Massenschwächungskoeffizienten ist von der jeweiligen Art der Strahlung abhängig. Unter der Annahme, daß der Massenschwächungskoeffizient der Probe ausreichend gut mit dem von Aluminium übereinstimmt, gibt Zimmerman (1971) folgende Werte an:

$$\alpha - \text{Strahlung} : x = 1.50$$

$$\beta - \text{Strahlung} : x = 1.25$$

$$\gamma - \text{Strahlung} : x = 1.14.$$

Aitken und Xie (1990) kommen mittels theoretischer Berechnungen zu leicht anderen Ergebnissen, halten aber eine Korrektur der Werte nicht für notwendig.

Größere Fehler treten bei der Abschätzung des über den Datierungszeitraum relevanten Wassergehaltes auf. Jahreszeitliche Schwankungen werden von klimatischen Veränderungen überlagert. Für  $W \cdot F$  wird daher häufig das Massenverhältnis  $m_w/m_p$  zum Zeitpunkt der Probennahme eingesetzt. Der Schwankungsbereich kann dann durch eine Betrachtung des Porenvolumens eingegrenzt werden (Kadereit 2000).

## 3.2 Beta-Zählung

Die  $\beta$ -Dosisleistung einer Probe läßt sich aus den Kalium-, Uran- und Thorium-Gehalten berechnen, die mittels der Gammaspektrometrie ermittelt wurden. Zusätzlich wird die  $\beta$ -Dosisleistung an der Forschungsstelle Archäometrie direkt mit Hilfe eines Risø Five Sample Low-Level Beta GM Multicounter System GM-25-5 gemessen. Wie von Bøtter-Jensen und Mejdahl (1988) und Bøtter-Jensen und Nielsen (1989) beschrieben, besteht das Gerät aus 5 Geiger-Müller-Zählrohren, in denen die Elektronen der  $\beta$ -Zerfälle nachgewiesen werden.

### 3.2.1 Funktionsweise eines Geiger-Müller-Zählrohres

Ein Geiger-Müller-Zählrohr besteht aus einem negativ geladenen Metallzylinder, in dessen Mitte als Anode ein dünner Draht verläuft. Bei dem hier verwendeten Gerät liegt die Betriebsspannung zwischen Kathode und Anode bei 1300 V; das Zylindervolumen ist mit einem Gasgemisch aus 99 % Argon und 1 % Isobutan gefüllt.

Tritt ein Elektron in das Zählvolumen ein wird es durch das herrschende elektrische Feld in Richtung Anode beschleunigt. Durch primäre und sekundäre Stoßprozesse kommt es zu einer lawinenartigen Ionisierung des Gases, die nicht von der Energie des auslösenden Elektrons abhängt. Voraussetzung ist dabei, daß das Gas keine Elektronenaffinität besitzt, sondern durch

Abgabe von Elektronen positiv geladene Ionen gebildet werden. Diese bilden in der Umgebung des Anodendrahtes eine positive Ladungswolke, verringern dadurch die Feldstärke und verhindern eine weitere Lawinenbildung. Durch die auf die Anode auftreffenden Elektronen kommt es zu einem kurzen Strompuls, der als Zählereignis registriert wird. Die Argonionen wandern in Richtung Kathode und übertragen dabei ihre Ladung auf das Isobutan. Durch das größere Molekülgewicht des Löschgases reicht die übertragene Energie nicht aus, um beim Auftreffen auf die Kathode Sekundärelektronen auszulösen und die Entladung erlischt. Die Totzeit, also die Zeit vom Eintreffen eines Elektrons bis zum Erlöschen der Entladung, liegt im Bereich von  $10^{-6}$  s. Eine detaillierte Beschreibung der Funktionsweise eines Geiger-Müller-Zählrohres gibt Knoll (1999).

Von der Probe emittierte  $\alpha$ -Teilchen werden dadurch abgeschirmt, daß die Probe mittels im Handel erhältlicher Frischhaltefolie und Alufolie luftdicht verpackt wird. Durch  $\gamma$ -Strahlung kann jedoch ein Untergrund verursacht werden. Die Photonen ionisieren zwar nicht das Zählgas, können aber in der Wand des Zählers Elektronen auslösen, die als Zählereignis registriert werden, sobald sie in das Zählvolumen gelangen. Es konnte nicht in Erfahrung gebracht werden, inwieweit die verwendeten Zählrohre in dieser Hinsicht optimiert sind. Zusätzlich wird mit Hilfe einer Koinzidenzschaltung der Untergrund aufgrund der kosmischen Strahlung (siehe Kapitel 3.4) korrigiert. Ein Guard-Zähler registriert alle Ereignisse, die nicht durch die Strahlung der Probe hervorgerufen werden. Registrieren Guard und Probenzähler gleichzeitig ein Ereignis, so wird angenommen, daß es durch die kosmische Strahlung hervorgerufen wurde, und es wird nicht registriert

### 3.2.2 Bestimmung der $\beta$ -Dosisleistung

Mit den fünf Zählrohren können fünf verschiedene Proben gleichzeitig gemessen werden. Zur Kontrolle wird die 5. Probe meist durch ein Referenzmaterial ersetzt. Die gemessene Zählrate ist nicht nur von der Aktivität der Probe, sondern auch von der Effizienz des Detektors abhängig. Um aus der Zählrate auf die  $\beta$ -Dosisleistung schließen zu können, muß mit Hilfe eines Referenzmaterials mit bekannter Dosisleistung ein Umrechnungsfaktor bestimmt werden. Durch eine Messung mit reinem Quarz wird zudem der Blindwert jedes Zählers festgestellt.

Unsicherheiten ergeben sich daraus, daß nicht der Gehalt an einzelnen Nukliden, sondern die gesamte  $\beta$ -Dosisleistung gemessen wird. Beim Vergleich der Zählrate mit einem Referenzmaterial wird vorausgesetzt, daß die relativen Gehalte an Kalium, Uran und Thorium ähnlich sind. Ungleichgewichte können nicht festgestellt werden. Zudem wird die freigesetzte Strahlung bereits in der Probe selbst abgeschwächt. Diese Selbstabsorption hängt von der Probenzusammensetzung ab, so daß sich Referenzmaterial und Probe möglichst ähnlich sein sollten (siehe auch Kapitel 4.1.3). Ein Beispiel für die Auswertung einer Messung mit zugehöriger Fehlerrechnung ist in Anhang C.1 aufgeführt. Allgemeine Bemerkungen zur Fehlerrechnung finden sich in Anhang B.

## 3.3 Alpha-Zählung

Da sich die Anwendung von  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C}$  als Dosimeter auf die Bestimmung der  $\beta$ -Dosisleistung und  $\gamma$ -Dosisleistung beschränkt, soll hier nur kurz auf die  $\alpha$ -Dosisleistung und ihre Bestimmung eingegangen werden. Beim  $\alpha$ -Zerfall werden zweifach positiv geladene Heliumkerne freigesetzt. Die Energie dieser Kerne ist dabei charakteristisch für das emittierende Nuklid. Bei der  $\alpha$ -Spektrometrie wird das Energiespektrum der von einer Probe freigesetzten  $\alpha$ -Teilchen gemessen.

Da die jeweilige Energie des Teilchens einem bestimmten Nuklid zuordenbar ist, kann über einen Vergleich mit einem Referenzmaterial der Nuklidgehalt der Probe bestimmt werden.

Eine vereinfachte Form der  $\alpha$ -Spektrometrie ist die Alpha-Zählung, die an der Forschungsstelle durchgeführt wird. Dabei wird nicht das Energiespektrum der Strahlung gemessen, sondern es wird festgestellt, wie viele  $\alpha$ -Teilchen insgesamt von der Probe emittiert werden. Dazu wird die Probe auf ein ZnS-Schirmchen (Durchmesser 42 mm) in einem luftdichten Probenhalter aufgebracht.  $\alpha$ -Teilchen regen das ZnS zum Szintillieren an, so daß einzelne Zerfälle mit einem Photomultiplier registriert werden können. Aus der Anzahl der Lichtblitze in einem bestimmten Zeitraum wird dann auf die  $\alpha$ -Dosisleistung geschlossen. An der Forschungsstelle stehen vier Zähler der Firma Littlemore Scientific Engineering (ELSEC) vom Typ 7286 zur Verfügung.

Das Verfahren ist jedoch ungenauer als die Gammaskpektrometrie, da wieder vorausgesetzt wird, daß die Gehalte an Uran und Thorium in allen Proben in einem konstanten Verhältnis stehen, und damit jeder Zerfallskette ein festgesetzter Bruchteil der registrierten Ereignisse zugeordnet werden kann. Zudem können wie auch bei der Beta-Zählung Ungleichgewichte in den Ketten nicht festgestellt werden.

Wie aus Abbildung 3.1 ersichtlich, wird bei den Zerfällen  $^{220}\text{Rn} \rightarrow ^{216}\text{Po} \rightarrow ^{212}\text{Pb}$  innerhalb von ca. 150 ms ein „langsames“  $\alpha$ -Teilchen-Paar emittiert. Gleichmaßen wird bei den Zerfällen  $^{219}\text{Rn} \rightarrow ^{215}\text{Po} \rightarrow ^{211}\text{Pb}$  innerhalb von ca. 2 ms ein „schnelles“  $\alpha$ -Teilchen-Paar emittiert. Dadurch besteht zusätzlich die Möglichkeit mittels Koinzidenzmessungen, den Uran- und Thorium-Gehalt der Probe direkt zu bestimmen. Koinzidenzen innerhalb von 4 ms werden der  $^{235}\text{U}$ -Zerfallsreihe zugeordnet, solche innerhalb von 20 - 400 ms der  $^{232}\text{Th}$ -Zerfallsreihe. Ein Beispiel für die Auswertung einer Messung ist mit zugehöriger Fehlerrechnung in Anhang C.2 aufgeführt. Auch dieses Verfahren ist ungenauer als eine Spektrometrie-Messung. Deshalb wird die  $\alpha$ -Dosisleistung zusätzlich zur Alpha-Zählung noch aus den Uran- und Thorium-Gehalten berechnet, die mittels der Gammaskpektrometrie erhalten wurden.

Im Vergleich mit  $\beta$ - und  $\gamma$ -Strahlung erzeugt  $\alpha$ -Strahlung bei gleicher applizierter Dosis ein um etwa einen Faktor 10 niedrigeres Lumineszenzsignal (Fleming 1966; Zimmerman 1967; Aitken et al. 1968; Zimmerman 1971). Durch die hohe Ionisationsdichte entlang der  $\alpha$ -Spur stehen nicht genügend Fallen zur Verfügung, so daß ein großer Teil der Ladungsträger wieder rekombiniert und nicht zur Erzeugung eines Lumineszenzsignals beiträgt. Dieser Tatsache wird mit Hilfe des sogenannten a-Wert-Systems Rechnung getragen (Aitken und Bowman 1975). Dabei wird für jede Probe das Verhältnis von  $\alpha$ - und  $\beta$ -strahleninduzierter Lumineszenz bestimmt und mit Hilfe des Effizienzfaktors  $a$  bei der Berechnung der Dosisleistung berücksichtigt.

### 3.4 Kosmische Dosisleistung

Strahlung von der Sonne, aber auch aus der Milchstraße und außergalaktischen Bereichen trifft ständig auf die Erde. Diese kosmische Strahlung besteht hauptsächlich aus Protonen und Heliumkernen, aber auch aus Kernen schwererer Elemente, aus Elektronen, Photonen und Neutrinos (Preuß 1993; Freidlander 1989). Ein Teil dieser Primärstrahlung wird durch das Erdmagnetfeld abgeschirmt. Der Rest erzeugt durch Stoßprozesse in der Atmosphäre Kaskaden von Elektronen, Photonen, Myonen und Nukleonen. Als ein Produkt dieser Sekundärstrahlung entsteht unter anderem aus  $^{14}\text{N}$  das Kohlenstoffisotop  $^{14}\text{C}$  als Voraussetzung für die Radio-Kohlenstoff-Datierung.

Elektronen und Myonen werden in der Atmosphäre nicht vollständig absorbiert, treffen auf den Boden und können dort ebenfalls den Aufbau eines latenten Lumineszenzsignals bewirken. Diese kosmische Dosisleistung muß zusätzlich zu den bereits beschriebenen Beiträgen bei der Bestimmung der Gesamtdosisleistung berücksichtigt werden. Die Elektronen und Photonen werden im Boden bereits nach 0.5 m fast vollständig abgeschwächt, Myonen dagegen dringen mehrere Meter ein und tragen so hauptsächlich zur kosmischen Dosisleistung bei. Diese ist somit von der Tiefe unter der Geländeoberfläche abhängig, in der sich eine Probe befand, und von der Höhe über dem Meeresspiegel. Zusätzlich wird durch das Erdmagnetfeld eine Ost-West-Asymmetrie und eine Zunahme mit dem Betrag der geographischen Breite verursacht.

Nach Aitken (1985) kann von einem Wert von ca.  $150 \mu\text{Gy/a}$  für die kosmische Dosisleistung ausgegangen werden, so daß der Beitrag zur Gesamtdosisleistung (ca. 10 bis 20 mGy/a) gering ist. Für Sedimente mit geringem Gehalt an radioaktiven Nukliden, aus oberflächennahen Lagen, aus großer Höhe (z. B. Hochgebirge) oder hohen geographischen Breiten (Polgebiete) kann der Beitrag aber ähnlich groß werden wie der der anderen Dosisleistungskomponenten, so daß eine genauere Möglichkeit zur Bestimmung wünschenswert ist.

Zur Berechnung der kosmischen Dosisleistung steht an der Forschungsstelle Archäometrie das Programm KOSM zur Verfügung, das von P. Karelin entwickelt wurde. Nötige Angaben zur Berechnung sind die Überdeckung (in m) der Probenentnahmestelle, die Höhe über NN (in km), die geographische Breite  $\Phi$  und Länge L (in Grad; N pos. bzw. O pos.) und die Dichte  $\rho$  (in  $\text{g/cm}^3$ ) des überlagernden Sediments. Gemäß Barbouti und Rastin (1983) ergibt sich dann die kosmische Dosisleistung  $D_0$  für die Höhe 0 m über NN und  $55^\circ$  geomagnetischer Breite aus:

$$D_0 [\text{Gy/ka}] = C / ( ((\text{Tiefe}/2 \cdot \rho + d)^\alpha + a) \cdot (\text{Tiefe}/2 \cdot \rho + H) \cdot e^{-B \cdot \text{Tiefe}/2 \cdot \rho} ),$$

mit  $C = 6072$ ,  $B = 5.5 \cdot 10^{-4}$ ,  $d = 11.6$ ,  $\alpha = 1.68$ ,  $a = 75$  und  $H = 212$ . In der Berechnung wird nur die halbe Tiefe (in m) berücksichtigt, weil angenommen wird, daß die überlagernde Sedimentschicht bis heute zunimmt, und die Probe dadurch im Zeitmittel nur unter einer Schicht der halben Dicke begraben war. Munyikwa (2000) diskutiert den Fall überlagernder Sedimentschichten mit variierender Dicke. Um eine für alle geographischen Lagen gültige Formel zu erhalten, muß die (positive) geomagnetische Breite  $\lambda$  der Probe bestimmt werden (McNish 1936):

$$\sin(\lambda) = 0.203 \cdot \cos(\Phi) \cdot \cos(L - 291) + 0.979 \cdot \sin(\Phi).$$

Nach Prescott und Stephan (1982) kann dann die kosmische Dosisleistung  $\dot{D}_{cosm}$  beschrieben werden durch:

$$\dot{D}_{cosm} = D_0 \cdot (F + J \cdot e^{\text{Höhe}/h}).$$

Die Parameter F, J (beide dimensionslos) und h (in km) wurden von ihnen so gewählt, daß eine möglichst gute Übereinstimmung mit den von Rossi (1948) gemessenen Werten für den Teilchenfluß erzielt wird. Die von Prescott und Stephan (1982) graphisch dargestellte Abhängigkeit der Parameter von der geomagnetischen Breite  $\lambda$  wird im Programm durch die folgenden Gleichungen wiedergegeben:

$$\begin{aligned} \lambda > 35 : F &= -0.0005 \cdot \lambda + 0.2505 \\ J &= 0.0005 \cdot \lambda + 0.7325 \\ h &= 4.1 \end{aligned}$$



$$\begin{aligned}\lambda > 20 : F &= (-0.02 \cdot \lambda + 1.45)/3 \\ J &= 0.01 \cdot \lambda + 0.4 \\ h &= -0.04 \cdot \lambda + 4.4\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}\lambda > 0 : F &= -0.0005 \cdot \lambda + 0.2505 \\ J &= 0.004 \cdot \lambda + 0.52 \\ h &= -0.0005 \cdot \lambda + 4.4\end{aligned}$$

Experimentelle Messungen mittels  $\text{CaSO}_4\text{:Dy}$ -Dosimetern und einem tragbaren NaI-Gamma-spektrometer stimmen gut mit den theoretisch berechneten Werten überein (Prescott und Hutton 1988). Zeitliche Variationen in der kosmischen Dosisleistung aufgrund von Schwankungen des Erdmagnetfeldes (weniger als  $\pm 3\%$ ) können nach Prescott und Hutton (1994) in den meisten Fällen vernachlässigt werden. Durch Schwankungen in der kosmischen Primärstrahlung muß dagegen eine Fehler von 10 % angenommen werden.

### 3.5 Berechnung der effektiven Gesamtdosisleistung

Wie beschrieben tragen zur Gesamtdosisleistung die einzelnen Dosisleistungen der verschiedenen Strahlungsarten bei. Die kosmische Dosisleistung sowie die  $\alpha$ -Dosisleistung und  $\beta$ -Dosisleistung können direkt bestimmt werden. Bei der Gammaskopimetrie werden die Gehalte an Kalium, Uran und Thorium gemessen, so daß die  $\gamma$ -Dosisleistung aus diesen Werten berechnet werden kann.

Die beim Zerfall eines Nuklids freigesetzte Energie  $E$  ist bekannt. Aus dem Nuklidgehalt  $G$  einer Probe kann die massenbezogene Aktivität und somit auch die Dosisleistung  $\dot{D}_N$  des Nuklids in der Probe berechnet werden:

$$\dot{D}_N = \frac{G \cdot N_L \cdot \lambda}{M} \cdot E \quad \text{bzw.} \quad \dot{D}_N = C \cdot G.$$

$M$  ist dabei die Molare Masse des Nuklids,  $\lambda$  die Zerfallskonstante und  $N_L$  die Avogadrokonstante ( $6.022 \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1}$ ). Die einzige variable Größe in der Gleichung ist der Nuklidgehalt  $G$ . Alle anderen Faktoren können zum Umrechnungsfaktor  $C$  zusammengefaßt werden, der nur noch vom betrachteten Nuklidzerfall abhängt. Für die bei der Lumineszenzdatierung relevanten Nuklide wurden die Umrechnungsfaktoren bereits von Aitken (1974) berechnet. Da die Halbwertszeit und die beim Zerfall freigesetzte Energie immer genauer bestimmt werden, ändern sich dementsprechend auch die Umrechnungsfaktoren. Die aktuell gültigen Werte wurden von Adamiec und Aitken (1998) für die einzelnen Nuklide und ihre Zerfälle tabelliert. Die über die Zerfallsreihen aufsummierten Werte, sowie die Faktoren für Kalium und Rubidium sind nach Strahlungsart getrennt in Tabelle 3.1 aufgelistet. Aus den mit der Gammaskopimetrie ermittelten Nuklidgehalten können mit den jeweiligen Faktoren nicht nur die  $\gamma$ -Dosisleistung sondern auch die  $\alpha$ -Dosisleistung und  $\beta$ -Dosisleistung einer Probe berechnet werden. Fehler werden nach dem Fehlerfortpflanzungsgesetz nach Gauß aus den Fehlern der Gehalte berechnet.

Bei radioaktiven Ungleichgewichten in der Probe müssen statt der Umrechnungsfaktoren für die gesamten Zerfallsreihen die Werte für die einzelnen Nuklide herangezogen werden. Nach Multiplikation mit den Einzelgehalten werden die Ergebnisse dann aufsummiert. In diesem Fall

	$\alpha$	$\beta$	$\gamma$
$^{232}\text{Th}$ - Reihe	0.732	0.0273	0.0476
$^{238}\text{U}$ - Reihe	2.685	0.143	0.112
$^{235}\text{U}$ - Reihe	16.6	0.515	0.269
Nat. U	2.78	0.146	0.113
$^{40}\text{K}$		0.782	0.243
$^{87}\text{Rb}$		0.019	
$^{40}\text{K}$ incl. $^{87}\text{Rb}$		0.801	0.243

Tabelle 3.1: Faktoren für die Umrechnung eines Nuklidgehalts (Th- und U-Gehalte in  $\mu\text{g/g}$ , Gesamtkalium-Gehalt in %) in die strahlungsspezifische Dosisleistung (mGy/a) nach Adamiec und Aitken (1998). Für  $^{40}\text{K}$  wird dabei ein Gewichtsanteil von 0.01167 % am Gesamtkalium angenommen. Das Atomverhältnis von K zu Rb beträgt 200:1.  $^{235}\text{U}$  nimmt einen Gewichtsanteil von 0.71 % am natürlichen Uran ein.

sind die so berechnete  $\alpha$ -Dosisleistung und  $\beta$ -Dosisleistung den Werten aus der Alpha- und Beta-Zählung vorzuziehen, da bei diesen Verfahren keine Ungleichgewichte berücksichtigt werden. Ist die Probe im Gleichgewicht, kann als  $\alpha$ -Dosisleistung der fehlergewichtete Mittelwert aus Gammaskopmetrie und Alpha-Zählung herangezogen werden, bei der  $\beta$ -Dosisleistung analog.

Da zur Bestimmung der Einzeldosisleistungen die trockenen Proben herangezogen werden, muß, wie in Abschnitt 3.1.3 erklärt, eine Korrektur hinzugefügt werden, die den Wassergehalt der Probe über den Datierungszeitraum berücksichtigt. Bei der kosmischen Dosisleistung wird aufgrund ihres geringen Beitrags auf eine solche Korrektur verzichtet. Die effektive Gesamtdosisleistung wird dann aus der Summe der (korrigierten) Einzelbeiträge berechnet:

$$\dot{D}_{\text{eff}} = a \frac{\dot{D}_{\alpha,\text{trocken}}}{1 + 1.5 W \cdot F} + \frac{\dot{D}_{\beta,\text{trocken}}}{1 + 1.25 W \cdot F} + \frac{\dot{D}_{\gamma,\text{trocken}}}{1 + 1.14 W \cdot F} + \dot{D}_{\text{cosm}}.$$

Der Faktor  $a$  ist der in Kapitel 3.3 erwähnte Effizienzfaktor der  $\alpha$ -Strahlung. Die natürlichen Dosisleistungen liegen in der Größenordnung von 10 bis 20 mGy/a. Die angegebene Formel gilt bei der Feinkornntechnik. Bei der Grobkornntechnik entfällt der Beitrag durch die  $\alpha$ -Dosisleistung; bei der  $\beta$ -Dosisleistung muß zusätzlich ein Abschwächungsfaktor berücksichtigt werden (siehe Kapitel 2.2).

## Kapitel 4

# Gammastrahlung

Die Energie der  $\gamma$ -Strahlung, die bei einem Zerfall frei wird, ist charakteristisch für jedes einzelne Nuklid. Wie in Kapitel 3 erwähnt, kann daher bei der Gammastrahlung der Massen-Gehalt der Probe an Uran, Thorium und Kalium bestimmt werden. Daraus werden mit Hilfe von Umrechnungsfaktoren die  $\alpha$ -,  $\beta$ - und  $\gamma$ -Dosisleistungen berechnet. Zusätzlich lassen sich die Nuklidaktivitäten in den einzelnen Zerfallsreihen feststellen, wodurch Ungleichgewichte erkannt und in die Dosisleistungsbestimmung einbezogen werden können. Um festzustellen, ob die mit den  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ :C-Dosimetern gemessenen Dosisleistungen korrekt sind, wurden in dieser Arbeit hauptsächlich die Vergleichsdaten aus der Gammastrahlung herangezogen. Aus diesem Grund wird diese Methode in einem eigenen Kapitel behandelt.

An der Forschungsstelle Archäometrie stehen im Labor drei hochauflösende Germanium-Gammastrahlungszähler zur Verfügung. Die Funktionsweise und Auswertung wird im ersten Abschnitt näher erläutert. Wie bereits erwähnt, wirkt auf eine Probe die Gammastrahlung aus einem Umfeld mit Radius 40 cm ein. Besonders bei einer stark strukturierten Probenumgebung, ist die im Labor zur Messung verwendete Probenmenge von ca. 30 g nicht mehr repräsentativ für das gesamte Umfeld. Deshalb empfiehlt es sich, zusätzlich zur Labormessung direkt vor Ort eine weitere Messung durchzuführen. Dazu wurde ein neues tragbares NaI-Gammastrahlungszähler gekauft, mit dessen Anwendung sich der zweite Abschnitt des Kapitels beschäftigt. Einen Überblick und Einblick in die Funktionsweise verschiedener Gammastrahlungszähler gibt Knoll (1999). Eine ausführliche Beschreibung über Funktionsweise und Aufbau eines Ge-Gammastrahlungszählers findet sich in Debertin und Helmer (1988) und Gilmore und Hemingway (1995).

## 4.1 Hochauflösende Germanium-Gammastrahlung

### 4.1.1 Funktionsweise

Das Kernstück eines hochauflösenden Gammastrahlungszählers ist ein meist zylinderförmiger Kristall aus Reinstgermanium. Gelangt ein Gammaquant in den Kristall, tritt es über Photoeffekt, Comptoneffekt oder Paarbildung mit den Elektronen im Kristallverband in Wechselwirkung und gibt einen Teil oder die gesamte Energie ab. Die wahrscheinlichste Art der Wechselwirkung ist von der Photonenenergie abhängig. Die primär ausgelösten Elektronen bewegen sich nun durch den Kristall; aufgrund der geringen Bandlücke bei Halbleitern (Ge: 0.7 eV) reicht ihre kinetische Energie dazu aus, Elektron-Loch-Paare zu erzeugen. Die Anzahl dieser Paare hängt dabei direkt von der Energie der Elektronen und damit auch der abgegebenen Energie des Gam-

maquants ab. Über Kontakte an den beiden Kristallenden wird ein elektrisches Feld angelegt, so daß durch die Drift der Elektronen zur Anode und der Löcher zur Kathode eine Rekombination der Ladungsträger vermieden wird. Die Höhe des so entstehenden Strompulses ist direkt mit der Energie korreliert, die das Gammaquant im Kristall abgegeben hat. Das Prinzip ist in Abbildung 4.1 graphisch veranschaulicht.

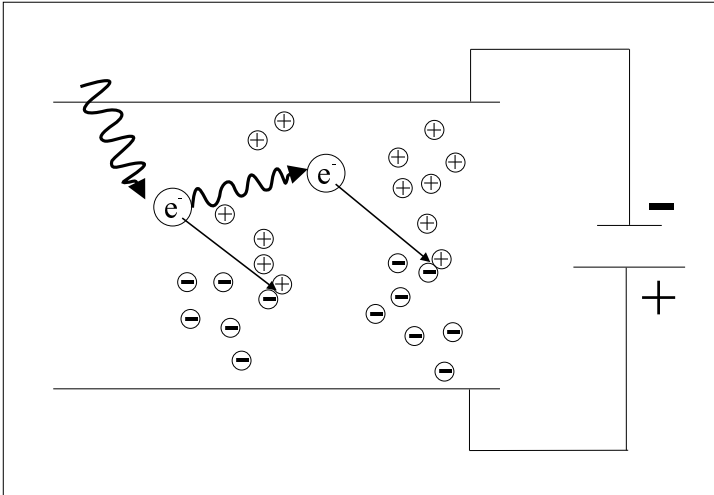


Abbildung 4.1: Funktionsprinzip eines Ge-Gammaspektrometers. Das einfallende Gammaquant (Wellenlinie) löst primäre Elektronen aus (große Kreise), die wiederum sekundäre Elektron-Loch-Paare (kleine Kreise) erzeugen.

Über einen Vielkanalanalysator kann damit die Anzahl der von einer Probe emittierten Gammaquante in Abhängigkeit von der Energie aufgezeichnet werden (Gammaspektrum). Da Elektronen im Halbleiter bereits bei Zimmertemperatur in das Leitungsband angeregt werden, werden die Kristalle auf die Temperatur von flüssigem Stickstoff ( $-77\text{ }^{\circ}\text{C}$ ) gekühlt.

Geben die Photonen ihre gesamte Energie im Kristall ab, hauptsächlich beim Photoeffekt, so entsteht ein Peak bei der jeweiligen Photonenenergie. Bei mehrfachen Prozessen können die Gammaquante aber auch vor dem völligen Energieverlust aus dem Kristall gestreut werden, so daß ein Untergrund entsteht, der bei niedrigen Energien erhöht ist. In Abbildung 4.2 ist ein typisches Gammaspektrum vom Referenzmaterial „Nussi“ (siehe Anhang A) nach drei Tagen Meßdauer dargestellt. Deutlich heben sich die scharfen Peaks vom Untergrund ab. In der logarithmischen Darstellung im Eckbild ist ab ca. 1200 keV im Untergrund ein deutlicher Abfall zu erkennen. Der Untergrund bis zu dieser sogenannten Comptonkante entsteht, wenn Gammaquante nach einem einmaligen Comptonprozeß aus dem Kristall gestreut werden; die Lage der Kante entspricht dabei dem im Prozeß maximal möglichen Energieverlust bei Rückstreuung des Photons.

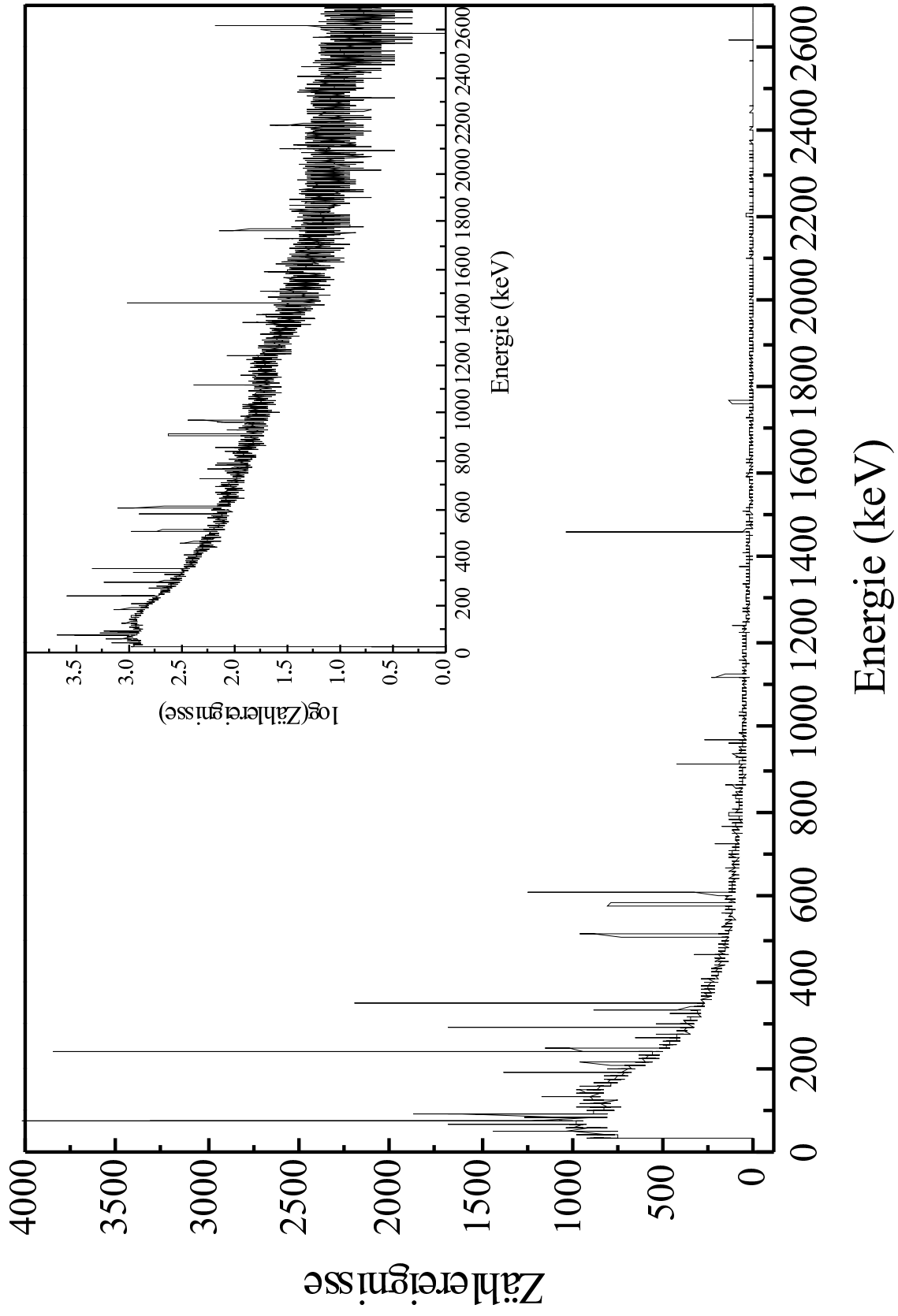


Abbildung 4.2: Mit einem Ge-Gammaspektrometer gemessenes Gammasktrum von Nussi. Im Eckbild dasselbe Spektrum mit logarithmischer Zählratenachse.

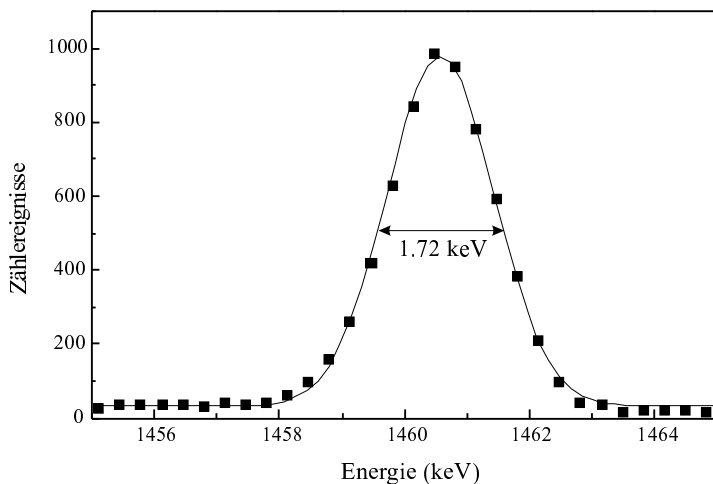


Abbildung 4.3: Ausschnitt aus Abbildung 4.2: Kaliumpeak bei 1460 keV (Symbole). Der Gauß-Fit ist als Linie eingezeichnet, ebenso die Halbwertsbreite von 1.72 keV.

Aufgrund von statistischen Schwankungen bei den Prozessen, die zum registrierten Signal führen, sind die Peaks nicht völlig scharf sondern weisen die Form einer Gaußkurve auf. Abbildung 4.3 zeigt den Kaliumpeak bei 1460 keV (Symbole) und den zugehörigen Gauß-Fit. Als Auflösung wird die Halbwertsbreite eines Peaks angegeben.

An der Forschungsstelle Archäometrie stehen drei hochauflösende Ge-Gammaspektrometer zur Verfügung. Das älteste, im folgenden als „Gamma alt“ bezeichnet, wurde von Uwe Rieser im Rahmen seiner Diplomarbeit (Rieser 1991) in Betrieb genommen. Der planare Ge-Detektor (Durchmesser: 51 mm, Dicke: 14 mm) ist für eine hohe Zählausbeute bei niedrigen Energien optimiert, wodurch eine geringere Effizienz bei höheren Energien verursacht wird. Die beiden anderen Geräte wurden von den Firmen Canberra-Packard GmbH („FH“) bzw. Detector Systems GmbH („ADC“) bezogen. Beide besitzen einen koaxialen Detektor, bei dem der Kristalldurchmesser und die Höhe gleich sind (ADC: 54 mm). Dadurch wird eine höhere Zählausbeute bei höheren Energien erreicht, andererseits führt die Geometrie zu einer geringeren Auflösung bei niedrigeren Energien. Bei 1.33 MeV beträgt die von den Herstellern garantierte Auflösung 1.7 bis 1.9 keV.

#### 4.1.2 Auswahl der bei der Auswertung berücksichtigten $\gamma$ -Linien

Bei der Auswahl der  $\gamma$ -Linien für die Auswertung muß darauf geachtet werden, daß die Linien repräsentativ für die jeweilige Zerfallskette sind. So sollte besonders beim Uran eine Verteilung über die gesamte Zerfallsreihe gegeben sein, um eventuell vorhandene Ungleichgewichte feststellen zu können. Zudem kommt es aber auch vor, daß die Linien zweier Nuklide energetisch so eng zusammen liegen, daß die Auflösung der Spektrometer eine Trennung nicht mehr zuläßt, was dann zu einer Verfälschung des Ergebnisses führt. Das dritte Auswahlkriterium ist die Wahrscheinlichkeit, mit der eine bestimmte Linie bei einem Zerfall emittiert wird. Bei kleinen Wahrscheinlichkeiten muß die Meßdauer entsprechend verlängert werden, um die Linie mit ausreichender Genauigkeit nachzuweisen; teilweise wird sogar die Nachweisgrenze des Spektrometers unterschritten. Da für durchschnittliche Proben mit ca. 3  $\mu\text{g/g}$  Uran, 8  $\mu\text{g/g}$  Thorium und 1 % Kalium eine Meßdauer von zwei bis drei Tagen angestrebt wird, wurde für die Emissionswahrscheinlichkeit eine untere Grenze von 2 % angesetzt. Die Werte für die Energien

und Emissionswahrscheinlichkeiten der Linien wurden der Nuklidtabelle<sup>1</sup> auf der Webseite des Korea Atomic Energy Research Institute (KAERI), Korea, entnommen.

Die für die Nuklide der <sup>232</sup>Th-Reihe ausgewählten Linien sind in Tabelle 4.1 (links) aufgelistet. Angegeben sind jeweils das Nuklid, bei dessen Zerfall die Linie emittiert wird, die Energie und die Emissionswahrscheinlichkeit  $P_\gamma$  der Linie. Da Ungleichgewichte in dieser Zerfallsreihe kaum auftreten, ist es ausreichend, Nuklide am Anfang und Ende der Kette über ihre Zerfälle nachzuweisen. <sup>232</sup>Th kann aufgrund der geringen Emissionswahrscheinlichkeit der  $\gamma$ -Linien nicht direkt nachgewiesen werden. Deshalb wurden fünf Linien des Tochternuklids <sup>228</sup>Ac ausgewählt. Die Linie bei 338.32 keV wird zwar durch eine Emission von <sup>223</sup>Ra aus der <sup>235</sup>U-Zerfallsreihe bei 338.28 keV gestört; doch aufgrund der geringen Emissionswahrscheinlichkeit von 2.79 % und dem geringen Anteil von <sup>235</sup>U am natürlichen Uran kann die Störung vernachlässigt werden. Die 240.99 keV Linie von <sup>224</sup>Ra überlagert sich mit der 241.98 keV Linie von <sup>214</sup>Pb und wurde deshalb verworfen. Die drei weiteren ausgewählten Linien stammen von den Nukliden <sup>212</sup>Pb und <sup>208</sup>Tl. Zwar fällt die 583.41 keV Emission von <sup>228</sup>Ac mit einer <sup>208</sup>Tl Linie zusammen, doch kann auch diese Koinzidenz aufgrund der geringen Emissionswahrscheinlichkeit (0.11 %) vernachlässigt werden.

Nuklid	Energie in keV	$P_\gamma$ in %
<sup>228</sup> Ac	129.06	2.42
	209.25	3.89
	338.32	11.27
	911.20	25.80
	968.97	15.80
<sup>212</sup> Pb	238.63	43.30
<sup>208</sup> Tl	583.19	84.48
	2614.53	99.16

Nuklid	Energie in keV	$P_\gamma$ in %
<sup>234</sup> Th	63.29	4.84
<sup>226</sup> Ra	186.21	3.59
<sup>214</sup> Pb	295.22	19.30
	351.93	37.60
<sup>214</sup> Bi	609.31	46.11
	1120.29	15.10
	1764.49	15.40
<sup>210</sup> Pb	46.54	4.25

Tabelle 4.1: Für die Auswertung ausgewählte  $\gamma$ -Linien der <sup>232</sup>Th-Reihe (links) und <sup>238</sup>U-Reihe (rechts). Angegeben sind das Nuklid, bei dessen Zerfall die Linie emittiert wird, die Energie und die Emissionswahrscheinlichkeit  $P_\gamma$  der Linie.

Die Linien der <sup>238</sup>U-Kette sind in Tabelle 4.1 aufgelistet. Das Mutternuklid selbst ist wiederum nicht nachweisbar, auch hier muß auf die Tochternuklide zurückgegriffen werden. Die 63.29 keV Linie von <sup>234</sup>Th überlagert sich mit der 63.81 keV Emission von <sup>232</sup>Th (0.267 %). Da aber keine andere Linie des Nuklids nachweisbar ist und Ungleichgewichte möglich sind, muß dieser Fehler in Kauf genommen werden. Auch weitere zur Auswertung verwendete Linien werden durch Koinzidenzen gestört (<sup>235</sup>U, 185.72 keV, 57.2 %; <sup>211</sup>Bi, 351.06 keV, 12.91 %). Jedoch wird der Fehler aufgrund des geringen Anteils von <sup>235</sup>U am natürlichen Uran vernachlässigt. Ungenauigkeiten beim Nachweis von <sup>210</sup>Pb werden durch die niedrige Energie der Linie verursacht, da der Untergrund in diesem Bereich besonders hoch ist. Nuklide aus der <sup>235</sup>U-Kette werden aufgrund von Koinzidenzen und dem geringen Gehalt der Proben nicht zur Auswertung herangezogen.

Beim Zerfall von <sup>40</sup>K wird nur eine Linie bei 1460.81 keV mit einer Wahrscheinlichkeit von 10.67 % emittiert, die auch zur Auswertung verwendet wird.

<sup>1</sup><http://atom.kaeri.re.kr/> (1. 12. 2001)

### 4.1.3 Auswertung der Spektren

Bei der Auswertung der gemessenen Spektren wird die Zählrate der Probe mit der Zählrate eines Referenzmaterials mit bekanntem Nuklidgehalt verglichen und so der Nuklidgehalt der Probe errechnet. Der Blindwert, also die Zählrate ohne Probe, wird dabei abgezogen. Zusätzlich zu den unterschiedlichen Massen von Probe und Referenzmaterial müssen noch weitere Eigenschaften der Probe und des Detektors bei der Auswertung berücksichtigt werden. Die an der Forschungsstelle verwendeten Referenzmaterialien sind in Anhang A beschrieben. Routinemäßig wird meist Nussi eingesetzt, da das Lößmaterial die größte Ähnlichkeit mit den zu datierenden Proben hat und außerdem seine chemische Zusammensetzung bekannt ist.

#### Geometriefaktor

Die Proben werden in zylinderförmige Behälter mit einer Grundfläche von  $15.9 \text{ cm}^2$  gefüllt. Während bei den beiden neuen Spektrometern die Füllhöhe  $H$  14 mm betragen muß, besteht beim „Gamma alt“ auch die Möglichkeit, geringere Probenmengen zu messen. Die bei den Zerfällen freigesetzte Strahlung wird gleichförmig in alle Richtungen emittiert. Nur ein Bruchteil davon, der durch den Geometriefaktor angegeben wird, gelangt tatsächlich zum Detektor. Die Trefferwahrscheinlichkeit nimmt mit zunehmendem Detektorabstand ab; denn obwohl die beiden Strahlen in Abbildung 4.4 links unter dem gleichen Winkel emittiert werden, trifft nur derjenige auf den Kristall, der von dem Nuklid mit dem geringeren Abstand zum Detektor stammt. Je geringer die Füllhöhe, um so größer ist der Geometriefaktor, der damit auch in die Auswertung mit einbezogen werden muß.

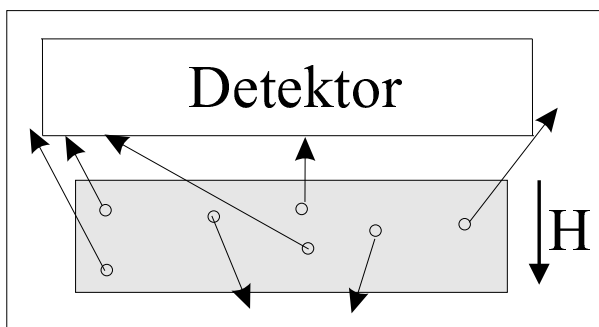


Abbildung 4.4: *Zweidimensionale Veranschaulichung des Geometriefaktors: Nur ein Teil der emittierten Strahlung trifft den Detektor.*

Der Geometriefaktor kann auf zwei Weisen berechnet werden. Bei der analytischen Lösung wird der Raumwinkel bestimmt, unter dem der Detektor von einem Punkt der Probe aus erscheint, und über das gesamte Probenvolumen integriert. Anschließend wird auf das Probenvolumen und den gesamten Raumwinkel  $4\pi$  normiert. Eine weitere Möglichkeit besteht in einer Monte-Carlo-Simulation. Dabei werden Probenpunkte und Emissionsrichtungen ausgewürfelt, und es wird berechnet, ob der Kristall getroffen wird. Die Anzahl der Treffer wird zur Gesamtzahl der ausgewürfelten Ereignisse ins Verhältnis gesetzt. Nach 5 Mio. Iterationen stimmen die Werte aus Monte-Carlo-Simulation und analytischer Berechnung ausreichend gut überein. Beide Verfahren sind in Anhang E dargestellt. In Tabelle 4.2 sind die Geometriefaktoren mit Fehler für die Füllhöhen 1 bis 14 mm für das alte Gammaskpektrometer aufgelistet.



Füllhöhe in mm	Geometrie- faktor	Fehler
1	0.272	0.009
2	0.264	0.009
3	0.257	0.009
4	0.250	0.008
5	0.244	0.008
6	0.238	0.008
7	0.232	0.008
8	0.226	0.008
9	0.221	0.007
10	0.215	0.007
11	0.211	0.006
12	0.206	0.006
13	0.201	0.006
14	0.197	0.006

Tabelle 4.2: Geometriefaktoren für das alte Gammaskpektrometer.

### Selbstabsorption der Probe

Wie aus Abbildung 4.4 ersichtlich wird, legen die emittierten Strahlen eine gewisse Wegstrecke innerhalb der Probe zurück bevor sie auf den Detektor treffen. Abhängig von der Weglänge  $x$  wird die anfängliche Intensität  $I_0$  der Strahlung dabei nach der Formel

$$I = I_0 \cdot e^{(-\mu \cdot \rho \cdot x)}$$

abgeschwächt, wobei  $\rho$  die Dichte der Probe ist; der Massenschwächungskoeffizient  $\mu$  hängt von der Energie der Strahlung und der chemischen Zusammensetzung der Probe ab. Integration über alle möglichen Weglängen von 0 bis  $H_{\max}$  ergibt:

$$\frac{I}{I_0} = \frac{1 - e^{(-\mu \cdot \rho \cdot H_{\max})}}{-\mu \cdot \rho \cdot H_{\max}}.$$

Der so erhaltene Faktor beschreibt den Bruchteil der Strahlung, der nicht aufgrund der Selbstabsorption in der Probe abgeschwächt wurde. Wie auch beim Geometriefaktor wird in der Auswertung der reziproke Wert zur Berechnung verwendet.

Mit der Monte-Carlo-Simulation zur Berechnung des Geometriefaktors kann zusätzlich die Häufigkeitsverteilung der in der Probe zurückgelegten Weglängen bestimmt werden. Die Verteilungen für die Füllhöhen 5 mm, 10 mm und 14 mm sind in Abbildung 4.5 dargestellt. In erster Näherung kann angenommen werden, daß die maximale Weglänge  $H_{\max}$  der Füllhöhe  $H$  entspricht.

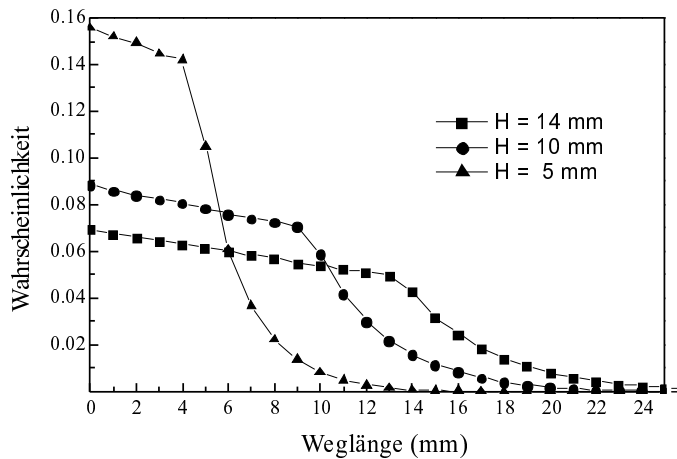


Abbildung 4.5: Häufigkeiten der von der emittierten  $\gamma$ -Strahlung in der Probe zurückgelegten Weglängen bei unterschiedliche Füllhöhen des Probenbehälters.

Größere Probleme bei der Auswertung bereitet der nur ungenau bekannte Massenschwächungskoeffizient  $\mu$ . Für die einzelnen Proben werden im allgemeinen keine chemischen Analysen vorgenommen. Daher werden für alle Proben die Massenschwächungskoeffizienten von Nussi verwendet. Als Fehler wird die Differenz der Koeffizienten von Nussi und reinem Quarz angenommen. Abbildung 4.6 zeigt die Koeffizienten für Proben mit verschiedener chemischer Zusammensetzung. Die Daten wurden mit Hilfe der interaktiven Webseite des NIST<sup>2</sup> berechnet. Mit zunehmender Strahlungsenergie werden die Unterschiede zwischen den Koeffizienten geringer. Der angenommene Fehlerbereich umfaßt bei allen Energien auch die carbonatreichen Proben HDS1027 und HDS1035.

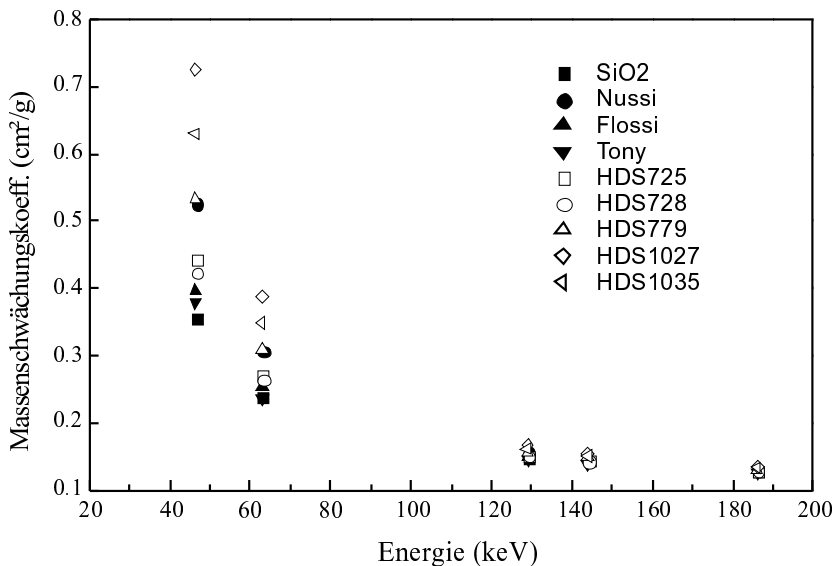


Abbildung 4.6: Massenschwächungskoeffizienten für Proben und Referenzmaterialien mit verschiedener chemischer Zusammensetzung (siehe Tabellen D.2 und D.1).

Aus den Zählraten von Probe und Referenzmaterial werden zusammen mit den Massen, den Korrekturfaktoren und dem Nuklidgehalt des Referenzmaterials die Nuklidgehalte der Probe berechnet. Eine ausführliche Beschreibung der Auswertung zusammen mit der zugehörigen Fehlerrechnung findet sich in Anhang D.2.

<sup>2</sup>National Institute of Standards and Technology, Physics Laboratory, USA; Standard Reference database 8 (XGAM); <http://physics.nist.gov/PhysRefData/Xcom/Text/XCOM.html> (1. 12. 2001)

## 4.2 Das tragbare NaI-Gammaspektrometer

Für Messungen im Gelände sind Ge-Spektrometer nicht geeignet, da sie mit flüssigem Stickstoff gekühlt werden müssen. Ersatzweise werden Geräte mit NaI-Kristallen verwendet. Mit den bisher an der Forschungsstelle vorhandenen Geräten konnte jedoch kein Spektrum aufgezeichnet werden. Stattdessen wurde einzelnen Linien ein bestimmter Kanalbereich zugeordnet und die Zählereignisse wurden über die jeweiligen Kanäle aufsummiert. Dabei waren 4 Fenster für Kalium, Uran, Thorium und die kosmische Strahlung fest eingestellt. Das von einem Photon ausgelöste Signal ist bei NaI von der Kristalltemperatur abhängig, so daß der eingestellte Bereich nur bei einer bestimmten Temperatur tatsächlich mit dem zugehörigen Peak übereinstimmt. Deshalb wurde im Rahmen dieser Arbeit ein neues NaI-Spektrometer der Marke Easyspec (Canberra-Packard GmbH) in Betrieb genommen. Der  $3 \times 3$  Inch große NaI-Kristall befindet sich in einer externen Meßsonde; über 1024 Kanäle wird ein vollständiges Spektrum bis 2 MeV aufgezeichnet. Das Gerät kann sowohl direkt am Netz als auch über einen eingebauten Akku betrieben werden.

### 4.2.1 Funktionsweise von Szintillations-Gammaspektrometern

Ähnlich wie im Germanium-Kristall löst ein Gammaquant auch im NaI primäre Elektronen aus, die sekundäre Elektron-Loch-Paare erzeugen, indem die Elektronen vom Valenzband ins Leitungsband gehoben werden. Während im ersten Fall aber die Paare durch ein äußeres elektrisches Feld getrennt werden, weist man hier die bei der Rekombination emittierten Photonen nach. Da NaI ein Isolator ist, liegt die Photonenenergie aufgrund der großen Bandlücke nicht mehr im sichtbaren Bereich. Deshalb werden durch gezielt eingebrachte TI-Verunreinigungen zusätzliche Energieniveaus in der Bandlücke erzeugt, die die Lichtausbeute stark erhöhen.

Die Szintillationsblitze lösen auf der Photokathode eines Photomultipliers Elektronen aus, die über einen Elektronenvervielfacher einen nachweisbaren Strompuls erzeugen. Die Höhe des Pulses hängt dabei wieder direkt von der Energie ab, die das einfallende Gammaquant an den Kristall abgegeben hat. Da jedoch mehr und gleichzeitig ineffektivere Prozesse zur Erzeugung eines nachweisbaren Signals notwendig sind, ist die Auflösung eines Szintillations-Gammaspektrometers wesentlich schlechter als die eines Ge-Spektrometers.

### 4.2.2 Grundlegende Eigenschaften des Geräts und Auswertung der Spektren

Als erste Frage galt es zu beantworten, ob die Zählrate stabil bleibt, wenn die im Akku gespeicherte Energie abnimmt. Dazu wurde das Gerät geladen. Anschließend wurde jeweils für 30 min das Signal einer KCl-Probe gemessen. Dies wurde solange durchgeführt, bis der Akku völlig leer war. Das Ergebnis ist in Abbildung 4.7 dargestellt. Innerhalb der Meßgenauigkeit bleibt die Zählrate konstant, bis sich das Gerät selbst abschaltet.

Bei NaI-Kristallen nimmt die Lichtausbeute mit zunehmender Temperatur ab (Schweitzer und Ziehl 1983), so daß bei gleicher Energie des Gammaquants ein niedrigerer Strompuls registriert wird. Bei den vorher verwendeten 4-Kanal-Geräten bestand deshalb das Problem, daß abhängig von der Temperatur des Geräts der Peak aus dem gewählten Kanalbereich wanderte, und so eine Signalabhängigkeit von der Temperatur auftrat. Dieses Problem wird mit dem neuen Gerät vermieden, da das gesamte Spektrum aufgezeichnet wird und der Peak unabhängig von seiner Lage vollständig ausgewertet wird. Trotzdem stellte sich aber die Frage, ob zusätzlich zur Lage des Peaks auch die Peakfläche von der Temperatur der Sonde abhängig ist. Dazu wurde die Sonde

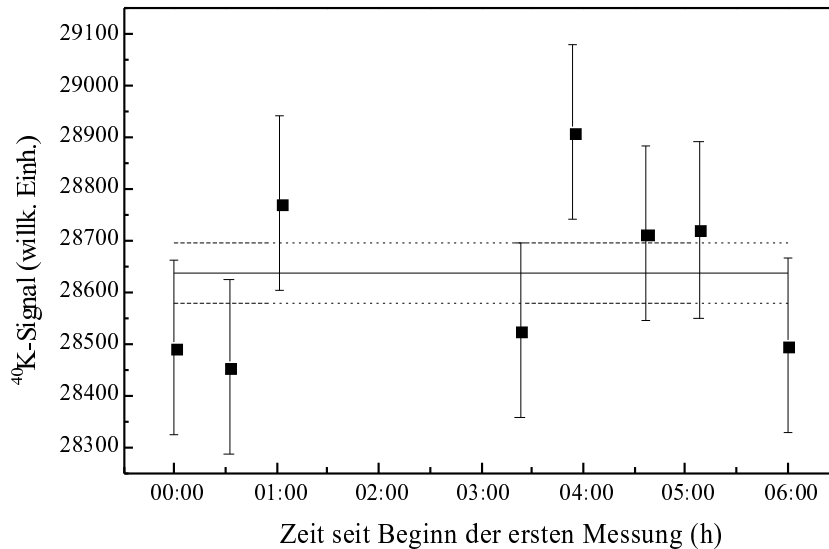


Abbildung 4.7: Signalstabilität des Easyspec-Geräts bei zunehmender Belastungsdauer des Akkus. Die Geraden kennzeichnen den Mittelwert (durchgezogen) der Messungen und den 1  $\sigma$ -Fehlerbereich (gepunktet).

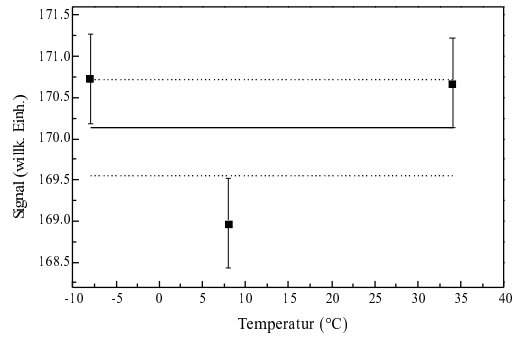
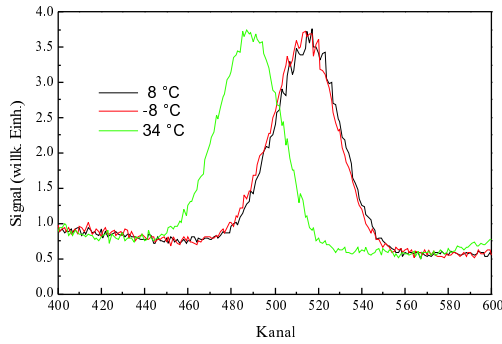
auf unterschiedliche Temperaturen gebracht, indem sie ausreichend lange bei Raumtemperatur (17 °C), im Kühlschrank (8 °C), im Gefrierschrank (-8 °C) und in warmem Wasser (34 °C) gelagert wurde. Es wurden jeweils für 10 min Spektren von KCl und einem Uran-Thorium-Referenzmaterial gemessen. Die Ergebnisse sind in Abbildung 4.8 dargestellt. Bei höheren Temperaturen verschiebt sich das Spektrum wie erwartet in Richtung niedrigerer Kanäle. Das Signal jedoch ist innerhalb der Meßgenauigkeit konstant. Da auch bei einem Einsatz im Gelände keine größeren Temperaturschwankungen zu erwarten sind, kann davon ausgegangen werden, daß die Temperatur der Sonde das Ergebnis nicht beeinflußt.

Bei tragbaren Gammaskpektrometern werden für gewöhnlich zur Auswertung für Kalium die Linie bei 1460 keV, für Uran die Linie bei 1764 keV (<sup>214</sup>Bi) und für Thorium die Linie bei 2615 keV (<sup>208</sup>Tl) verwendet. Zusätzlich wird aus dem Energiebereich größer 3 MeV die kosmische Dosisleistung bestimmt. Das neue Gerät hat nur einen Meßbereich bis ca. 2 MeV, so daß die kosmische Dosisleistung nicht gemessen werden kann. Zusätzlich mußte ein neuer Peak für die Thorium-Auswertung gefunden werden.

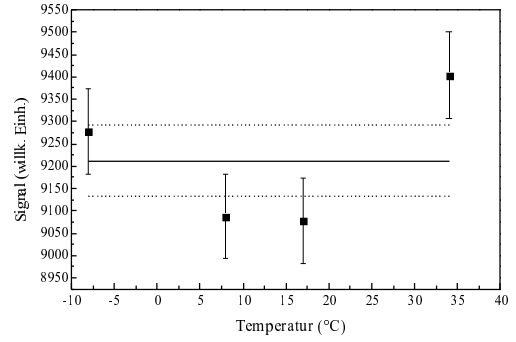
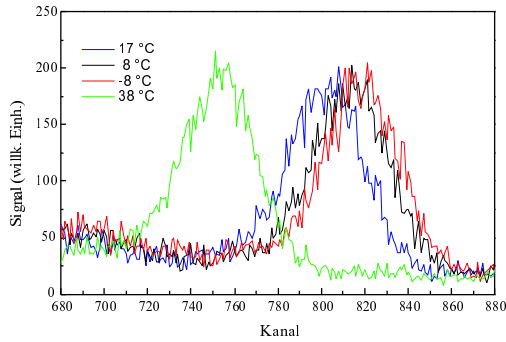
Dazu wurde 1 h ein Spektrum von einem Granitblock aus Flossenbürg (Beschreibung siehe Anhang A), dem sogenannten „Flossi“ aufgenommen, wobei die Sonde in das Bohrloch gesteckt wurde. Ein Ausschnitt aus dem resultierenden Spektrum ist in Abbildung 4.9 dargestellt. Deutlich sind der Kalium- und Uran-Peak zu erkennen. Die Halbwertsbreite des 1460 keV-Peaks beträgt ca. 70 keV, so daß die Auflösung 40 mal schlechter ist, als mit einem Ge-Spektrometer. Repräsentativ für die Th-Zerfallsreihe wurde der Peak bei ca. 940 keV gewählt. Dieser unterscheidet sich deutlich vom Untergrund. Er setzt sich aus den Linien bei 911 keV und 969 keV zusammen die beim Zerfall von <sup>228</sup>Ac emittiert werden und aufgrund der schlechten Auflösung nicht getrennt werden können. Störende Emissionen von anderen Nukliden sowohl der Th-Reihe als auch der U-Reihen fallen nicht in diesen Energiebereich.

Für die Spektren des Geräts stand kein spezielles Auswerteprogramm zur Verfügung. Deshalb

**Thorium  
911 und 969 keV**



**Kalium  
1460 keV**



**Uran  
1764 keV**

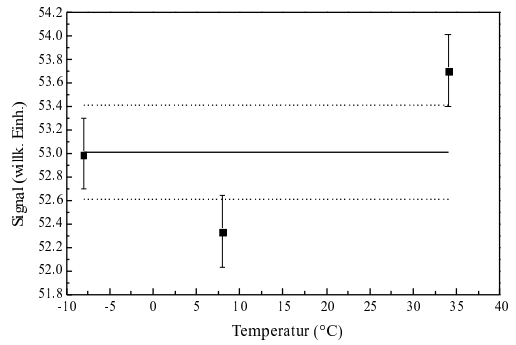
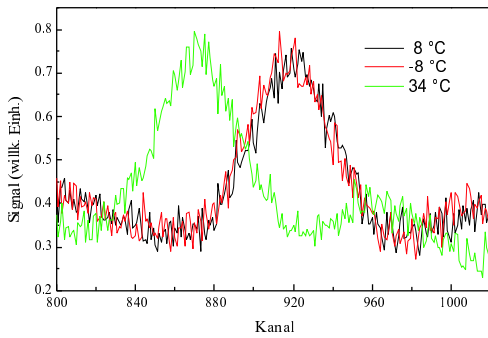


Abbildung 4.8: Signalstabilität des Easyspec-Geräts bei verschiedenen Sondentemperaturen. links: Spektrum. rechts: Signal. Die Geraden kennzeichnen den Mittelwert (durchgezogen) der Messungen und den  $1\sigma$ -Fehlerbereich (gepunktet).

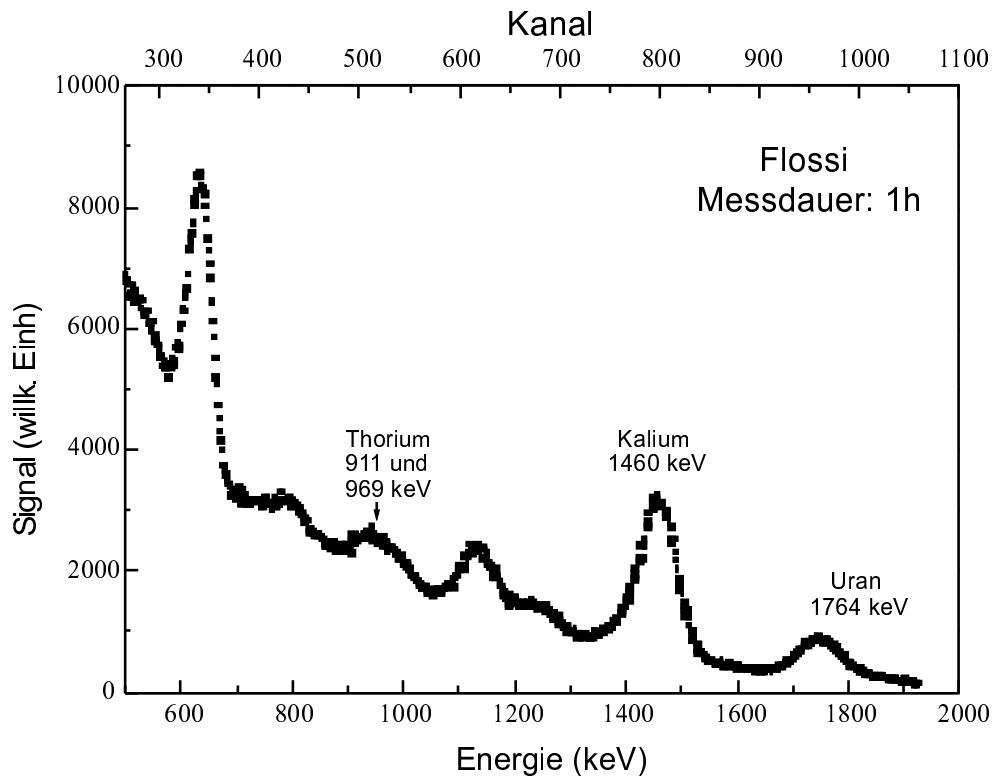


Abbildung 4.9: Ausschnitt eines mit dem Easyspec-Gerät aufgenommenen Spektrums (1 h Flossi).

mußte auch eine Möglichkeit gefunden werden, vorhandene Programme zur Auswertung zu benutzen. Zusätzlich stellte sich die Frage, wie lange eine Messung im Gelände durchschnittlich dauern muß, damit eine ausreichende Meßgenauigkeit gegeben ist.

Aus dem Spektrum in Abbildung 4.9 ist ersichtlich, daß der Untergrund schräg verläuft. Dadurch wird eine Auswertung mittels Gauß-Fit sehr ungenau, da das Ergebnis stark vom gewählten Kanalbereich abhängt (siehe Abbildung 4.10). In Tabelle 4.3 ist exemplarisch das Ergebnis für drei Gauß-Fits an den Kalium-Peak in Abhängigkeit vom gewählten Kanalbereich dargestellt. Angegeben ist der Kanalbereich, der Korrelationskoeffizient  $R^2$  des Fits, die aus dem Fit ermittelte Peakfläche und der dem Untergrund entsprechende Offset. Die Daten entsprechen zwar um so genauer einem Gauß-Peak, je enger der Bereich gewählt wird, aber durch den schräg verlaufenden Untergrund wird dann nicht mehr der gesamte Peak in den Fit einbezogen. Deutlich ist auch, daß das Signal bzw. die Peak-Fläche schwanken. Es wurde deshalb vorgezogen, wie auch beim alten Gammaskpektrometer, die Auswertung nach Augenmaß vorzunehmen.

Kanäle	$R^2$	Fläche	Offset
690-840	0.95425	$1.48 \cdot 10^5$	1204
710-830	0.9632	$1.46 \cdot 10^5$	1221
720-810	0.98555	$1.24 \cdot 10^5$	1529

Tabelle 4.3: Gauß-Fits an den Kalium-Peak aus Abbildung 4.9 in Abhängigkeit vom gewählten Kanalbereich.

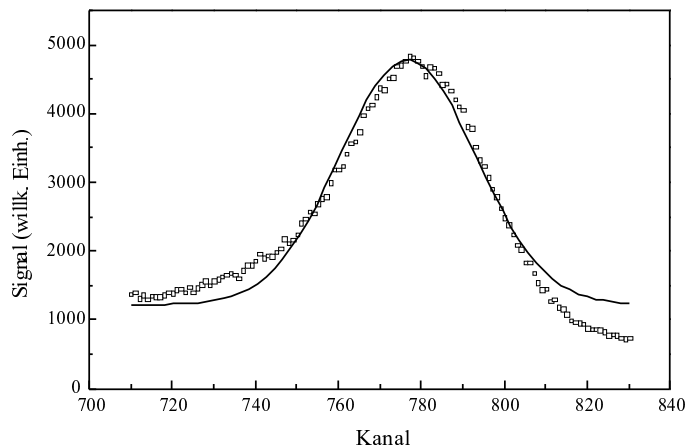


Abbildung 4.10: Kalium-Peak (Kanalbereich 710-830) aus Abbildung 4.9 (Punkte) und Gauß-Fit der Daten (Linie).

Zur Feststellung der notwendigen Meßdauer im Gelände wurden im Flossi Messungen mit Meßzeiten von 30 bis 90 min vorgenommen. Die längste Messung wurde als Referenzmessung verwendet und es wurde untersucht, inwieweit die Meßgenauigkeit von der Meßdauer abhängt. Bei der Auswertung wurden die Grenzkanäle der Peaks nach Augenmaß abgelesen. Für das Bruttosignal wurden die Zählereignisse in den einzelnen Kanälen aufsummiert. Der Untergrund wurde als Mittelwert aus mehreren repräsentativen Kanälen vor und hinter dem Peak bestimmt. Das resultierende Nettosignal ergab sich dann aus dem Bruttosignal abzüglich des Untergrunds unter Berücksichtigung der Anzahl der jeweils aufsummierten Kanäle. Der Fehler wurde nach dem Gaußschen Fehlerfortpflanzungsgesetz aus den statistischen Fehlern von Signal und Untergrund berechnet.

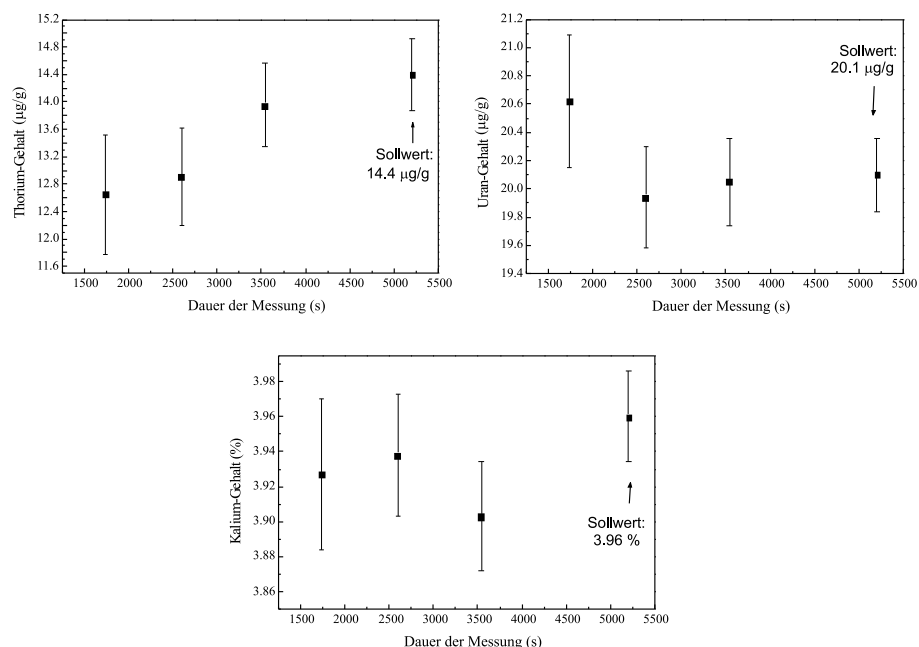


Abbildung 4.11: Mit dem Easyspec-Gerät bestimmte Gehalte an Thorium (oben links), Uran (oben rechts) und Kalium (unten) von Flossi nach unterschiedlicher Meßdauer. Als Referenz wurde die 90 min dauernde Messung verwendet.

Das Ergebnis der Testmessungen ist in Abbildung 4.11 dargestellt. Bei allen Meßdauern stimmen die Ergebnisse der Messungen für die einzelnen Gehalte überein. Daraus kann geschlossen werden, daß bei einer Probe mit ähnlichen Gehalten wie Flossi eine Meßdauer von 30 min völlig ausreicht. Da die Gehalte bei Flossi aber extrem hoch sind (14.4  $\mu\text{g/g}$  Thorium, 20.1  $\mu\text{g/g}$  Uran und 3.96 % Kalium), wird eine Meßdauer von ca. 1 h vorgeschlagen.

Als Richtwerte für die einzelnen Peaks können folgende Angaben genommen werden: Th (ca. 940 keV): 700 cts im Maximum, K (ca. 1460 keV): 200 cts im Maximum, U (ca. 1760 keV): 150 cts im Maximum.



## Kapitel 5

# Charakterisierung von $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ als Dosimetermaterial

Aus der in einem natürlichen Dosimeter gespeicherten Dosis kann bei Kenntnis der Umgebungs-dosisleistung die Expositionsdauer berechnet werden. In umgekehrter Weise kann auch aus der Dosis und der Expositionsdauer auf die Dosisleistung geschlossen werden. Für verschiedene Anwendungen wurden unterschiedliche Materialien entwickelt. Einen ausführlichen Überblick über die wichtigsten Dosimetermaterialien, ihre Lumineszenzeigenschaften und ihre Anwendung geben McKeever et al. (1995).

Es ist naheliegend dieses Verfahren auch bei der Lumineszenzdatierung einzusetzen. Der Einsatz von Dosimetern stellt bei der Dosisleistungsbestimmung eine kostengünstige Alternative zu den in den vorangehenden Kapiteln genannten Verfahren dar; es wird bis auf die sowieso vorhandenen Geräte zur Lumineszenzmessung keine weitere Ausstattung benötigt. Routinemäßig wurden  $\text{LiF}$  und dotierte Formen von  $\text{CaF}_2$  und  $\text{CaSO}_4$  verwendet. Das Dosimeter wird am Ort der Probenentnahme vergraben und nach ca. einem Jahr kann die gespeicherte Dosis und damit auch die Dosisleistung bestimmt werden.

Bei der Verwendung eines künstlichen Dosimeters muß beachtet werden, daß sich das Material von Quarz oder Feldspat unterscheidet. Die von einem Strahlungsfeld in den Materialien erzeugten Dosen sind nicht gleich, was zu systematischen Fehlern im Ergebnis führen kann. Denn aufgrund von verschiedenen Massenschwächungskoeffizienten wird bei gleicher Probendicke unterschiedlich viel Strahlung absorbiert. Zudem ist die Effizienz der Lumineszenzerzeugung von der Energie der Gammastrahlung abhängig, so daß bei gleicher absorbierter Dosis das Verhältnis der Signale nicht konstant ist. Korrekturen sind nur in begrenztem Maße möglich, da die genaue Zusammensetzung der natürlichen Strahlungsfelder von Probe zu Probe variiert. Dennoch können Dosimeter auch dann wichtige Beiträge zur Dosisleistungsbestimmung leisten, wenn die Möglichkeit besteht, z. B. die bisher genannten Methoden einzusetzen.

Die bei der Beta-Zählung und Gammaspektrometrie untersuchte Probenmengen sind nur dann repräsentativ, wenn das Medium in einem ausreichend großen Umfeld homogen ist. Bei einer stark strukturierten Probenumgebung müßten mehrere Teilproben untersucht und die Ergebnisse im Hinblick auf den jeweiligen Beitrag zur Gesamtdosis kombiniert werden. Das heißt, Teilproben in direkter Umgebung der zu datierenden Probe müssen stärker gewichtet werden, gleichzeitig muß aber auch der relative Anteil am gesamten Umfeld mit einbezogen werden. Dies ist im einzelnen nur mit Simulationen möglich, was den Aufwand bei routinemäßig durchgeführten Datierungen erheblich steigern würde. Mit Dosimetern wird die Dosisleistung direkt

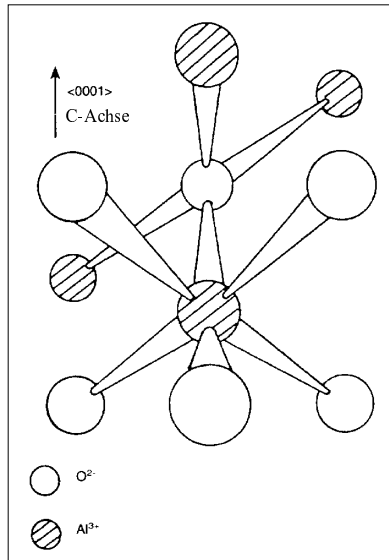


Abbildung 5.1: Schematische Darstellung des  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$  Kristallgitters. (nach Summers (1984))

am Ort der Probe gemessen und der Einfluß von Inhomogenitäten wird direkt festgestellt. Besonders im archäologischen Umfeld ist fast immer mit einer inhomogenen Probenumgebung zu rechnen. Bei Notgrabungen stehen oft nur wenige Monate zur Verfügung und es ist nicht möglich die Dosimeter ein Jahr zu vergraben, bis sich ein ausreichendes Lumineszenzsignal aufgebaut hat. Auch bei geologischen oder geographischen Geländekampagnen ist es nur selten möglich, nach einem Jahr an den Ort zurückzukehren, um das Dosimeter wieder zu entnehmen.

Akselrod et al. (1990a) entwickelten ein Material auf der Basis von  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , das bei  $\beta$ - und  $\gamma$ -Bestrahlung 50 mal empfindlicher ist als LiF, wodurch Expositionsdauern von wenigen Wochen bis Tagen für den Aufbau eines meßbaren Signals ausreichen. Als Eigenschaften werden angegeben, daß das Signal dieser  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Dosimeter über einen Bereich von  $\mu\text{Gy}$  bis wenige Gy linear mit der Dosis zunimmt. Beim Erhitzen wird das Signal zurückgestellt, wobei ein dominanter Peak bei ca.  $190^\circ\text{C}$  beobachtet wird. Das Signal ist über 2 Jahre stabil (Akselrod et al. 1993).

Das Material besitzt damit alle für die Datierung relevanten Eigenschaften und ist zudem wesentlich empfindlicher, als die bisher verwendeten Dosimeter. Ziel dieser Arbeit war es festzustellen, ob  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$  im praktischen Einsatz tatsächlich als Dosimeter für die Lumineszenzdatierung verwendet werden kann. Dabei wurden zunächst die grundlegenden Lumineszenzeigenschaften untersucht, die in diesem Kapitel dargestellt werden. Zunächst werden der Kristallaufbau und die für die Lumineszenzerzeugung verantwortlichen Defekte erläutert. In den folgenden Abschnitten werden die TL und OSL untersucht. Ein weiterer Abschnitt beschäftigt sich mit der Reproduktion einer bekannten applizierten Dosis mittels einer Wachstumskurve.

## 5.1 Kristallaufbau und Form der Dosimeter

Reines  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$  besteht aus einem hexagonalen  $\text{O}^{2-}$ -Gitter, bei dem  $2/3$  der oktaedrischen Zwischenräume mit  $\text{Al}^{3+}$ -Ionen besetzt sind. Die  $\text{O}^{2-}$ -Ionen sind dabei um ein  $\text{Al}^{3+}$  in zwei Dreiecken angeordnet, eines über und eines unter der Ebene der Al-Ionen (siehe Abbildung 5.1). Bei der Herstellung der  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Dosimeter werden Einkristalle in einer hochreduzierenden

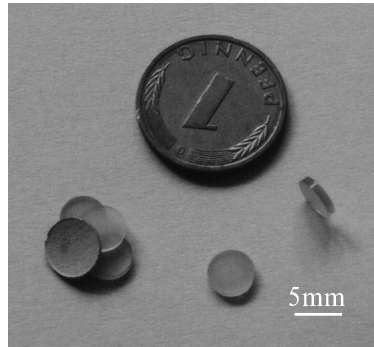


Abbildung 5.2:  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Tabletten und *thin layer* Dosimeter (links unten).

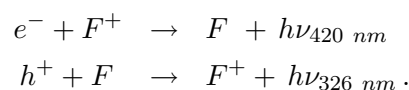
Atmosphäre unter Anwesenheit von Kohlenstoff gewachsen. Dabei entstehen Sauerstofffehlstellen, und ein Teil der  $\text{Al}^{3+}$ -Ionen wird durch  $\text{C}^{2+}$  ersetzt. In den Sauerstofffehlstellen herrscht ein Defizit an negativen Ladungen, so daß dort ein ( $\text{F}^+$ -Zentrum) oder zwei Elektronen ( $\text{F}$ -Zentrum) eingefangen werden können. In gleicher Weise können die mit den  $\text{C}^{2+}$  besetzten Stellen Löcher einfangen, da dort eine positive Ladung fehlt. Die Anzahldichte der  $\text{F}$ -Zentren beträgt  $10^{17}/\text{cm}^3$ ; die gewachsenen Kristalle besitzen eine Dichte  $\rho$  von  $3.97 \text{ g/cm}^3$  und eine effektive Kernladungszahl  $Z_{\text{eff}} = 10.2$  (Akselrod et al. 1990a). Beim wiederholten Erhitzen unter Sauerstoff können die Fehlstellen langsam ausheilen, was zu einer nachlassenden Empfindlichkeit führt (Pashchenko und Barboza-Flores 1995).

Von der Firma Landauer Inc. (USA) können die Dosimeter in verschiedenen Formen bezogen werden. Neben Pulver in verschiedenen Korngrößen, gibt es zylinderförmige Einkristalle („Tabletten“; Durchmesser 5 mm, Höhe 1 mm) und sogenannte „thin layer“ Dosimeter, bei denen Pulver auf ein dünnes Aluminiumsubstrat gepreßt wird (siehe Abbildung 5.2).

## 5.2 Thermolumineszenzeigenschaften

### 5.2.1 Emission

In Abbildung 5.3 ist das TL-Emissionsspektrum einer  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Tablette dargestellt, die mit 1 Gy bestrahlt wurde. Bei  $60 \text{ }^\circ\text{C}$  und  $200 \text{ }^\circ\text{C}$  ist jeweils ein breiter Emissionspeak bei den Wellenlängen um  $420 \text{ nm}$  zu erkennen. Bei einem Gauß-Fit des Spektrums (siehe Abbildung 5.4) zeigt sich eine zusätzliche, wenn auch wesentlich kleinere Emission im UV-Bereich. Für alle weiteren Messungen wurden deshalb die bereits beschriebenen Blau- und UV-Filter verwendet. Folgende Prozesse laufen mit den beim Belichten oder Erhitzen freigesetzten Elektronen und Löchern unter Emission von Licht ab (McKeever et al. 1999):



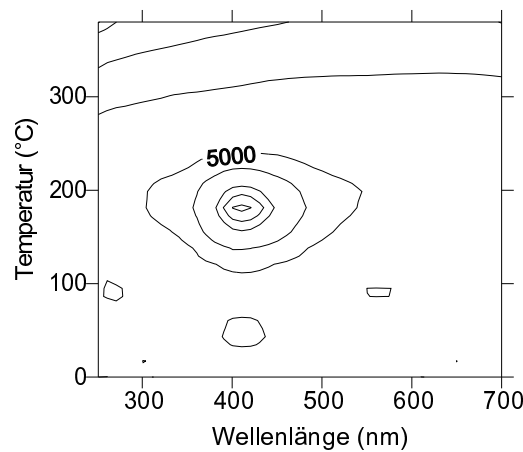
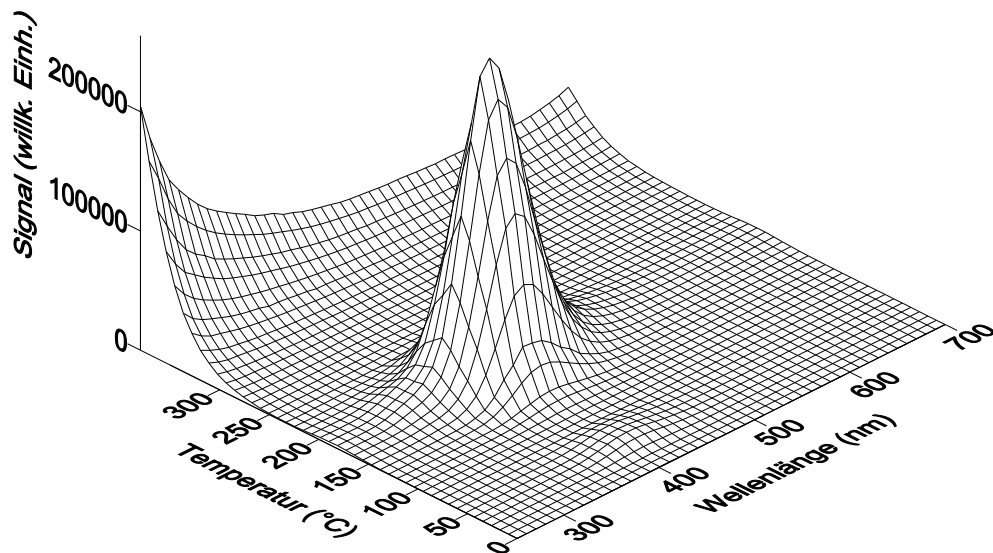


Abbildung 5.3: TL-Emissionsspektrum einer mit 1 Gy bestrahlten  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Tablette.

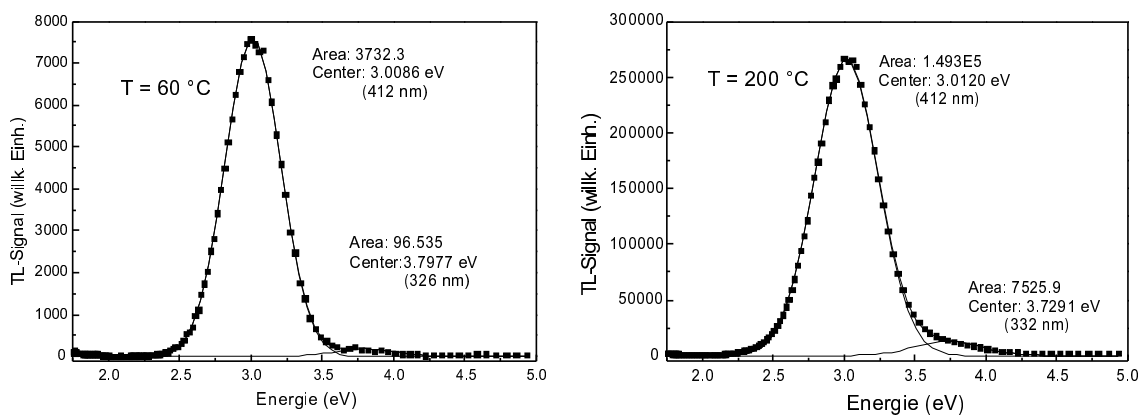


Abbildung 5.4: Emissionsspektrum einer mit 1 Gy bestrahlten  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Tablette bei  $60^\circ\text{C}$  (links) und  $200^\circ\text{C}$  (rechts). Die Linien markieren an die gemessenen Daten (Vierecke) angepaßte Gauß-Fits mit zugehöriger Fläche und Lage.

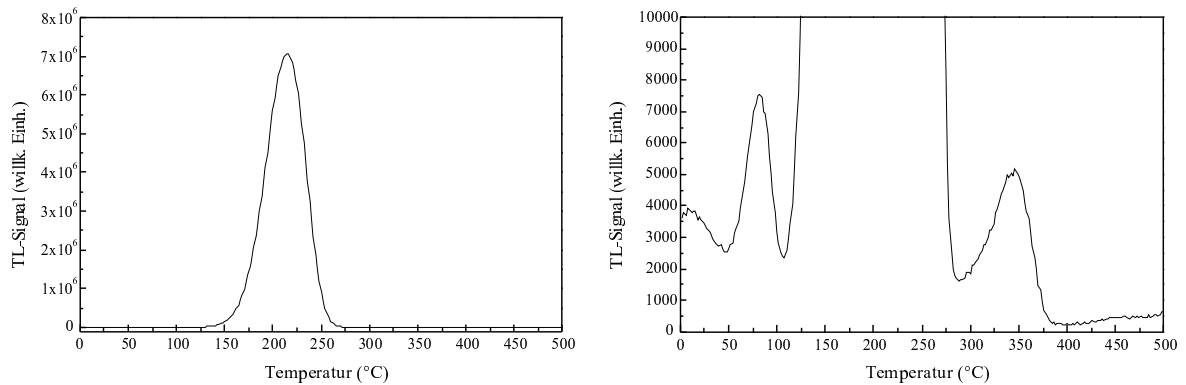


Abbildung 5.5: Leuchtkurve einer  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Tablette nach Bestrahlung mit  $0.1$  Gy; rechts ein vergrößerter Ausschnitt aus der linken Graphik.

### 5.2.2 Leuchtkurve

Die Leuchtkurve einer mit  $0.1$  Gy bei Raumtemperatur bestrahlten Tablette ist in Abbildung 5.5 dargestellt. Im linken Teil ist deutlich der stark dominante Peak bei  $190$  °C zu erkennen. Aufgrund der Lage ist der Peak bei Raumtemperatur thermisch stabil, gleichzeitig wird er nicht durch die bei  $350$  °C einsetzende Wärmestrahlung überlagert. Die abfallende Flanke des Peaks ist steiler als die ansteigende, da bei höheren Temperaturen verstärkt strahlungslose Übergänge stattfinden und eine Lumineszenzemission unterdrückt wird (*thermal quenching*, Kortov et al. (1999)).

Erst in dem um den Faktor  $800$  vergrößerten Ausschnitt rechts sind noch drei weitere Peaks bei ca.  $20$  °C,  $70$  °C und  $350$  °C zu sehen. Die beiden ersten sind bei Raumtemperatur jedoch nicht thermisch stabil, und die zugehörigen Fallen werden als „flache Fallen“ bezeichnet. Nach Colyott et al. (1996) existieren zusätzlich „tiefe Fallen“, die bei  $650$  °C und  $950$  °C stimuliert werden. Aufgrund der Lage bei hohen Temperaturen sind sie für die Datierung nicht verwendbar. Wenn nicht anders angegeben wird bei allen folgenden Messungen nur der Dosimetriepeak bei  $190$  °C betrachtet.

### 5.2.3 Abhängigkeit des Signals von der Heizrate

Der Dosimetriepeak in der Leuchtkurve verschiebt sich mit zunehmender Heizrate zu höheren Temperaturen, die Halbwertsbreite nimmt zu (siehe Abbildung 5.6). Das Hochheizen der Platte erfolgt schneller als der Wärmeaustausch zwischen der Heizplatte und der Tablette oder die Wärmeleitung in der Tablette. Dadurch wird die zur Anregung der Lumineszenz nötigen Temperatur erst bei höheren Heizplattentemperaturen erreicht.

Gleichzeitig wird die Lichtausbeute geringer (Akselrod et al. 1990a). Aus Abbildung 5.7 ist zu erkennen, daß dabei die Peakfläche weniger stark abnimmt als die Countzahl im Maximum des Peaks. Bei einer Heizrate von  $2$  °C/s betragen die Maximumcounts nur noch  $72$  % des Wertes bei  $1$  °C/s, während die Peakfläche nur auf  $78$  % verringert ist. Dagegen liegen die Werte schon bei einer Heizrate von  $5$  °C/s nur noch bei  $52$  % bzw.  $62$  %. Eine Ursache für dieses Phänomen ist noch nicht gefunden, auch wenn verschiedene Erklärungsansätze, z. B. *thermal quenching*, existieren (Kortov et al. 1999; Kitis et al. 1996). Um die Nachweisgrenze für Dosen möglichst weit nach unten auszudehnen, empfiehlt es sich deshalb bei TL-Messungen

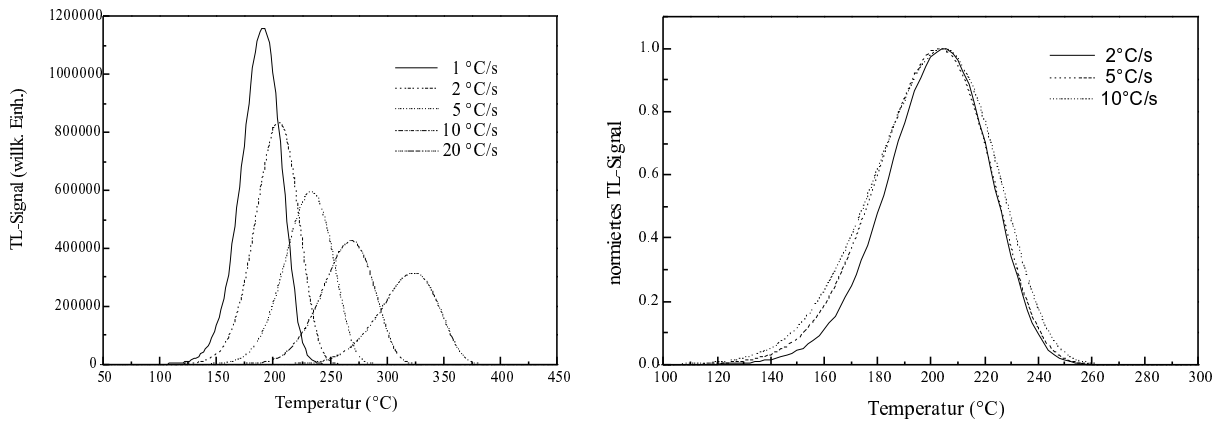


Abbildung 5.6: Leuchtkurven einer Tablette nach Bestrahlung mit 0.1 Gy bei verschiedenen Heizraten. Rechts: Die Kurven wurden so verschoben und normiert, daß die Peakmaxima zusammenfallen.

von  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$  möglichst geringe Heizraten zu wählen. Da aber auch die Dauer einer Messung in Betracht gezogen werden muß, wurden alle TL-Messungen mit einer Heizrate von 2 °C/s durchgeführt.

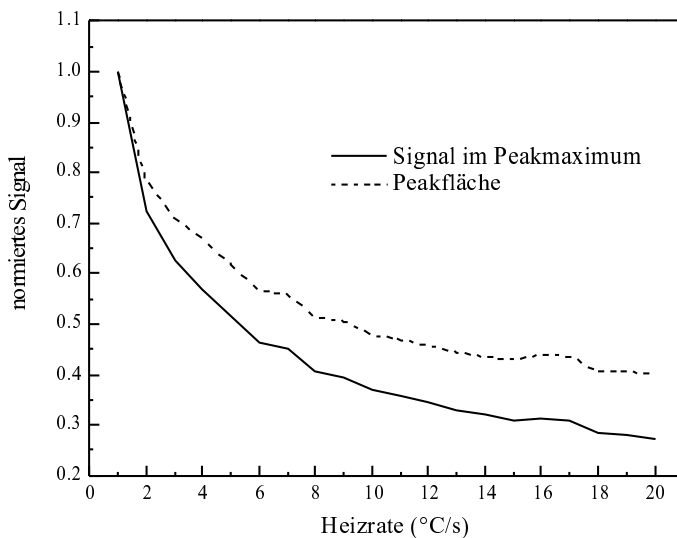


Abbildung 5.7: Maximum-counts und Peakfläche bei verschiedenen Heizraten, normiert auf die Werte bei 1 °C/s.

### 5.3 Lichtempfindlichkeit

Bereits in der ersten Veröffentlichung über  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$  erwähnen Akselrod et al. (1990a) eine dreifache Lichtempfindlichkeit des Materials. Wie auch bei den natürlichen Dosimetern wird ein Lumineszenzsignal bei Belichtung gelöscht. Während aber Quarz und Feldspat durch UV gebleicht werden, bauen Photonen in diesem Wellenlängenbereich ähnlich einer Röntgen- oder Gammabestrahlung in  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$  ein Signal auf. Ebenso ist in einer bestrahlten Probe wieder ein Signal meßbar, wenn sie bereits erhitzt dann aber sichtbarem Licht ausgesetzt war (Phototransfer). Im folgenden werden das Bleichen des Signals und der Phototransfer näher untersucht.

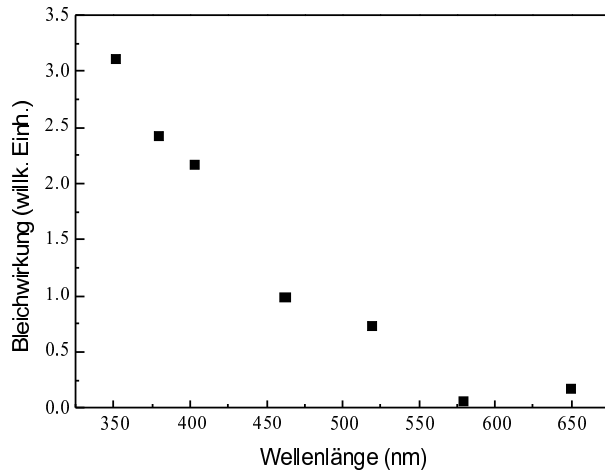


Abbildung 5.8: Bleichwirkung von Licht unterschiedlicher Wellenlänge auf das Lumineszenzsignal. Die Wirkung ist normiert auf den Wert bei 461.9 nm.

### 5.3.1 Bleichen des Signals

Das Lumineszenzsignal bestrahlter  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Dosimeter wird durch Licht verschiedener Wellenlängen unterschiedlich stark gebleicht (Moscovitch et al. 1993). Um diesen Effekt zu messen wurden  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Tabletten mit 0.5 Gy bestrahlt und anschließend in der Sonnenlampe mit Hilfe von Interferenzfiltern mit verschiedenen Wellenlängen belichtet. Mit Hilfe eines Coherent Lichtleistungsmeßgerätes wurde die Transmission der einzelnen Filter bestimmt. Die verbliebenen Lumineszenzsignale wurden sowohl auf die Empfindlichkeit der Tabletten als auch auf die Filtertransmission korrigiert. Die Bleichwirkung (gelöschtes Signal im Verhältnis zum ursprünglichen Signal) für verschiedenen Wellenlängen ist in Abbildung 5.8 dargestellt. Die Werte wurden auf das Ergebnis bei 461.9 nm normiert, da dies der Wellenlänge der blauen Dioden im Risø-Gerät (470 nm) am nächsten kommt. Die Bleichwirkung ist für UV-Licht am größten und nimmt mit zunehmender Wellenlänge ab. Da auch mit blauem Licht eine ausreichende Abnahme des Signals erzielt werden kann, wurden für die folgenden Messungen die blauen Dioden im Risø-Gerät zur Stimulation verwendet.

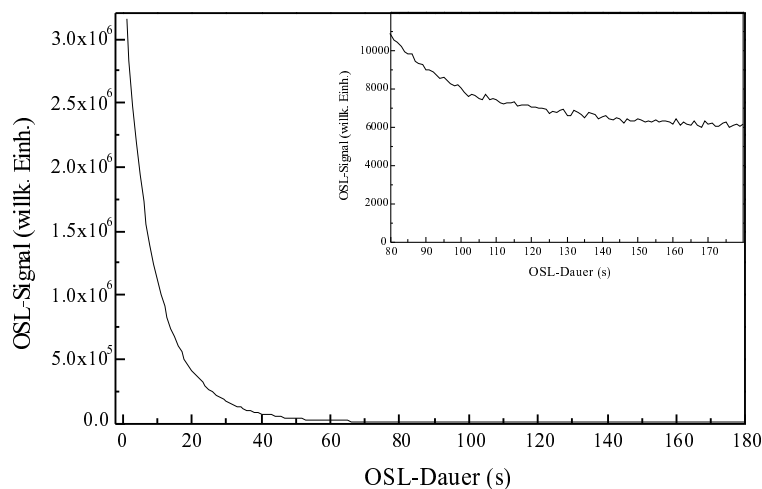


Abbildung 5.9: Ausleuchtkurve einer  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Tablette nach Bestrahlung mit 0.1 Gy; im Eckbild ein vergrößerter Ausschnitt.

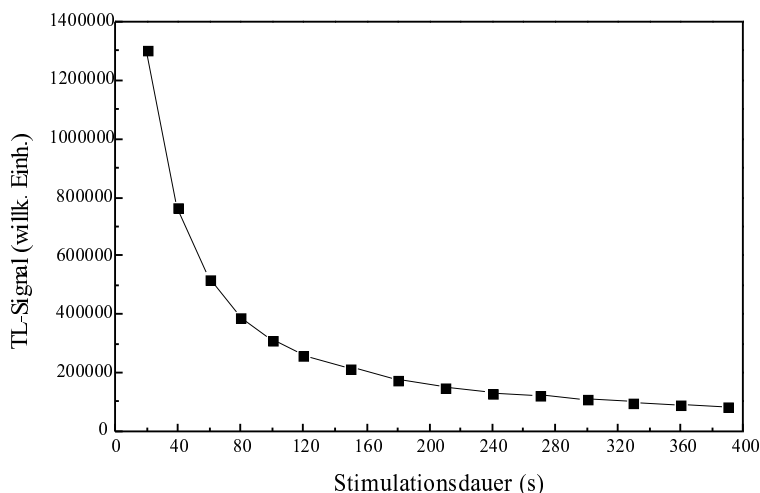


Abbildung 5.10: TL-Signal nach Bestrahlung mit 0.1 Gy und verschieden langer Belichtung mit den blauen Dioden des Risø-Gerätes.

Die in Abbildung 5.9 dargestellte Ausleuchtcurve einer mit 0.1 Gy bestrahlten Tablette nimmt monoton mit der Dauer der Blaustimulation ab. Der vergrößerte Bildausschnitt in der Ecke zeigt, daß das Signal nach 180 s Stimulation zwar nahezu konstanten ist, dieser Wert mit einer Zählrate von ca. 6000 Ereignissen pro Sekunde aber deutlich über dem Untergrund von ca. 100 Ereignissen pro Sekunde liegt.

Nach Markey et al. (1996) ist die Höhe der OSL von der Belichtungstemperatur abhängig. Bis ca. 130 °C nimmt das Signal zu; wird bei höheren Temperaturen stimuliert, wird das Signal durch thermal quenching stetig geringer. Über 190 °C wird nur noch ein geringes Restsignal beobachtet. Da das OSL-Signal bei der Temperatur verschwindet, die dem Dosimetriepeak bei der TL entspricht, liegt die Vermutung nahe, daß OSL und TL durch dieselben Fallen verursacht werden. Dies wird dadurch bestätigt, daß das TL-Signal mit zunehmender Belichtungsdauer abnimmt (siehe Abbildung 5.10).

### 5.3.2 Phototransfer

Wird ein bestrahltes  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Dosimeter auf 500 °C erhitzt, so sind die Dosimetriefallen entleert, und bei einer TL- Messung tritt nur noch ein Untergrundsignal auf. Wird jedoch mit den blauen Dioden des Risø-Gerätes belichtet, wird ein deutliches Signal gemessen. Der Verlauf dieses OSL-Signals ist in Abbildung 5.11 (links) für ein Dosimeter dargestellt, das mit 0.1 Gy bestrahlt und anschließend zweimal auf 500 °C erhitzt wurde. Im Gegensatz zur OSL, die direkt nach einer Bestrahlung gemessen wird, steigt die Kurve bis zu einem Maximum bei ca. 15 s Stimulationsdauer an und fällt erst dann kontinuierlich ab. Nach der Belichtung ist auch bei einer Erwärmung wieder ein TL-Signal vorhanden (siehe Abbildung 5.11 (rechts)). Da dieses nicht direkt durch Bestrahlung sondern durch Belichtung verursacht wurde, wird es als PTTL (phototransferred thermoluminescence) bezeichnet. Oster et al. (1994) beobachteten, daß die Effizienz des Phototransfers mit zunehmender Wellenlänge abnimmt, so daß bei Grünstimulation kein Signal mehr beobachtet wird.



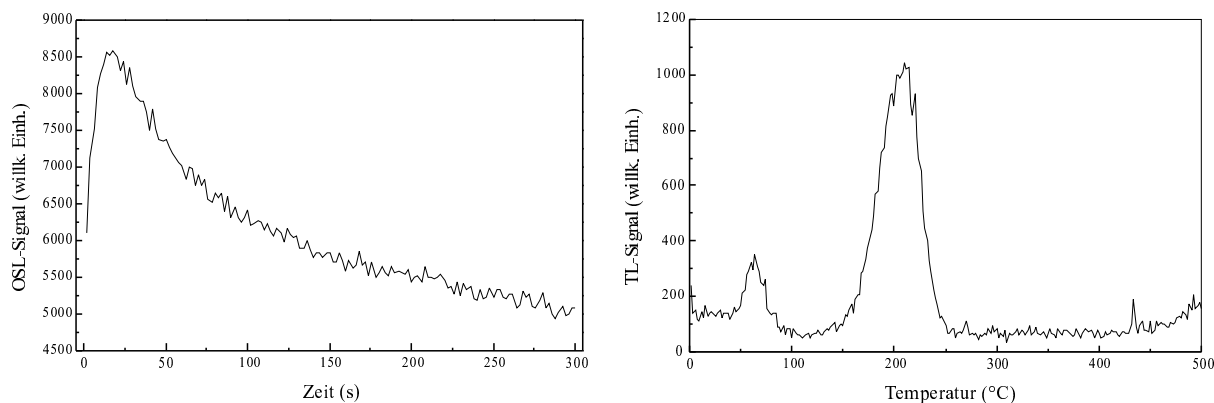


Abbildung 5.11: Mit den blauen Dioden des Risø-Gerätes stimuliertes Signal, nachdem das  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Dosimeter mit 0.1 Gy bestrahlt und zweimal auf 500 °C erhitzt wurde (links); anschließend gemessenes PTTL-Signal (rechts).

Da der PTTL-Peak und der Dosimetriepeak bei der gleichen Temperatur liegen, ist zu vermuten, daß beide durch dieselben Fallen verursacht werden. Allerdings waren die Dosimetriefallen vor der Belichtung leer, und da die Bandlücke bei  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$  9 eV beträgt, ist keine optische Stimulation vom Valenzband ins Leitungsband möglich ( $470\text{ nm} \hat{=} 2.6\text{ eV}$ ). Deshalb nehmen Colyott et al. (1996) an, daß ein Transfer von Ladungsträgern aus tiefen Fallen in die Dosimetriefallen und flachen Fallen erfolgt.

Dabei stellt sich die Frage, ab welcher Temperatur die für den Phototransfer verantwortlichen tiefen Fallen entleert sind. Dazu wurde eine  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Tablette mit 0.1 Gy bestrahlt und vorgeheizt, indem das TL-Signal bis zu einer bestimmten Temperatur gemessen wurde. Anschließend wurde die Tablette 60 s mit den blauen Dioden belichtet und das resultierende PTTL-Signal wurde detektiert. Die PTTL-Signale für verschiedene Vorheiztemperaturen sind in Abbildung 5.12 dargestellt. Das Signal nimmt mit zunehmender Vorheiztemperatur ab. Ab 600 °C ist kein Phototransfer mehr meßbar.

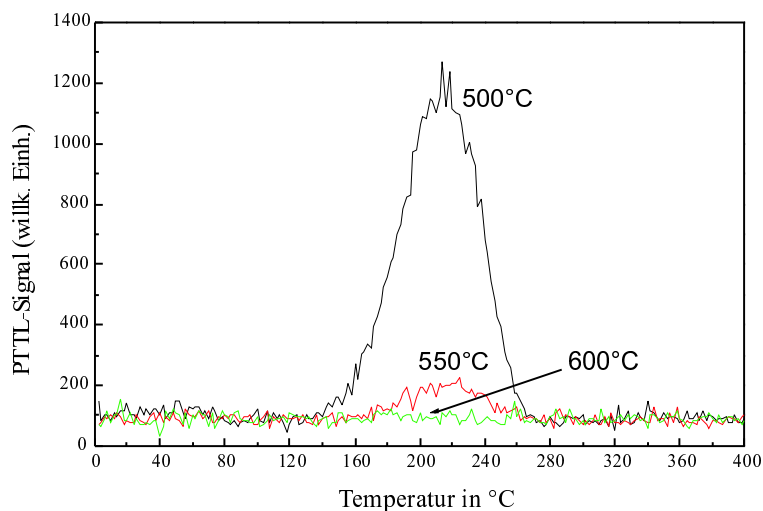


Abbildung 5.12: PTTL-Signale einer  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Tablette, wenn vor der Blaustimulation und TL-Messung bei verschiedenen Temperaturen vorgeheizt wird.

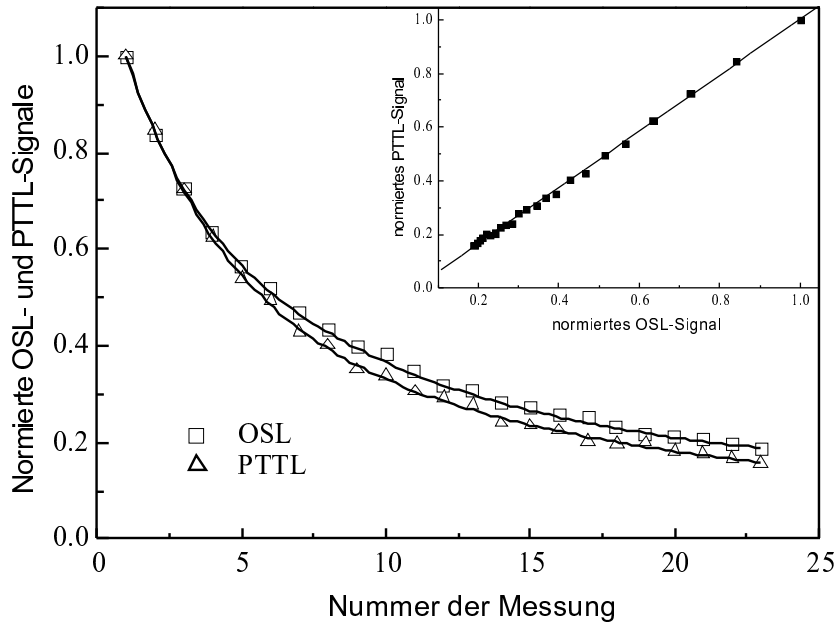


Abbildung 5.13: Abnahme von PTTL und OSL bei wiederholter Messung ohne weitere Bestrahlung. Die Daten sind auf die Werte bei der ersten Messung normiert. ECKEINSATZ: Zusammenhang zwischen OSL und PTTL sowie linearer Fit der Daten.

Der Verlauf der OSL-Kurve in Abbildung 5.11 (links) kann nun dadurch erklärt werden, daß bei Belichtung nicht nur Phototransfer von Ladungsträgern in die Dosimetriefallen, sondern gleichzeitig auch eine Stimulation aus diesen Fallen erfolgt. Die Dosimetriefallen müssen erst gefüllt werden, bevor eine Lumineszenzemission möglich ist; das OSL-Signal nimmt zu. Da der Nachschub aus den tiefen Fallen begrenzt ist, tritt nach einer bestimmten Zeit eine Abnahme des Signals ein, wie sie auch bei einer Ausleuchtkurve nach einer Bestrahlung festgestellt wird. Ein ähnliches Verhalten wurde von Bulur und Göksu (1999) auch bei der PTTL bei zunehmender Belichtungsdauer beobachtet.

Der erhöhte Untergrund der OSL-Kurve in Abbildung 5.9 wird durch den Phototransfer verständlich. Die Dosimetriefallen werden zwar entleert, durch den Ladungstransfer aus tiefen Fallen bleibt aber so lange ein Restsignal, bis auch dort keine Ladungsträger mehr vorhanden sind.

Die Entleerung der tiefen Fallen wird durch Abbildung 5.13 verdeutlicht. Eine Probe wurde bestrahlt und anschließend auf 500 °C erhitzt. Bei wiederholten OSL- und PTTL-Messungen nehmen die Signale kontinuierlich ab; die PTTL steht dabei in nahezu linearem Zusammenhang mit der OSL. Dieses Verhalten wurde u. a. auch von Moscovitch et al. (1993) beobachtet.

Gleichzeitig kann aber auch eine Zunahme des Phototransfers beobachtet werden, wenn die Ladungsträgerzahl in den tiefen Fallen steigt. Die Tablette aus Abbildung 5.14 wurde vor jeder OSL- und PTTL-Messung mit 0.1 Gy bestrahlt und erhitzt. Da bei der Belichtung die tiefen Fallen nicht vollständig entleert werden, nimmt nach jeder Bestrahlung die Anzahl der Ladungsträger und damit auch der Phototransfer bis zur Sättigung zu. PTTL und OSL stehen wieder in linearem Zusammenhang.

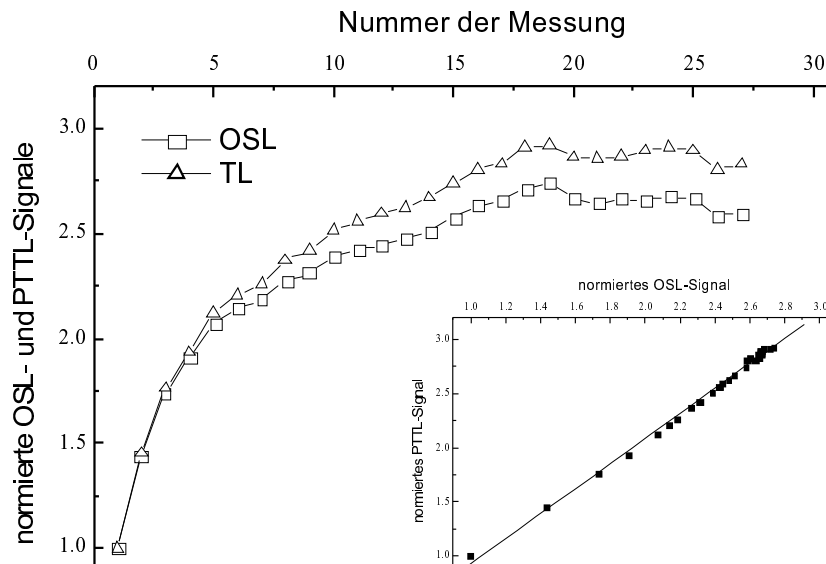


Abbildung 5.14: Zunahme von PTTL und OSL, wenn vor jeder Messung mit 0.1 Gy bestrahlt und anschließend auf 500 °C erhitzt wird. Die Daten sind auf die Werte bei der ersten Messung normiert. Eckeinsatz: Zusammenhang zwischen OSL und PTTL sowie linearer Fit der Daten.

## 5.4 Wachstumskurven und Dosisreproduktion

Die Summe aus  $\beta$ - und  $\gamma$ -Dosisleistung beträgt bei Nussi 2.47 mGy/a bzw. 7  $\mu$ Gy/d. Da Expositionsdauern von wenigen Tagen bis Wochen angestrebt werden, müssen Dosen im Bereich von 10 bis 100  $\mu$ Gy nachgewiesen werden. Nach Akselrod et al. (1990a) steigt die Wachstumskurve von  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C von wenigen  $\mu$ Gy bis Gy linear an und erreicht bei ca. 30 Gy die Sättigung. Moscovitch et al. (1993) konnten sogar Labordosen bis 100 nGy mit den Dosimetern reproduzieren.

Im folgenden werden TL- und OSL-Wachstumskurven überprüft und es wird untersucht, inwieweit sich Labordosen bekannter Größe aus diesen Kurven reproduzieren lassen.

### 5.4.1 Thermolumineszenz

Zur Messung einer TL-Wachstumskurve wurde die Nebenposition (siehe Kapitel 6.2.4) einer  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C-Tablette 2 bis 150 s bestrahlt, anschließend wurde die TL bis 400 °C gemessen und das Signal über den Dosimetriepeak integriert. Nach Aufnahme der Wachstumskurve wurden in gleicher Weise noch mehrere Messungen mit Testbestrahlungen vorgenommen, um zu überprüfen ob eine bekannte Bestrahlungsdauer mittels der Wachstumskurve reproduziert werden kann.

Die Wachstumskurve und Testmessungen sind in Abbildung 5.15 dargestellt. Aus dem Korrelationskoeffizienten des linearen Fits kann abgelesen werden, daß die Wachstumskurve sehr gut durch eine Gerade beschrieben werden kann. Es wird erwartet, daß sich dadurch die Dosisreproduktion stark vereinfacht und sich nahezu unabhängig von der Dosis gute Ergebnisse erzielen lassen. Der Sättigungsbereich, der bei den Wachstumskurven von Quarz und Feldspat durch die geringe Steigung große Fehler verursacht, tritt hier erst bei nicht mehr relevanten Dosen auf.

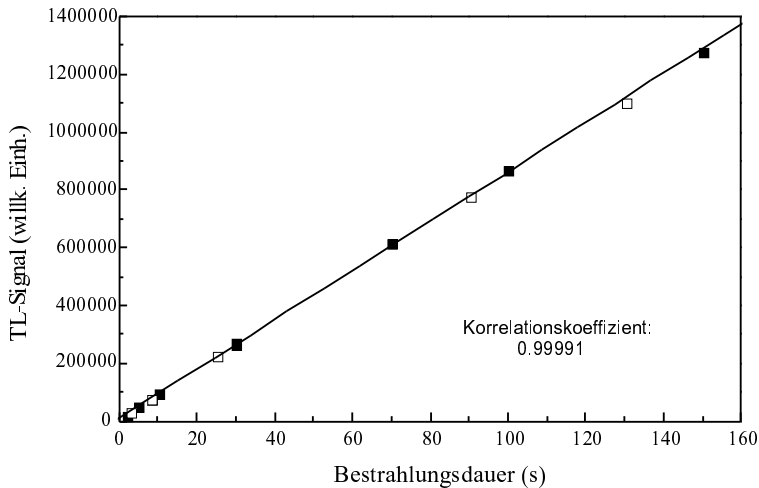


Abbildung 5.15: Mit einer  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Tablette gemessene TL-Wachstumskurve (schwarze Vierecke). Die Gerade kennzeichnet den linearen Fit an die Daten. Leere Vierecke symbolisieren die Testmessungen zur Reproduzierbarkeit.

Die Signale der Testmessungen wurden mit der Wachstumskurve verglichen und so die gemessenen Bestrahlungsdauern bestimmt. In Tabelle 5.1 (links) sind die Ergebnisse aufgeführt. Während Zeiten von 25 s bis 130 s sogar mit einer Abweichung von weniger als 2 % reproduziert werden können, nimmt der Fehler zu den kleinen Zeiten hin zu und erreicht sogar einen Wert von 20 % für die Bestrahlungsdauer 3 s. Um evtl. eine Verbesserung für kleine Zeiten zu erzielen, wurden nur die Punkte der Wachstumskurve von 2 bis 30 s linear gefittet, um diese stärker zu gewichten, und noch einmal alle Reproduktionsmessungen mit dieser Geraden verglichen. Aus Tabelle 5.1 (rechts) ist ersichtlich, daß auf diese Weise eine deutliche Verbesserung erzielt werden konnte. So beträgt die Abweichung bei 3 s jetzt nur noch 4 % vom erwarteten Wert, wobei der Punkt aber immer noch am unteren Rand der Kurve liegt; für 8 s konnte die Abweichung sogar unter 2 % gesenkt werden. Bei größeren Zeiten jedoch, die nun außerhalb der verwendeten Wachstumskurve liegen, hat sich das Ergebnis verschlechtert. Es empfiehlt sich daher bei der Dosisrekonstruktion, die Wachstumskurven so zu bestimmen, daß die zu erwartende Dosis ungefähr in der Mitte des Dosisbereiches liegt. Dann liegen die zu erwartenden Abweichungen unter 2 %.

Sollwert in s	Meßwert in s	Abweichung in %
8.24	7.96	3.4
3.24	2.60	20
25.24	25.48	0.95
8.24	7.76	5.8
130	128	1.5
90	89.8	0.22
8.24	7.79	5.5

Sollwert in s	Meßwert in s	Abweichung in %
8.24	8.29	0.61
3.24	3.14	3.1
25.24	25.09	0.59
8.24	8.09	1.8
130	123	5.4
90	86.8	3.6
8.24	8.13	1.3

Tabelle 5.1: Mit  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Tabletten reproduzierte Bestrahlungsdauern, wenn die gesamte TL-Wachstumskurve über den Bereich 2 bis 150 s (links) und nur die Wachstumskurve über den Bereich 2 bis 30 s (rechts) verwendet wird.

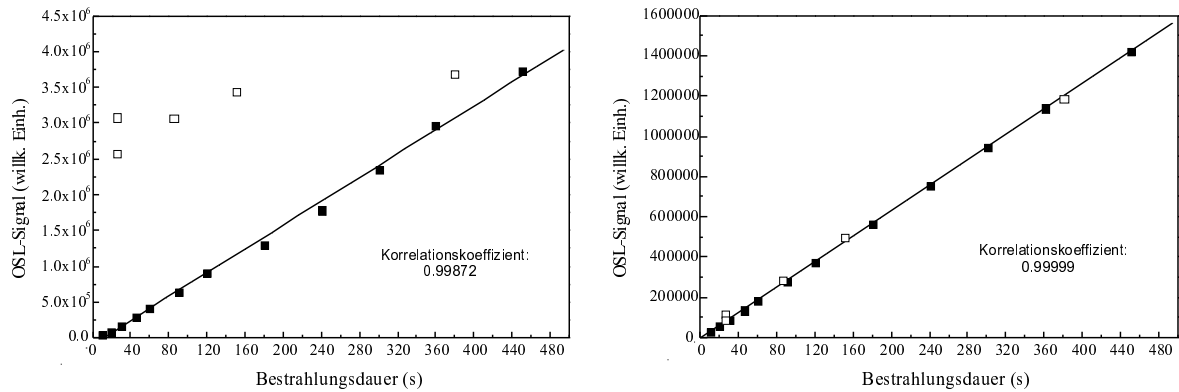


Abbildung 5.16: Mit einer  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Tablette gemessene OSL-Wachstumskurven (schwarze Vierecke) bei Blaustimulation. Links Stimulationsdauer 1 s, rechts 300 s. Die Geraden kennzeichnen die linearen Fits an die Daten, die Korrelationskoeffizienten sind angegeben. Leere Vierecke symbolisieren die Testmessungen zur Reproduzierbarkeit.

### 5.4.2 Blaustimulation

$\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$  läßt sich optisch stimulieren und wurde auch für einen Einsatz als OSL-Dosimeter entwickelt (McKeever et al. 1999). Ähnlich wie bei den oben erläuterten TL-Messungen wurden Wachstumskurven bei unterschiedlichen Stimulationsdauern mit den blauen Dioden gemessen. Zusätzlich wurde anschließend wieder untersucht, inwieweit sich eine bekannte Bestrahlungsdauer aus den Wachstumskurven reproduzieren läßt.

Dazu wurde die Nebenposition eines Dosimeters von 10 s bis 450 s bestrahlt und jeweils 1 s lang das blau stimulierte Lumineszenzsignal gemessen. Nach der Aufnahme der Wachstumskurve wurde die Tablette für Testmessungen noch 25 s, 380 s, 150 s, 85 s und noch einmal 25 s bestrahlt. Am Ende wurde das Dosimeter auf 400 °C erhitzt, um die Dosimetriefallen zu entleeren. Der ganze Zyklus wurde mit derselben Tablette für unterschiedliche Belichtungszeiten wiederholt. Exemplarisch sind zwei der gemessenen Wachstumskurven in Abbildung 5.16 dargestellt.

Die Korrelationskoeffizienten beider Kurven deuten auf eine gute Übereinstimmung der linearen Fits mit den Daten der Wachstumskurve hin. Dennoch ist deutlich zu erkennen, daß die Reproduzierbarkeit der Messungen unterschiedlich ist. Während die Testpunkte zur Reproduzierbarkeit im Bild links (Stimulationsdauer 1 s) weit abseits der Geraden liegen, fallen die Punkte rechts (Stimulationsdauer 300 s) mit der Wachstumskurve zusammen. Längere Belichtungszeiten erhöhen damit die Reproduzierbarkeit der Messungen. Die kürzere Belichtungsdauer reicht offensichtlich nicht aus, um alle Fallen zu entleeren. Die Ladungsträger der zuvor applizierten Dosen verfälschen das Ergebnis, was auch durch die Subtraktion des (Phototransfer-) Untergrundes nicht vollständig behoben wird.

In Tabelle 5.2 sind die reproduzierten Bestrahlungsdauern und die prozentualen Abweichungen vom Sollwert für die Stimulationsdauern 25 s und 300 s aufgelistet. Die Meßpunkte wurden bestimmt, indem vom OSL-Signal der ersten beiden Sekunden der Untergrund abgezogen wurde (berechnet aus dem Signal der letzten 3 bzw. 50 s). Abgesehen von einer Ausnahme ist bei einer längeren Stimulation die Genauigkeit deutlich höher.

Da sich kleine Bestrahlungsdauern auch bei 300 s Belichtung schlechter reproduzieren ließen, wurde überprüft, ob ebenfalls eine Verbesserung erzielt werden kann, wenn für die Auswertung

Sollwert in s	Meßwert in s (25 s)	Abweichung in %	Meßwert in s (300 s)	Abweichung in %	Meßwert in s (300 s) (2)	Abweichung in %
25	38	53	23.3	6.8	24.6	1.6
380	375	1.2	404	6.3	396	4.2
150	159	6.0	148	1.3	146	2.7
85	91.6	7.8	83.2	2.1	83.0	2.4
25	29.4	18	24.1	3.6	25.3	1.2

Tabelle 5.2: Mit  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C-Tabletten reproduzierte Bestrahlungsdauern mittels OSL-Wachstumskurven und die Abweichungen von der wahren Bestrahlungsdauer in %. Stimulationsdauer 25 s: Spalten 2 und 3; Stimulationsdauer 300 s: Spalten 4 und 5; Stimulationsdauer 300 s (Wachstumskurve 1 bis 90 s): Spalten 6 und 7.

nicht die gesamte Wachstumskurve benutzt wird. Stattdessen wurde nur der Teil von 10 bis 90 s neu gefittet, der die beiden Zeiten 25 s und 85 s beinhaltet. Dadurch konnte der Fehler auch hier auf unter 5 % gesenkt werden. Bei größeren Zeiten jedoch, die nun außerhalb der verwendeten Wachstumskurve liegen, hat sich das Ergebnis verschlechtert. Es empfiehlt sich daher, wie auch bei der TL, bei der Dosisrekonstruktion die Wachstumskurven so zu bestimmen, daß die zu erwartende Dosis ungefähr in der Mitte des Dosisbereiches liegt. Da der Fehler aber insgesamt noch über den Werten bei der TL liegt, wurde hauptsächlich die Thermolumineszenz zur Dosisrekonstruktion verwendet.

## Kapitel 6

# Einfluß der blauen LEDs und der Quellen im Risø TL/OSL-DA-15 auf die Dosisrekonstruktion

Wie in Kapitel 2.3 beschrieben, bietet das Risø TL/OSL-DA-15 zusätzlich zur thermischen Stimulation auch die Möglichkeit zur optischen Anregung und zur Bestrahlung. Außerdem können mehrere Probenscheibchen hintereinander einen Meßzyklus durchlaufen. Die Scheibchen befinden sich dabei auf einem rotierenden runden Probentablett mit 48 durchnummerierten Positionen. Ist Position 1 an der Meßposition, so befindet sich Position 17 unter der  $\beta$ - und Position 33 unter der  $\alpha$ -Quelle. Aufgrund der Lichtempfindlichkeit der  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C-Dosimeter ist es möglich, daß bei der Blaustimulation durch Streulicht mehrere Proben gleichzeitig beeinflußt werden. Auch bei einer Bestrahlung erhalten die Proben auf den Nebenpositionen evtl. eine geringe Dosis. Zusätzlich können die eingebauten Quellen zwar abgeschirmt, aber nicht „abgeschaltet“ werden, weshalb die Proben im Gerät ständig einer von den Quellen ausgehenden Strahlung ausgesetzt sind.

Ziel der Arbeit ist es, Dosen im Bereich von  $\mu$ Gy bis mGy zu messen, so daß sämtliche Einflüsse durch das Gerät möglichst klein gehalten werden müssen. Aber nicht nur bei der Anwendung von hochempfindlichen Dosimetern, sondern auch bei der Quarz- oder Feldspatdatierung können Einflüsse durch die Geräte zu merklichen systematischen Verfälschungen der Ergebnisse führen. Aus diesem Grund wurde versucht, mit Hilfe der  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C-Dosimeter den Einfluß der blauen LEDs und der eingebauten Quellen auf die Dosisrekonstruktion festzustellen und zu quantifizieren. Die Resultate aus dem zweiten Abschnitt sind zusammen mit weiteren Untersuchungen für die Geräte Risø TL/OSL-DA-12 und 12a in Kalchgruber et al. (2001) zusammengefaßt.

### 6.1 Die blauen Leuchtdioden

Um die Bleichwirkung der blauen Dioden auf eine Probe auf der Nachbarposition im Meßgerät festzustellen, wurde eine  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C-Tablette 2 s mit der  $\beta$ -Quelle bestrahlt und das resultierende TL-Signal gemessen. Anschließend wurde dieselbe Tablette noch einmal bestrahlt, vor der TL-Messung wurde jedoch die benachbarte Position 100 s mit den blauen Dioden belichtet. Der ganze Vorgang wurde mehrmals wiederholt. Das Ergebnis ist in Abbildung 6.1 dargestellt. Das TL-Signal der nicht belichteten Tablette (leere Vierecke) nimmt fast linear mit der Zahl der Bestrahlungen und Messungen zu. Um eine evtl. vorhandene Bleichwirkung der LEDs besser

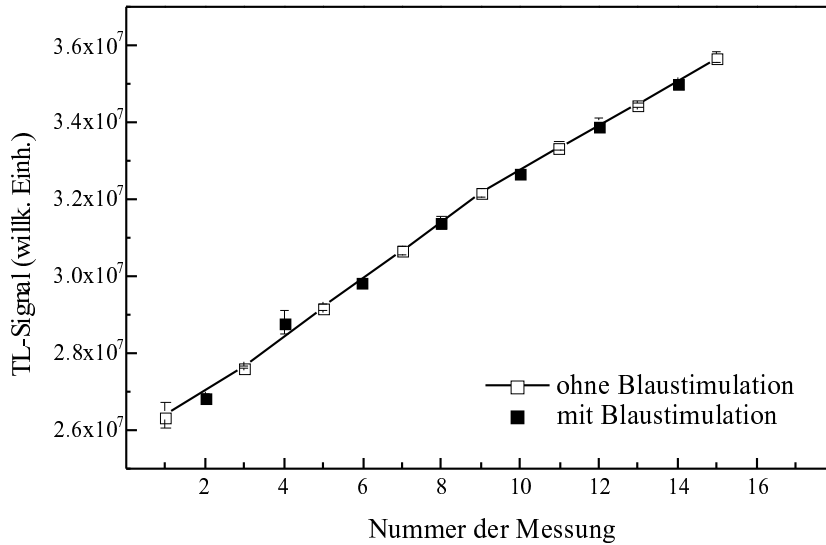


Abbildung 6.1: Bleichwirkung der blauen LEDs auf die Position neben dem belichteten Scheibchen. Die leeren Vierecke markieren das TL-Signal einer  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Tablette nach 2 s Bestrahlung. Zur Orientierung wurden diese Daten mit Linien verbunden. Die schwarzen Vierecke kennzeichnen das Signal, nachdem zusätzlich zur Bestrahlung die benachbarte Position 100 s mit den blauen LEDs belichtet wurde. Die Fehlerbalken markieren den Standardfehler aus zwei Messungen.

erkennen zu können, wurden die Verbindungslinien der Punkte eingezeichnet. Werden auch die benachbarten Positionen durch die blauen Dioden belichtet, ist zu erwarten, daß das TL-Signal der Tablette nach der Belichtung systematisch unter diesen Linien liegt. Es ist jedoch im Rahmen der Meßgenauigkeit keine Abweichung von den erwarteten Werten zu erkennen. Für alle folgenden Messungen wurde angenommen, daß die Bleichwirkung der blauen LEDs ausschließlich auf die aktuelle Meßposition beschränkt ist.

## 6.2 Der Einfluß der $\beta$ -Quelle

### 6.2.1 Zeitoffset

Die  $\beta$ -Quelle des Risø TL/OSL-DA-15 Geräts ist, wie bereits beschrieben, auf einem drehbar gelagerten Stahlrad montiert. Bei einer Bestrahlung dreht sich die Quelle von oben nach unten. Die Bestrahlungszeit beginnt erst dann, wenn die Quelle vollständig nach unten in ihre Bestrahlungsposition geklappt ist. Allerdings wird der zu bestrahlenden Probe bereits eine Dosis appliziert, während die Quelle noch gedreht wird, so daß die tatsächliche Bestrahlungsdauer größer ist, als die nominell vorgegebene. Dieser Zeitunterschied wird als *Zeitoffset* der Quelle bezeichnet. Um diesen Effekt zu messen, wurde die Wachstumskurve einer  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Tablette aufgenommen. Ohne Offset sollte die Gerade durch den Ursprung des Koordinatensystems verlaufen. Tatsächlich aber schneidet sie die negative Zeitachse bei dem Wert, der dem Zeitoffset entspricht (siehe Abbildung 6.2). Der Wert kann mit Fehler aus dem Achsenabschnitt und der Steigung des Fits berechnet werden.

Der Zeitoffset wurde 4 mal bestimmt. Als fehlergewichteter Mittelwert ergibt sich ein Wert von



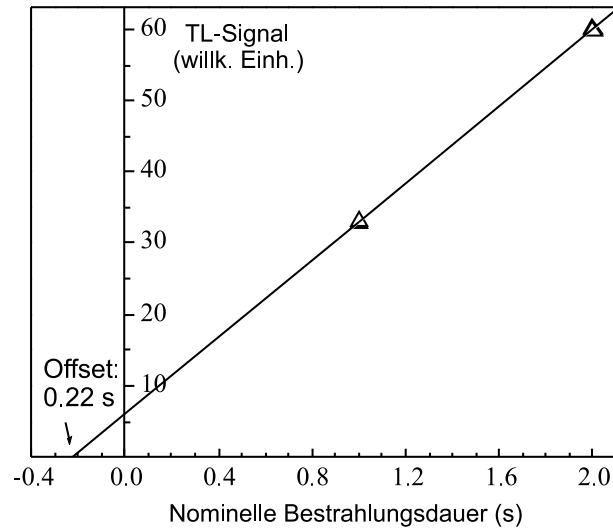


Abbildung 6.2: Bestimmung des Zeitoffset der  $\beta$ -Quelle im Risø TL/OSL-DA-15 aus der Wachstumskurve einer  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Tablette. Die Gerade kennzeichnet den linearen Fit an die gemessenen Daten.

( $0.24 \pm 0.02$ ) s. Das Ergebnis weicht von den 0.11 s ab, die Markey et al. (1997) als Zeitoffset für das Gerät angeben. Daraus kann geschlossen werden, daß trotz gleicher Bauart der Wert für jedes einzelne Gerät unterschiedlich ist. Bei Bestrahlungszeiten über 25 s ist der Fehler durch den Zeitoffset kleiner als 1 %, so daß auf eine Korrektur verzichtet werden kann. Bei kürzeren Bestrahlungszeiten muß der Offset beachtet werden. Allerdings ist zu bedenken, daß der Wert nur fehlerbehaftet bestimmt werden kann. Es empfiehlt sich deshalb, Bestrahlungszeiten von weniger als 25 s nach Möglichkeit zu vermeiden.

## 6.2.2 Crosstalk

Eine Eigenschaft von radioaktiven Quellen ist, daß die Strahlung nicht auf eine bestimmte Richtung beschränkt ist. Die Intensität der Strahlung nimmt jedoch mit wachsendem Abstand von der Quelle ab. Aus diesem Grund wird im Risø-Gerät nicht nur die Probe bestrahlt, die sich direkt unter der Quelle befindet, sondern auch die benachbarten Positionen erhalten eine bestimmte wenn auch kleinere Dosis.

In Abbildung 6.3 ist dargestellt, wie diese sogenannte *Crosstalk*-Dosis gemessen wurde. Im ersten Schritt wurde die Wachstumskurve einer  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Tablette aufgenommen, indem die *benachbarte* Position bestrahlt und das TL-Signal in Abhängigkeit von der Bestrahlungsdauer gemessen wurde. Im zweiten Schritt wurde die Tablette direkt bestrahlt und wiederum die Wachstumskurve in Abhängigkeit von der Dosis bestimmt (Dosisleistung 0.1 Gy/s). Beide Kurven wurden linear gefittet und die Steigungen der Geraden bestimmt. Die Crosstalk-Dosisleistung ergibt sich dann aus dem Quotienten der beiden Steigungen. Voraussetzung für dieses Verfahren ist, daß  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$  über den gesamten Dosisbereich von  $\mu\text{Gy}$  bis Gy eine durchgehende lineare Wachstumskurve besitzt, so daß die Steigungen direkt miteinander verglichen werden können. Die Crosstalk-Dosisleistung für die Nachbarposition wurde mit 4 verschiedenen Tabletten gemessen. Als fehlergewichteter Mittelwert ergab sich  $(4.12 \pm 0.25) \cdot 10^{-5}$  Gy/s. Dies bedeutet daß bei einer Bestrahlung mit 1 Gy die Crosstalk-Dosis 412  $\mu\text{Gy}$  beträgt bzw. 0.04 %. Bøtter-Jensen

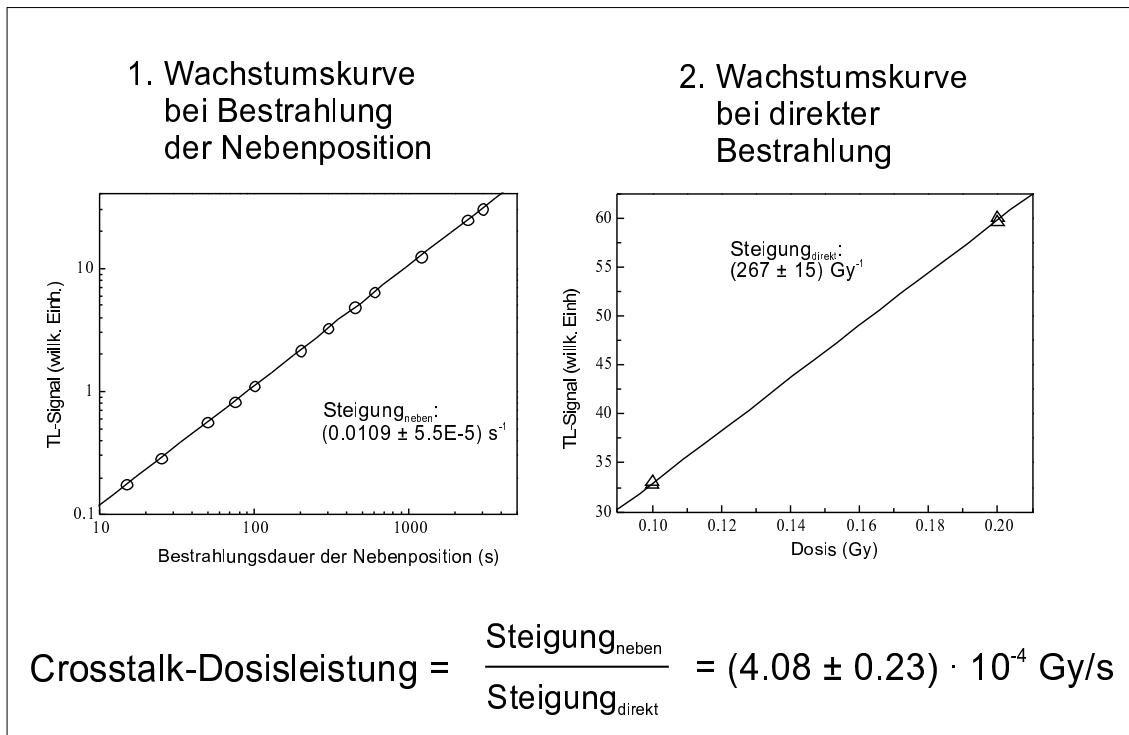


Abbildung 6.3: Bestimmung der Crosstalk-Dosisleistung der  $\beta$ -Quelle im Risø TL/OSL-DA-15 aus den Wachstumskurven einer  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Tablette. Die Geraden kennzeichnen den linearen Fit an die gemessenen Daten.

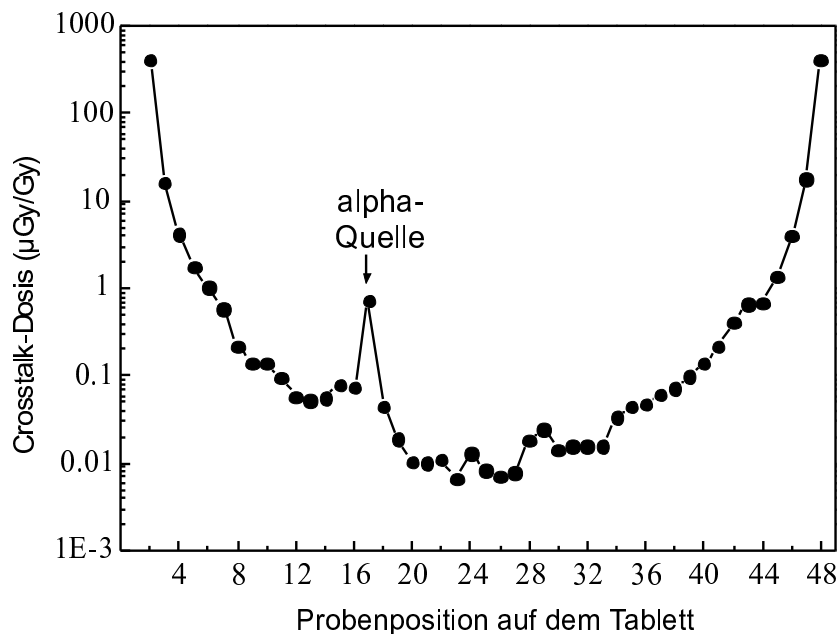


Abbildung 6.4: Crosstalk-Dosis der  $\beta$ -Quelle im Risø TL/OSL-DA-15 auf den Positionen des Tablett, wenn Position 1 mit 1 Gy bestrahlt wird. Position 17 befindet sich dann unter der  $\alpha$ -Quelle.

Position auf dem Tablett	Crosstalk Dosis in $\mu\text{Gy}$	absoluter Fehler in $\mu\text{Gy}$	relativer Fehler in %	Position auf dem Tablett	Crosstalk Dosis in $\mu\text{Gy}$	absoluter Fehler in $\mu\text{Gy}$	relativer Fehler in %
2	412	25	6.1	48	412	25	6.1
3	16	1.0	6.1	47	17.8	1.2	6.5
4	4.18	0.26	6.1	46	4.04	0.27	6.1
5	1.78	0.11	6.1	45	1.372	0.083	6.1
6	1.035	0.063	6.1	44	0.687	0.042	6.1
7	0.560	0.036	6.1	43	0.666	0.041	6.1
8	0.223	0.014	6.1	42	0.412	0.025	6.1
9	0.1418	0.0087	6.1	41	0.219	0.014	6.3
10	0.1403	0.0086	6.2	40	0.1395	0.0090	6.4
11	0.0967	0.0061	6.3	39	0.0997	0.0069	6.9
12	0.0575	0.0038	6.7	38	0.0733	0.0050	6.9
13	0.0534	0.0043	8.0	37	0.0611	0.0043	7.1
14	0.0562	0.0036	6.4	36	0.0474	0.0032	6.7
15	0.0801	0.0053	6.6	35	0.0448	0.0039	8.7
16	0.0749	0.0060	7.9	34	0.0333	0.0055	17
17	0.734	0.045	6.1	33	0.0159	0.0011	7.1
18	0.0447	0.0032	7.2	32	0.0156	0.0013	8.1
19	0.0189	0.0017	8.8	30	0.0143	0.0019	14
31	0.0158	0.0018	11	29	0.0247	0.0042	17
20	0.0106	0.0015	14	28	0.0183	0.0028	15
21	0.0100	0.0014	14	27	0.0078	0.0013	17
22	0.0111	0.0009	7.8	26	0.0071	0.0010	14
23	0.0068	0.0019	28	25	0.0085	0.0014	17
24	0.0131	0.0018	14				

Tabelle 6.1: Crosstalk-Dosis der  $\beta$ -Quelle im Risø TL/OSL-DA-15 Gerät auf den Positionen des Tablett, wenn Position 1 mit 1 Gy bestrahlt wird.

et al. (2000) nennen einen Wert von 0.17 % für Quarz Grobkorn.

Indem der Abstand zwischen bestrahlter Position und Position der Tablette verändert wird, kann der Crosstalk für alle Positionen des Tablett bestimmt werden. Das Ergebnis ist graphisch in Abbildung 6.4 dargestellt. Die Crosstalk-Dosis nimmt nahezu symmetrisch mit zunehmendem Abstand von der bestrahlten Position ab. Der erhöhte Wert für Position 17 (wenn Position 1 bestrahlt wird) wird nicht durch den Crosstalk der  $\beta$ -Quelle verursacht, sondern durch die eingebaute  $\alpha$ -Quelle. Die Abschirmung absorbiert zwar die emittierte  $\alpha$ -Strahlung, die ebenfalls vom  $^{241}\text{Am}$  emittierte  $\gamma$ -Strahlung wird jedoch nur geschwächt. In Tabelle 6.1 sind die Werte für alle Positionen aufgelistet.

Bei den angegebenen Dosen ist zu beachten, daß es sich um Äquivalenzdosen handelt. Sie entsprechen der Dosis, die bei direkter Bestrahlung dasselbe Lumineszenzsignal hervorgerufen hätte. Dabei ist die Quelle auch bei direkter Bestrahlung nur für Quarz Grobkorn kalibriert. Aufgrund der verschiedenen Massenschwächungskoeffizienten wären bei einer Kalibration für  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$  leicht unterschiedliche Ergebnisse zu erwarten.

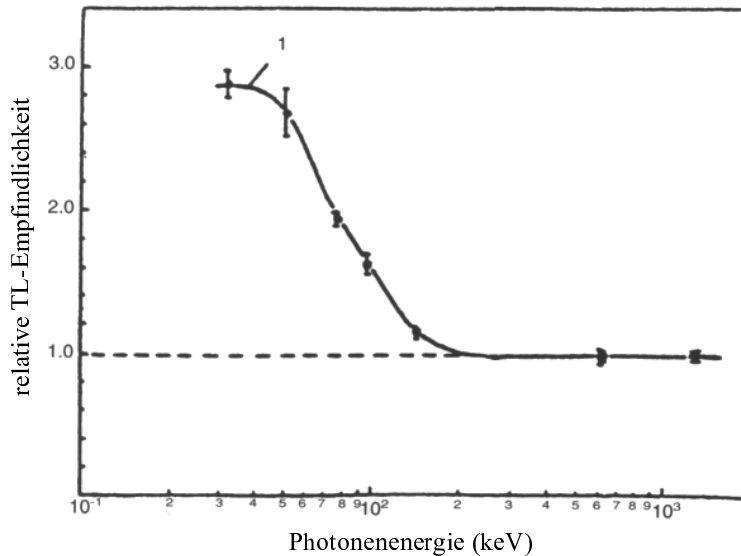


Abbildung 6.5: Relative Effektivität der Lumineszenzenerzeugung in  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$  bei unterschiedlicher Energie der Strahlung im Vergleich zu 1.25 MeV. (nach Akselrod et al. (1990b))

Bei  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$  variiert die Effektivität der Lumineszenzenerzeugung mit der Energie der Strahlung. Im Energiebereich von mehreren keV erzeugt dieselbe Dosis ein ca. 3 mal höheres Signal als bei Strahlung mit einer Energie von MeV (siehe Abbildung 6.5). Das Energiespektrum der Crosstalk-Strahlung ist nicht identisch mit dem bei direkter Bestrahlung. Zu den direkt emittierten  $\beta$ -Teilchen kommt die nicht vollständig abgeschirmte  $\gamma$ -Strahlung der Quelle sowie rückgestreute Strahlung und Bremsstrahlung der Elektronen. Die mittlere Energie dieser Strahlung ist geringer als die bei direkter Bestrahlung. Da in diesem Bereich dieselbe Dosis ein höheres Signal erzeugt, sind die angegebenen Äquivalenzdosen vermutlich höher als die tatsächlich absorbierten Dosen, maximal jedoch um einen Faktor 3.

Der von Bøtter-Jensen et al. (2000) genannte Wert für Quarz Grobkorn kann aus diesem Grund nicht direkt mit dem hier erhaltenen Ergebnis verglichen werden. Da jedoch der mit den  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Tabletten bestimmte Wert eher zu hoch ist, kann die Crosstalk-Dosis bei Datierungsanwendungen vernachlässigt werden.

### 6.2.3 Leakage

Im Gegensatz zu Röntgenquellen können radioaktive Quellen nicht abgeschaltet werden. Die Quelle im Risø-Gerät dreht sich zwar nach Ende der Bestrahlung wieder nach oben, jedoch wird nicht die gesamte Strahlung von der Abschirmung absorbiert. Befindet sich ein Probenscheibchen auf der Meßposition, ist ein anderes direkt unter der Quelle und wird zwangsläufig ungewollt bestrahlt. Diese sogenannte *Leakage*-Dosis wurde ganz analog zur Crosstalk-Dosis bestimmt. Statt im ersten Schritt die Nebenposition zu bestrahlen, wurde eine Tablette unterschiedlich lange unter die Quelle gelegt, die nicht in Bestrahlungsposition war. Für die Leakage-Dosis ergab sich wieder als fehlergewichteter Mittelwert aus 4 Messungen  $(5.80 \pm 0.29) \cdot 10^{-8}$  Gy/s. Analog zur Crosstalk-Dosis muß auch dieser Wert als Äquivalenzdosis aufgefaßt werden.

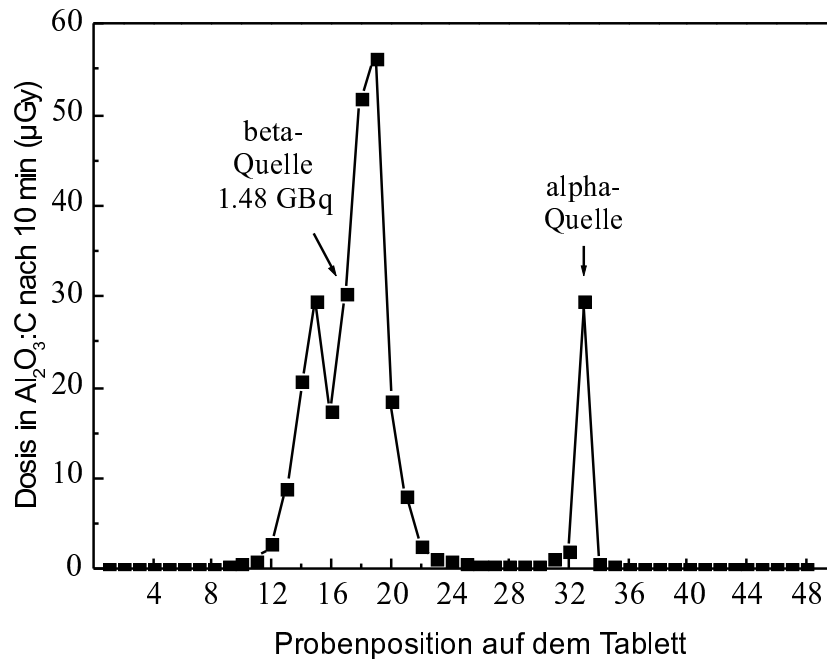


Abbildung 6.6: Leakage-Dosis der  $\beta$ -Quelle im Risø TL/OSL-DA-15 Gerät auf den Positionen des Tablett, wenn sich Position 1 für 10 min auf der Meßposition befindet.

Position auf dem Tablett	Leakage nach 10 min in $\mu\text{Gy}$	relativer Fehler in %
11	0.89	4.2
12	2.9	3.5
13	8.9	2.3
14	21	2.7
15	30	2.7
16	17	2.2
17	30	2.2
18	52	2.5
19	56	2.4
20	19	2.5
21	8.1	2.6
22	2.5	3.4
23	1.3	3.8
24	0.93	3.8
30	0.34	5.2
31	1.2	3.9
32	2.0	2.4
33	30	2.4
34	0.59	3.1

Tabelle 6.2: Leakage-Dosis der  $\beta$ -Quelle im Risø TL/OSL-DA-15 Gerät auf den Positionen des Tablett, wenn sich Position 1 für 10 min auf der Meßposition befindet.

Die Leakage-Dosis für andere Positionen auf dem Tablett ist in Abbildung 6.6 graphisch dargestellt und in Tabelle 6.2 aufgelistet. Dabei wurden die Dosen bestimmt, die auf den einzelnen Positionen absorbiert werden, wenn das Scheibchen auf Position 1 einen Meßzyklus mit TL-Messung und Untergrundmessung durchläuft (ca. 10 min).

Wie zu erwarten liegen die Beiträge der  $\alpha$ - und  $\beta$ -Quelle in derselben Größenordnung von mehreren 10  $\mu\text{Gy}$ . Auffällig ist jedoch, daß die maximale Dosis nicht direkt unter der  $\beta$ -Quelle sondern zwei Positionen daneben absorbiert wird. Zudem ist die Verteilung nicht symmetrisch um die Quellenposition. Beide Effekte werden vermutlich durch die Montage der Quelle und Streueffekte im Gerät verursacht.

Die maximale Leakage-Dosis liegt bei 56  $\mu\text{Gy}$  in 10 min und kann deshalb bei Quarz- oder Feldspatdatierung vernachlässigt werden, da die zu messenden Dosen dann normalerweise weit über 1 Gy liegen. Bei der Messung der natürlichen Dosisleistung mit Dosimetern kann dieser Effekt jedoch große Probleme verursachen. Angestrebt werden für die Dosimeter Expositionszeiten von wenigen Tagen. Geht man von einer Dosisleistung von 10  $\mu\text{Gy}/\text{d}$  aus, so hat das Dosimeter nach einer Woche eine Dosis gespeichert, die kaum größer ist als die Leakage-Dosis nach einem Meßdurchgang. Wird das Tablett voll mit Dosimetern bestückt, so erhalten die zu Anfang gemessenen Dosimeter eine vernachlässigbar kleine Dosis. Andere jedoch durchlaufen mehrmals Positionen mit einer signifikanten Leakage-Dosis.

Um mit dem Risø TL/OSL-DA-15 trotzdem Dosisrekonstruktionen im Bereich von einigen  $\mu\text{Gy}$  durchführen zu können, empfiehlt es sich, das Tablett maximal bis zur Position 10 zu bestücken, da der Effekt dann unter 1 % liegt.

#### 6.2.4 Applikation niedriger Dosen mit der eingebauten $\beta$ -Quelle

Die Dosisleistung der  $\beta$ -Quelle mit 0.1 Gy/s überschreitet bei weitem den Wert, der für die Rekonstruktion von  $\mu\text{Gy}$  bis mGy noch sinnvoll ist. Es ist nicht möglich über direkte Bestrahlung Dosen kleiner als 100 mGy zu applizieren. Da auch die anderen Quellen der Forschungsstelle ähnlich hohe Dosisleistungen aufweisen, mußte nach einer Möglichkeit zur Bestrahlung mit niederen Dosen gesucht werden.

Aufgrund der geringen Dosisleistungen bietet es sich an, die Crosstalk- und Leakage-Dosen für eine Bestrahlung zu verwenden. Wie bereits in den vorangehenden Abschnitten erklärt, handelt es sich bei den gemessenen Werten nur um Äquivalenzdosen. Diese weichen aber maximal um einen Faktor 3 von den wahren Dosen ab und liegen damit in derselben Größenordnung. Zwar ist es so nicht möglich absolute Dosisbestimmungen vorzunehmen, für eine Empfindlichkeitskalibration einzelner Dosimeter ist eine solche indirekte Bestrahlung aber ausreichend.

Mit dem Verfahren werden Dosen im Bereich von einigen  $\mu\text{Gy}$  bis Gy appliziert, indem eine Tablette unter die geschlossene Quelle gelegt wird, oder die Position neben der Tablette bestrahlt wird. Gleichzeitig können Bestrahlungszeiten über 25 s gewählt werden, so daß sich eine weitere Verfälschung durch den Zeitoffset der Quelle vermeiden läßt.

In Abbildung 6.7 ist die lineare Wachstumskurve einer  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Tablette über den ganzen Äquivalenzdosisbereich von  $\mu\text{Gy}$  bis Gy dargestellt, die durch indirekte Bestrahlung erhalten wurde.

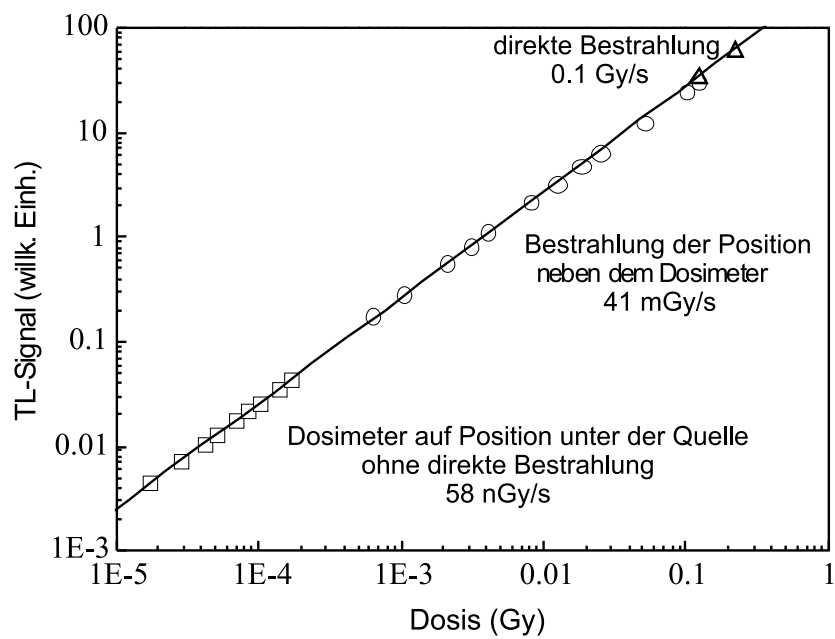


Abbildung 6.7: Wachstumskurve einer  $\alpha$ - $Al_2O_3:C$ -Tablette. Unterschiedliche Symbole stehen für unterschiedliche Bestrahlungsarten. Vierecke: Bestrahlung mittels Leakage. Kreise: Bestrahlung mittels Crosstalk. Dreiecke: direkte Bestrahlung.





## Kapitel 7

# Testmessungen zur Bestimmung der natürlichen Dosisleistung

Nachdem in Kapitel 5.4.1 festgestellt wurde, daß mit den  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Tabletten künstliche Dosen bis auf 3 % reproduziert werden können, werden die Versuche nun auf natürliche Strahlungsfelder ausgeweitet. Da für die Dosimeter keine kalibrierte Quelle zur Verfügung steht, muß eine andere Möglichkeit zur Aufnahme einer Wachstumskurve gefunden werden, die im ersten Abschnitt des Kapitels vorgestellt wird.

Wie von Akselrod et al. (1996) beschrieben eignen sich die thin layer Dosimeter besonders zur Bestimmung der  $\beta$ -Dosisleistung. Verwendet werden Probenvolumina, die wenig größer sind als die Reichweite der  $\beta$ -Strahlung. Werden die Dosimeter mit einer solchen Probe bestrahlt, so wird eine Dosis nur durch  $\beta$ -Strahlung aufgebaut. Die von dem kleinen Probenvolumen abgegebenen  $\gamma$ -Strahlung wird beim Durchgang durch die  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Körner der Dosimeter kaum geschwächt und kann vernachlässigt werden. Im zweiten Teil wird untersucht, inwieweit mit den thin layer Dosimetern künstliche und natürliche Dosen bestimmt werden können.

### 7.1 Wachstumskurven bei natürlichen Strahlungsfeldern

Wie bereits erwähnt, sind die Dosisleistungen der an der Forschungsstelle Archäometrie vorhandenen Quellen so hoch, daß keine Dosen unter 100 mGy appliziert werden können. Zwar ist über den Crosstalkeffekt ein kleinerer Dosisbereich zugänglich, doch ist dabei keine genaue Kalibration möglich (siehe Kapitel 6.2.2).

Eine Ausweichmöglichkeit bietet ein natürliches Strahlungsfeld bekannter Zusammensetzung. Eine Dosis wird appliziert, indem das Dosimeter in einem Sediment vergraben wird, dessen Dosisleistung möglichst gut bekannt ist. Das Energie- und Strahlungsspektrum, mit dem die Wachstumskurve aufgebaut wurde, ist dann ähnlich dem, das eine zu messende Dosis verursacht hat. Dadurch werden zusätzlich systematische Fehler gering gehalten, die bei der Verwendung künstlicher Quellen auftreten. Korrekturfaktoren aufgrund der unterschiedlichen Lumineszenzeffizienz verschiedener Strahlungsenergien, die meist nur ungenau bekannt sind, müssen nicht berücksichtigt werden.

Ein naheliegendes Material für diese Anwendung ist Nussi. Der Löß stammt aus Nußloch bei Heidelberg, wo man ihn in bis zu mehreren Metern mächtigen Lagen findet. Eine solches Lößprofil ist offen zugänglich und es kann bei der Bestrahlung als unendliches homogenes Medium betrachtet werden. Da der Löß außerdem bei der Gammaskopimetrie als Referenzmaterial verwendet

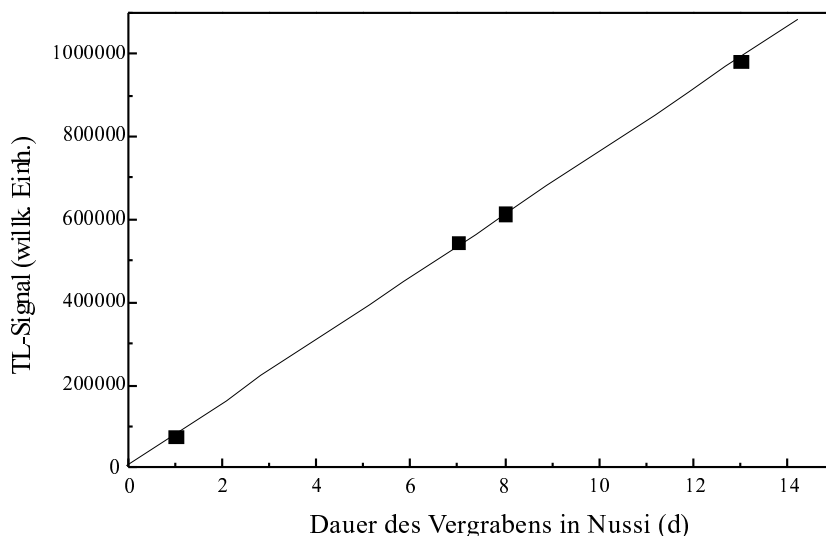


Abbildung 7.1: *TL-Signale einer einzelnen  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Tablette, die für unterschiedliche Zeiten in Nussi vergraben wurde. Die Gerade kennzeichnet den linearen Fit der Daten.*

wird, ist die Dosisleistung ausreichend gut bekannt (siehe Anhang A).

Für erste Versuche im Labor wurde ein Eimer mit Durchmesser 40 cm und Höhe 60 cm mit Nussi gefüllt. Im Bezug auf die Reichweite von  $\gamma$ -Strahlung steht dadurch zwar nicht das volle relevante Volumen zur Verfügung, doch für Testmessungen wurde die Menge als ausreichend betrachtet. Mehrere Tabletten wurden dann für unterschiedliche Zeiten im Eimer vergraben. Um die Tabletten wiederzufinden, wurden sie in eine dünne Plastikfolie verpackt und an einer langen Schnur befestigt. Durch die Folie wird die  $\alpha$ -Strahlung absorbiert, die anderen Strahlungsarten werden nicht wesentlich geschwächt. Das resultierende TL-Signal wurde mit dem Elsec-Gerät gemessen, da dort keine Quelle eingebaut ist, die das Ergebnis verfälschen könnte.

In Abbildung 7.1 ist die Wachstumskurve einer einzelnen  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Tablette dargestellt, die 1, 7, 8 und 13 Tage lang in Nussi vergraben wurde. Das Signal steigt linear an, der Korrelationskoeffizient des Fits beträgt 0.99978. Die Aufnahme der Kurve dauerte insgesamt 29 Tage. Oft ist es aber nicht möglich so viel Zeit auf eine Messung zu verwenden. Daher ist es wünschenswert eine Wachstumskurve aus mehreren Tabletten aufzubauen. Dabei tritt jedoch das Problem auf, daß die Tabletten unterschiedliche Empfindlichkeiten aufweisen, und deshalb die Wachstumskurven unterschiedliche Steigungen besitzen. Es wurde untersucht, wie dieser Effekt am besten korrigiert werden kann. Dazu wurden 6 verschiedene Tabletten 1 bis 26 Tage in Nussi vergraben. Das jeweilige TL-Signal wurde zum einen auf das Signal nach 13 Tagen normiert (Abbildung 7.2 links) zum anderen auf das Signal, das durch eine 60 s lange Bestrahlung mit einer externen  $^{137}\text{Cs}$ -Quelle aufgebaut wurde (Abbildung 7.2 rechts).

Die Daten sind besser mit dem Fit korreliert, wenn auf das Signal nach 13 Tagen in Nussi normiert wird. Mit ca. 1 Million Zählereignissen ist es, relativ betrachtet, statistisch genauer als das Signal durch die Caesium-Quelle mit 300000 Zählereignissen. Die Quelle besteht aus einem in Plastikfolie eingeschweißten, nahezu punktförmigen Caesium-Präparat. Da die Tabletten von Hand auf die Quelle gelegt werden, liegen sie nicht immer auf derselben Position, was eine unterschiedliche Dosisleistung zur Folge hat. Obwohl die Bestrahlungsdauer von 60 s gestoppt wurde, werden die Dosimeter nicht immer gleich schnell von der Quelle genommen. Bei der

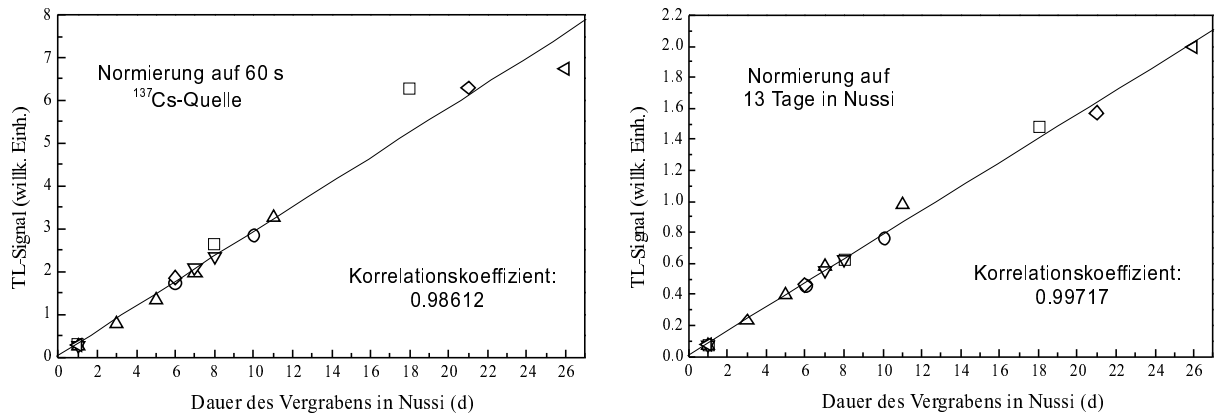


Abbildung 7.2: TL-Signale von 6  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Tabletten, die für unterschiedliche Zeiten in Nussi vergraben wurden. Links: Normierung auf eine 60 s dauernde Bestrahlung mit einer externen  $^{137}\text{Cs}$ -Quelle. Rechts: Normierung auf das Signal nach 13 Tagen in Nussi. Die Geraden kennzeichnen die linearen Fits der Daten. Gleiche Symbole entsprechen gleichen Tabletten.

Tablette mit dem nach links zeigenden Dreieck-Symbol in Abbildung 7.2 wurde eine Verzögerung von 3 bis 5 s geschätzt, was einen Fehler von 5 bis 8 % verursacht. Im linken Teil der Abbildung liegt das Signal nach 26 Tagen deshalb deutlich unter der Geraden, während die Abweichung rechts sehr viel geringer ist. In der Praxis ist es meist nicht möglich alle verwendeten Tabletten zur Normierung mehrere Tage in Nussi zu vergraben. Bei Anwendung der Caesium-Quelle empfiehlt es sich jedoch längere Bestrahlungszeiten zu wählen, um Fehler durch Verzögerungen zu verringern und das Normierungssignal zu erhöhen.

Bei einer externen Bestrahlung ist zudem zu beachten, daß die Strahlung nur von einer Seite auf das Dosimeter wirkt. Nach dem Transport von der Quelle zum Gerät kann nicht immer davon ausgegangen werden, daß auch tatsächlich diese Seite zum Photomultiplier zeigt. Aufgrund der Dicke der Tabletten sind besonders bei  $\beta$ -Bestrahlung Gradienten zu erwarten. Zusätzlich sind die Dosimeter nicht vollständig durchsichtig, so daß das Lumineszenzlicht beim Durchgang durch die Tablette absorbiert wird. Bei gezielten Versuchen konnte jedoch im Rahmen der Meßgenauigkeit kein Unterschied in der Höhe des Signals festgestellt werden, wenn die Tablette nach der Bestrahlung umgedreht wurde.

## 7.2 Testmessungen mit thin layer Dosimetern

### 7.2.1 Künstliche Bestrahlung

Bei der Verwendung von thin layer Dosimetern sollten Temperaturen über  $400\text{ }^\circ\text{C}$  vermieden werden, damit das Aluminiumsubstrat nicht zu schmelzen beginnt (Markey et al. 1995). Um die dosimetrischen Eigenschaften zu überprüfen, wurde mit dem Risø-Gerät eine Wachstumskurve aufgebaut. Anschließend wurde wieder getestet, wie gut sich damit Bestrahlungszeiten reproduzieren lassen.

Die Dosimeter wurden nach einer Bestrahlung bis  $400\text{ }^\circ\text{C}$  erhitzt und das TL-Signal wurde über den Dosimetriepeak integriert. Vor jeder Bestrahlung und Messung wurde zusätzlich ein Korrekturzyklus eingefügt. Dabei wurden die Dosimeter jeweils 100 s lange bestrahlt und das resul-

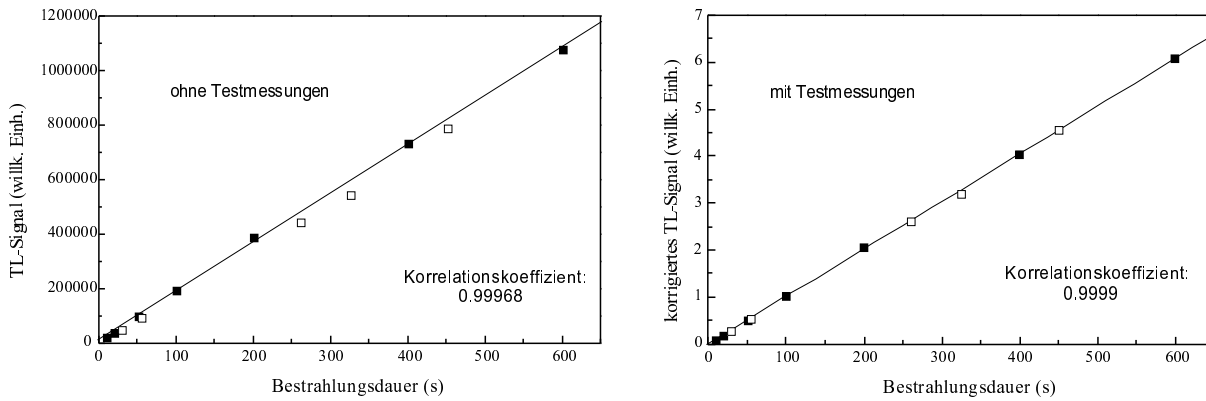


Abbildung 7.3: Mit thin layer Dosimetern gemessene TL-Wachstumskurven ohne (links) und mit (rechts) Korrekturmessungen (schwarze Vierecke). Die Geraden kennzeichnen den linearen Fit an die Daten. Leere Vierecke symbolisieren die Testmessungen zur Reproduzierbarkeit.

tierende TL-Signal wurde bestimmt. Dadurch können evtl. vorhandene Sensitivitätsänderungen festgestellt und korrigiert werden, indem jedes TL-Signal durch das vorangehende Korrektursignal dividiert wird. Nach Aufnahme der Wachstumskurve wurden in gleicher Weise noch mehrere Reproduzierbarkeitsmessungen vorgenommen. Die Messungen wurden ohne und mit Berücksichtigung der Korrekturmessungen ausgewertet. Die Wachstumskurven und Testmessungen sind in Abbildung 7.3 dargestellt. Bereits aus der Graphik ist zu erkennen, daß die Reproduzierbarkeit ohne Berücksichtigung der Korrekturmessungen (links) schlechter ist als mit (rechts), obwohl den Korrelationskoeffizienten zufolge beide Kurven ausreichend gut einer Geraden entsprechen. In Tabelle 7.1 sind die Ergebnisse mit und ohne Korrektur noch einmal explizit aufgelistet. Durch die Korrektur konnten die Fehler stark reduziert werden. Sogar kleine Bestrahlungsdauern können auf 5 % genau ermittelt werden.

wahre Bestrahlungsdauer in s	reproduzierte Bestrahlungsdauer ohne Korrektur in s	Abweichung in %	reproduzierte Bestrahlungsdauer mit Korrektur in s	Abweichung in %
450	434	3.6	446	0.9
55	46.0	16	53.5	2.7
325	297	8.6	315	3.1
30	21.2	29	28.4	5.3
260	240	7.7	258	0.8

Tabelle 7.1: Mit thin layer Dosimetern reproduzierte Bestrahlungsdauern ohne Korrektur (Spalten 2 und 3) und mit Korrektur (Spalten 4 und 5) in der Reihenfolge der Messungen sowie die Abweichung vom tatsächlichen Wert in % .

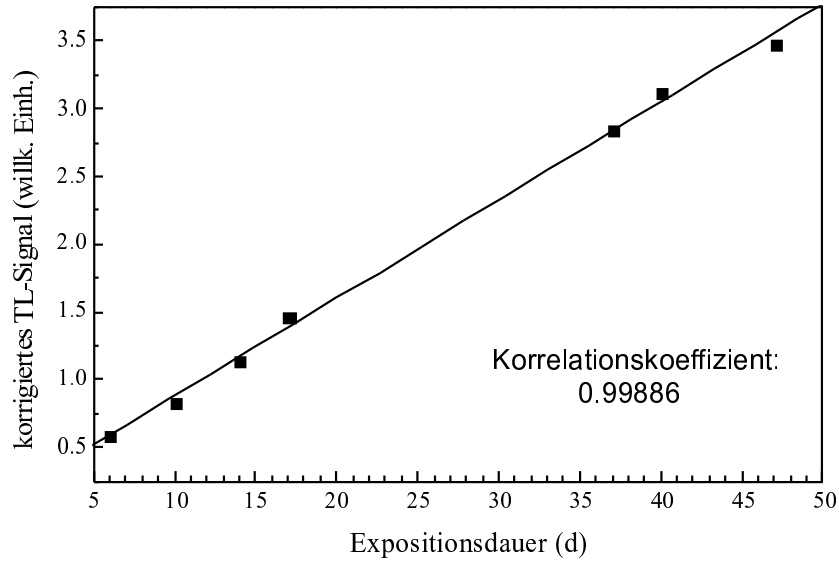


Abbildung 7.4: Mit *thin layer Dosimetern* gemessene TL-Wachstumskurve, wobei die Dosimeter für unterschiedliche Zeiten  $\beta$ -Haltern mit Nussi exponiert waren (schwarze Symbole). Der lineare Fit (Linie) und der Korrelationskoeffizient sind ebenfalls angegeben. Die statistischen Fehler sind kleiner als die eingezeichneten Symbole.

### 7.2.2 Messung einer natürlichen $\beta$ -Dosisleistung

Es wurde nun versucht mittels der *thin layer Dosimeter* eine bekannte Dosisleistung zu rekonstruieren. Dazu wurden Probenhalter für die Beta-Zähler (Durchmesser 2.2 cm, Höhe 5 mm) mit den Referenzmaterialien Nussi, Flossi und Blacky (siehe Anhang A) und außerdem mit reinem Quarz gefüllt, da dieser keine radioaktiven Nuklide enthält und so eine Untergrundmessung bei gleicher Bestrahlungsgeometrie erlaubt. Auf jeden Halter wurde ein Dosimeter gelegt und die Halter wurden mit Hilfe von Keramikschälchen lichtdicht verpackt. Gleichzeitig dienten die Schälchen dazu  $\beta$ -Strahlung von außen abzuschirmen. Für jedes Referenzmaterial wurden die Halter gesondert in einer Schachtel aufbewahrt. Zusätzlich befanden sich in jeder Schachtel zwei Halter mit Quarz für Untergrundmessungen. Die Dosimeter wurden für unterschiedliche Zeiten den Materialien ausgesetzt, und es wurde eine Wachstumskurve aufgenommen. (Elsec-Gerät, Filter 7-59). Die Kurven wurden auf die unterschiedliche Sensitivität der einzelnen Dosimeter korrigiert, indem diesen mit der externen Caesium-Quelle eine Testdosis appliziert und die gemessenen Signale durch das Testsignal geteilt wurden.

Die Kurve für Nussi ist exemplarisch in Abbildung 7.4 dargestellt. Die gemessenen Punkte sind gut mit dem linearen Fit korreliert. Die Wachstumskurve der Untergrund-Dosimeter wurde ebenfalls gemessen. Als Referenzkurve diente die Differenz aus beiden Geraden.

Die einzelnen Meßpunkte der Dosimeter, die Blacky und Flossi exponiert waren, wurden ebenfalls auf Sensitivität und Untergrund korrigiert. Durch einen Vergleich der Signale mit der Referenzkurve (Signal in Abhängigkeit von der Dosis), konnte die absorbierte Dosis, und aus der bekannten Expositionsdauer dann auch die  $\beta$ -Dosisleistung von Blacky und Flossi bestimmt werden. In gleicher Weise wurden die Daten noch einmal ausgewertet, indem anstelle von Nussi die mittels Blacky und Flossi erhaltenen Wachstumskurven als Referenzen verwendet wurden. Die Ergebnisse in Abhängigkeit von der Expositionsdauer sind in Abbildung 7.5 dargestellt.

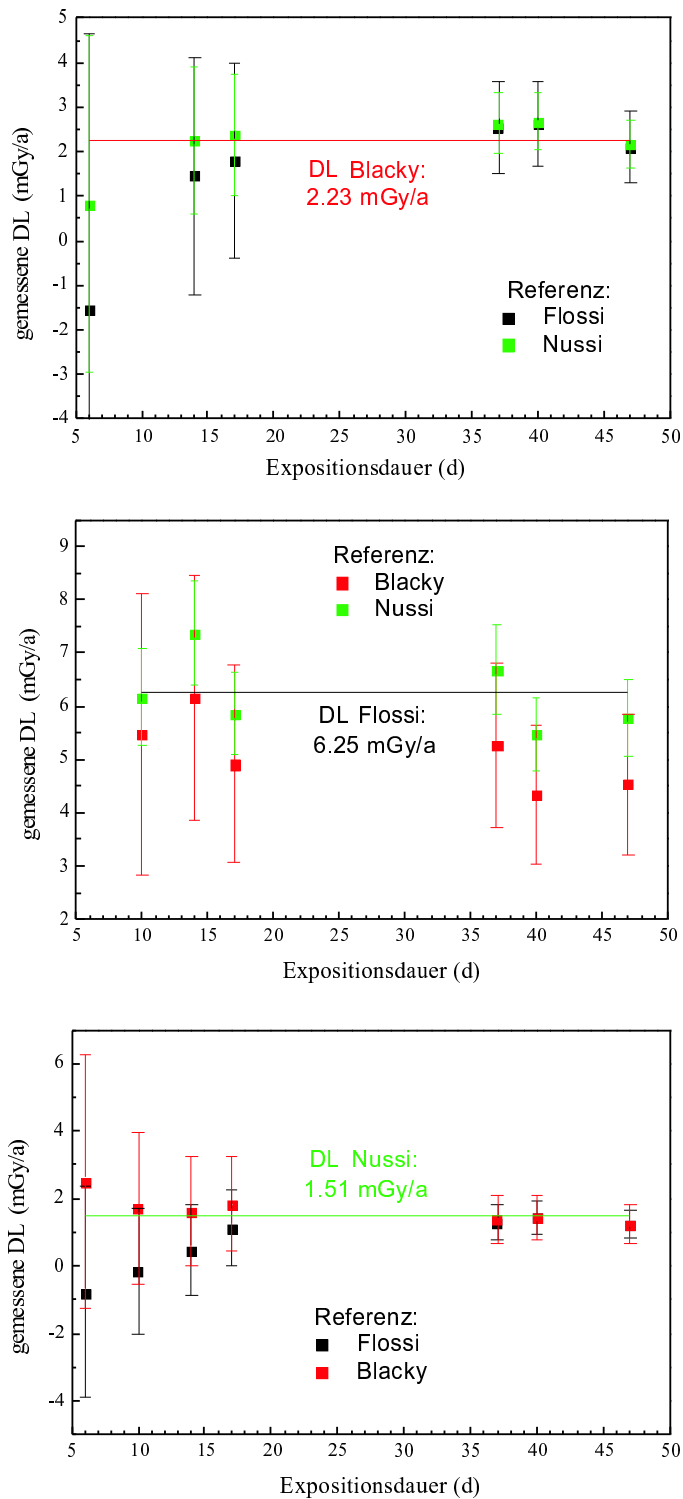


Abbildung 7.5: Mit thin layer Dosimetern bestimmte  $\beta$ -Dosisleistungen in Abhängigkeit von der Expositionsdauer. Die Symbole kennzeichnen die gemessene Dosisleistung mit Fehler. Der erwartete Wert ist jeweils angegeben und durch die Gerade markiert. Unterschiedliche Symbolfarben spiegeln unterschiedliche Referenzgeraden wider. Oben: Bestimmung der Blacky-Dosisleistung anhand der Referenzgeraden von Flossi bzw. Nussi. Mitte: Bestimmung der Flossi-Dosisleistung anhand der Referenzgeraden von Blacky bzw. Nussi. Unten: Bestimmung der Nussi-Dosisleistung anhand der Referenzgeraden von Flossi bzw. Blacky.

Bei der Bestimmung des Gesamtfehlers wurden folgende Einzelfehler berücksichtigt: statistische Fehler der Einzelmessungen (Signal, Testsignal, Untergrundsignal) und Fehler aus den Fits der Wachstumskurven von Referenzmaterial und zugehörigem Untergrund. Durch einen Fehler bei der Messung konnte das Untergrundsignal für die Dosimeter auf Blacky nur ungenau bestimmt werden. Dies spiegelt sich sowohl in dem großen Fehler wider, mit dem die Blacky-Dosisleistung aus den anderen Referenzgeraden bestimmt wurde, als auch in dem großen Fehler beim Vergleich mit der Blacky-Referenzgerade. Deshalb wird auf diese Ergebnisse nicht weiter eingegangen. Aufgrund der hohen Dosisleistung, kann durch den Vergleich mit der Nussi-Referenzgeraden der Wert für Flossi nach 10 Tagen mit einer Genauigkeit von 15 % bestimmt werden. Allerdings wird auch nach 47 Tagen nur eine Genauigkeit von 12 % erreicht. Anders liegt der Sachverhalt, wenn die Nussi-Messungen mit der Flossi-Geraden verglichen werden. Anfangs sind die gemessenen Werte sogar negativ, und selbst nach 47 Tagen beträgt die Genauigkeit nur 28 %. Die Ergebnisse sind aufgrund der hohen Fehler nicht zufriedenstellend. Das gemessene Signal liegt nur wenig über dem Untergrundsignal der Dosimeter auf Quarz. Zudem kann der Achsenabschnitt der Referenzgeraden nur mit hohem Fehler bestimmt werden. So liegt nach 47 Tagen das Nussi-Signal bei  $0.904 \pm 0.075$  (willkürliche Einheiten). Die mittels Flossi bestimmte Referenzgerade wird durch den Abschnitt  $0.12 \pm 0.24$  und die Steigung ( $0.0835 \pm 0.0079$ ) /d beschrieben. Daraus ergibt sich eine Dosisleistung von  $1.40 \pm 0.21$  mGy/a. Dies ist hauptsächlich durch den großen Fehler des Achsenabschnitts begründet, der sich trotz des sehr guten Korrelationskoeffizienten ergibt.

Expositions- dauer in d	reproduzierte Dosisleistung in mGy/a	Fehler in mGy/a	Abweichung in mGy/a	Abweichung in %
DL (Nussi) aus Vergleich mit Flossi; Sollwert 1.51 mGy/a				
10	0.73	0.55	0.78	78
14	0.89	0.32	0.62	41
17	1.67	0.33	0.16	11
37	1.32	0.13	0.19	13
40	1.75	0.15	0.24	16
47	1.42	0.12	0.09	6
DL (Flossi) aus Vergleich mit Nussi; Sollwert 6.25 mGy/a				
10	12.9	9.6	6.65	106
14	10.6	3.7	4.35	70
17	5.6	1.1	0.65	10
37	7.12	0.70	0.87	14
40	5.38	0.45	0.87	14
47	6.63	0.55	0.38	7

Tabelle 7.2: Mit thin layer Dosimetern reproduzierte  $\beta$ -Dosisleistungen. Angegeben sind die Expositionsdauer und die Dosisleistung mit Fehler (aus dem Fehlerfortpflanzungsgesetz), sowie die absolute und relative Abweichung vom erwarteten Wert.

Testweise wurden deshalb die Signale, die nach einer bestimmten Zeit gemessen wurden, direkt verglichen. Die Daten wurden dabei wieder auf Untergrund und Sensitivität der einzelnen Dosimeter korrigiert. Das Ergebnis für unterschiedliche Expositionsdauern ist in Tabelle 7.2

aufgelistet. Nach 47 Tagen liegt die Abweichung vom erwarteten Wert bei 6 bzw. 7 %. Eine Expositionsdauer von 6 Wochen sollte jedoch nicht unterschritten werden.

Wie von Göksu et al. (1999) empfohlen, kann die Genauigkeit verbessert werden, indem der Untergrund durch eine Bleiburg minimiert wird. Zusätzlich verringert sich der statistische Fehler, wenn mehrere Dosimeter auf einen Halter gelegt werden und als Signal der Mittelwert der Messungen verwendet wird. Göksu et al. (1999) erreichen damit eine Genauigkeit von 5 %. Da aber keine Bleiburg und auch nicht ausreichend Dosimeter zur Verfügung standen, konnte dieser Test nicht nachvollzogen werden.

Es stellt sich die Frage, ob ein Einsatz der thin layer Dosimeter zur Bestimmung der  $\beta$ -Dosisleistung notwendig ist, wenn im Labor ein Beta-Zähler zur Verfügung steht. Wenn Referenzmaterial und Probe ähnliche Nuklidgehalte haben, ist die Qualität der Ergebnisse vergleichbar. Zusätzlich nimmt die Zählung weniger Zeit in Anspruch. Während bei der Zählung die Proben direkt nach der Lagerzeit gemessen werden können, ist bei den Dosimetern zusätzlich noch einmal eine Expositionsdauer von 6 Wochen notwendig; auch die Auswertung ist umfangreicher, da zusätzlich die variable Empfindlichkeit der Dosimeter berücksichtigt werden muß.



## Kapitel 8

# Bestimmung der $\beta$ - und $\gamma$ -Dosisleistung im Gelände

Die Bestimmung der  $\alpha$ -Dosisleistung mit Dosimetern ist problematisch: Aufgrund der geringen Reichweite der  $\alpha$ -Strahlung muß die Probe in direkten Kontakt mit den Dosimetern gebracht werden, die als feinkörniges Material vorliegen müssen. Der Einsatz von Dosimetern im Gelände beschränkt sich deshalb auf die Bestimmung der  $\beta$ - und  $\gamma$ -Dosisleistung.

Es soll genau die Dosisleistung gemessen werden, der auch die zu datierende Probe ausgesetzt war. Beim Einbringen der Dosimeter darf das Probenumfeld also kaum verändert werden, gleichzeitig sollte aber auch das Entnehmen einfach und schnell möglich sein. Zusätzlich ist eine Trennung der Beiträge von  $\beta$ - und  $\gamma$ -Dosisleistung wünschenswert. Überlegungen, wie die Forderungen umgesetzt werden können, finden sich im ersten Abschnitt des Kapitels. Ein passendes Gelände für die Testmessungen sollte zum einen ermöglichen, daß ein weiter Bereich an Dosisleistungen untersucht werden kann. Zum anderen sollen die Ergebnisse aber auch mit den Werten der Gammaspktrometrie verglichen werden können. Mit den nach diesen Kriterien ausgewählten Probenlokalitäten beschäftigt sich der zweite Abschnitt. Im letzten Teil werden die mit den Dosimetern gemessenen Ergebnisse vorgestellt und diskutiert.

### 8.1 Vorüberlegungen zur praktischen Vorgehensweise

Allgemeine Ratschläge zur praktischen Handhabung von Dosimetern gibt Aitken (1985). Diese wurden teils übernommen, mußten aber auch dem speziellen Material angepaßt werden.

Aufgrund ihrer Lichtempfindlichkeit mußten die  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Tabletten mit einer dünnen schwarzen Folie umhüllt werden. Dadurch wird gleichzeitig die  $\alpha$ -Strahlung abgeschirmt, während die Schwächung von  $\beta$ - und  $\gamma$ -Strahlung vernachlässigbar ist. Aber auch die Anteile dieser beiden Strahlungen müssen getrennt werden.

Zur Abschirmung der  $\beta$ -Strahlung wurden die Dosimeter in zusätzliche Behälter verpackt. Als Material wurde hochreines Elektrolytkupfer verwendet, um eine Dosis durch radioaktive Verunreinigungen des Behälters zu vermeiden. Die Wandstärke betrug 1 mm, um eine vollständige Absorption der  $\beta$ -Strahlung zu erreichen. Die Abschwächung der  $\gamma$ -Strahlung wurde vernachlässigt.

Wie von Haskell (1983) beschrieben, erfolgt die Bestimmung der  $\beta$ -Dosisleistung für gewöhnlich im Labor, wobei die Dosimeter nur der Strahlung einer geringen Probenmenge ausgesetzt sind (siehe auch Kapitel 7.2.2), und damit der Beitrag der  $\gamma$ -Strahlung nicht berücksichtigt werden

muß. Bei Geländemessungen ist es nicht möglich, die  $\gamma$ -Strahlung zu schwächen, ohne auch die  $\beta$ -Strahlung abzuschirmen. Eine Alternative bietet aber die Tatsache, daß mit den nur in Folie verpackten Tabletten sowohl die  $\beta$ - als auch die  $\gamma$ -Dosisleistung gemessen wird. Wird davon die gemessene  $\gamma$ -Dosisleistung subtrahiert, müßte es möglich sein, die  $\beta$ -Dosisleistung zu bestimmen. Um diese Theorie zu überprüfen wurde deshalb immer ein zusammengehöriges Dosimeterpaar vergraben. Eine Tablette befand sich dabei nur in einer schwarzen Folie, die andere war zusätzlich in Kupfer verpackt.

Zum Einbringen der Dosimeter wurden mit einem Betonbohrer 40 cm tiefe Löcher mit Durchmesser 1.5 cm gebohrt. Ein Tablettenpaar wurde in zwei Löcher im Abstand von ca. 7 cm gesteckt. An den Verpackungen befestigte Fäden ermöglichen ein leichtes Entnehmen.

Die hohe Empfindlichkeit der  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Tabletten führt dazu, daß bereits bei der halbstündigen Fahrt vom Labor zur Probenlokalität und wieder zurück ein meßbares Untergrundsignal aufgebaut wird. Um dieses zu verringern wurden die Dosimeter in mit Blei verstärkten Tüten transportiert; zusätzlich wurde bei jeder Fahrt der Untergrund mit extra Tabletten festgestellt. Zur Kalibration wurden gleichzeitig und in gleicher Weise Dosimeter in Nussi vergraben.

## 8.2 Die Probenlokalitäten

Wie bereits in Kapitel 7.1 beschrieben, sollten die Dosimeter für die Referenzmessungen in Nussi vergraben werden. Das in Nußloch anstehende mehrere Meter hohe Lößprofil bietet ein homogenes Umfeld und die Nuklidgehalte sind ausreichend gut analysiert.

Bei der Auswahl eines Geländes für die Testmessungen mußten verschiedene Punkte in Betracht gezogen werden. Einerseits war festzustellen, ob die mit den Dosimetern bestimmten Dosisleistungen im Rahmen der Fehler mit den erwarteten Werten übereinstimmen. Ein direkter Vergleich war nur mit den Ergebnissen der Gammaspektrometrie möglich. Dabei sollte aber auch gleichzeitig das NaI-Gelände-Spektrometer durch Vergleich mit den Laborgeräten überprüft werden, so daß ein ausreichend großer und homogener Sedimentkörper vorhanden sein mußte.

Dosimeter kommen aber vor allem dann zum Einsatz, wenn eine Probe aus einem inhomogenen Umfeld entnommen wird. Gleichzeitig sollten die Ergebnisse bei den ersten Messungen auch dort überprüfbar sein. Der einfachste Fall einer inhomogenen Umgebung ist die Grenze zwischen zwei unendlich ausgedehnten Schichten; dabei ist auch noch ein einfacher Vergleich mit der Labor-Gammasspektrometrie möglich.

Bei der Suche nach passenden Probenlokalitäten wurde von Manfred Löscher das würmzeitliche Lößprofil im Steinbruch der Heidelberger Zement AG in Nußloch bei Heidelberg vorgeschlagen. Dabei handelt es sich um „eines der am stärksten gegliederten Lößprofile ganz Europas“ (Löscher und Zöller 2001). Ein besonderer Vorteil lag außerdem darin, daß das Lößprofil von Nussi, das für Referenzmessungen benötigt wurde, nur 1 km vom Steinbruch entfernt liegt.

Zusätzlich zur Homogenität des Sedimentkörpers sollte auch eine möglichst große Spanne an Dosisleistungen untersucht werden, insbesondere Strahlungsfelder geringer Intensität. Deshalb wurde außerdem die Düne in Sandhausen bei Heidelberg ausgewählt, da der dort vorhandene Quarzsand eine geringe Dosisleistung erwarten ließ. Da sie bezüglich des Substrataufbaus im betrachteten Bereich homogen war, wird hier keine weitere Beschreibung gegeben. Die Expositionsstelle der Tabletten befand sich 60 cm unter der Geländeoberkante. Alle Probenlokalitäten sind in Abbildung 8.1 durch ein rotes Kreuz markiert.



Abbildung 8.1: Lage der Probenlokalitäten

Im Nußlocher Steinbruch wurden die Dosimeter an vier verschiedenen Stellen, im folgenden als „Profile“ bezeichnet, vergraben.

Als Beispiel eines homogenen Umfeldes diente Profil 2 (siehe Abbildung 8.2). Bei der oberen Schicht handelt es sich um ein Bodensediment, das aufgrund menschlicher Bewirtschaftung des Hügels erodiert und am Hangfußbereich abgelagert wurde (Kolluvium). Davon deutlich abgegrenzt liegt darunter eine Lage Löß (eiszeitlicher feinkörniger Staub, der durch Wind transportiert und abgelagert wurde). Die Dosimeter befanden sich 30 cm oberhalb bzw. 40 cm unterhalb sowie direkt an der Grenzschrift von Kolluvium und Löß. In den ersten beiden Fällen sollte sich nur die Strahlung aus dem jeweiligen Sedimentkörper auswirken. Für die Dosisleistung direkt an der Grenze („P2 Übergang“) wird der Mittelwert aus den Dosisleistungen von Kolluvium und Löß erwartet.

Ein weiteres Beispiel für ein homogenes Umfeld ist das in Abbildung 8.3 dargestellte Profil 3 mit gleichem Aufbau. Statt des Kolluviums wird die obere Lage von einer Sandschicht gebildet. Die Dosimeter befanden sich 50 cm oberhalb bzw. 30 cm unterhalb und direkt an der Grenzschrift.

Einen Schritt zur Inhomogenität stellt Profil 4 dar. Auch hier handelt es sich um ein System aus zwei Schichten. Doch ist der obere rote Lehm mit Bohnerz durchsetzt. Aufgrund der hohen Ordnungszahl schwächt das Eisen die Strahlung stark ab, ist aber selbst nicht radioaktiv. Der für die Auswertung verwendete Massenschwächungskoeffizient bei der Labor-Gammaspektrometrie ist damit zu gering. Gleichzeitig ist es schwierig, den Probenbehälter mit Rotlehm und Bohnerz im richtigen Verhältnis zu füllen. Bei den mit den Dosimetern im Rotlehm gemessenen Werten waren also Abweichungen zu erwarten. Der untere gelbe Lehm enthält Kies und Kalkausscheidungen, von denen eine ähnliche Auswirkung erwartet wurde. Auch in diesem Profil wurden Dosimeter an der Grenzschrift vergraben („P4 Übergang“).

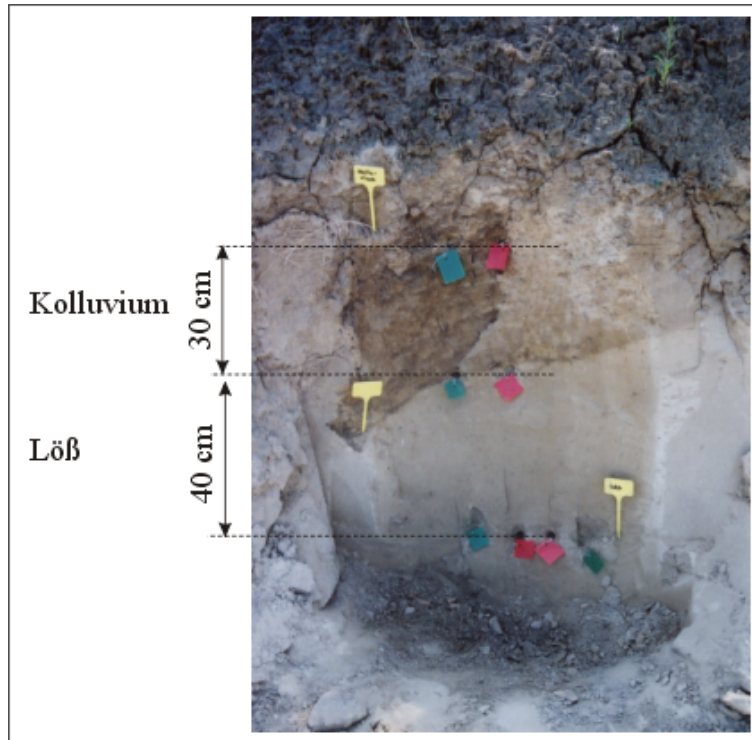


Abbildung 8.2: Profil 2 im Nußlocher Steinbruch. Die Bohrlöcher für die Dosimeter sind an den roten und grünen Schildern zu erkennen.

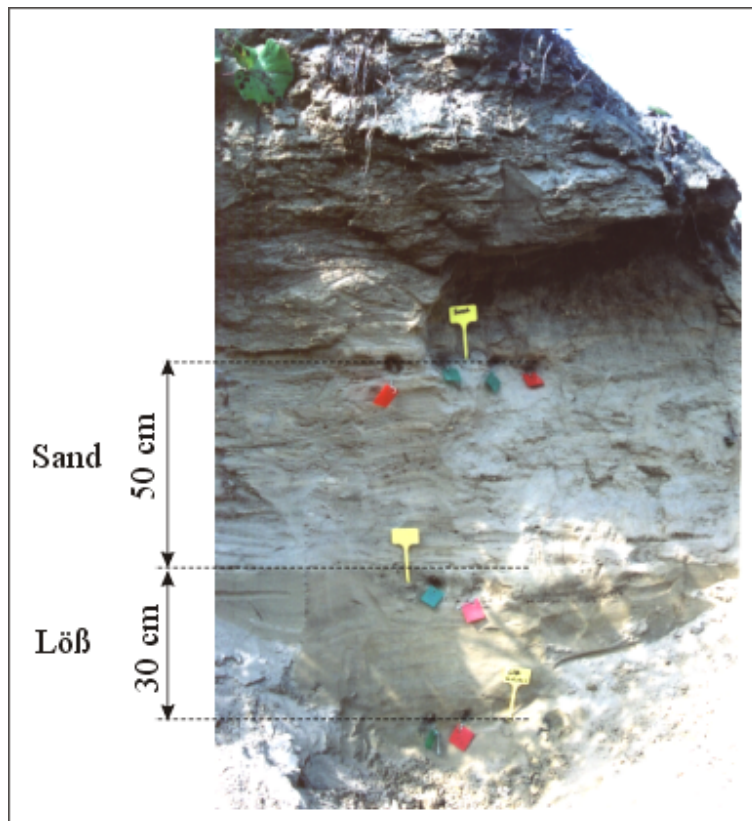


Abbildung 8.3: Profil 3 im Nußlocher Steinbruch. Die Bohrlöcher für die Dosimeter sind an den roten und grünen Schildern zu erkennen.



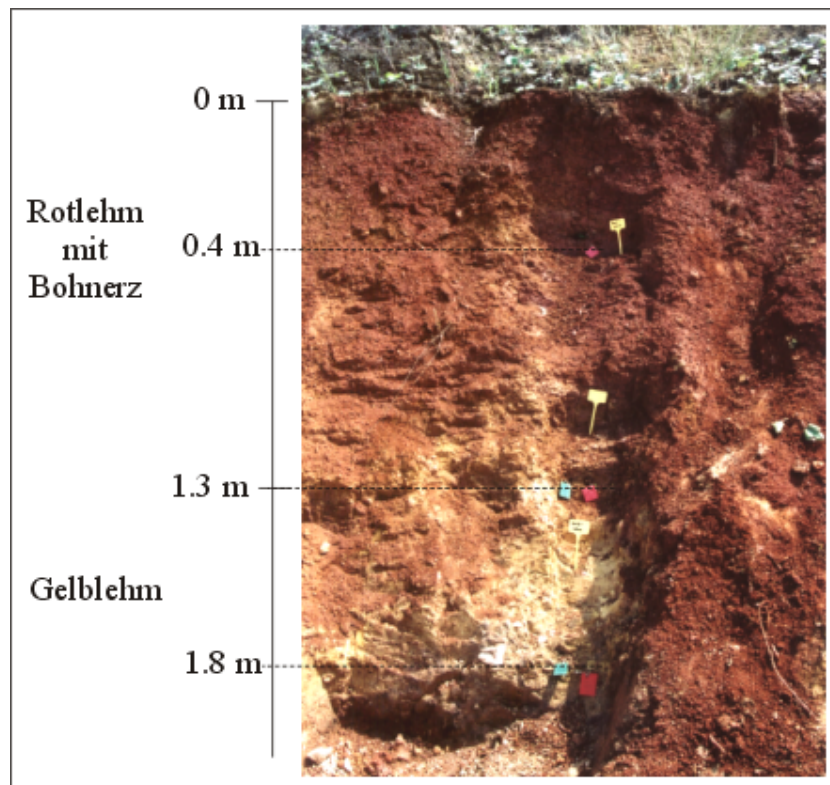


Abbildung 8.4: Profil 4 im Nußlocher Steinbruch. Die Bohrlöcher für die Dosimeter sind an den roten und grünen Schildern zu erkennen.

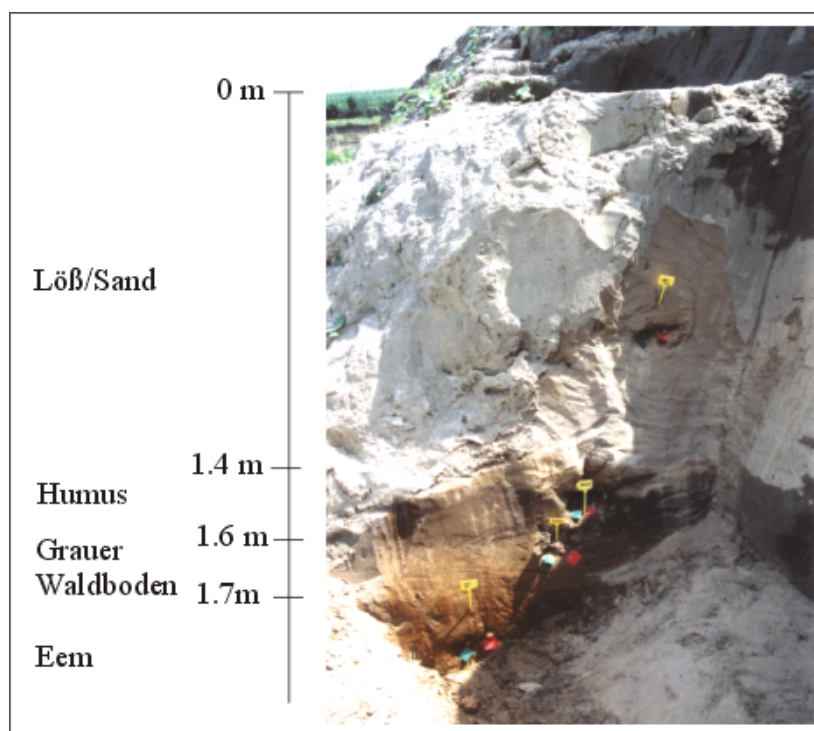


Abbildung 8.5: Profil 1 im Nußlocher Steinbruch. Die Bohrlöcher für die Dosimeter sind an den roten und grünen Schildern zu erkennen.

Abbildung 8.5 zeigt Profil 1. Auf eine Sedimentschicht aus einem Löß/Sand Gemisch folgen eine Lage Humus und eine mit grauem Waldboden. Den Abschluß bildet ein Boden aus der letzten Zwischeneiszeit (Eem). Die einzelnen Lagen sind zwar in sich homogen, doch beträgt ihre Dicke teilweise nur 10 bis 20 cm. Dadurch wirkt auf ein Dosimeter die Strahlung mehrerer Schichten, und ein Vergleich ist nur noch mit den Messungen des NaI-Spektrometers möglich.

### 8.3 Vergleichsdaten aus der Gammaskpektrometrie

Die Vergleichswerte für die mit den Dosimetern ermittelten Dosisleistungen wurden mit der Gammaskpektrometrie bestimmt. Gleichzeitig sollte aber auch das NaI-Spektrometer anhand von Labormessungen überprüft werden, wobei Unterschiede in den beiden Verfahren berücksichtigt werden mußten.

Für Messungen mit dem hochauflösenden Ge-Gammaskpektrometer im Labor werden die Proben getrocknet, und es wird jeweils nur eine Teilprobe von 25 bis 30 g untersucht. Im Gelände wird die Spektrometersonde 40 cm tief in das evtl. feuchte Sediment eingebracht und es wird  $\gamma$ -Strahlung aus dem gesamten Umfeld detektiert. Damit werden mit dem NaI-Detektor die mittleren *effektiven* Nuklidgehalte bestimmt, und bei einem Vergleich der Werte muß die Feuchte  $f = \text{Feuchtgewicht}/\text{Trockengewicht}$  berücksichtigt werden. Die  $\gamma$ -Dosisleistung der trockenen Probe wird aus der effektiven Dosisleistung berechnet, wie in Kapitel 3.1.3 beschrieben:

$$\dot{D}_t = \dot{D}_{\text{eff}} \cdot (1 + 1.14 \cdot (f - 1)) .$$

Die gleiche Formel kann statt auf die Dosisleistung auch direkt auf die einzelnen Nuklidgehalte angewandt werden.

Als Referenz für die NaI-Messungen wurde eine einstündige Messung von Nussi in Nußloch verwendet. Die Auswertung der Spektren erfolgte wie in Kapitel 4.2.2 beschrieben. Die Zählereignisse in den Peaks wurden aufsummiert, der Untergrund wurde aus repräsentativen Kanälen davor und dahinter bestimmt. Die Fehler wurden nach dem Gaußschen Fehlerfortpflanzungsgesetz aus den statistischen Unsicherheiten der Signale von Referenz und Probe berechnet. Zusätzlich wurde ein Fehler von 2 % berücksichtigt, falls das Lößprofil in den Nuklidgehalten nicht homogen ist.

Die Ergebnisse für die einzelnen Probenlokalitäten bezogen auf die *trockenen* Proben sind in Tabelle 8.1 aufgelistet. Im Fall von leeren Feldern liegen keine Messungen vor. Die Feuchten  $f$  wurden bestimmt, indem ca. 200 g Probenmaterial vor und nach dem Trocknen gewogen wurden. Bei Profil 1 Grauer Waldboden, Profil 2 Kolluvium und beim Profil 4 waren leichte Ungleichgewichte vorhanden, die in die Berechnung der Dosisleistung einbezogen wurden. Der angegebene Urangehalt entspricht den aus den  $^{214}\text{Pb}$  und  $^{214}\text{Bi}$  Linien bestimmten Gehalten.

Die Gehalte an Uran und Kalium stimmen in den Fehlergrenzen überein, während die Thoriumgehalte bei den Geländemessungen zu niedrig liegen. Da es sich dabei aber nahezu in allen Fällen um einen Faktor 1.2 handelt, liegt eventuell ein Fehler bei der Referenzmessung vor. Möglich sind eine größere Variation im Thoriumgehalt im Profil oder eine ungenaue Auswertung. Dadurch kommt es auch, je nach relativem Anteil an Thorium, zu einer Unterschätzung der  $\gamma$ -Dosisleistung.

Im Hinblick auf die einzelnen Profile zeigt sich meist das zu erwartende Verhalten. In der homogenen Umgebung Löß/Sand aus Profil 1 und in Profil 2 stimmen die Werte gut überein. Die Abweichung im Urangehalt beim Kolluvium läßt sich vermutlich durch die Inhomogenität in

Proben-lokalität	Feuchte f	Thorium-Gehalt in $\mu\text{g/g}$		Uran-Gehalt in $\mu\text{g/g}$		Kalium-Gehalt in %		$D_\gamma$ in mGy/a	
		Ge	NaI	Ge	NaI	Ge	NaI	Ge	NaI
Profil 1									
Löß/Sand	1.08	5.29 ± 0.13	4.63 ± 0.12	1.665 ± 0.052	1.697 ± 0.070	1.214 ± 0.041	1.355 ± 0.058	0.735 ± 0.013	0.741 ± 0.017
Humus	1.15	11.31 ± 0.23	8.87 ± 0.22	3.333 ± 0.093	2.836 ± 0.115	1.465 ± 0.056	1.465 ± 0.063	1.271 ± 0.020	1.099 ± 0.023
Grauer W.	1.15	10.84 ± 0.21	8.81 ± 0.22	3.298 ± 0.087	2.853 ± 0.116	1.482 ± 0.051	1.465 ± 0.063	1.249 ± 0.019	1.098 ± 0.023
Eem	1.23	13.36 ± 0.27		3.55 ± 0.097		1.565 ± 0.06		1.417 ± 0.022	
Profil 2									
Kolluvium	1.17	11.7 ± 0.26	10.01 ± 0.25	4.24 ± 0.11	3.536 ± 0.144	1.592 ± 0.062	1.636 ± 0.070	1.423 ± 0.023	1.273 ± 0.026
Übergang	1.10	8.1 ± 0.19	6.89 ± 0.17	3.086 ± 0.085	3.152 ± 0.128	1.188 ± 0.047	1.202 ± 0.051	1.023 ± 0.017	0.976 ± 0.021
Löß	1.11	8.26 ± 0.2	6.65 ± 0.17	3.108 ± 0.083	2.921 ± 0.119	1.178 ± 0.049	1.182 ± 0.050	1.031 ± 0.018	0.934 ± 0.020
Profil 3									
Sand	1.05		10.20 ± 0.26		4.329 ± 0.176		1.249 ± 0.053		1.278 ± 0.027
Übergang	1.18		7.51 ± 0.19		3.236 ± 0.132		1.312 ± 0.056		1.042 ± 0.022
Löß	1.18		6.69 ± 0.17		3.108 ± 0.127		1.186 ± 0.051		0.958 ± 0.021
Profil 4									
Rotlehm	1.19	10.87 ± 0.22		5.2 ± 0.12		0.687 ± 0.037		1.272 ± 0.019	
Übergang	1.27	9.17 ± 0.24	7.89 ± 0.20	5.07 ± 0.13	4.752 ± 0.192	0.856 ± 0.044	1.109 ± 0.047	1.217 ± 0.021	1.182 ± 0.026
Gelblehm	1.33	7.41 ± 0.17	7.79 ± 0.20	3.388 ± 0.089	4.045 ± 0.164	0.547 ± 0.033	1.202 ± 0.051	0.825 ± 0.015	1.120 ± 0.024
Sandhausen									
Düne	1.03	2.82 ± 0.11	2.44 ± 0.07	1.063 ± 0.046	0.786 ± 0.035	1.471 ± 0.048	1.510 ± 0.064	0.612 ± 0.014	0.572 ± 0.016

Tabelle 8.1: Vergleich der Ergebnisse von Gelände- und Labor-Gammaskpektrometrie. - Angegeben sind die Feuchte f (Feuchtgewicht/Trockengewicht), die Nuklidgehalte und die Dosisleistung bezogen auf die **trockenen** Proben mit den jeweiligen Fehlern. (Ge: Messung mit Germanium-Spektrometer, NaI: Geländemessung mit NaI-Spektrometer).

der Sedimentstruktur erklären, die auch in Abbildung 8.2 zu erkennen ist. Der Unterschied im Urangehalt bei der Düne wurde vermutlich durch eine zu geringe Meßdauer verursacht, obwohl wegen der erwarteten geringen Dosisleistung bereits 90 min statt wie sonst 60 min gemessen wurde.

Erwartungsgemäß liegen in den Profilen 2 und 3 beim NaI die Werte im Übergangsbereich zwischen den Werten der darüber und darunter liegenden Schichten. Beim Ge-Spektrometer sind die Werte für Übergang und Löß gleich. Die Probe für die Messung war offensichtlich trotz des Versuchs nicht zu gleichen Teilen aus Kolluvium und Löß gemischt. Bei den Geländemessungen in Profil 1 Humus und Grauer Waldboden liegen die Ergebnisse bei den NaI-Messungen unter den Werten der Ge-Spektrometrie. Da die Schichten nur einige Zentimeter dick sind, wird ein Einfluß durch die niedrigere Dosisleistung im Löß/Sand bemerkbar.

Bei Profil 4 schließlich sind starke Abweichungen vorhanden. Da die Schichtstruktur durch das Bohnerz und die Kieseinschlüsse stark inhomogen ist, kann davon ausgegangen werden, daß die für die Labormessungen verwendeten Teilproben nicht mehr repräsentativ sind. Hier können jedoch die Werte aus den Geländemessungen als vertrauenswürdig betrachtet werden.

Die gute Übereinstimmung in den Kalium- und Uranwerten spricht für eine Anwendung des Spektrometers in inhomogenen Strukturen. Für Datierungsanwendungen sollten sowohl die Referenzmessung als auch die Auswertung des Thorium-Peaks noch einmal überprüft werden.

## 8.4 Ergebnisse der $\gamma$ -Dosisleistungsbestimmung

Zur Bestimmung der  $\gamma$ -Dosisleistung wurden die in Kupfer verpackten Tabletten in die Sedimentschichten eingebracht. Das resultierende TL-Signal wurde gemessen und auf Untergrund und Empfindlichkeit korrigiert. Gleichzeitig wurden mehrere Tabletten unterschiedlich lange in Nussi vergraben. Aus den resultierenden Signalen wurde durch einen linearen Fit und mit der bekannten  $\gamma$ -Dosisleistung von Nussi eine Wachstumskurve bestimmt, die als Referenzkurve diente. Die TL-Signale wurden mit der Wachstumskurve verglichen und so die gemessenen Dosisleistungen ermittelt. Die angegebenen Fehler beinhalten die Fehler von Signal, Untergrund und Empfindlichkeitskorrektur, sowie die Fehler für Achsenabschnitt und Steigung aus dem linearen Fit. Die Tabletten wurden von 2 bis 24 Tagen vergraben, um festzustellen welche Expositionsdauern für einen routinemäßigen Einsatz zu empfehlen sind.

Bei einem Vergleich der Ergebnisse mit der Gammaskpektrometrie ist wieder zu beachten, daß mit den Dosimetern die mittlere *effektive* Dosisleistung bestimmt wird. Deshalb wurden nun auch die Ergebnisse aus den Labormessungen auf effektive Werte umgerechnet. Für Nussi wurde  $f = 1.041$  verwendet.

In Tabelle 8.2 sind die Ergebnisse für die Profile 2 und 3 und für die Düne in Sandhausen aufgelistet, die als Beispiele für homogene Umfelder dienen sollten. In allen Fällen stimmen die Ergebnisse innerhalb der Fehlergrenzen mit den erwarteten Werten überein. In den Übergangsbereichen liegen die Dosisleistungen wie erwartet zwischen denen der angrenzenden Schichten.



Proben- lokalität	Germanium- Spektrometer	NaI- Spektrometer	t in d	$\alpha$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :C Tabletten
Profil 2				
Kolluvium	$1.191 \pm 0.019$	$1.066 \pm 0.022$	14	$1.020 \pm 0.069$
			7	$1.217 \pm 0.083$
			2	$1.173 \pm 0.080$
Übergang	$0.914 \pm 0.016$	$0.872 \pm 0.019$	14	$0.991 \pm 0.067$
			7	$0.949 \pm 0.065$
			2	$0.943 \pm 0.064$
Löß	$0.913 \pm 0.016$	$0.827 \pm 0.018$	24	$0.831 \pm 0.057$
			14	$0.886 \pm 0.060$
			8	$0.846 \pm 0.058$
			2	$0.905 \pm 0.062$
Profil 3				
Sand		$1.206 \pm 0.025$	23	$1.202 \pm 0.082$
			14	$1.227 \pm 0.084$
			7	$1.203 \pm 0.082$
			2	$1.256 \pm 0.086$
Übergang		$0.865 \pm 0.018$	14	$0.845 \pm 0.058$
			7	$0.961 \pm 0.065$
			2	$0.698 \pm 0.048$
Löß		$0.795 \pm 0.017$	7	$0.849 \pm 0.058$
			2	$0.628 \pm 0.043$
Sandhausen				
Düne	$0.592 \pm 0.013$	$0.554 \pm 0.016$	14	$0.582 \pm 0.040$
			7	$0.562 \pm 0.038$
			3	$0.607 \pm 0.042$

Tabelle 8.2: Vergleich der mit den Gammaskpektrometern und den Dosimetern bestimmten  $\gamma$ -Dosisleistung für Profil 2, Profil 3 und den Dünensand. Aufgelistet ist jeweils die **effektive**  $\gamma$ -Dosisleistung in mGy/a. Bei den Dosimetern ist zusätzlich die Expositionsdauer  $t$  in Tagen angegeben.

Bis auf zwei Ausnahmen stimmen die Ergebnisse für alle Expositionsdauern von 2 bis 24 Tagen zumindest im  $2\sigma$ -Fehlerbereich überein. Dies gilt sogar für die geringen Dosisleistungen des Dünensandes. Nur bei Profil 3 Übergang und Löß weichen die Ergebnisse nach 2 Tagen ab.

Die angegebenen Fehler liegen im Bereich von 7 % und sind damit wesentlich höher als bei der Gammaskpektrometrie. Die Unsicherheiten wurden vor allem durch die Ungenauigkeit der Referenzgerade bedingt. Es muß berücksichtigt werden, daß alle Meßpunkte, sowohl für die Referenzgerade als auch für die einzelnen Lokalitäten, mit jeweils einer einzigen Tablette bestimmt wurden. Durch Verwendung mehrerer Dosimeter kann die Genauigkeit erhöht bzw. der Fehler verringert werden. Möglicherweise können dann auch bereits nach 2 Tagen Expositionsdauer verläßliche Ergebnisse erzielt werden.

Proben- lokalität	Germanium- Spektrometer	NaI- Spektrometer	t in d	$\alpha$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :C Tabletten
Profil 4				
Rotlehm	$1.048 \pm 0.016$		14	$1.068 \pm 0.073$
			7	$1.011 \pm 0.069$
			3	$0.898 \pm 0.061$
Übergang	$0.932 \pm 0.016$	$0.905 \pm 0.020$	14	$1.090 \pm 0.074$
			7	$0.965 \pm 0.066$
			4	$0.956 \pm 0.065$
Gelblehm	$0.602 \pm 0.011$	$0.817 \pm 0.018$	14	$0.991 \pm 0.067$
			7	$1.022 \pm 0.070$
			3	$0.949 \pm 0.065$
Profil 1				
Löß/Sand	$0.673 \pm 0.012$	$0.679 \pm 0.016$	14	$0.688 \pm 0.047$
			7	$0.651 \pm 0.044$
			3	$0.760 \pm 0.052$
Humus	$1.084 \pm 0.017$	$0.937 \pm 0.019$	14	$1.062 \pm 0.072$
			7	$1.030 \pm 0.070$
			4	$1.103 \pm 0.075$
Grauer W.	$1.064 \pm 0.016$	$0.935 \pm 0.019$	11	$1.053 \pm 0.072$
			7	$1.148 \pm 0.078$
			4	$1.064 \pm 0.073$
Eem	$1.124 \pm 0.018$		14	$1.154 \pm 0.079$
			7	$1.201 \pm 0.082$
			2	$0.925 \pm 0.063$

Tabelle 8.3: Vergleich der mit den Gammaskpektrometern und den Dosimetern bestimmten  $\gamma$ -Dosisleistung für Profil 4 und Profil 1. Aufgelistet ist jeweils die **effektive**  $\gamma$ -Dosisleistung in mGy/a. Bei den Dosimetern ist zusätzlich die Expositionsdauer  $t$  in Tagen angegeben.

Die Ergebnisse für die Profile 4 und 1 finden sich in Tabelle 8.3. Die Werte für unterschiedliche Expositionsdauern sind zumindest wieder im  $2\sigma$ -Fehlerbereich gleich. Bei einem Vergleich mit der Gammaskpektrometrie zeigen sich bedingt durch den hohen Fehler Übereinstimmungen sowohl mit den Labor- als auch mit den Geländemessungen, obwohl diese zum Teil untereinander signifikant verschieden sind (Profil 1 Humus und Grauer Waldboden). Bei Profil 4 Gelblehm allerdings ist zu erkennen, daß die Dosimetermessungen näher an den NaI-Messungen liegen. Die immer noch vorhandene Abweichung ist auf die bereits erwähnte Unterschätzung des Thoriumgehalts zurückzuführen.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, daß in einer homogenen Probenumgebung die Labor-Gammaskpektrometrie genauere Ergebnisse für die  $\gamma$ -Dosisleistung liefert. Der hohe Fehler der mit den Dosimetern gemessenen Werte kann aber vermutlich noch bedeutend verringert werden, wenn einzelne Meßergebnisse mit mehreren Dosimetern ermittelt werden. In einer inhomogenen Umgebung jedoch sind die mit den  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C-Dosimetern gemessenen  $\gamma$ -Dosisleistungen trotz der hohen Fehler vertrauenswürdiger. Zwar sind die Unsicherheiten bei der Gelände-

Gammaspektrometrie auch hier nominell geringer, doch sind die tatsächlichen Werte durch den Fehler im Thorium-Gehalt verfälscht.

Bei der Verwendung von Dosimetern ist allgemein zu berücksichtigen, daß nur die momentane, durch die Sedimentfeuchte beeinflusste, effektive Dosisleistung, nicht aber radioaktive Ungleichgewichte festgestellt werden können. Eine Korrektur bezüglich der Feuchte des Sediments ist aber möglich und zusätzlich durchgeführte Gammaspektrometriemessungen können Hinweise auf eventuell vorhandene Ungleichgewichte geben.

Die kosmische Dosisleistung wurde, wie es auch sonst bei der Verwendung von Dosimetern durchaus üblich ist, bei der hier dargestellten Auswertung nicht berücksichtigt. Das von P. Karelin entwickelte Programm basiert darauf, daß die Strahlung nur von oben auf eine Probe wirkt. Da bei den Profilen die Einstrahlung von oben und gleichzeitig von der Seite erfolgen kann, ist eine einfache Berechnung nicht mehr möglich. Pro behalber wurde die kosmische Dosisleistung als additive Konstante von 0.2 mGy/a in die Auswertung einbezogen<sup>1</sup>. Im Rahmen der Meßgenauigkeit ergaben sich keine signifikant anderen Ergebnisse, so daß auf eine genauere Betrachtung verzichtet wurde.

## 8.5 Ergebnisse der $\beta$ -Dosisleistungsbestimmung

### Summe aus $\beta$ - und $\gamma$ -Dosisleistung

Mit den Tabletten, die nur in Folie verpackt waren, wurde die Summe aus  $\beta$ - und  $\gamma$ -Dosisleistung gemessen. Die Auswertung erfolgte völlig analog zu der im vorangehenden Kapitel beschriebenen Weise.

Die Ergebnisse für die als homogen betrachteten Umgebungen sind in Tabelle 8.4 aufgelistet. Unabhängig von der Expositionsdauer stimmen fast alle Ergebnisse im  $2\sigma$ -Fehlerbereich überein. Doch auch hier sind die Fehler der mit den Dosimetern ermittelten Werte (ca. 5 %) höher als bei der Gammaspektrometrie.

Im Bezug auf die Expositionsdauer liegt der Fall bei den inhomogenen Profilen ähnlich (Tabelle 8.5). Doch ist hier deutlich ein Unterschied zu erkennen, ob die Schichtstruktur in sich homogen ist oder nicht. Bei Profil 1 handelt es sich um dünne, aber homogene Schichten. Bei den Ge-Spektrometermessungen wird aus der Probe die  $\beta$ -Dosisleistung der einzelnen Schicht bestimmt. Bei den NaI-Messungen wird über die mittleren Nuklidgehalte des gesamten Umfeldes auch auf eine mittlere  $\beta$ -Dosisleistung geschlossen. Bei den Dosimetern wird ebenfalls eine mittlere  $\gamma$ -Dosisleistung gemessen, aber die im Vergleich hierzu größere  $\beta$ -Dosisleistung entspricht dem Wert am Ort des Dosimeters. Dadurch sind die Ergebnisse denen der Labormessungen ähnlicher, auch wenn kein signifikanter Unterschied zu den NaI-Messungen besteht.

Bei Profil 4 sind die Schichten in sich inhomogen. Sowohl die mit dem Ge-Spektrometer gemessene  $\gamma$ -Dosisleistung als auch die  $\beta$ -Dosisleistung entsprechen nur lokalen Werten, die zudem stark variieren können. Mit dem Gelände-Spektrometer werden wieder nur mittlere Werte bestimmt. Besonders bei den Messungen im Gelblehm sind die Ergebnisse der Dosimeter deshalb denen des NaI-Spektrometers ähnlicher, weichen aber dennoch aufgrund der lokalen Variation der  $\beta$ -Dosisleistung signifikant ab.

---

<sup>1</sup>Geographische Lage von Nußloch:  $\Phi = 49.17^\circ$ ,  $L = 8.42^\circ$ , Höhe = 200 m; Dichte des Sediments  $\rho = 2 \text{ g/cm}^3$ ; für die Überdeckung wurde 40 cm angenommen, da diese der Tiefe der Dosimeter im Profil und dem größten wahrscheinlichen Beitrag durch die kosmische Dosisleistung entspricht

Proben- lokalität	Germanium- Spektrometer	NaI- Spektrometer	t in d	$\alpha$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :C Tabletten
Profil 2				
Kolluvium	$2.941 \pm 0.054$	$2.824 \pm 0.055$	14	$3.25 \pm 0.16$
			7	$3.19 \pm 0.16$
			2	$2.97 \pm 0.15$
Übergang	$2.349 \pm 0.039$	$2.311 \pm 0.045$	14	$2.53 \pm 0.13$
			7	$2.62 \pm 0.13$
			2	$2.63 \pm 0.13$
Löß	$2.335 \pm 0.040$	$2.205 \pm 0.043$	24	$2.34 \pm 0.12$
			14	$2.78 \pm 0.14$
			8	$2.38 \pm 0.12$
			2	$2.50 \pm 0.13$
Profil 3				
Sand		$3.009 \pm 0.054$	23	$2.72 \pm 0.14$
			14	$3.01 \pm 0.15$
			7	$3.50 \pm 0.18$
			2	$3.02 \pm 0.15$
Übergang		$2.300 \pm 0.045$	14	$2.30 \pm 0.12$
			7	$2.43 \pm 0.12$
			2	$2.07 \pm 0.11$
Löß		$2.113 \pm 0.041$	7	$2.32 \pm 0.12$
			2	$1.92 \pm 0.10$
Sandhausen				
Düne	$1.953 \pm 0.040$	$1.900 \pm 0.053$	14	$1.96 \pm 0.10$
			7	$1.74 \pm 0.09$
			3	$2.19 \pm 0.11$

Tabelle 8.4: Vergleich der mit den Gammaskpektrometern und den Dosimetern bestimmten Summe aus  $\beta$ - und  $\gamma$ -Dosisleistung für Profil 2, Profil 3 und den Dünensand. Aufgelistet ist jeweils die **effektive** Dosisleistung in mGy/a. Bei den Dosimetern ist zusätzlich die Expositionsdauer  $t$  in Tagen angegeben.

Proben- lokalität	Germanium- Spektrometer	NaI- Spektrometer	t in d	$\alpha$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :C Tabletten
Profil 4				
Rotlehm	$2.350 \pm 0.033$		14	$2.61 \pm 0.13$
			7	$2.56 \pm 0.13$
			3	$2.46 \pm 0.12$
Übergang	$2.187 \pm 0.035$	$2.280 \pm 0.042$	14	$2.48 \pm 0.12$
			7	$2.57 \pm 0.13$
			4	$2.49 \pm 0.13$
Gelblehm	$1.387 \pm 0.032$	$2.106 \pm 0.039$	14	$2.62 \pm 0.13$
			7	$2.66 \pm 0.13$
			3	$2.73 \pm 0.14$
Profil 1				
Löß/Sand	$1.908 \pm 0.033$	$2.015 \pm 0.046$	7	$1.88 \pm 0.09$
			3	$2.26 \pm 0.11$
Humus	$2.740 \pm 0.043$	$2.498 \pm 0.049$	14	$2.73 \pm 0.14$
			7	$2.59 \pm 0.13$
			4	$2.59 \pm 0.13$
Grauer W.	$2.714 \pm 0.040$	$2.495 \pm 0.049$	11	$2.71 \pm 0.14$
			7	$2.83 \pm 0.14$
			4	$2.88 \pm 0.15$
Eem	$2.785 \pm 0.043$		14	$2.78 \pm 0.14$
			7	$3.11 \pm 0.16$
			2	$3.32 \pm 0.17$

Tabelle 8.5: Vergleich der mit den Gammaskpektrometern und den Dosimetern bestimmten Summe aus  $\beta$ - und  $\gamma$ -Dosisleistung für Profil 4 und Profil 1. Aufgelistet ist jeweils die **effektive** Dosisleistung in mGy/a. Bei den Dosimetern ist zusätzlich die Expositionsdauer  $t$  in Tagen angegeben.

## $\beta$ -Dosisleistung

Ziel war es, die  $\beta$ -Dosisleistung getrennt von der  $\gamma$ -Dosisleistung zu bestimmen. Es wurde angenommen, daß die mit einem Dosimeterpaar gemessene  $\gamma$ -Dosisleistung identisch ist, und nur die  $\beta$ -Dosisleistung lokal variiert. Letztere wurde deshalb bestimmt, indem von der Summe der Dosisleistungen die jeweilige  $\gamma$ -Dosisleistung subtrahiert wurde. Der Fehler wurde wieder nach dem Fehlerfortpflanzungsgesetz berechnet.

Proben-lokalität	Germanium-Spektrometer	NaI-Spektrometer	t in d	$\alpha$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :C Tabletten
Profil 2				
Kolluvium	$1.750 \pm 0.050$	$1.758 \pm 0.050$	14	$2.23 \pm 0.18$
			7	$1.97 \pm 0.18$
			2	$1.79 \pm 0.17$
Übergang	$1.435 \pm 0.035$	$1.439 \pm 0.041$	14	$1.54 \pm 0.14$
			7	$1.67 \pm 0.15$
			2	$1.69 \pm 0.15$
Löß	$1.422 \pm 0.036$	$1.378 \pm 0.039$	24	$1.51 \pm 0.13$
			14	$1.90 \pm 0.15$
			8	$1.54 \pm 0.13$
			2	$1.60 \pm 0.14$
Profil 3				
Sand		$1.803 \pm 0.047$	23	$1.52 \pm 0.16$
			14	$1.79 \pm 0.17$
			7	$2.30 \pm 0.19$
			2	$1.76 \pm 0.18$
Übergang		$1.435 \pm 0.041$	14	$1.46 \pm 0.13$
			7	$1.47 \pm 0.14$
			2	$1.38 \pm 0.12$
Löß		$1.317 \pm 0.037$	7	$1.47 \pm 0.13$
			2	$1.29 \pm 0.11$
Sandhausen				
Düne	$1.361 \pm 0.038$	$1.347 \pm 0.050$	14	$1.38 \pm 0.11$
			7	$1.18 \pm 0.10$
			3	$1.59 \pm 0.12$

Tabelle 8.6: Vergleich der mit den Gammaskpektrometern und den Dosimetern bestimmten  $\beta$ -Dosisleistung für Profil 2, Profil 3 und den Dünensand. Aufgelistet ist jeweils die effektive Dosisleistung in mGy/a. Bei den Dosimetern ist zusätzlich die Expositionsdauer  $t$  in Tagen angegeben.

Bei den Profilen 2 und 3 sowie dem Dünensand (Tabelle 8.6) stimmen die so bestimmten Ergebnisse gut mit der Gammaskpektrometrie überein. An den Übergängen ist nun auch mit den Dosimetern eine Tendenz zum Wert einer der beiden Schichten erkennbar. Allerdings ist es auch hier wünschenswert den hohen Fehler von 10 % zu verringern.

Proben-lokalität	Germanium-Spektrometer	NaI-Spektrometer	t in d	$\alpha$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :C Tabletten
Profil 4				
Rotlehm	$1.302 \pm 0.028$		14	$1.55 \pm 0.15$
			7	$1.55 \pm 0.15$
			3	$1.56 \pm 0.14$
Übergang	$1.255 \pm 0.030$	$1.376 \pm 0.036$	14	$1.39 \pm 0.15$
			7	$1.60 \pm 0.15$
			4	$1.54 \pm 0.14$
Gelblehm	$0.785 \pm 0.030$	$1.289 \pm 0.035$	14	$1.62 \pm 0.15$
			7	$1.64 \pm 0.15$
			3	$1.78 \pm 0.15$
Profil 1				
Löß/Sand	$1.235 \pm 0.031$	$1.336 \pm 0.044$	7	$1.23 \pm 0.10$
			3	$1.50 \pm 0.13$
Humus	$1.656 \pm 0.040$	$1.561 \pm 0.045$	14	$1.66 \pm 0.16$
			7	$1.56 \pm 0.15$
			4	$1.49 \pm 0.15$
Grauer W.	$1.650 \pm 0.036$	$1.559 \pm 0.045$	11	$1.66 \pm 0.15$
			7	$1.68 \pm 0.16$
			4	$1.82 \pm 0.16$
Eem	$1.661 \pm 0.039$		14	$1.62 \pm 0.16$
			7	$1.91 \pm 0.18$
			2	$2.39 \pm 0.18$

Tabelle 8.7: Vergleich der mit den Gammaskpektrometern und den Dosimetern bestimmten  $\beta$ -Dosisleistung für Profil 4 und Profil 1. Aufgelistet ist jeweils die **effektive** Dosisleistung in mGy/a. Bei den Dosimetern ist zusätzlich die Expositionsdauer  $t$  in Tagen angegeben.

Im Fall der  $\beta$ -Dosisleistungsbestimmung ist Profil 1 ebenfalls als homogen anzusehen. Alle Werte stimmen hier ausgezeichnet mit der Ge-Spektrometrie überein und man könnte sogar vermuten, daß die berechneten Unsicherheiten größer sind als die tatsächlichen Fehler. Die Ergebnisse für Profil 4 können nicht mehr mit den Gammaskpektrometrie-Messungen verglichen werden, doch sind die Werte im Bezug auf die Expositionsauern in sich konsistent.

Zusammenfassend bleibt festzuhalten, daß das hier beschriebene Verfahren dazu geeignet ist, mit den Dosimetern  $\beta$ -Dosisleistungen im Gelände zu messen. Aufgrund der hohen Fehler liefert in einem homogenen Umfeld die hochauflösende Gammaskpektrometrie genauere Werte. Hier spricht für einen Einsatz der Dosimeter, daß Ergebnisse bereits nach wenigen Tagen vorliegen können. Zudem wird erwartet, daß sich die Fehler wie oben beschrieben verringern lassen, eventuell kann die Genauigkeit der Beta-Zählung erreicht werden.

In einem inhomogenen Medium kommen jedoch die Vorteile der Dosimeter zur Geltung. Mit dem NaI-Spektrometer können nur über das gesamte Gamma-Umfeld gemittelte Dosisleistungen bestimmt werden. Auch die mit dem Labor-Spektrometer untersuchten Probenmengen sind größer als der tatsächliche Einflußbereich der  $\beta$ -Strahlung. Mit den Dosimetern wird die  $\beta$ -

Dosisleistung direkt am Ort der Probenentnahme festgestellt. Damit wird es möglich z. B. „ortsaufgelöste“ Messungen entlang eines gewarvten<sup>2</sup> Bohrkernes vorzunehmen.

---

<sup>2</sup>Warven sind Sedimentschichten deren Zusammensetzung und Dicke bei der Ablagerung jahreszeitlich bedingt wurden.



## Kapitel 9

# Die Dosisleistung an einer Gesteinsoberfläche

Wird ein Gebäude errichtet, so sind die Oberflächen der Bausteine dem Licht ausgesetzt und ein vorhandenes Lumineszenzsignal wird gebleicht. Nachdem die Steine aufeinandergesetzt und die Seiten vom Licht abgeschottet wurden, kann sich ein neues Signal aufbauen. Wenn dieses Signal gemessen und mit einer Dosis korreliert werden kann, läßt sich bestimmen, wie alt ein Bauwerk ist. In analoger Weise kann auch der Einsturz eines Gebäudes oder ein Felssturz datiert werden. An der Forschungsstelle Archäometrie wird seit mehreren Jahren ein Projekt zur Datierung von Gesteinsoberflächen durchgeführt (Habermann 2000).

Problematisch ist aber nicht nur die Bestimmung der in den Mineralen gespeicherten Dosis sondern auch die der Dosisleistung. Oberflächen sind Grenzflächen, so daß Gradienten in den Nuklidgehalten zu erwarten sind. Gleichzeitig können die gängigen Labor-Meßverfahren nicht angewandt werden, weil die Gesteine in der Korngröße und Mineralzusammensetzung stark inhomogen und die Probenvolumina damit nicht repräsentativ sind. Von Greilich und Wagner (2002) wird deshalb der Ansatz verfolgt, die lokal in den Körnern gespeicherte Dosis mit einer Auflösung von wenigen  $\mu\text{m}$  zu bestimmen. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit sollte untersucht werden, ob sich mit den  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Dosimetern die Dosisleistung an einer Oberfläche in Abhängigkeit vom Ort feststellen läßt.

Die Bestimmung der Dosisleistung an einer Oberfläche mit beliebiger mineralischer Zusammensetzung erfolgte in Zusammenarbeit mit J. Habermann. Als Referenzmaterial wurde Nussi benutzt. Zum Schutz gegen Licht und  $\alpha$ -Strahlung wurden die Dosimeter wieder in eine dünne schwarze Plastikfolie gepackt. Die Tabletten wurden dabei nicht vergraben, sondern sie wurden in dem schon früher erwähnten Eimer mit Nussi oben aufgelegt. Mittels sechs Tabletten wurde eine Wachstumskurve aufgebaut. Statt von jedem Datenpunkt einzeln den Untergrund abzuziehen, wurde zusätzlich eine Untergrund-Wachstumskurve ermittelt. Dazu wurden drei Tabletten auf Styroporunterlagen gelegt, um die Dosimeter von einer Seite abzuschirmen, und so bei gleicher Bestrahlungsgeometrie die im Raum vorhandene Strahlung zu messen. Alle Signale wurden auf eine 7 min dauernde Bestrahlung mit der  $^{137}\text{Cs}$ -Quelle normiert. Als Referenzkurve diente die Differenz aus beiden Geraden. Gleichzeitig wurden zwölf Dosimeter für 13 bzw. 14 Tage auf Granitfließen der Dicke 5 mm mit unterschiedlicher mineralischer Zusammensetzung gelegt (siehe Abbildung 9.1). Die resultierenden TL-Signale wurden gemessen, normiert und nach Untergrundabzug mit der Nussi-Wachstumskurve verglichen.

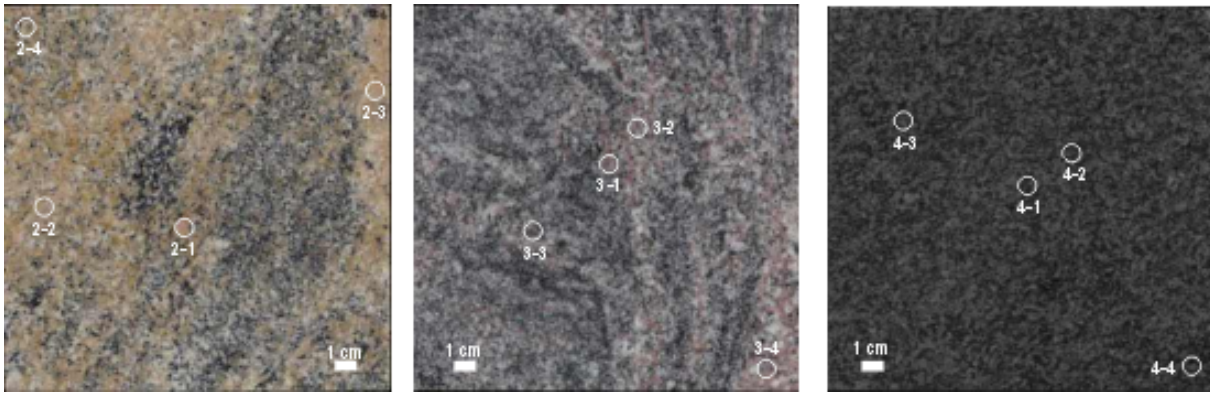


Abbildung 9.1: Granitfließen P2, P3 und P4 (von links nach rechts) als Testoberflächen zur Dosisleistungsbestimmung. Die Stellen, an denen die Dosimeter plziert waren sind mit weißen Kreisen markiert.

Die Platten sind in der Arbeit von Habermann (2000) ausführlich beschrieben. Die Platten 2 und 3 enthalten demnach Kalifeldspäte mit einem Kaliumgehalt von 14 % . Dadurch können die Dosisleistungen lokal 15.5 mGy/a bzw. 16.3 mGy/a betragen. P4 enthält keine Kalifeldspäte und es wird deshalb eine mittlere Dosisleistung von 0.29 mGy/a erwartet.

Probe	Dosisleistung mGy/a	Fehler mGy/a
P2-1	9.50	1.12
P2-2	11.75	1.36
P2-3	13.85	1.60
P2-4	4.14	0.55
P3-1	11.38	1.32
P3-2	9.14	1.08
P3-3	13.27	1.53
P3-4	12.77	1.48
P4-1	11.30	1.31
P4-2	2.51	0.40
P4-3	7.63	0.91
P4-4	5.48	0.68

Tabelle 9.1: Mit  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Tabletten gemessene Dosisleistungen an verschiedenen Stellen von Granitfließen.

Die Ergebnisse sind in Tabelle 9.1 aufgelistet. Der Fehler ergibt sich nach dem Gaußschen Fehlerfortpflanzungsgesetz aus dem statistischen Fehler der TL-Signale und dem Fehler des linearen Fits der Wachstumskurve. Bei Platte 2 liegen die Ergebnisse im erwarteten Dosisleistungsbereich. Die Tabletten 2 und 3 wurden direkt auf großen Feldspäten plziert, während für Tablette 4 ein Bereich mit möglichst wenig Feldspäten ausgewählt wurde. Bei Platte 3 ist eine solche Korrelation nicht mehr zu erkennen; gerade Tablette 3 mit dem höchsten Ergebnis befand sich gezielt in einem feldspatarmen Bereich. Für Platte 4 werden sogar ähnlich große Dosisleistungen gemessen, obwohl nahezu keine radioaktiven Nuklide enthalten sind.

Die hohen Werte für Platte 4 können dadurch erklärt werden, daß die Granitplatten zusammen aufbewahrt wurden und die Dosimeter der Gammastrahlung aller Platten ausgesetzt waren. Da sich aber die Tabletten auf Styropor in einem anderen Raum befanden, war die Untergrundkorrektur zu niedrig. Zusätzlich ist ein Vergleich mit den im Eimer bestrahlten Dosimetern kritisch, da sich die Bestrahlungsgeometrien stark unterscheiden. Während bei dem Eimer die Strahlung fast aus dem vollen Halbraum stammt, besteht die Platte nur aus einer dünnen Schicht. Die Ergebnisse der Platte 2 zeigen aber eine deutliche Korrelation mit der  $\beta$ -Dosisleistung der Feldspäte. Die Abweichenden Werte von Probe 3 könnten evtl. damit erklärt werden, daß sich unter den auf der Oberseite sichtbaren Körnern andere Minerale befanden.

Da die Ergebnisse nicht zufriedenstellend waren, wurde der Versuch mit thin layer Dosimetern wiederholt. Mehrere Dosimeter wurden auf die Platten P2 und P3 gelegt. Als Bezug dienten diesmal nicht Messungen mit dem gesamten Nussi-Eimer. Stattdessen wurden Probenhalter für die Beta-Zählung mit Nussi oder Quarz als Referenz bzw. zur Untergrundkorrektur benutzt. Obwohl die Dosimeter auf Platte 2 gezielt in einem feldspatreichen und einem feldspatarmen Bereich plaziert wurden ergaben sich Werte von  $6.14 \pm 0.19$  mGy/a bzw.  $7.89 \pm 0.24$  mGy/a. Bei Platte 3 hingegen wurden die stark unterschiedlichen Werte  $18.37 \pm 0.56$  mGy/a bzw.  $5.42 \pm 0.16$  mGy/a gemessen. Probleme bei der Interpretation der Ergebnisse ergeben sich wieder daraus, daß nur die Mineralzusammensetzung direkt an der Oberfläche und auch nur dem Augenschein nach an der Farbe der Körner beurteilt werden kann. Variationen in der Mineralfarbe und im Tiefenprofil sind jedoch möglich.

Zusammenfassend kann gesagt werden, daß die mit den Dosimetern bestimmten Dosisleistungen zumindest in der richtigen Größenordnung liegen. Ob die Ergebnisse innerhalb der Fehlergrenzen mit den tatsächlichen Werten übereinstimmen, kann nicht festgestellt werden, da eine Möglichkeit zum Vergleich fehlt. Bei der Bestimmung der Dosisleistung an einer Oberfläche ist es jedoch wichtig, daß die Dosimeter direkt dort plaziert werden, wo sich auch das untersuchte Korn befand. Die Möglichkeit mit  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ :C-Dosimetern die Dosisleistung orts aufgelöst zu messen wird von Greulich und Wagner (2002) untersucht.



## Kapitel 10

# Bestimmung der Dosisleistungsverteilung in einem Sediment mit einzelnen $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C-Körnern

Von Murray und Roberts (1997) wurden erstmals einzelne Quarzkörner zur Datierung eines Sediments verwendet. Die in den Probenkörnern gespeicherten Dosen werden einzeln bestimmt. Die Dosisleistung wird mit den konventionellen Methoden als Mittelwert über eine jeweils ausgewählte Probenmenge gemessen. Variationen in den Äquivalenzdosen der einzelnen Körner werden einer unzureichenden Bleichung bei der Umlagerung des Sediments zugeschrieben (Olley et al. 1999; Duller et al. 2000). Allerdings stellt sich die Frage, ob nicht auch lokale Variationen der Dosisleistung als Ursache in Frage kommen. Mit  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C in pulverform (siehe Abbildung 10.1) bietet sich die Möglichkeit, dieser Frage nachzugehen, wenn die Körner direkt unter ein Sediment gemischt und die gespeicherten Dosen einzeln bestimmt werden. Beim direkten Kontakt mit dem Sediment wirkt auch die  $\alpha$ -Strahlung auf die Dosimeter.

Da die Lichtausbeute bei einzelnen Körnern wesentlich geringer ist als bei den Tabletten, wurde im ersten Abschnitt des Kapitels untersucht, ob die Empfindlichkeit der Photomultiplier ausreichend ist, und ob sich bekannte Bestrahlungsdauern reproduzieren lassen. In den folgenden Abschnitten wird die praktische Vorgehensweise bei der Bestimmung einer Dosisleistungsverteilung erläutert und es wird überprüft, inwieweit die Dosimeter eine Empfindlichkeit gegenüber  $\alpha$ -Strahlung zeigen. Das Ergebnis einer Testmessung wird im letzten Abschnitt vorgestellt.

### 10.1 Lumineszenzeigenschaften der Einzelkörner

Bei gleicher Dosis ist das Lumineszenzsignal direkt proportional zum Volumen des Dosimeters. Je kleiner die Körner sind, um so weniger Licht wird emittiert. Deshalb wurde zuerst überprüft, ob die Empfindlichkeit des Photomultipliers im Risø-Gerät für das oben geschilderte Vorhaben ausreicht.

Im Fall einer optischen Stimulation mit den blauen LEDs muß für die Detektion der UV-Filter (U340) verwendet werden, um den Photomultiplier vor dem Licht der Dioden zu schützen. Da die Hauptemission von  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C aber im blauen Wellenlängenbereich liegt, wird das geringe

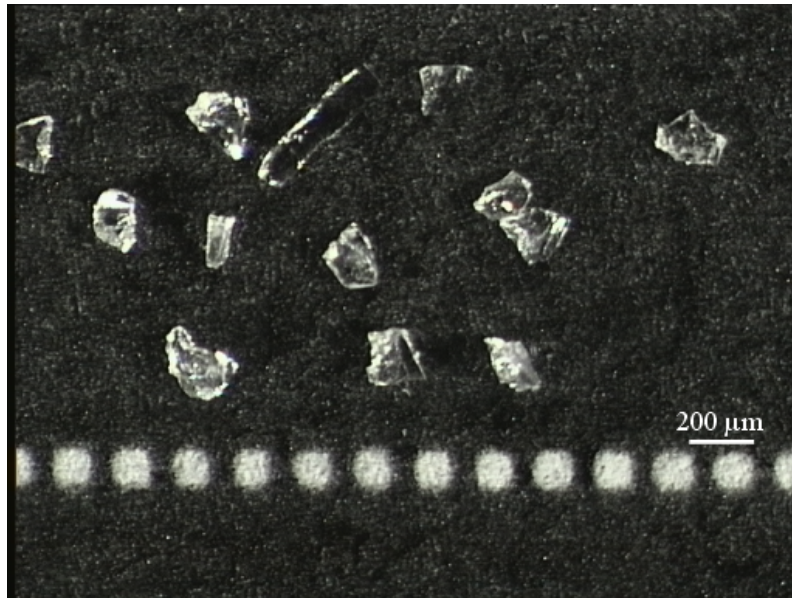


Abbildung 10.1:  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Körner, die mit 200 und 300  $\mu\text{m}$  Sieben abgetrennt wurden.

Signal zusätzlich geschwächt. Tatsächlich war erst nach 100 s Bestrahlung der Nebenposition (ca. 4 mGy) ein vom Untergrund unterscheidbares Signal vorhanden. Dieser Dosisbereich würde eine Expositionsdauer von mehr als einem Jahr voraussetzen, so daß keine weiteren Versuche mit optischer Stimulation unternommen wurden.

Bei TL-Messungen hingegen ist es möglich, die höhere blaue Emission zu messen. Die Leuchtkurven zweier einzelner  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Körner sind in Abbildung 10.2 dargestellt. Die Leuchtkurve des Korns mit der Nummer 3 zeigt wie auch die Leuchtkurve einer Tablette einen einzelnen Peak. Die Kurve des Korns Nummer 4 ist stark abgeflacht und scheint sogar aus zwei nicht auflösbaren Peaks zu bestehen.

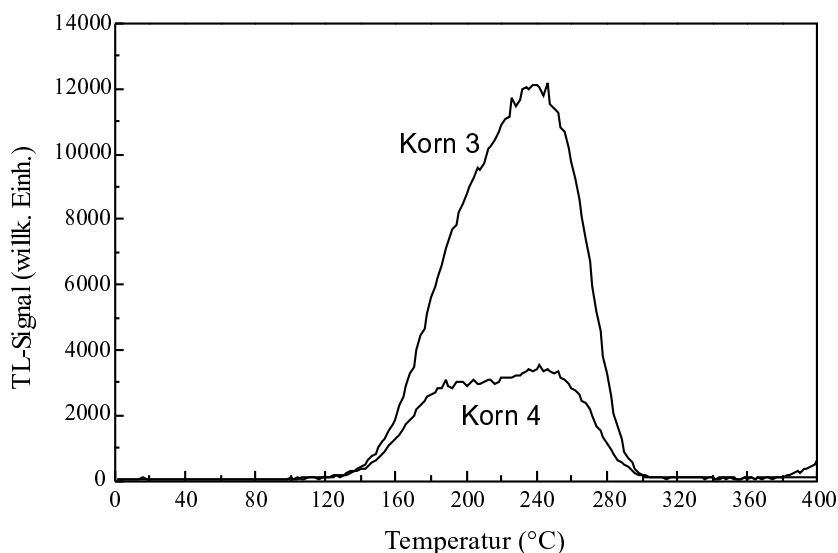


Abbildung 10.2: Leuchtkurven von zwei einzelnen  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Körnern, nachdem die Nebenposition 50 s bestrahlt wurde.

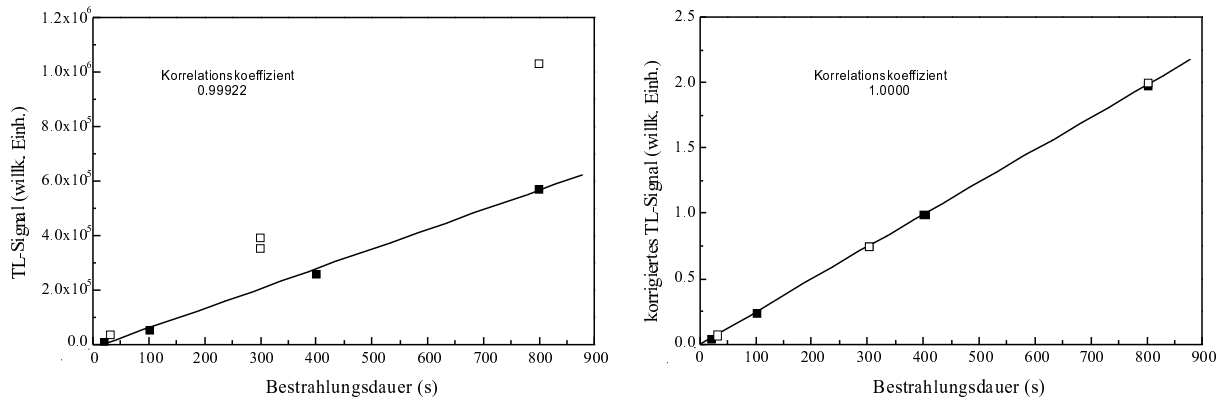


Abbildung 10.3: Wachstumskurve (schwarze Symbole) und Reproduzierbarkeitstests (leere Symbole) eines einzelnen  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Korns, ohne (links) und mit (rechts) Korrektur von Sensitivitätsänderungen. Die Geraden kennzeichnen die linearen Fits an die Daten, die Korrelationskoeffizienten sind angegeben.

Auch mit den Einzelkörnern wurde vor weiterführenden Experimenten erst eine Wachstumskurve aufgenommen und die Reproduzierbarkeit von bekannten Bestrahlungsdauern untersucht. Dazu wurden einzelne Körner 20 bis 800 s bestrahlt (Nebenposition) und das resultierende TL-Signal gemessen. Zusätzlich wurde vor und nach jeder Bestrahlung und Messung eine Testdosis (50 s) appliziert, um eventuelle Sensitivitätsänderungen korrigieren zu können. Anschließend wurden noch Reproduzierbarkeitstests mit 6 Bestrahlungsdauern vorgenommen, denen ebenfalls Korrekturbestrahlungen zwischengelagert waren. Das Ergebnis für Korn Nummer 3 ist in Abbildung 10.3 dargestellt.

Ohne Korrektur der Sensitivitätsänderungen (links) sind nicht nur die Meßpunkte schlechter mit dem linearen Fit korreliert, sondern auch die Reproduzierbarkeitsmessungen liegen weit außerhalb der Wachstumskurve. Mit Korrektur (rechts) liegen die Punkte der Wachstumskurve exakt auf einer Geraden (Korrelationskoeffizient auf 4 Nachkommastellen genau), mit der dann auch die Reproduzierbarkeitsmessungen zusammenfallen. Während bei Tabletten auch ohne Korrekturmessung gearbeitet werden kann, empfiehlt es sich für Einzelkörner stark eine solche Korrektur vorzunehmen. Es ist nicht sicher, ob es sich dabei wirklich um eine Sensitivitätsänderung der Körner handelt, oder ob eine temperaturbedingte Korrosion der Probenträger zu einer sich verändernden Lumineszenz führt, die das schwache Signal der Körner stärker verändert als das helle Signal der Tabletten.

Die Reproduzierbarkeitstests für vier Körner (Nummern 1 bis 4) sind in Tabelle 10.1 aufgelistet. Abgesehen von Korn Nummer 4 sind alle Werte mit einer Genauigkeit von mindestens 4 % reproduzierbar, sofern sie im Zeitbereich der Wachstumskurve liegen. Abgesehen von Korn Nummer 2 wird diese Genauigkeit auch im Fall einer Extrapolation der Kurven erreicht. Anders sieht es bei Korn Nummer 4 aus, bei dem für kurze Zeiten sogar Abweichungen von fast 30 % festgestellt wurden. Da dieses Korn auch bei der Leuchtkurve (Abbildung 10.2) Besonderheiten aufwies, wurde im Folgenden darauf verzichtet Einzelkörner mit stark deformierten Leuchtkurven zur Auswertung heranzuziehen.

Sollwert in s	Korn 1		Korn 2		Korn 3		Korn 4	
	Meßwert in s	Abw. in %	Meßwert in s	Abw. in %	Meßwert in s	Abw. in %	Meßwert in s	Abw. in %
300	312	4.0	299	0.33	300	0.0	299	0.33
1200	1214	1.2	1164	3.0	1182	1.5	1143	4.8
3000	2967	1.1	2774	7.5	2918	2.7	2730	9.0
30	29.2	2.7	29.5	1.7	29.8	0.67	38.2	27
800	829	3.6	786	1.8	800	0.0	784	2.0
300	308	2.7	295	1.7	300	0.0	303	1.0

Tabelle 10.1: Mit  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Körnern reproduzierte Bestrahlungsdauern, wenn die TL-Wachstumskurve über den Bereich 20-800 s verwendet wird, und die Abweichung vom Sollwert in %.

## 10.2 Praktische Vorgehensweise bei der Bestimmung einer Dosisleistungsverteilung

Als Testsediment für die Bestimmung einer Dosisleistungsverteilung wurde Nussi verwendet. In eine mit Löß gefüllte Filmdose wurde eine Spatelspitze  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Körnchen der Größe 200 bis 300  $\mu\text{m}$  untergemischt. Durch die geringe Menge wurde sichergestellt, daß die Dosimeter nicht selbst zu Variationen in der Dosisleistung führen. Die Filmdose wurde anschließend für ein halbes Jahr in dem bereits genannten Eimer mit Nussi vergraben.

Zur Abtrennung der Dosimeterkörner wurde die Korngrößenfraktion 200 bis 300  $\mu\text{m}$  abgeseigt und einer Schwerkretrennung mit Lithiumpolywolframat ( $\rho = 2.85 \text{ g/cm}^3$ ) unterzogen, indem die Schwereflüssigkeit mit den Körnern über nacht stehen gelassen wurde. Dabei werden insbesondere Quarze und Feldspäte ( $\rho = 2.65 \text{ g/cm}^3$  bzw. 2.5 bis 2.6  $\text{g/cm}^3$ ) abgetrennt. Das  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$  mit einer Dichte von 3.97  $\text{g/cm}^3$  bleibt zusammen mit Schwermineralen in der schweren Fraktion zurück. Mit einem Magnetscheider wurden die magnetischen Minerale abgetrennt, so daß nach der Aufbereitung hauptsächlich noch Zirkon ( $\text{ZrSiO}_4$ ) und Apatit ( $\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3(\text{F,Cl,OH})$ ) als Verunreinigungen in Frage kommen (Parfenoff et al. 1970).

Es stellt sich daher die Frage, ob bei Lumineszenzmessungen an Einzelkörnern diese Verunreinigungen erkannt werden können. Dazu wurde das Lumineszenzverhalten von Zirkon und Apatit qualitativ untersucht. Körner beider Minerale wurden mit der im Risø-Gerät eingebauten  $\beta$ -Quelle 10 s lang bestrahlt (entsprechend ca. 1 Gy Quarzdosis). Anschließend wurde zum einen das OSL-Signal gemessen, indem die Proben 100 s mit den blauen Dioden stimuliert wurden, zum anderen wurde bei einer Heizrate von 2  $^\circ\text{C/s}$  das TL-Signal bestimmt (Filter: U340). Die Ergebnisse sind in Abbildung 10.4 dargestellt. Beide Minerale zeigen bei Blaustimulation ein OSL-Signal (oben). Da die Scheibchen mit unterschiedlich großen und vielen Körnern belegt waren, können die Messungen nicht quantitativ verglichen werden; es ist auch keine Aussage über die Intensität im Vergleich zu  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$  möglich. Dennoch ist zu vermuten, daß im Fall von OSL-Messungen an Einzelkörnern nicht zwischen den Mineralen unterschieden werden kann. Die Leuchtkurven sind jedoch deutlich verschieden. Während  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$  nur einen einzelnen Peak bei 190  $^\circ\text{C}$  zeigt, liegt der Peak bei Zirkon bei ca. 90  $^\circ\text{C}$  und damit bei wesentlich niedrigeren Temperaturen. Die beiden Peaks von Apatit bei ca. 140  $^\circ\text{C}$  und 290  $^\circ\text{C}$  können ebenfalls nicht mit einer  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$  Leuchtkurve verwechselt werden. Für Einzelkornmessungen



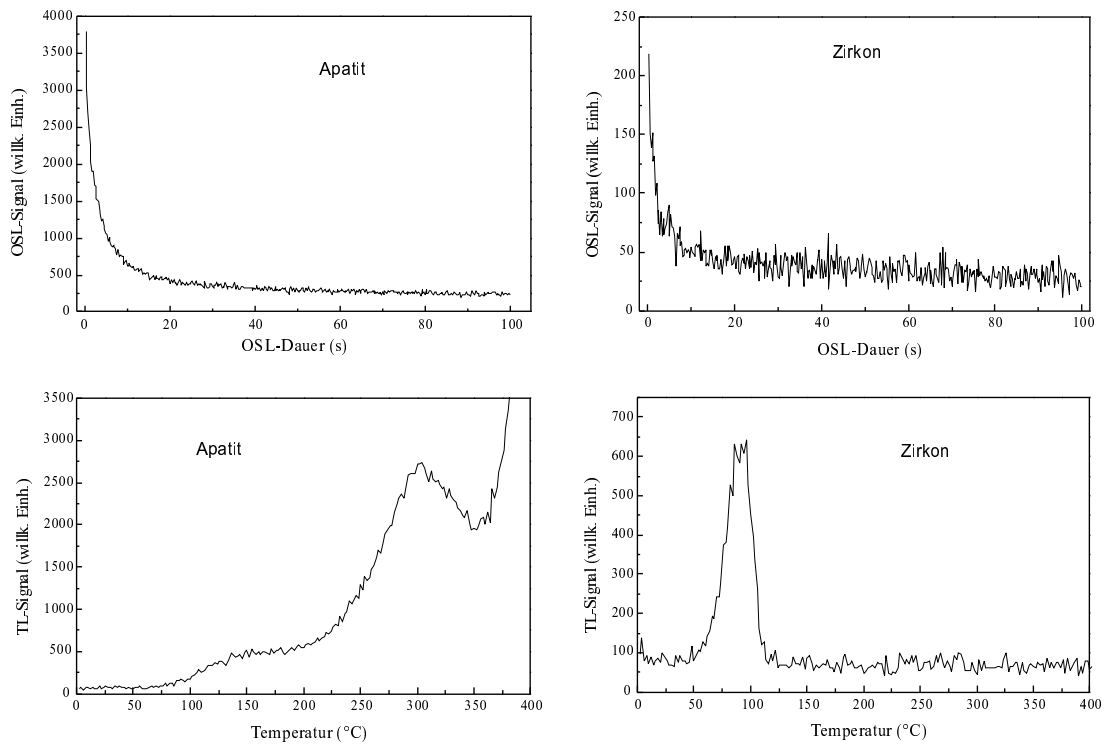


Abbildung 10.4: OSL- (oben) und TL-Signale (unten) von Zirkon- (rechts) und Apatit-Körnern (links) nach Bestrahlung mit 1 Gy.

empfehlenswert ist auch deshalb die Thermolumineszenz.

Um die Effektivität des oben beschriebenen Trennvorganges zu testen, wurden  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Körnchen der Größe 200-300  $\mu\text{m}$  mit 4 Sedimenten unterschiedlicher Zusammensetzung und Herkunft vermischt. Die gesiebten und mittels Schwerentrennung und Magnetscheider getrennten Fraktionen wurden bestrahlt und die TL wurde gemessen. Es zeigte sich, daß das  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$  zwar noch in allen abgetrennten Fraktionen nachweisbar war, daß aber die nichtmagnetische Fraktion mit einer Dichte  $\rho > 2.85 \text{ g/cm}^3$  nur  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$  enthielt. Somit geht bei der Aufbereitung zwar Material verloren, aber Probleme mit Verunreinigungen sind kaum zu erwarten.

### 10.3 Empfindlichkeit gegenüber $\alpha$ -Strahlung

Wenn sich die Dosimeterkörner in direktem Kontakt mit dem Sediment befinden, sind sie allen drei Strahlungsarten ausgesetzt. Während bis jetzt nur die Empfindlichkeit von  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$  gegenüber  $\beta$ - und  $\gamma$ -Strahlung untersucht wurde, muß jetzt auch geprüft werden, wie sich  $\alpha$ -Strahlung auf die Dosimeter auswirkt.

$\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Tabletten und 200 bis 300  $\mu\text{m}$  großen Körnern wurden auf ihre Empfindlichkeit gegenüber  $\alpha$ -Strahlung untersucht. Die Dosimeter wurden erst für 15 min in der  $\alpha$ -Quelle ( $^{241}\text{Am}$ ) im Vakuum bestrahlt und das resultierende TL-Signal wurde gemessen. Da beim Zerfall des  $^{241}\text{Am}$  auch  $\gamma$ -Strahlung frei wird, mußte überprüft werden, ob das gemessene Signal eventuell nur durch diese Strahlung hervorgerufen wird. Da die  $\gamma$ -Strahlung nicht abgeschirmt werden kann, ohne auch die  $\alpha$ -Strahlung vollständig zu absorbieren, mußte die Kontrollmessung in indirekter Weise vorgenommen werden. Die Dosimeter wurden noch einmal 15 min in der Quelle

bestrahlt. Dabei wurde jedoch die Probenkammer nicht evakuiert, und zusätzlich wurde eine dünne Plastikfolie über die Dosimeter gelegt. Dadurch sollte die  $\alpha$ -Strahlung vollständig abgeschwächt werden. Das Restsignal wurde nun ausschließlich durch die  $\gamma$ -Strahlung erzeugt. Die Differenz zwischen dem ersten und zweiten gemessenen Signal entspricht damit dem Signal, das alleine durch die  $\alpha$ -Strahlung hervorgerufen wurde. Die gesamte Messung wurde anschließend noch einmal zur Kontrolle wiederholt.

		TL-Signal $\alpha + \gamma$	TL-Signal $\gamma$	Signal( $\alpha$ )/ Signal ( $\gamma$ )
Tablette1	Messung 1	$1.2 \cdot 10^7$	$6.5 \cdot 10^5$	18
	Messung 2	$1.2 \cdot 10^7$	$5.9 \cdot 10^5$	20
Tablette2	Messung 1	$1.0 \cdot 10^7$	$5.4 \cdot 10^5$	18
	Messung 2	$1.1 \cdot 10^7$	$4.3 \cdot 10^5$	24
Pulver1	Messung 1	$6.8 \cdot 10^4$	278	245
	Messung 2	$6.4 \cdot 10^4$	336	189
Pulver2	Messung 1	$1.3 \cdot 10^5$	349	376
	Messung 2	$1.3 \cdot 10^5$	329	403

Tabelle 10.2: Vergleich der mit der  $\alpha$ -Quelle durch  $\alpha$ -Strahlung und  $\gamma$ -Strahlung erzeugten Signale in  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C-Tabletten und Körnern.

Das Ergebnis ist in Tabelle 10.2 aufgelistet. Bei den Tabletten wurde das über den Dosimetrie-Peak integrierte Signal angegeben. Bei den Körnern wurde der Peak teils von der Wärmestrahlung überlagert. Deshalb wurde statt des Integrals die Zählrate im Peakmaximum angegeben. Durch eine längere Bestrahlungsdauer könnte ein höheres  $\gamma$ -Signal und damit auch eine höhere Genauigkeit erreicht werden.

Es ist deutlich zu erkennen, daß die  $\alpha$ -Strahlung der Quelle in den Dosimetern ein Signal aufbaut. Dieses ist sogar deutlich höher als das der  $\gamma$ -Strahlung. Trotz der großen Schwankungen in den Ergebnissen kann festgestellt werden, daß das  $\alpha$ -Signal relativ gesehen (Tabelle 10.2, rechte Spalte) in den Körnern um einen Faktor 10 höher ist als bei den Tabletten. Während die  $\alpha$ -Strahlung nur einige  $\mu\text{m}$  in die Dosimeter eindringt, werden sie von der  $\gamma$ -Strahlung völlig durchdrungen. Bei den dickeren Tabletten ist der Anteil dieser  $\alpha$ -Rinde am Gesamtvolumen geringer als bei den Körnern, was sich im Signalverhältnis widerspiegelt. Mit Dosimeter-Pulver in der Größe der Feinkornfraktion (4 bis 11  $\mu\text{m}$ ) könnte überprüft werden, wie groß die Effizienz der  $\alpha$ -Strahlung bei der Lumineszenzenerzeugung im Vergleich zur  $\gamma$ -Strahlung tatsächlich ist.

## 10.4 Variation der Dosisleistung in Nussi

Die aus Nussi abgetrennten Körner wurden mit einer Nadel einzeln auf Aluminium-Tellerchen als Probenträger aufgebracht. Dabei wurde Silikonspray als Haftmittel eingesetzt. Die in den Körnern gespeicherte Dosis wurde analog zu den oben beschriebenen Reproduktionsmessungen bestimmt. Dabei stellte sich heraus, daß Silikon ab 200 °C ebenfalls zu einer Lumineszenzemission führt, die dem Dosimetersignal überlagert ist. Dadurch konnten von 150 Messungen nur 26 für die Auswertung verwendet werden.

Der statistische Fehler der Dosisbestimmung liegt bei ca. 1 %. Zusätzlich muß aber auch die

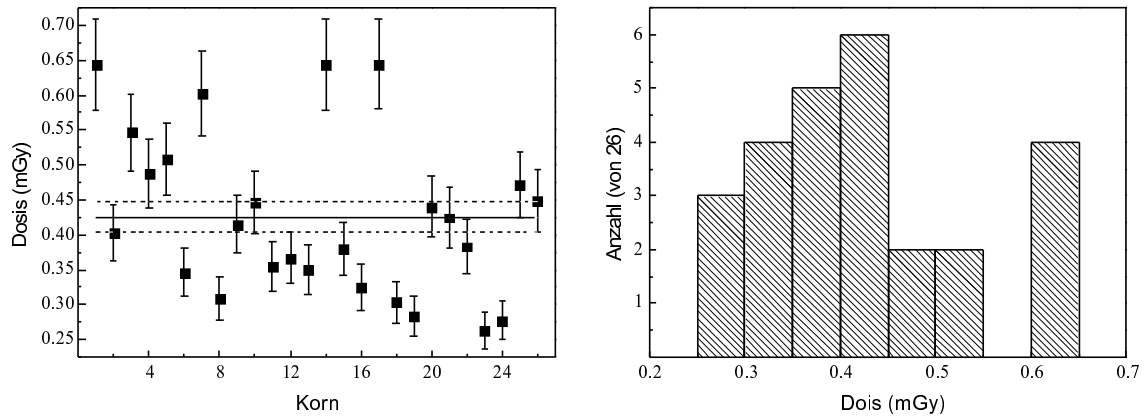


Abbildung 10.5: Verteilung der mit den  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Einzelkörnern gemessenen Dosen. Links: Dosis mit Fehler für die einzelnen Körner, die gestrichelten Linien markieren den Mittelwert mit Fehler. Rechts: Histogramm der gemessenen Dosen; die Breite der Balken entspricht einem Fehler von 0.05 mGy

unterschiedliche Größe der Körner mit Durchmessern von 200 bis 300  $\mu\text{m}$  berücksichtigt werden. Da sich die Körner in direktem Kontakt mit Nussi befanden, waren sie allen drei Strahlungsarten ausgesetzt. Die  $\gamma$ -Strahlung durchdringt alle Körner homogen, bei der  $\beta$ -Strahlung jedoch muß die Abschwächung innerhalb des Kornes berücksichtigt werden. Dafür wurden die von Mejdahl (1979) bestimmten Faktoren für sphärisch symmetrische Körner verwendet. Die  $\alpha$ -Strahlung durchdringt nur eine 20  $\mu\text{m}$  dicke Rinde des Kornes. Der relative Volumenanteil, der bestrahlt wird und leuchtet, ist von der Korngröße abhängig. Da die Dosis auf die Masse bzw. indirekt auf das Volumen bezogen wird, sinkt die gespeicherte Dosis mit zunehmendem Korndurchmesser. Bei einer mittleren Korngröße von 250  $\mu\text{m}$  ergibt sich so eine durch die Korngröße bedingte Variation von 10 %, die als Fehler für die einzelnen Dosen angenommen wurde.

Abbildung 10.5 links zeigt die bei jedem einzelnen Korn festgestellte Dosis mit Fehler sowie den Mittelwert ( $0.43 \text{ mGy} \pm 0.02 \text{ mGy}$ ). Die angegebenen Dosen sind Richtwerte, da sie über eine Bestrahlung der Nebenposition im Risø-Gerät ermittelt wurden, und über einen konstanten Faktor mit der Dosisleistung korreliert. Deutlich ist die breite Streuung zu erkennen, die durch das Histogramm in der Abbildung rechts verdeutlicht wird.

Es kann nicht mit Sicherheit ausgesagt werden, ob die Variation tatsächlich alleine durch das Sediment verursacht wird. Wie in Abbildung 10.1 zu sehen, sind die  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Körner nicht sphärisch symmetrisch, wie es bei windgeblasenen Sedimenten der Fall ist. Das Pulver wird hergestellt, indem man einen Einkristall zertrümmert (Akselrod et al. 1993); es entstehen beliebig geformte Splitter, die auch beim Sieben nicht sauber getrennt werden können. Neben nahezu kugelförmigen Bruchstücken finden sich auch nadel- und scheibchenförmige. Dies führt bei konstanter Dosisleistung zu einer größeren Variation in der Dosis als durch die Abschätzung berücksichtigt wird. Eventuell ist es möglich die Körner mit Hilfe einer Abrasionszelle<sup>1</sup> abzurunden. Außerdem muß noch sichergestellt werden, daß der gewachsene Kristall homogen war, und die Körner zumindest bei  $\gamma$ -Bestrahlung die gleiche Dosis liefern.

<sup>1</sup>Eine Abrasionszelle besteht aus einer Probenkammer, die mit Druckluft gespült wird. Durch das Aufwirbeln der Körner kommt es zu häufigen Stößen mit der Kammerwand und anderen Körner, was zu einer Abrasion der äußeren Schicht und einer Abrundung führt.

Dennoch ist zu vermuten, daß auch die Dosisleistung in einem Sediment besonders im Bezug auf die  $\alpha$ - und  $\beta$ -Strahlung inhomogen ist. Uranhaltige Zirkone, Kalifeldspäte und Quarze ohne radioaktive Nuklide sind auf mikroskopischer Ebene nicht gleichförmig über das Sediment verteilt. Interessant wäre es festzustellen, ob die Schwankungen durch beide Strahlungen in gleichem Maße verursacht werden.

Nach Akselrod et al. (1993) kann durch Erhitzen der Körner auf 1200 °C (30 min) eine Insensitivierung gegen  $\alpha$ -Strahlung bewirkt werden. Bei dieser Temperatur diffundiert Sauerstoff in eine ca. 20  $\mu\text{m}$  breite Schicht auf der Oberfläche, wodurch ein Ausheilen der Kristalldefekte bewirkt wird. Die Empfindlichkeit gegenüber  $\beta$ -Strahlung im Inneren des Kornes wird dabei kaum beeinflusst. Durch parallele Verwendung von  $\alpha$ -sensitiven und  $\alpha$ -insensitiven Körnern besteht evtl. bei zukünftigen Messungen die Möglichkeit, die Inhomogenitäten in der  $\alpha$ - und  $\beta$ -Dosisleistung getrennt festzustellen.

# Kapitel 11

## Zusammenfassung und Ausblick

Die Forderung nach größerer Präzision und immer komplexere Fragestellungen machen eine Weiterentwicklung der Lumineszenzdatierung notwendig. Während sich die Mehrzahl der Forschungsgruppen mit einer immer genaueren Bestimmung der in den Mineralen gespeicherten Dosis beschäftigt, war es Ziel der vorliegenden Arbeit, die Bestimmung der Dosisleistung weiter zu entwickeln.

Besonders in inhomogenen Probenumfeldern werden Dosimeter eingesetzt: Nach ungefähr einem Jahr kann aus der gespeicherten Dosis und der Expositionsdauer auf die Dosisleistung geschlossen werden. Oft steht aber für ein solches Vorgehen nicht genügend Zeit zur Verfügung. Fragen, wie z. B. ob alle Körner eines Sediments derselben Dosisleistung ausgesetzt sind, lassen sich mit den bis jetzt verwendeten Materialien aufgrund ihrer geringen Empfindlichkeit nur schwer oder gar nicht beantworten. Wegen ihrer vielversprechenden Lumineszenzeigenschaften, insbesondere ihrer hohen Empfindlichkeit, wurden deshalb  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C Dosimeter im Hinblick auf verschiedene Einsatzmöglichkeiten bei der Lumineszenzdatierung untersucht.

Bei Untersuchung der grundlegenden Lumineszenzeigenschaften von  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C wurde festgestellt, daß sich bei thermischer Stimulation eine  $\beta$ - oder  $\gamma$ -Labordosis bekannter Größe auf 2 % genau rekonstruieren läßt. Bei optischer Stimulation liegt der Fehler höher, da Phototransfer von Ladungen aus tiefen Fallen in die Dosimetriefallen das Lumineszenzsignal beeinflusst.

Zur Bestimmung der  $\gamma$ -Dosisleistung im Gelände wurden die Dosimeter in einem Kupferbehälter den Strahlungsfeldern verschiedener Sedimentlagen exponiert. Über einen Vergleich mit dem Lumineszenzsignal, das durch ein Referenzmaterial aufgebaut wurde, konnte die Dosisleistung festgestellt werden. Bei Messung mit einer einzelnen Tablette liegt der Fehler nach 14 Tagen Exposition bei 7 %; die Gammaskpektrometrie-Messungen im Labor liefern bei einer homogenen Sedimentschicht genauere Ergebnisse. In einer inhomogenen Umgebung jedoch sind die mit den  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C Dosimetern gemessenen Werte vertrauenswürdiger. Der hohe Fehler kann vermutlich noch bedeutend verringert werden, wenn einzelne Meßergebnisse mit mehreren Dosimetern ermittelt werden. Möglicherweise können dann auch bereits nach 2 Tagen Expositionsdauer verlässliche Ergebnisse erzielt werden.

Unabhängig vom angewandten Verfahren wird die  $\beta$ -Dosisleistung bis jetzt für gewöhnlich im Labor bestimmt. Dosimeter werden der natürlichen Radioaktivität einer so geringen Probenmenge exponiert, daß die emittierte  $\gamma$ -Strahlung vernachlässigt werden kann. Die thin layer  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C-Dosimeter sind für ein solches Vorgehen konzipiert. Bei Testmessungen wurde jedoch festgestellt, daß keine zufriedenstellenden Ergebnisse erzielt werden können, da die Messungen

stark durch die Umgebungsstrahlung beeinflußt werden.

Deshalb wurde im Rahmen dieser Arbeit ein neues Verfahren untersucht, das einfach und routinemäßig einsetzbar ist, und bei dem die  $\beta$ -Dosisleistung mit einem Dosimeterpaar direkt am Ort der Probe im Gelände gemessen werden kann. Eines der Dosimeter wird sowohl der  $\beta$ - als auch der  $\gamma$ -Strahlung ausgesetzt, während bei dem zweiten die  $\beta$ -Strahlung abgeschirmt wird. Die  $\beta$ -Dosisleistung ergibt sich als Differenz der beiden resultierenden Dosisleistungen. Es wurde festgestellt, daß das hier beschriebene Verfahren prinzipiell dazu geeignet ist, mit den Dosimetern  $\beta$ -Dosisleistungen im Gelände zu messen. Aufgrund der hohen Fehler (10 %) liefert jedoch in einem homogenen Umfeld wiederum die hochauflösende Gammaskpektrometrie genauere Werte. Hier spricht für einen Einsatz der Dosimeter, daß Ergebnisse bereits nach wenigen Tagen vorliegen können. Zudem wird erwartet, daß sich die Fehler auch hier durch wiederholte Messungen verringern lassen. In einem inhomogenen Medium kommen jedoch die Vorteile der Dosimeter zur Geltung. Mit dem tragbaren Gelände-Spektrometer können nur über das gesamte  $\gamma$ -Umfeld gemittelte Dosisleistungen bestimmt werden. Auch die mit dem Labor-Spektrometer untersuchten Probenmengen sind größer als der tatsächliche Einflußbereich der  $\beta$ -Strahlung. Mit den Dosimetern wird die lokale  $\beta$ -Dosisleistung bestimmt, der die Probe *tatsächlich* ausgesetzt war.

Bei der Datierung von Gesteinsoberflächen muß die Dosisleistung direkt am Ort des untersuchten Korns bestimmt werden. Für grundlegende Untersuchungen wurden mehrere Dosimeter auf Granitplatten gelegt. Die gemessenen Dosisleistungen lagen zumindest in der erwarteten Größenordnung. Ob die Ergebnisse innerhalb der Fehlergrenzen mit den tatsächlichen Werten übereinstimmen, konnte nicht festgestellt werden, da keine Vergleichsmöglichkeit gegeben war. Für eine endgültige Datierung sind aber sicherlich noch weitere Untersuchungen nötig.

Um festzustellen, ob alle Körner eines Sediments derselben Dosisleistung ausgesetzt sind, wurden  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Körner der Größen 200 bis 300  $\mu\text{m}$  mit einem Sediment vermischt, und die in jedem Korn gespeicherte Dosis einzeln bestimmt. Es kann nicht mit Sicherheit ausgesagt werden, ob die mit Dosimeterkörnern festgestellten Dosisleistungsvariationen tatsächlich alleine durch mikroskopische Inhomogenitäten verursacht werden. Schwankungen in den gemessenen Dosen werden auch durch die verschiedenen Formen und Größen der Körner hervorgerufen. Eine Verbesserung kann möglicherweise durch ein Abrunden der Körner mit Hilfe einer Abrasionszelle erzielt werden.

Nach den in dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen können die Dosimeter routinemäßig für Datierungen verwendet werden. Eine konkrete Idee für eine Einsatzmöglichkeit besteht z. B. in der Datierung von Sedimenten aus dem Malawisee im Rahmen des ICDP/KTP (Kontinentales Tiefbohrprogramm). Die dort vorhandenen Warven machen eine Bestimmung der Dosisleistung mit der Gammaskpektrometrie nahezu unmöglich. Mit den Dosimetern hingegen sollte es möglich sein, die Dosisleistung für jede einzelne Schicht gesondert zu bestimmen.

Auch für die Datierung von Marsedimenten im Rahmen einer Marsmission wären die  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$  Dosimeter einsetzbar. Zur Messung der in den Sedimenten gespeicherten Dosis muß sowieso ein Datierungsgerät mitgeführt werden. Zusätzlicher Ballast zur Dosisleistungsmessung, wie z. B. Gammaskpektrometer, kann bei Verwendung von Dosimetern vermieden werden. Allerdings muß der Einfluß der kosmischen Strahlung dazu noch eingehender untersucht werden, da diese auf dem Mars durch das schwache Magnetfeld und die dünne Atmosphäre wesentlich intensiver ist.

Weitere Untersuchungen sind auch zur Bestimmung der Dosisleistungsverteilung in einem Sediment notwendig. Durch abgerundete und gleich große Körner können systematische Fehler

verringert werden. Gleichzeitig ist noch festzustellen, ob die Körner zumindest in einem homogenen  $\gamma$ -Strahlungsfeld dieselbe Dosis liefern. Dann besteht aber auch die Möglichkeit, durch parallele Verwendung von  $\alpha$ -sensitiven und  $\alpha$ -insensitiven Körnern eine getrennte Messung der Variationen von  $\alpha$ -Dosisleistung und  $\beta$ -Dosisleistung zu versuchen.





# Anhang A

## Referenzmaterialien

- **Nussi:** würemzeitlicher Löß aus der „Weißen Hohl“ bei Nußloch, ca. 12 km südlich von Heidelberg; im radioaktiven Gleichgewicht
- **Flossi:** würfelförmiger Granitblock aus Flossenbürg mit Kantenlänge 1 m bzw. pulverisiertes Material eines Bohrkerns aus dem Block; der Block befindet sich auf dem Gelände des MPI für Kernphysik
- **Blacky:** Schwarzerde aus Kursk / Russland (Referenzmaterial IAEA-326); Urangehalt: 2.43  $\mu\text{g/g}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ -Gehalt: 3.81  $\mu\text{g/g}$ ; zusätzlich 8.03 Bq/kg  $^{90}\text{Sr}$
- **Poddy:** Podsolboden aus Moskau / Russland (Referenzmaterial IAEA-327); Urangehalt: 2.63  $\mu\text{g/g}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ -Gehalt: 4.24  $\mu\text{g/g}$ ; zusätzlich 1.90 Bq/kg  $^{90}\text{Sr}$  und 20.52 Bq/kg  $^{137}\text{Cs}$
- **Tony:** Tonmaterial

Referenzmaterial	Th-Gehalt in $\mu\text{g/g}$	U-Gehalt in $\mu\text{g/g}$	K-Gehalt in %	$\dot{D}_\alpha$ in mGy/a	$\dot{D}_\beta$ in mGy/a	$\dot{D}_\gamma$ in mGy/a
Nussi	7.8	2.87	1.1	11.02	1.51	0.96
Flossi	14.75	19.5	3.74	51.52	6.25	3.8
Blacky	9.79	2.43	1.9015	11.64	2.23	1.2
Poddy	9.52	2.63	2.0366	11.97	2.35	1.3
Tony	17.15	5.79	1.86	23.10	2.80	1.9

Tabelle A.1: Nuklidgehalte und Dosisleistungen der Referenzmaterialien. (aus Rieser (1991))

Die in Tabelle A.1 angegebenen Dosisleistungen für Nussi, Flossi und Tony wurden aus den Gehalten mit den Umrechnungsfaktoren von Adamiec und Aitken (1998) berechnet. Bei Poddy und Blacky mußte zusätzlich der Überschuß an  $^{210}\text{Pb}$  und der Beitrag durch  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{137}\text{Cs}$  einbezogen werden. Ein Teil des  $^{210}\text{Pb}$ -Gehalts befindet sich im Gleichgewicht mit U und wird ständig nachgebildet, der Überschuß zerfällt mit der Halbwertszeit 22.3 a. Für diesen Anteil wurden zur Berechnung die in Adamiec und Aitken (1998) angegebenen Faktoren verwendet. Aus der beim Zerfall freigesetzten Energie wurde für  $^{90}\text{Sr}$  der Umrechnungsfaktor  $5.705 \cdot 10^{-3}$  mGy/a für die  $\beta$ -Dosisleistung berechnet, wenn die Aktivität in Bq/kg angegeben ist. Die entsprechenden Faktoren bei  $^{137}\text{Cs}$  betragen  $9.50 \cdot 10^{-4}$  mGy/a für die  $\beta$ -Dosisleistung und  $2.845 \cdot 10^{-3}$  mGy/a für die  $\gamma$ -Dosisleistung. Alle angegebenen Werte beziehen sich auf den 1. 3. 2001.



# Anhang B

## Fehlerrechnung

Über die Abschätzung von Meßfehlern sind unzählige Bücher erschienen. Die hier aufgeführten Herleitungen und Bemerkungen wurden den Büchern von Gränicher (1994), Weise und Wöger (1999) und Topping (1975) entnommen. Eine internationale Richtlinie für die Bestimmung und Angabe von Meßunsicherheiten gibt die International Organization for Standardization (1995).

### B.1 Statistische und systematische Fehler

#### Statistische Fehler

Wird eine Messung unter gleichen Bedingungen wiederholt, muß nicht jedesmal derselbe Meßwert auftreten. Die Abweichungen schwanken nach Betrag und Vorzeichen zufallsbedingt und werden deshalb zufällige oder statistische Fehler genannt.

Ein Beispiel ist die Zerfallsrate beim Zerfall radioaktiver Nuklide, oder die Anzahl der Ladungsträger, die von monoenergetischen  $\gamma$ -Quanten im Detektor eines Gammaskpektrometers erzeugt wird. Die Verteilung der Zählereignisse kann mit der Poissonstatistik beschrieben werden. Ist  $N$  der Mittelwert der Verteilung, dann ist der Fehler gleich der Standardabweichung  $\sqrt{N}$ .

Für hohe Zählraten geht eine Poissonverteilung in eine Normalverteilung über. Dies wird besonders deutlich bei der Gammaskpektrometrie. Obwohl z.B.  $^{40}\text{K}$  nur  $\gamma$ -Strahlung der Energie 1460.83 keV emittiert, besteht das Spektrum nicht aus einer einzigen scharfen Linie; auch in den benachbarten Kanälen werden Zählereignisse registriert, da jedes Quant unterschiedlich viele Ladungsträger im Detektor erzeugt (s. Abbildung B.1).

Die Form des Spektrums kann in guter Näherung mit einer Normalverteilung (Gaußverteilung) beschrieben werden. Die Fläche unter der Kurve (hier 5885 Zählereignisse) entspricht der Signalthöhe. Gemäß der Standardabweichung der Poissonverteilung ist der Fehler dann  $\sqrt{5885} = 77$ .

#### Systematische Fehler

Systematische Fehler sind Fehler, die bei Wiederholung einer Messung unter identischen Meßbedingungen einen konstanten Wert besitzen, z.B. intrinsische Fehler eines Meßgerätes oder der nicht exakt bekannt Gehalt an Uran und Thorium eines Referenzmaterials.

Ist die genaue Größe des Fehlers bekannt, kann das Ergebnis korrigiert werden. Der systematische Fehler muß dann bei der Fehlerbetrachtung nicht berücksichtigt werden. Meistens

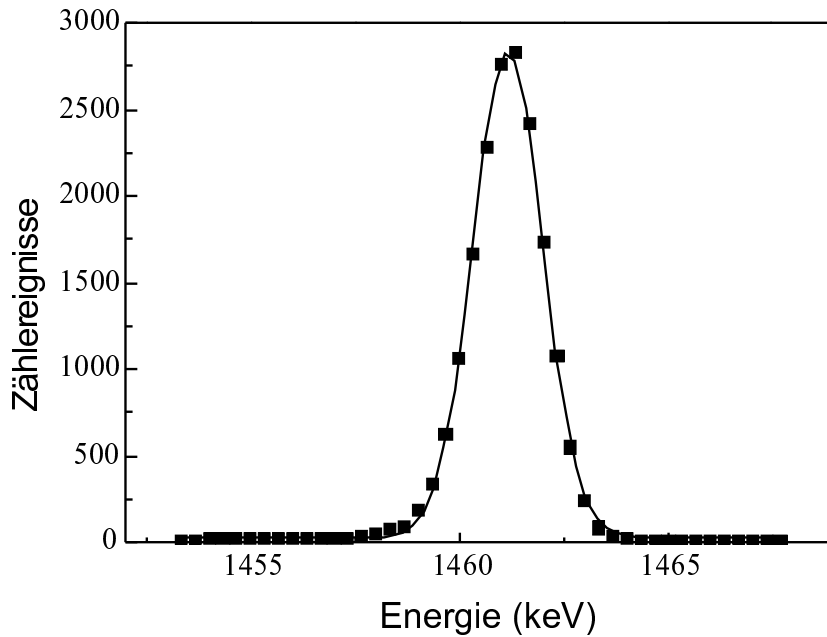


Abbildung B.1: Ausschnitt aus einem Gamma-Spektrum von Nussi (Punkte). Gezeigt ist der Energiebereich um die 1460.83 keV-Linie von  $^{40}\text{K}$ . Die durchgezogene Linie stellt einen Gauß-Fit dar; die effektive Fläche unter der Kurve beträgt 5885 Zählereignisse.

jedoch kann nur ein maximaler Wert für die Größe des Fehlers angegeben werden. Der Fehler selbst kann dann mit gleicher Wahrscheinlichkeit jeden Wert aus dem so angegebenen Intervall besitzen.

Der Sachverhalt ist in Abbildung B.2 verdeutlicht. Beispielsweise können von einem Parameter einer Messung nur ein minimal und ein maximal möglicher Wert  $a$  und  $b$  angegeben werden. Der Parameter ist zwar tatsächlich konstant, kann aber mit gleicher Wahrscheinlichkeit jeden Wert im Intervall  $[a, b]$  besitzen. Dies kann durch eine Rechteckverteilung mit Erwartungswert  $(a + b)/2$  und Standardabweichung  $(b - a)/\sqrt{12}$  beschrieben werden. Dem Parameter selbst wird dann die Größe  $(a + b)/2$  zugewiesen. Analog zur Behandlung statistischer Abweichungen wird der (systematische) Fehler des Parameters gleich der Standardabweichung  $(b - a)/\sqrt{12}$  gesetzt.

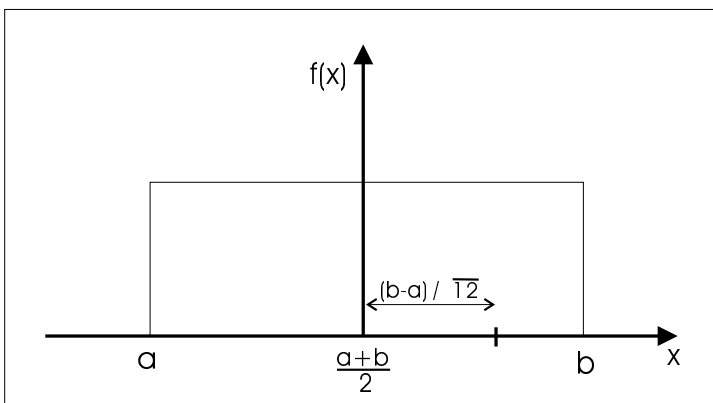


Abbildung B.2: Rechteckverteilung  $f(x)$  über einem Intervall mit den Grenzen  $a$  und  $b$  ( $a < b$ ). Der Erwartungswert ist  $(a+b)/2$ , die Standardabweichung beträgt  $(b - a)/\sqrt{12}$ .

## B.2 Das Fehlerfortpflanzungsgesetz nach Gauß

Da auch systematische Fehler gewissermaßen eine statistische Komponente haben (siehe oben), ist es bei der weiteren Fehlerbetrachtung nicht mehr notwendig, systematische und statistische Fehler zu unterscheiden.

Hängt eine Meßgröße  $f$  von den Parametern  $x_1, x_2, \dots, x_n$  mit den Fehlern  $\sigma_{x_1}, \sigma_{x_2}, \dots, \sigma_{x_n}$  ab, dann ergibt sich ihr Fehler  $\sigma_f$  aus dem Fehlerfortpflanzungsgesetz nach Gauß:

$$f = f(x_1, x_2, \dots, x_n) \Rightarrow$$
$$\sigma_f = \sqrt{\sum_{i=1}^n \left(\frac{\partial f}{\partial x_i}\right)^2 \sigma_{x_i}^2}$$

**Herleitung:**

$$f = f(x_1, x_2, \dots, x_n)$$
$$= f(\bar{x}_1 + \Delta x_1, \bar{x}_2 + \Delta x_2, \dots, \bar{x}_n + \Delta x_n)$$

Die Taylorentwicklung 1. Ordnung

$$f = f(\bar{x}_1 + \Delta x_1, \bar{x}_2 + \Delta x_2, \dots, \bar{x}_n + \Delta x_n)$$
$$\simeq f(\bar{x}_1, \bar{x}_2, \dots, \bar{x}_n) + \sum_{i=1}^n \left(\frac{\partial f}{\partial x_i}\right) \Delta x_i$$

liefert die quadratische Abweichung:

$$\left(\sum_{i=1}^n \left(\frac{\partial f}{\partial x_i}\right) \Delta x_i\right)^2 = \sum_{i=1}^n \left(\frac{\partial f}{\partial x_i}\right)^2 \Delta x_i^2 + \sum_{k \neq l} \left(\frac{\partial f}{\partial x_k}\right) \left(\frac{\partial f}{\partial x_l}\right) \Delta x_k \Delta x_l.$$

Sind die  $x_i$  statistisch unabhängig so ist die zweite Summe gleich Null und mit  $\Delta x_i \hat{=} \sigma_{x_i}$  ergibt sich das Fehlerfortpflanzungsgesetz nach Gauß:

$$\sigma_f = \sqrt{\sum_{i=1}^n \left(\frac{\partial f}{\partial x_i}\right)^2 \sigma_{x_i}^2}$$

### B.3 Wiederholte Messung einer einzelnen Größe

Wird eine Größe  $f$   $n$ -mal gemessen, und ist der Fehler für alle Meßwerte  $f_i$  gleich, so wird der Wert von  $f$  gleich dem Mittelwert der Messungen gesetzt:

$$\bar{f} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n f_i.$$

Die Standardabweichung  $\sigma_f$  ist

$$\sigma_f = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (f_i - \bar{f})^2}{n-1}}.$$

Der Fehler der Größe  $f$  ist gleich dem Fehler des Mittelwertes bzw. dem Standardfehler, also:

$$\sigma_{\bar{f}} = \frac{\sigma_f}{\sqrt{n}}.$$

Haben die Meßwerte  $f_i$  unterschiedliche Fehler  $\sigma_i$  so wird der Wert von  $f$  gleich dem fehlergewichteten Mittelwert der Messungen gesetzt:

$$\bar{f} = \frac{\sum_{i=1}^n \frac{f_i}{\sigma_i^2}}{\sum_{i=1}^n \frac{1}{\sigma_i^2}}.$$

Der Fehler von  $\bar{f}$  kann auf zwei Arten bestimmt werden. Wendet man das Fehlerfortpflanzungsgesetz nach Gauß auf  $\bar{f}$  an, setzt man statistische Unabhängigkeit der einzelnen Messungen voraus.

$$\sigma_{int}^2 = \frac{1}{\sum_{i=1}^n \frac{1}{\sigma_i^2}}.$$

Dieser sogenannte innere oder interne Fehler  $\sigma_{int}$  beschreibt die statistische Schwankung der einzelnen Meßwerte untereinander, wenn keine systematischen Abweichungen vorhanden sind. Systematische Abweichungen werden betrachtet, wenn man die Definition des Standardfehlers mit Gewichten verwendet:

$$\sigma_{ext}^2 = \frac{1}{n} \cdot \frac{\sum_{i=1}^n \frac{(f_i - \bar{f})^2}{\sigma_i^2}}{\sum_{i=1}^n \frac{1}{\sigma_i^2}}.$$

Im Idealfall sind  $\sigma_{int}$  und  $\sigma_{ext}$  identisch. Als Fehler für  $\bar{f}$  verwendet man

$$\sigma_{\bar{f}} = \max(\sigma_{int}, \sigma_{ext}).$$

## Vertrauensbereich einer Meßgröße mit Fehlerangabe

Wird ein rein statistischer Fehler mittels einer Normalverteilung bestimmt, so bedeutet dies, daß der wahre Wert der Meßgröße mit 68% Wahrscheinlichkeit im Intervall  $N \pm \sqrt{N}$  liegt. Wie groß ist aber das Vertrauensniveau, wenn ein Fehler mit dem Fehlerfortpflanzungsgesetz nach Gauß bestimmt wurde? Gerade die für systematische Fehler angenommene Rechteckverteilung weicht besonders stark von einer Normalverteilung ab und besitzt bei Angabe von  $1\sigma$  nur ein Vertrauensniveau von 58%.

Nach dem zentralen Grenzwertsatz strebt jede Kombination von Verteilungen wieder gegen eine Normalverteilung. Deshalb wird in erster Näherung angenommen, daß nach einer Fehlerfortpflanzung nach Gauß das Vertrauensniveau immer noch 68% beträgt. Es gilt:

$$1\sigma \hat{=} 68\%$$

$$2\sigma \hat{=} 95\%$$

$$3\sigma \hat{=} 99\%.$$





## Anhang C

# Beispiele für die Auswertung bei Beta- und Alpha-Zählung

### C.1 Beta-Zählung

Jede Probe wird in zwei Behälter abgefüllt. Jeder Behälter wird auf zwei Positionen des Beta-Zählers gemessen, so daß jede Probe vier Positionen durchläuft. Wie im folgenden dargestellt, werden nach der Berechnung der Dosisleistung mit Fehler die vier Werte kombiniert.

#### Berechnung der Dosisleistung für eine Position

$$\dot{D}_\beta = \text{UFS} \cdot (\text{CPM} - \text{Blind})$$

mit

- $\dot{D}_\beta$  = gesuchte Dosisleistung
- UFS = Umrechnungsfaktor (aus der Zählrate und der  $\beta$ -Dosisleistung des Referenzmaterials ermittelt)
- CPM = Counts per minute (Ausgabe des Zählers)
- Blind = Blindwert für die Position

Für die Nussi-Messung vom 11.2.2001 auf Position 1 ergibt sich damit eine Dosisleistung von 1.588 mGy/a (UFS =  $0.3371 \pm 0.0018$ , CPM = 4.87 mit Fehler 1.2 %, Blind = 0.16 mit Fehler 2.4 %). Der Sollwert für Nussi beträgt 1.513 mGy/a. Der kleinste gemessene Wert für die CPM lag bis jetzt bei 2.5 .

#### Fehlerberechnung

*Statistische Fehler:*  $\sigma_{\text{CPM}}$  und  $\sigma_{\text{Blind}}$  werden vom Beta-Zähler ausgegeben.

*Systematische Fehler:* Es wird ein Wert von 5% angenommen. Dieser beinhaltet den Fehler des Umrechnungsfaktors (ca. 0.5 %, fehlerhaft bekannter Gehalt an Uran und Thorium sowie Zählfehler des Referenzmaterials), Starke Abweichungen der Probenzusammensetzung vom Referenzmaterial (Blacky: Thorium 9.79  $\mu\text{g/g}$ , Uran 2.43  $\mu\text{g/g}$ , Kalium 1.9 %) und intrinsische Fehler des Beta-Zählers (Schwankungen der Hochspannung und des Zählgasflusses).

$$\begin{aligned}
\sigma_{\dot{D}_\beta} &= \dot{D}_\beta \cdot \sqrt{\left(\frac{\sigma_{\text{CPM}}}{\text{CPM}-\text{Blind}}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{\text{Blind}}}{\text{CPM}-\text{Blind}}\right)^2 + 0.05^2} \\
&= 1.588 \text{ mGy/a} \cdot \sqrt{1.54 \cdot 10^{-4} + 6.65 \cdot 10^{-7} + 2.5 \cdot 10^{-3}} \\
&= 0.082 \text{ mGy/a}
\end{aligned}$$

Der Fehler des Blindwerts kann damit vernachlässigt werden, selbst wenn der kleinste gemessene Wert für die CPM betrachtet wird:

$$\sigma_{\dot{D}_\beta} = \dot{D}_\beta \cdot \sqrt{\left(\frac{\sigma_{\text{CPM}}}{\text{CPM} - \text{Blind}}\right)^2 + 0.05^2}$$

### Berechnung der mittleren Dosisleistung mit Fehler

Zur Berechnung der  $\beta$ -Dosisleistung werden die Dosisleistungen  $\dot{D}_{\beta i}$  aus den 4 Positionen kombiniert. Die Fehler  $\sigma_{\dot{D}_{\beta i}}$  sind dabei unterschiedlich.

Die mittlere  $\beta$ -Dosisleistung  $\overline{\dot{D}_\beta}$  ergibt sich aus

$$\overline{\dot{D}_\beta} = \frac{\sum_{i=1}^4 \frac{\dot{D}_{\beta i}}{\sigma_{\dot{D}_{\beta i}}^2}}{\sum_{i=1}^4 \frac{1}{\sigma_{\dot{D}_{\beta i}}^2}}$$

Der Fehler der Dosisleistung ist:

$$\sigma_{\overline{\dot{D}_\beta}} = \max(\sigma_{\text{int}}, \sigma_{\text{ext}})$$

mit

$$\sigma_{\text{int}}^2 = \frac{1}{\sum_{i=1}^4 \frac{1}{\sigma_{\dot{D}_{\beta i}}^2}} \quad \text{und} \quad \sigma_{\text{ext}}^2 = \frac{1}{4} \cdot \frac{\sum_{i=1}^4 \frac{(\dot{D}_{\beta i} - \overline{\dot{D}_\beta})^2}{\sigma_{\dot{D}_{\beta i}}^2}}{\sum_{i=1}^4 \frac{1}{\sigma_{\dot{D}_{\beta i}}^2}}$$

Beispiele:

Nussi-Messungen vom 29.1.-11.2.2001; Sollwert der Dosisleistung 1.513 mGy/a (Thorium 7.8  $\mu\text{g/g}$ , Uran 2.87  $\mu\text{g/g}$ , Kalium 1.1 %); Referenzmaterial Blacky

Position	CPM	$\sigma_{\text{CPM}}$ in %	Blind	UFS	$\dot{D}_\beta$ in mGy/a	$\sigma_{\dot{D}_\beta}$ in mGy/a
1	4.87	1.2	0.16	0.3371	1.588	0.082
2	4.91	1.2	0.13	0.3319	1.587	0.082
3	4.73	0.9	0.13	0.3538	1.628	0.083
4	4.90	1.2	0.12	0.3409	1.630	0.084
					1.608	int: 0.041 ext: 0.010

Poddy-Messungen vom 12.3.-25.3.2001; Sollwert der Dosisleistung ( $2.35 \pm 0.03$ ) mGy/a (Thorium  $9.52 \mu\text{g/g}$ , Uran  $2.63 \mu\text{g/g}$ , Kalium  $2.04 \%$ ); Referenzmaterial Blacky

Position	CPM	$\sigma_{CPM}$ in %	Blind	UFS	$\dot{D}_\beta$ in mGy/a	$\sigma_{\dot{D}_\beta}$ in mGy/a
1	6.98	0.6	0.16	0.3371	2.299	0.12
2	6.94	0.6	0.13	0.3319	2.260	0.11
3	6.61	0.5	0.13	0.3538	2.293	0.12
4	6.76	0.5	0.12	0.3409	2.264	0.11
					2.279	int: 0.057 ext: 0.009

Während die Dosisleistung von Poddy im  $2\sigma$  Fehlerbereich richtig wiedergegeben wird, ist dies bei Nussi nur im Bereich  $3\sigma$  möglich. Die größere Abweichung wird durch den stark unterschiedlichen Kaliumgehalt von Blacky und Nussi hervorgerufen. Zusätzlich enthalten Blacky und Poddy einen geringeren Anteil  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{137}\text{Cs}$ , die sich ebenfalls auf die  $\beta$ -Dosisleistung auswirken.

## C.2 Alpha-Zählung

Jede Probe wird nur einmal gemessen. Der  $\alpha$ -Zähler liefert die folgenden Werte jeweils mit Fehlerangabe; als Beispiel ist die Messung von Nussi vom Juli 1999 aufgeführt:

- Mean Counts pro 1000 s (MC;  $9.097 \pm 0.123$ )
- Thorium Mean Counts pro 1000 s (ThMC;  $3.873 \pm 0.428$ )
- Uran Mean Counts pro 1000 s (UMC;  $5.224 \pm 0.445$ )

Der kleinste bis jetzt gemessene Wert für die Mean Counts lag bei ca. 5 pro 1000 s. Der Blindwert („Ugrund“) lag im April 2000 bei  $0.045 \pm 0.009$ .

### Berechnung der Dosisleistung und der U- und Th- Gehalte

$$\begin{aligned} \text{gesuchte Dosisleistung: } \dot{D}_\alpha &= 1.27 \cdot (\text{MC} - \text{Ugrund}) \\ &= 11.496 \text{ mGy/a} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{Thorium-Gehalt: } \text{Th} &= \text{ThMC} / 0.483 \\ &= 8.019 \mu\text{g/g} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{Uran-Gehalt: } \text{U} &= (\text{UMC} - \text{Ugrund}) / 1.67 \\ &= 3.10 \mu\text{g/g} \end{aligned}$$

Die Faktoren wurden den Tabellen von Adamiec und Aitken (1998) entnommen. Die Sollwerte für Nussi betragen  $11.022 \text{ mGy/a}$  und  $7.8 \mu\text{g/g}$  für Thorium bzw.  $2.87 \mu\text{g/g}$  für Uran.

## Fehlerberechnung

*Statistische Fehler:*  $\sigma_{MC}$ ,  $\sigma_{Ugrund}$ ,  $\sigma_{ThMC}$  und  $\sigma_{UMC}$  werden vom Gerät ausgegeben.

*Systematische Fehler:* Es wird ein pauschaler Wert von 5% angenommen. Dieser beinhaltet u.a. die Fehler im Uran- und Thorium-Gehalt des Standards und damit eine fehlerhafte Einstellung der Hochspannung am Alpha-Zähler (Blacky:  $\dot{D}_\alpha = (11.64 \pm 0.29)$  mGy/a, also 2.5 % Fehler), die Empfindlichkeitsschwankungen der ZnS-Scheibchen und Fehler in den Umrechnungsfaktoren.

$$\begin{aligned}\sigma_{\dot{D}_\alpha} &= \dot{D}_\alpha \cdot \sqrt{\left(\frac{\sigma_{MC}}{MC-Ugrund}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{Ugrund}}{MC-Ugrund}\right)^2 + 0.05^2} \\ &= 11.496 \text{ mGy/a} \cdot \sqrt{1.846 \cdot 10^{-4} + 1.006 \cdot 10^{-6} + 2.5 \cdot 10^{-3}} \\ &= 0.60 \text{ mGy/a} \\ \sigma_{Th} &= Th \cdot \sqrt{\left(\frac{\sigma_{ThMC}}{ThMC}\right)^2 + 0.05^2} \\ &= 8.019 \text{ } \mu\text{g/g} \cdot \sqrt{0.012 + 2.5 \cdot 10^{-3}} \\ &= 0.97 \text{ } \mu\text{g/g} \\ \sigma_U &= U \cdot \sqrt{\left(\frac{\sigma_{UMC}}{UMC-Ugrund}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{Ugrund}}{UMC-Ugrund}\right)^2 + 0.05^2} \\ &= 3.10 \text{ } \mu\text{g/g} \cdot \sqrt{2.4 \cdot 10^{-3} + 2.5 \cdot 10^{-5} + 2.5 \cdot 10^{-3}} \\ &= 0.22 \text{ } \mu\text{g/g}\end{aligned}$$

Der Beitrag des Untergrundfehlers ist damit vernachlässigbar und die Fehler können letztlich folgendermaßen berechnet werden:

$$\begin{aligned}\sigma_{\dot{D}_\alpha} &= \dot{D}_\alpha \cdot \sqrt{\left(\frac{\sigma_{MC}}{MC-Ugrund}\right)^2 + 0.05^2} \\ \sigma_{Th} &= Th \cdot \sqrt{\left(\frac{\sigma_{ThMC}}{ThMC}\right)^2 + 0.05^2} \\ \sigma_U &= U \cdot \sqrt{\left(\frac{\sigma_{UMC}}{UMC-Ugrund}\right)^2 + 0.05^2}\end{aligned}$$

# Anhang D

## Ergänzungen zur Gammaskpektrometrie

### D.1 Chemische Zusammensetzungen der Proben und Referenzmaterialien aus Abbildung 4.6

Referenzmaterial	O	Si	Al	Ca	Fe	Mg	K	Na	Ti
Nussi	45.9	30.0	4.16	14.9	2.1	1.6	1.4		0.05
Flossi	49.2	35.2	7.7	0.3	0.8	0.08	4.23	2.4	0.09
Tony	49.9	31.7	12.58	0.59	1.53	0.56	1.74	0.15	0.87

Tabelle D.1: Chemische Zusammensetzung der Referenzmaterialien aus Abbildung 4.6; Angaben in Gewichtsprozent. (aus Rieser (1991))

Probe	SiO <sub>2</sub>	TiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	MnO	MgO	CaO	Na <sub>2</sub> O	K <sub>2</sub> O	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>
HDS725	72.64	0.72	13.15	4.72	0.10	1.29	0.95	1.09	2.36	0.20
HDS728	78.64	0.76	8.94	3.49	0.12	0.88	0.76	1.20	1.97	0.13
HDS779	50.62	0.75	14.91	6.85	0.10	4.09	8.31	2.13	3.46	0.16
HDS1027	31.24	0.42	8.64	4.31	0.12	1.60	50.63	0.13	1.28	0.11
HDS1035	41.44	0.65	10.63	6.67	0.46	1.48	21.25	0.24	1.48	0.06

Tabelle D.2: Chemische Zusammensetzung der Proben aus Abbildung 4.6; Angaben in Gewichtsprozent. Die Werte wurden mittels Röntgenfluoreszenzanalyse bestimmt. HDS725: Feuchtschwarzerde, HDS728: Kolluvium (beide beschrieben in Kadereit (2000)); HDS779: schluffiger Ton aus dem Industal; HDS1027 und HDS1035: carbonatreiche Proben aus dem Becken von Phlious (beschrieben in Fuchs (2001)).

## D.2 Beispiele für die Auswertung bei der Gammaskpektrometrie

### Berechnung eines Gehalts mit Fehler aus einer einzelnen Linie

Aufgrund der unterschiedlichen Auswertungsprogramme werden die Gehalte aus einzelnen Linien beim alten Gammaskpektrometer leicht anders berechnet als bei den beiden neuen Spektrometern FH und ADC. Dementsprechend unterscheidet sich auch die Fehlerrechnung.

#### Altes Gammaskpektrometer

Beim alten Spektrometer müssen die Kanäle eines Peaks von Hand markiert werden. Der Untergrund wird aus den ersten und letzten 3 Kanälen des markierten Bereichs berechnet. Die Zählrate entspricht den aufsummierten Zählereignissen abzüglich des Untergrunds.

Berechnung eines Gehalts aus einer einzelnen Linie:

$$X_P = X_S \cdot \frac{\frac{1}{M_P} \cdot \left( \frac{NC_P}{T_P} - \frac{NC_{Bl}}{T_{Bl}} \right) \cdot \frac{1}{GF_P} \cdot \frac{\mu_P \cdot d_P}{1 - e^{-\mu_P \cdot d_P}}}{\frac{1}{M_S} \cdot \left( \frac{NC_S}{T_S} - \frac{NC_{Bl}}{T_{Bl}} \right) \cdot \frac{1}{GF_S} \cdot \frac{\mu_S \cdot d_S}{1 - e^{-\mu_S \cdot d_S}}}$$

mit (P = Probe, S = Standard bzw. Referenzmaterial, Bl = Blindwert)

- X Gehalt an Th, U oder K
- M Masse
- NC Nettocounts, also Counts abzüglich Untergrund
- T Meßdauer
- GF Geometriefaktor (abhängig von der Füllhöhe)
- d Massenbelegung = Dichte · Füllhöhe =  $\frac{\text{Masse}}{\text{Grundfläche}} = \frac{\text{Masse}}{15.904 \text{ cm}^2}$
- $\mu$  Massenschwächungskoeffizient; da der Wert unbekannt ist, wird der Koeffizient von Nussi verwendet

Fehlerberechnung:

statistische Fehler:

- $\sigma_{NC}$  Fehler der Nettocounts, beinhaltet bereits den Fehler des Untergrunds

systematische Fehler:

- $\sigma_{X_S}$  Fehler des Gehalts an Th, U oder K des Standards
- $\sigma_{\mu}$  Fehler des Massenschwächungskoeffizienten; als maximal mögliche Abweichung wird die Differenz  $\Delta\mu$  aus den Koeffizienten für Nussi und Quarz genommen; der Fehler selbst beträgt  $\frac{2 \cdot \Delta\mu}{\sqrt{12}} = \frac{\Delta\mu}{\sqrt{3}}$
- $\sigma_{GF}$  Fehler des Geometriefaktors; der Abstand zwischen Probe und Detektor schwankt um den Wert 9 mm; es wurde die Differenz der Geometriefaktoren  $\Delta GF$  für die Abstände 8 mm und 10 mm berechnet; der Fehler selbst beträgt  $\frac{\Delta GF}{\sqrt{12}}$

Masse und Meßdauer werden als nicht fehlerbehaftet angenommen. Ist die chemische Zusammensetzung des Referenzmaterials bekannt, kann der Massenschwächungskoeffizient direkt berechnet werden und wird ebenfalls als nicht fehlerbehaftet betrachtet.

$$\sigma_{X_P} = X_P \cdot \left( \begin{aligned} & \left( \frac{\frac{1}{T_P}}{\left(\frac{NC_P}{T_P} - \frac{NC_{Bl}}{T_{Bl}}\right)} \cdot \sigma_{NC_P} \right)^2 + \left( \frac{\frac{1}{T_S}}{\left(\frac{NC_S}{T_S} - \frac{NC_{Bl}}{T_{Bl}}\right)} \cdot \sigma_{NC_S} \right)^2 \\ & + \left( \frac{1}{T_{Bl}} \cdot \left( \frac{1}{\left(\frac{NC_S}{T_S} - \frac{NC_{Bl}}{T_{Bl}}\right)} - \frac{1}{\left(\frac{NC_P}{T_P} - \frac{NC_{Bl}}{T_{Bl}}\right)} \right) \cdot \sigma_{NC_{Bl}} \right)^2 \\ & + \left( \frac{\sigma_{X_S}}{X_S} \right)^2 + \left( \frac{\sigma_{GF_P}}{GF_P} \right)^2 + \left( \frac{\sigma_{GF_S}}{GF_S} \right)^2 \\ & + \left( \left( \frac{1}{\mu_P} - \frac{d_P \cdot e^{-\mu_P \cdot d_P}}{1 - e^{-\mu_P \cdot d_P}} \right) \cdot \sigma_{\mu_P} \right)^2 + \left( \left( \frac{1}{\mu_S} - \frac{d_S \cdot e^{-\mu_S \cdot d_S}}{1 - e^{-\mu_S \cdot d_S}} \right) \cdot \sigma_{\mu_S} \right)^2 \end{aligned} \right)^{\frac{1}{2}}$$

## Neue Gammaskpektrometer (FH und ADC)

Für die Spektren der beiden neuen Spektrometer steht ein Auswertungsprogramm zur Verfügung, das Zählrate und Untergrund über einen Gauß-Fit an die einzelnen Peaks ermittelt. Für die Auswertung wird die Aktivität benutzt, die das Programm aus den Counts berechnet. Der Behälter muß hier immer voll sein; es kommt also nur die Füllhöhe 14 mm vor und der Geometriefaktor entfällt bei der Berechnung.

Berechnung eines Gehalts aus einer einzelnen Linie:

$$X_P = X_S \cdot \frac{\frac{1}{M_P} \cdot A_P \cdot \frac{\mu_P \cdot d_P}{1 - e^{-\mu_P \cdot d_P}}}{\frac{1}{M_S} \cdot A_S \cdot \frac{\mu_S \cdot d_S}{1 - e^{-\mu_S \cdot d_S}}}$$

mit (P = Probe, S = Standard)

X Gehalt an Th, U oder K

M Masse

A Aktivität; sie wird aus der Anzahl der Nettocounts pro Zeit und linienspezifischen Faktoren berechnet; die Nettocounts (= Area) werden durch einen Gauß-Fit bestimmt, wobei vom resultierenden Signal der Untergrund (= Background) abgezogen wird:

Area = (Background + Area) - Background

d Massenbelegung = Dichte · Füllhöhe =  $\frac{\text{Masse}}{\text{Grundfläche}} = \frac{\text{Masse}}{15.904 \text{ cm}^2}$

$\mu$  Massenschwächungskoeffizient; da der Wert unbekannt ist, wird der Koeffizient von Nussi verwendet

Beispiel:

Nussi-Messung vom 28.11.00 auf dem FH ( $M_P = 32.45$  g); Standard: Blacky-Messung vom 22.2.01 ( $M_S = 26.35$  g)

Nuklid	Energie keV	$A_S$	$\sigma_{A_S}$ willk. Einh.	$A_P$	$\sigma_{A_P}$	$\mu_{P/S}$ $\text{cm}^2/\text{g}$	$\sigma_{\mu_{P/S}}$	$X_S$ % bzw. $\mu\text{g}/\text{g}$	$\sigma_{X_S}$	$X_P$
Kalium:										
K-40	1460.83	18.5	0.1652	13.68	0.2736	0.0524	0.0001	1.9015	0.033	1.1531
Uran:										
Pb-210	46.54	1.281	0.0555	0.8234	0.094	0.526	0.0981	3.81	0.28	2.1646
Th-234	63.29	0.5734	0.0438	0.8223	0.0929	0.307	0.0398	2.43	0.12	2.9848
Ra-226	186.21	2.038	0.098	2.441	0.1581	0.131	0.0012	2.43	0.12	2.4211
Pb-214	295.22	0.8672	0.0211	1.228	0.0384	0.109	0.0006	2.43	0.12	2.8512
	351.93	0.925	0.0138	1.365	0.0268	0.101	0	2.43	0.12	2.9670
	609.31	0.7542	0.0135	1.034	0.0269	0.0801	0	2.43	0.12	2.7461
Bi-214	1120.29	0.7973	0.0422	1.395	0.0872	0.06	0.0001	2.43	0.12	3.4916
	1764.49	1.132	0.0492	1.632	0.0966	0.0476	0	2.43	0.12	2.8705
Thorium:										
Ac-228	129.06	0.6506	0.0878	0.8793	0.1604	0.157	0.0046	9.79	0.17	11.0565
	209.25	1.213	0.0833	1.014	0.1285	0.125	0.0012	9.79	0.17	6.8004
	338.32	1.235	0.0366	1.084	0.0564	0.103	0.0006	9.79	0.17	7.1124
	911.20	1.325	0.0287	1.264	0.0528	0.0664	0.0001	9.79	0.17	7.6789
	968.97	1.235	0.039	1.211	0.0773	0.0645	0.0001	9.79	0.17	7.8903
Pb-212	238.63	1.172	0.0104	1.099	0.0207	0.118	0.0006	9.79	0.17	7.6189
Tl-208	583.19	0.3575	0.007	0.3233	0.0121	0.0815	0	9.79	0.17	7.2995
	2614.53	0.0025	0.00007	0.0028	0.0001	0.039	0	9.79	0.17	8.8872

Fehlerberechnung:

statistische Fehler:

- $\sigma_A$  Fehler der Aktivität; die linienbezogenen Faktoren zur Berechnung werden als nicht fehlerbehaftet angenommen;
- der Fehler der Nettocounts ist  $\sqrt{\text{Area} + 2 \cdot \text{Background}}$  ;
- der Gesamtfehler der Aktivität ist damit  $\frac{\sqrt{\text{Area} + 2 \cdot \text{Background}}}{\text{Area}} \cdot A$

systematische Fehler:

- $\sigma_{X_S}$  wie beim alten Gammaskontrometer
- $\sigma_\mu$

Masse und Meßdauer werden als nicht fehlerbehaftet angenommen. Ist die chemische Zusammensetzung des Referenzmaterials bekannt, kann der Massenschwächungskoeffizient direkt berechnet werden und wird ebenfalls als nicht fehlerbehaftet betrachtet.



$$\sigma_{X_P} = X_P \cdot \left( \left( \frac{\sigma_{X_S}}{X_S} \right)^2 + \left( \frac{\sigma_{A_P}}{A_P} \right)^2 + \left( \frac{\sigma_{A_S}}{A_S} \right)^2 + \left( \left( \frac{1}{\mu_P} - \frac{d_P \cdot e^{-\mu_P \cdot d_P}}{1 - e^{-\mu_P \cdot d_P}} \right) \cdot \sigma_{\mu_P} \right)^2 + \left( \left( \frac{1}{\mu_S} - \frac{d_S \cdot e^{-\mu_S \cdot d_S}}{1 - e^{-\mu_S \cdot d_S}} \right) \cdot \sigma_{\mu_S} \right)^2 \right)^{\frac{1}{2}}$$

$$\sigma_{X_P} = X_P \cdot (\text{Term 1} + \text{Term 2} + \text{Term 3} + \text{Term 4} + \text{Term 5})^{\frac{1}{2}}$$

Nuklid	Energie keV	Term 1	Term 2	Term 3	Term 4	Term 5	$\sigma_{X_P}$ % bzw. $\mu\text{g/g}$	$X_P$ $\mu\text{g/g}$	$\bar{X}$ $\mu\text{g/g}$
Kalium:									
K-40	1460.83	0.0003	0.0004	$8 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-8}$	$9 \cdot 10^{-9}$	0.0322	1.1531	
Uran:									
Pb-210	46.54	0.0054	0.0130	0.0019	0.0068	0.0049	0.3870	2.1646	
Th-234	63.29	0.0024	0.0128	0.0058	0.0013	0.0009	0.4554	2.9848	
Ra-226	186.21	0.0024	0.0042	0.0023	$1 \cdot 10^{-6}$	$9 \cdot 10^{-7}$	0.2290	2.4211	2.815
Pb-214	295.22	0.0024	0.0010	0.0006	$3 \cdot 10^{-7}$	$2 \cdot 10^{-7}$	0.1805	2.8512	int: 0.079
	351.93	0.0024	0.0004	0.0002	0	0	0.1638	2.9670	ext: 0.093
Bi-214	609.31	0.0024	0.0007	0.0003	0	0	0.1610	2.7461	
	1120.29	0.0024	0.0039	0.0028	$1 \cdot 10^{-8}$	$9 \cdot 10^{-9}$	0.3339	3.4916	
	1764.49	0.0024	0.0035	0.0019	0	0	0.2540	2.8705	
Thorium:									
Ac-228	129.06	0.0003	0.0333	0.0182	$2 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-5}$	2.5167	11.0565	
	209.25	0.0003	0.0161	0.0047	$1 \cdot 10^{-6}$	$9 \cdot 10^{-7}$	0.9874	6.8004	
	338.32	0.0003	0.0027	0.0009	$3 \cdot 10^{-7}$	$2 \cdot 10^{-7}$	0.4435	7.1124	7.62
	911.20	0.0003	0.0017	0.0005	$1 \cdot 10^{-8}$	$9 \cdot 10^{-9}$	0.3850	7.6789	int: 0.14
	968.97	0.0003	0.0041	0.0010	$1 \cdot 10^{-8}$	$9 \cdot 10^{-9}$	0.5783	7.8903	ext: 0.16
Pb-212	238.63	0.0003	0.0004	$8 \cdot 10^{-5}$	$3 \cdot 10^{-7}$	$2 \cdot 10^{-7}$	0.2066	7.6189	
Tl-208	583.19	0.0003	0.0014	0.0004	0	0	0.3340	7.2995	
	2614.53	0.0003	0.0025	0.0008	0	0	0.5354	8.8872	

## Berechnung des Gesamtgehalts an Uran oder Thorium mit Fehler

Da der Gehalt an Kalium nur mittels einer einzigen Linie bestimmt wird, sind für dieses Nuklid keine weiteren Schritte nötig. Zur Berechnung des Gehalts an Thorium werden die aus den 8 Linien bestimmten Gehalte  $X_i$  kombiniert. Beim Urangehalt werden gemäß dem Vorschlag von Rieser (1991) nur die 3 Linien bei den Energien 295.22 keV, 351.93 keV und 609.31 keV zur Berechnung herangezogen. Die Fehler  $\sigma_{X_i}$  sind dabei unterschiedlich.

Der Gesamtgehalt  $\bar{X}$  ergibt sich aus

$$\bar{X} = \frac{\sum_{i=1}^n \frac{X_i}{\sigma_{X_i}^2}}{\sum_{i=1}^n \frac{1}{\sigma_{X_i}^2}}$$

$n$  ist die Anzahl der Linien, also  $n = 3$  für Uran und  $n = 8$  für Thorium.

Der Fehler des Gehalts ist:

$$\sigma_{\bar{X}} = \max(\sigma_{\text{int}}, \sigma_{\text{ext}}).$$

mit

$$\sigma_{\text{int}}^2 = \frac{1}{\sum_{i=1}^n \frac{1}{\sigma_{X_i}^2}} \quad \text{und} \quad \sigma_{\text{ext}}^2 = \frac{1}{n} \cdot \frac{\sum_{i=1}^n \frac{(X_i - \bar{X})^2}{\sigma_{X_i}^2}}{\sum_{i=1}^n \frac{1}{\sigma_{X_i}^2}}.$$

## Anhang E

# Berechnung der Geometriefaktoren bei der Gamma-spektrometrie

### E.1 Analytisches Verfahren

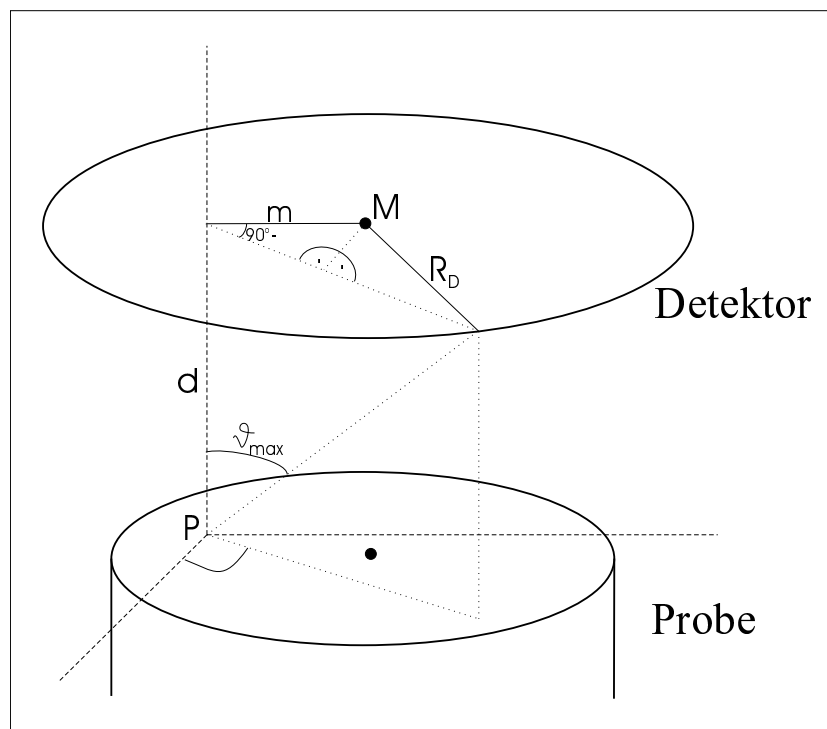


Abbildung E.1: Skizze zur analytischen Berechnung des Geometriefaktors.  $M$  markiert den Mittelpunkt der Detektorgrundfläche,  $P$  einen beliebigen Punkt innerhalb der Probe.

Von jedem Punkt der Probe aus gesehen erscheint der Detektor unter einem anderen Raumwinkel. Setzt man diesen Raumwinkel ins Verhältnis zu  $4\pi$  (Winkel des vollen Raumes), so erhält man die Wahrscheinlichkeit, daß die von diesem Punkt ausgehende Strahlung tatsächlich den Detektor trifft. Integriert man über alle Punkte der Probe und normiert auf das Probenvolumen, so erhält man den gesuchten Geometriefaktor. Die Bedeutung der bei der folgenden Berechnung verwendeten Variablen läßt sich aus Abbildung E.1 ablesen.

Der Raumwinkel innerhalb der Integrationsgrenzen ist definiert als

$$\Omega = \int \int \sin \vartheta \, d\vartheta \, d\varphi .$$

In unserem Fall kann  $\varphi$  Werte von 0 bis  $2\pi$  annehmen, während  $\vartheta$  auf einen Bereich von 0 bis  $\vartheta_{max}$  beschränkt ist.  $\vartheta_{max}$  hängt dabei vom Winkel  $\varphi$  ab, vom vertikalen Abstand  $d$  des Punktes zum Detektor und vom horizontalen Abstand  $m$  des Punktes vom Probenmittelpunkt:

$$\cos \vartheta_{max} = \frac{d}{\sqrt{d^2 + \left( m \sin \varphi + \sqrt{R_D^2 - m^2 \cos^2 \varphi} \right)^2}} .$$

$R_D^2$  ist der Detektorradius. Der Raumwinkel, unter dem der Detektor von einem Punkt aus erscheint, ist damit:

$$\Omega = \int_0^{2\pi} \int_0^{\vartheta_{max}} \sin \vartheta \, d\vartheta \, d\varphi = \int_0^{2\pi} \left[ \frac{-d}{\sqrt{d^2 + \left( m \sin \varphi + \sqrt{R_D^2 - m^2 \cos^2 \varphi} \right)^2}} + 1 \right] d\varphi .$$

Beim Integral über das gesamte Probenvolumen wird ausgenutzt, daß die Probenbehälter eine zylindrische Form haben. Das entsprechende Volumenelement in Zylinderkoordinaten hat die Form  $m \, dm \, d\omega \, dd$ .  $\omega$  kann wieder Werte von 0 bis  $2\pi$  annehmen,  $m$  ist auf den Bereich von 0 bis zum Probenradius  $R_P$  beschränkt.  $d$  variiert zwischen dem minimalen Abstand  $D$  vom Detektor und  $D+H$ , wodurch die Abhängigkeit von der Füllhöhe  $H$  entsteht. Das Integral muß noch auf das Probenvolumen  $R_P^2 \pi H$  und den Raumwinkel  $4\pi$  normiert werden. Der Geometriefaktor  $GF$  für die Füllhöhe  $H$  ergibt sich dann aus

$$\begin{aligned} GF &= \frac{1}{4\pi \cdot R_P^2 \pi H} \\ &= \int_0^{2\pi} \int_0^{2\pi} \int_0^{R_P} \int_D^{D+H} \left[ \frac{-d}{\sqrt{d^2 + \left( m \sin \varphi + \sqrt{R_D^2 - m^2 \cos^2 \varphi} \right)^2}} + 1 \right] \cdot m \, dd \, dm \, d\omega \, d\varphi . \end{aligned}$$

Zur Berechnung wurden folgende Werte verwendet:  $R_P = 22.5$  mm,  $D = 9$  mm,  $R_D = 25.5$  mm,  $H = 0$  bis 14 mm.

## E.2 Monte-Carlo-Programm zur Berechnung der Geometriefaktoren

```

/*****
/*****
/**                                     **/
/** Monte-Carlo-Simulation             **/
/**                                     **/
/*****
/*****

#include "montecarlo.h" #include <stdio.h> #include <stdlib.h> #include <math.h>

/* ===== */
/* main subroutine */
/* ===== */

int main (void) {
    long int    iterationen,i, random_seed, maxit=10000,counter=0,
                outputstep,*wegvert;
    int         columns,ii;
    double      fuellhoehe, dabstand, dradius, pradius, pradius2, gfaktor,
                x,y,z, theta, phi, x2, y2,kl,t1,t2,
                pi,costheta,sintheta,dradius2,dummy,wegmin,wegmax,weg,cosphi,
                sinphi,tantheta;
    FILE        *file;

    pi = acos(-1.0);

    iterationen = 100000000;          /* Zahl der Iterationen */
    outputstep  = 100000;
    fuellhoehe  = 10.0;               /* Fuellhoehe der Probe */
    dabstand    = 9;                 /* Abstand Probe-Detektor, Detektor bei z=0
                                     Probe: dabstand<z<dabstand+fuellhoehe */
    dradius     = 25.5;              /* Detektorradius */
    pradius     = 22.5;              /* Probenradius */
    random_seed = 137;               /* first random seed */

    dradius2 = dradius*dradius;
    pradius2 = pradius*pradius;
    columns = 100;
    wegmin = 0.0;                    /* minimale Weglaenge */
    wegmax = sqrt(fuellhoehe*fuellhoehe+pradius2*4.0); /* maximale Weglaenge */
    wegmax = 100.0; /* maximale Weglaenge */

    printf("MonteCarlo 1 V 0.9\n\n");
    printf("Fuellhoehe (mm) ? ");

```

```

scanf("%lf",&fuellhoehe);
printf("\n*** %f ***\n",fuellhoehe);
printf("\nIterationen (mal 1E6) ? ");
scanf("%li",&iterationen);
printf("\n*** %i ***\n",iterationen);
iterationen *= 1000000;

printf("\n\n.....hm.....knifflig.....\n\n");

/* Anlegen der Tabelle fuer die Weglaengenverteilung und auf null setzen */

wegvert = calloc( columns, sizeof(long int) );
for (ii=0; ii<columns; ii++)
    *(wegvert+ii) = 0;

for (i=0; i<iterationen; i++)
{
    do
    {
        /* Auswuerfeln eines Punktes innerhalb der Probe */

        z = ran2(&random_seed);
        y = ran2(&random_seed);
        x = ran2(&random_seed);

    } while ((x*x+y*y)>1.0); /* x und y in der Probe ? */

    /* Auswuerfeln der Richtungswinkel */

    theta = acos((costheta=(2.0*ran2(&random_seed)-1.0)));
    phi    = 2.0*pi*ran2(&random_seed);

    if ( cos(theta) > 0.0) /* sonst kann kein Treffer stattfinden !! */
    {
        x2 = (x*=pradius) + (dummy=((-(z*=fuellhoehe) + dabstand + fuellhoehe) *
            (tantheta=((sintheta=sin(theta))/(costheta)) )))
            * (cosphi=cos(phi));
        y2 = (y*=pradius) + dummy * (sinphi=sin(phi));

        if ((x2*x2+y2*y2)<=dradius2)
        {
            int dum;

            counter++; /* Treffer ! */

            x2 = x + (dummy=((-z + fuellhoehe) * tantheta)) * cosphi;
            y2 = y + dummy * sinphi;

            if (x2*x2+y2*y2<=pradius2)
                weg = (fuellhoehe-z)/costheta;
            else

```

```

    {
        t1 = (-(kl=(x*cosphi+y*sinphi))+
            sqrt(kl*kl-x*x-y*y+radius2))/tantheta;
        t2 = (-kl-sqrt(kl*kl-x*x-y*y+radius2))/tantheta;

        if (t1<=t2)
            weg=t2/costheta;
        else
            weg=t1/costheta;
    }

    /* finde die zugehoerige Spalte fuer die Weglaenge */

    if (weg>=wegmax || weg<wegmin)
    {
        printf("** Achtung: weglaenge zu klein oder zu gross !? *\n");
    }
    else
        wegvert[(dum=(int) floor((weg - wegmin) /
            (wegmax-wegmin) * ((double) columns)))]++;
}

}

/* Zwischendurchausgabe :) */

if ((i % outputstep)==0)
{
    printf ("Iteration# %i : Geometriefaktor %f\n",
        i,((double) counter / (double) i));

    file = fopen("gfaktor.dat","w");
    fprintf(file,"%f",((double) counter / (double) i));
    fclose(file);

    /* Wegverteilung */

    file = fopen("wegvert.dat","w");
    for (ii=0; ii<columns; ii++)
    {
        weg = ((double) ii) * (wegmax-wegmin) / columns + wegmin;

        fprintf(file,"%i\t%f\t%f\n",ii,weg,((double) wegvert[ii])/((double) counter));
    }
    fclose(file);
}

}

gfaktor = (double) counter / (double) iterationen;
printf("\nDer glorreiche Geometriefaktor ist %f !\n\n",gfaktor);

```

```

printf("Have a nice day and a good cup of tee\n\n");
return (0);
}

```

```

/* ===== */
/* ran2.c (Numerical Recipes) */
/* float replaced by double :- ) */
/* ===== */

```

```

#define IM1 2147483563 #define IM2 2147483399 #define AM (1.0/IM1) #define IMM1 (IM1-1)
#define IA140014 IA140014 #define IA2 40692 #define IQ1 53668 #define IQ2 52774
#define IR1 12211 #define IR2 3791 #define NTAB 32 #define NDIV (1+IMM1/NTAB)
#define EPS 1.2e-7 #define RNMX (1.0-EPS)

```

```

double ran2(long *idum) {
    int j;
    long k;
    static long idum2=123456789, iy=0, iv[NTAB];
    double temp;

    if (*idum <= 0)
    {
        if (-(*idum) < 1)
            *idum=1;
        else
            *idum = -(*idum);

        idum2=(*idum);

        for (j=NTAB+7; j>=0; j--)
        {
            k=(*idum)/IQ1;
            *idum=IA1*( *idum-k*IQ1)-k*IR1;

            if (*idum < 0)
                *idum += IM1;

            if (j < NTAB)
                iv[j] = *idum;
        }
        iy=iv[0];
    }
    k=(*idum)/IQ1;
    *idum=IA1*( *idum-k*IQ1)-k*IR1;

    if (*idum < 0)
        *idum += IM1;

    k=idum2/IQ2;

```



```

idum2=IA2*(idum2-k*IQ2)-k*IR2;

if (idum2 < 0)
    idum2 += IM2;

j=iy/NDIV;
iy=iv[j]-idum2;
iv[j] = *idum;

if (iy < 1)
    iy += IMM1;

if ((temp=AM*iy) > RNMX)
    return (RNMX);
else
    return (temp);
}

#undef IM1 #undef IM2 #undef AM #undef IMM1 #undef IA1 #undef IA2 #undef IQ1
#undef IQ2 #undef IR1 #undef IR2 #undef NTAB #undef NDIV #undef EPS #undef RNMX

/* ===== */
/* (C) Copr. 1986-92 Numerical Recipes Software 5.){2ptN75L:"52'. */
/* ===== */

```

Auswürfeln der Zufallszahlen nach Press et al. (1999)



# Literaturverzeichnis

- Adamiec, G. und M. J. Aitken (1998). *Dose-Rate Conversion Factors: Update*. Ancient TL **16**, 37–50.
- Aitken, M. J. (1974). *Physics and Archaeology* (1. Auflage). Clarendon Press, Oxford.
- Aitken, M. J. (1985). *Thermoluminescence Dating* (1. Auflage). Academic Press, London, Orlando, San Diego.
- Aitken, M. J. (1998). *An Introduction to Optical Dating: The Dating of Quaternary Sediments by the Use of Photon-Stimulated Luminescence* (1. Auflage). Oxford University Press, Oxford, New York, Tokyo.
- Aitken, M. J. und S. G. E. Bowman (1975). *Thermoluminescent Dating: Assessment of Alpha Particle Contribution*. Archaeometry **17**, 132–138.
- Aitken, M. J., M. S. Tite und J. Reid (1964). *Thermoluminescent Dating of Ancient Ceramics*. Nature **202**, 1032–1033.
- Aitken, M. J. und J. Xie (1990). *Moisture Correction for Annual Gamma Dose*. Ancient TL **8**, 6–9.
- Aitken, M. J., D. W. Zimmerman und S. J. Fleming (1968). *Thermoluminescent Dating of Ancient Pottery*. Nature **219**, 442–445.
- Akselrod, M. S., V. S. Kortov und E. Gorelova (1993). *Preparation and Properties of  $\alpha$ - $Al_2O_3:C$* . Radiat. Prot. Dosim. **47**, 159–164.
- Akselrod, M. S., V. S. Kortov, D. J. Kravetsky und G. V. I. (1990a). *Highly Sensitive Thermoluminescent Anion-Defective  $\alpha$ - $Al_2O_3:C$  Single Crystal Detectors*. Radiat. Protect. Dosim. **32**, 15–20.
- Akselrod, M. S., V. S. Kortov, D. J. Kravetsky und G. V. I. (1990b). *Highly Sensitive Thermoluminescent Anion-Defect  $\alpha$ - $Al_2O_3:C$  Single Crystal Detectors*. Radiat. Protect. Dosim. **33**, 119–122.
- Akselrod, M. S., S. W. S. McKeever, M. Moscovitch, D. Emfietzoglou, J. S. Durham und C. G. Soares (1996). *A Thin-Layer  $Al_2O_3:C$  Beta TL Detector*. Radiat. Prot. Dosim. **66**, 105–110.
- Barbouti, A. und B. Rastin (1983). *A Study of the Absolute Intensity of Muons at Sea Level and under Various Thicknesses of Absorber*. J. Pys. G: Nucl. Phys. **9**, 1577–1595.
- Bøtter-Jensen, L., E. Bulur, G. A. T. Duller und A. S. Murray (2000). *Advances in Luminescence Instrument Systems*. Radiat. Meas. **32**, 523–528.
- Bøtter-Jensen, L. und V. Mejdahl (1988). *Assessment of Beta Dose-Rate Using a GM Multi-counter System*. Nucl. Tracks Radiat. Meas. **14**, 187–191.

- Bøtter-Jensen, L. und S. P. Nielsen (1989). *Beta Multicounter Systems for Low-Level Measurements of Environmental Samples*. In *Proceedings of the 15th Regional Congress of IRPA, Visby, Gotland, Sweden*.
- Bulur, E. und H. Y. Göksu (1999). *Phototransferred Thermoluminescence from  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C Using Blue Light Emitting Diodes*. *Radiat. Meas.* **30**, 203–206.
- Colyott, L. E., M. S. Akselrod und S. W. S. McKeever (1996). *Phototransferred Thermoluminescence in  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C*. *Radiat. Prot. Dosim.* **65**, 263–266.
- Daniels, F., C. Boyd und D. F. Saunders (1953). *Thermoluminescence as a Research Tool*. *Science* **117**, 343–349.
- Debertin, K. und R. G. Helmer (1988). *Gamma- and X-Ray Spectrometry with Semiconductor Detectors* (1. Auflage). Elsevier Science Publishers B. V., Amsterdam, Oxford, New York.
- Duller, G. A. T. (1996a). *Luminescence Dating of Sediments Using Single Aliquots: New Procedures*. *Quart. Sc. Rev.* **13**, 149–156.
- Duller, G. A. T. (1996b). *Recent Developments in Luminescence Dating of Quaternary Sediments*. *Prog. Phys. Geog.* **20**, 127–145.
- Duller, G. A. T., L. Bøtter-Jensen und A. S. Murray (2000). *Optical Dating of Single Sand-Sized Grains of Quartz: Sources of Variability*. *Radiat. Meas.* **32**, 453–457.
- Fleming, S. J. (1966). *Study of Thermoluminescence of Crystalline Extracts from Pottery*. *Archaeometry* **9**, 170–173.
- Freidlander, M. W. (1989). *Cosmic Rays* (1. Auflage). Harvard University Press, Cambridge, Mass.
- Fuchs, M. (2001). *Die OSL-Datierung von Archäosedimenten zur Rekonstruktion anthropogen bedingter Sedimentablagerungen. Geoarchäologische Untersuchungen im Becken von Phlious, NE-Peloponnes, Griechenland*. Dissertation, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg.
- Gilmore, G. und J. D. Hemingway (1995). *Practical Gamma-Ray Spectrometry* (1. Auflage). John Wiley & Sons, Chichester, New York, Brisbane.
- Göksu, H. Y., E. Bulur und W. Wahl (1999). *Beta Dosimetry Using Thin-Layer  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:C Detectors*. *Radiat. Prot. Dosim.* **84**, 451–455.
- Gränicher, H. (1994). *Messung beendet – was nun?* (1. Auflage). Teubner, Zürich, Stuttgart.
- Greilich, S. und G. A. Wagner (2002). *Spatially High-Resolved OSL Technique: A Tool for Dating Stone Surfaces*. In *Studies on dating and Provenance of Materials for the Cultural Heritage*, Bologna, Italy. (To be published).
- Grogler, N., F. G. Houtermans und H. Stauffer (1960). *Über die Datierung von Keramik und Ziegel durch Thermolumineszenz*. *Helvetica Physica Acta* **33**, 595–596.
- Habermann, J. (2000). *Untersuchungen zur Lumineszenzdatierung von Gesteinsoberflächen*. Dissertation, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg.
- Haskell, E. A. (1983). *Beta Dose-Rate Determination: Preliminary Results from an Interlaboratory Comparison of Techniques*. *PACT* **9**, 77–86.
- Huntley, D. J., D. I. Godfrey-Smith und M. Thewalt (1985). *Optical Dating of Sediments*. *Nature* **313**, 105–107.

- Hütt, G., J. Jaek und J. Tchonka (1988). *Optical Dating: K-Feldspars Optical Response Stimulation Spectra*. Quart. Sc. Rev. **7**, 381–385.
- International Organization for Standardization (1995). *Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement* (2. Auflage). Switzerland.
- Ivanovich, M. und R. S. Harmon (1992). *Uranium Series Disequilibrium: Applications to Earth, Marine and Environmental Sciences* (2. Auflage). Clarendon Press, Oxford.
- Kadereit, A. (2000). *IR-OSL-datierte Kolluvien als Archive zur Rekonstruktion anthropogen bedingter Landschaftsveränderungen. Das Fallbeispiel Bretten-Bauerbach / Kraichgau*. Dissertation, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg.
- Kalchgruber, R., H. Y. Göksu, E. Hochhäuser und G. A. Wagner (2001). *Monitoring Environmental Dose Rate Using Risø TL/OSL Readers with Built in Sources : Recommendations for Users*. eingereicht.
- Kennedy, G. C. und L. Knopff (1960). *Dating by Thermoluminescence*. Archaeology **13**, 147–148.
- Kitis, G., S. Charalambous und J. W. N. tuyn (1996). *The Dose Response Function of  $\alpha$ - $Al_2O_3:C$  under Isothermal Decay Conditions*. Radiat. Prot. Dosim. **65**, 239–242.
- Knoll, G. F. (1999). *Radiation Detection and Measurement* (3. Auflage). John Wiley & Sons, Inc., New York, Chichester.
- Kortov, V. S., I. I. Milman und S. V. Nikiforov (1999). *The Effect of Deep Traps on the Main Features of Thermoluminescence in Dosimetric  $\alpha$ - $Al_2O_3$  Crystals*. Radiat. Prot. Dosim. **84**, 35–38.
- Krbetschek, M. R., U. Rieser, L. Zöller und J. Heinicke (1994). *Radioactive Disequilibria in Paleodosimetric Dating of Sediments*. Radiat. Meas. **23**, 485–489.
- Kuhn, R. (2000). *Vergleichende Untersuchungen der optisch (grün) stimulierten Lumineszenz und der Thermolumineszenz von Quarz zum Zwecke der Altersbestimmung*. Dissertation, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg.
- Lepper, K. und S. W. S. McKeever (2000). *Characterization of Fundamental Luminescence Properties of the Mars Soil Simulant JSC Mars-1 and Their Relevance to Absolute Dating of Martian Eolian Sediments*. Icarus **144**, 295–301.
- Lieser, K. H. (1997). *Nuclear and Radiochemistry: Fundamentals and Applications* (1. Auflage). VCH Verlagsgesellschaft mbH, Weinheim, New York, Basel.
- Löscher, M. und L. Zöller (2001). *Lössforschung im nordwestlichen Kraichgau*. Jber. Mitt. oberrhein. geol. Ver. **83**, 317–326.
- Mangini, A., E. Pernicka und G. A. Wagner (1983). *Dose-Rate Determination by Radiochemical Analysis*. PACT **9**, 49–56.
- Markey, B. G., L. Bötter-Jensen und G. A. T. Duller (1997). *A New Flexible System for Measuring Thermally and Optically Stimulated Luminescence*. Radiat. Meas. **27**, 83–89.
- Markey, B. G., L. E. Colyott und S. W. S. McKeever (1995). *Time-Resolved Optically Stimulated Luminescence from  $\alpha$ - $Al_2O_3:C$* . Radiat. Meas. **24**, 457–463.

- Markey, B. G., S. W. S. McKeever, M. S. Akselrod und L. Bøtter-Jensen (1996). *The Temperature Dependence of Optically Stimulated Luminescence from  $\alpha$ - $Al_2O_3:C$* . Radiat. Prot. Dosim. **65**, 185–189.
- McKeever, S. W. S., M. S. Akselrod, L. E. Colyott, N. Agersnap Larsen, J. C. Polf und V. Whitley (1999). *Characterization of  $Al_2O_3$  for Use in Thermally and Optically Stimulated Luminescence Dosimetry*. Radiat. Prot. Dosim. **84**, 163–168.
- McKeever, S. W. S., M. Moscovitch und P. D. Townsend (1995). *Thermoluminescence Dosimetry Materials: Properties and Uses* (1. Auflage). Nuclear Technology Publishing, Ashford.
- McNish, A. G. (1936). *Geomagnetic Co-ordinates for the Entire Earth*. Terr. Mag. **41**, 37.
- Mejdahl, V. (1979). *Thermoluminescence Dating: Beta-Dose Attenuation in Quartz Grains*. Archaeometry **21**, 61–72.
- Moscovitch, M., M. Kaufman, J. E. Rodgers und A. Niroomand-Rad (1993). *Ultra-Low Dose (100nGy – 100 $\mu$ Gy) Response of  $\alpha$ - $Al_2O_3:C$* . Radiat. Prot. Dosim. **47**, 173–176.
- Moscovitch, M., R. A. Tawil und M. Svinikin (1993). *Light Induced Fading in  $\alpha$ - $Al_2O_3:C$* . Radiat. Prot. Dosim. **47**, 251–253.
- Munyikwa, K. (2000). *Cosmic Ray Contribution to Environmental Dose Rates with Varying Overburden Thickness*. Ancient TL **18**, 27–34.
- Murray, A. S., J. M. Olley und G. G. Caitcheon (1995). *Measurement of Equivalent Doses in Quartz from Contemporary Water-Lain Sediments Using Optically Stimulated Luminescence*. Quart. Sc. Rev. **14**, 365–371.
- Murray, A. S. und R. G. Roberts (1997). *Determining the Burial Time of Single Grains of Quartz Using Optically Stimulated Luminescence*. Earth and Planetary Science Letters **152**, 163–180.
- Olley, J. M., G. G. Caitcheon und R. G. Roberts (1999). *The Origin of Dose Distributions in Fluvial Sediments, and the Prospect of Dating Single Grains from Fluvial Deposits Using Optically Stimulated Luminescence*. Radiat. Meas. **30**, 207–217.
- Olley, J. M., A. Murray und R. G. Roberts (1996). *The Effects of Disequilibria in the Uranium and Thorium Decay Chains on Burial Dose Rates in Fluvial Sediments*. Quaternary Science Reviews **15**, 751–760.
- Olley, J. M., R. G. Roberts und A. Murray (1997). *Disequilibria in the Uranium Decay Series in Sedimentary Deposits at Alien's Cave, Nullarbor Plain, Australia: Implications for Dose Rate Determinations*. Radiat. Meas. **27**, 433–443.
- Oster, L., D. Weiss und N. Kristianpoller (1994). *A Study of Photostimulated Thermoluminescence in C-Doped  $\alpha$ - $Al_2O_3$  Crystals*. J. Phys. D: Appl. Phys. **27**, 1732–1736.
- Parfenoff, A., C. Pomerol und J. Tourenq (1970). *Les Minéraux En Grains: Méthodes D'Étude Et Détermination* (1. Auflage). Masson et C<sup>ie</sup>, Paris.
- Pashchenko, L. P. und M. Barboza-Flores (1995). *Thermoluminescence  $\alpha$ - $Al_2O_3:C$  Detectors (TLCD-500K): Some Results of a Long-Term Testing*. Radiat. Meas. **24**, 427–429.
- Prescott, J. R. und J. T. Hutton (1988). *Cosmic Ray and Gamma Ray Dosimetry for TL and ESR*. Nucl. Tracks Radiat. Meas. **14**, 223–227.

- Prescott, J. R. und J. T. Hutton (1994). *Cosmic ray Contributions to Dose Rates for Luminescence and ESR Dating: Large Depths and Long-Term Time Variations*. Radiat. Meas. **23**, 497–500.
- Prescott, J. R. und L. G. Stephan (1982). *The Contribution of Cosmic Radiation to the Environmental Dose for Thermoluminescence Dating*. PACT **6**, 17–25.
- Press, W. H., S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling und B. P. Flannery (1999). *Numerical Recipes in C* (2. Auflage). Cambridge University Press, Cambridge.
- Preuße, W. (1993). *Höhenstrahlungsinduziertes Nulleffektspektrum von Gammastrahlungsdetektoren*. Dissertation, TU Bergakademie Freiberg.
- Readhead, M. L. (1987). *Thermoluminescence Dose Rate Data and Dating Equations for the Case of Disequilibrium in the Decay Series*. Nucl. Tracks Radiat. Meas. **13**, 197–207.
- Rieser, U. (1991). *Low-Level Gamma-Spektrometrie zum Zwecke der Dosisleistungsbestimmung bei der Lumineszenz-Datierung*. Master's thesis, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg.
- Rossi, B. (1948). *Interpretation of Cosmic Ray Phenomena*. Rev. Mod. Phys. **20**, 537–583.
- Schilles, T. (2002). *Die Infrarot-Radiolumineszenz von Feldspäten und ihr Einsatz in der Lumineszenzdatierung*. Dissertation, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg.
- Schweitzer, J. S. und W. Ziehl (1983). *Temperature-Dependence of NaI(Tl) Decay Constant*. IEEE Trans. Nucl. Sci. **30**, 380–382.
- Summers, G. P. (1984). *Thermoluminescence in Single Crystal  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>*. Radiat. Prot. Dosim. **8**, 69–80.
- Topping, J. (1975). *Fehlerrechnung: Eine Einführung für Naturwissenschaftler*. Physik Verlag, Weinheim.
- Trautmann, T., A. Dietrich und W. Stolz (1999). *Radioluminescence Dating: A New Tool for Quaternary Geology and Archaeology*. Naturwissenschaften **86**, 441–444.
- Wagner, G. A. (1995). *Altersbestimmung von jungen Gesteinen und Artefakten* (1. Auflage). Ferdinand Enke Verlag, Stuttgart.
- Wagner, G. A. und K. W. Beinbauer (Hrsg.) (1997). *Homo heidelbergensis von Mauer: Das Auftreten des Menschen in Europa*. Universitätsverlag Winter.
- Warren, S. E. (1978). *Thermoluminescence Dating of Pottery: An assessment of the Dose Rate from Rubidium*. Archaeometry **20**, 71–72.
- Weise, K. und W. Wöger (1999). *Meßunsicherheit und Meßdatenauswertung* (1. Auflage). Wiley-VCH, Weinheim, New York, Chichester.
- Wintle, A. G. (1997). *Luminescence Dating: Laboratory Procedures and Protocols*. Radiat. Meas. **27**, 769–817.
- Yoshida, H., R. G. Roberts, J. M. Olley, G. M. Laslett und R. F. Galbraith (2000). *Extending the Age Range of Optical Dating Using Single 'Supergrains' of Quartz*. Radiat. Meas. **32**, 439–446.
- Zimmerman, D. W. (1967). *Thermoluminescence from Fine Grains from Ancient Pottery*. Archaeometry **10**, 26–28.

Zimmerman, D. W. (1971). *Thermoluminescence Dating Using Fine Grains from Pottery*.  
Archaeometry **13**, 29–52.



# Danke...

Prof. G.A. Wagner hat mir die Möglichkeit gegeben, an der Forschungsstelle Archäometrie mein Interesse für Naturwissenschaften und Archäologie zu verknüpfen. Viele neue Ideen entstanden durch die interdisziplinäre Zusammenarbeit in seiner Gruppe und waren nur durch die gute Ausstattung seines Labors umsetzbar. Vielen Dank für das Interesse am Fortgang meiner Arbeit und für die mir gebotenen Möglichkeiten und Förderungen.

Prof. K. Roth, hat sich spontan bereit erklärt, die akademische Betreuung durch die Universität Heidelberg zu übernehmen, wofür ich mich herzlich bei ihm bedanken möchte.

Mein Dank gilt der Heidelberger Akademie der Wissenschaften für die großzügige finanzielle Unterstützung und allen Mitarbeitern, von denen ich leider nur wenige persönlich kennenlernen konnte.

Das Direktorium des Max-Planck-Instituts für Kernphysik erlaubte mir den Aufenthalt und die Nutzung der Einrichtungen. Ich bedanke mich bei den Mitarbeitern in der Bibliothek, die hilfsbereit alle Veröffentlichungen besorgten; bei den Mitarbeitern in der Feinmechanik-Werkstatt, insbesondere Herrn Mallinger, der durch geduldiges Erklären meine Kenntnisse im Technischen Zeichnen mindestens verdoppelt hat; bei Herrn Weber vom Konstruktionsbüro für das Ausdrucken der Poster; bei Herrn Lorenz von der Druckerei, der mir das Binden meiner Arbeit auch während der Urlaubszeit ermöglichte und immer gute Laune verbreitet hat; und bei allen anderen, die ich hier nicht namentlich erwähnen kann.

Ohne Dr. Manfred Löscher hätte ich wahrscheinlich keine so gut geeigneten Probenlokalitäten finden können. Er stand mir auch noch spätabends mit Tips zur Seite und hat mich ausführlich über die Entwicklung und bodenkundlichen Eigenschaften der Profile informiert.

Dr. Yeter Göksu von der GSF in Neuherberg hat mir viele wertvolle Tips für den Umgang mit  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$  gegeben; von ihr habe ich vieles über das Schreiben von Veröffentlichungen gelernt.

Detlev Degering von der Forschungsstelle Geochronologie Quartär der Sächsischen Akademie der Wissenschaften ist ganz spontan eingesprungen, als die Gammaspektrometer ihren Dienst verweigert haben. Er war bereit, Proben zu messen, und hatte auch praktische Ratschläge für die Reparatur.

Bei meiner „Zimmergenossin“ Eva, möchte ich mich für die schöne Zeit bedanken. Sie war immer für kleine Überraschungen und Aufregungen gut und hat dafür gesorgt, daß ich mich beim Federball Spielen an der frischen Luft bewegt habe. Mein Zimmernachbar Thomas hat bei unzähligen, nicht nur physikalischen Diskussionen seine Geduld und seine Vielseitigkeit bewiesen. Er hatte immer ein passendes Kochrezept parat und konnte bei Fragen über das aktuelle Tagesgeschehen nahezu eine Tageszeitung ersetzen. Leider hat die Zusammenarbeit mit Jan nicht einmal ein Jahr gedauert. Trotzdem darf er hier nicht fehlen, denn er hat mich in die Geheimnisse der Lumineszenzdatierung und der Dosimetrie eingeweiht und hat mir gezeigt, was „Teamwork“ wirklich bedeutet. Von unseren Geo-Grafen Annette und Markus habe ich gelernt, daß Boden nicht einfach Boden ist. Sie haben mich bei der, für einen Physiker völlig ungewohnten, Arbeit im Gelände unterstützt und mit kleinen Späßchen den Alltag aufgeheitert. Ulli hat mir besonders dann geholfen, wenn es um meinen weiteren Weg als Forscherin ging.

Christina, Mel und Sanne haben mir viele kleine Dinge abgenommen; sie haben alle auf ihre eigene Weise zu einem angenehmen Arbeitsklima beigetragen.

Auch bei den anderen (ehemaligen) Mitarbeitern der Forschungsstelle Barbara, Carola, Clemens, Emiko, Jana, Joachim, Rajmond, Ralf, Steffen, Uwe und Frau Wagner möchte ich mich für die schöne Zeit, die vielen Anregungen und die Hilfsbereitschaft bedanken.

Annette, Carola, Markus und Thomas haben dankenswerterweise dazu beigetragen, die Anzahl der Fehler in dieser Arbeit zu verringern.

M i c h i – **danke**.