

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

vorgelegt von
Dipl.-Phys. Klaus-Steffen Greulich
aus Heidelberg

Tag der mündlichen Prüfung: 21. April 2004

**Über die Datierung
von Gesteinsoberflächen
mittels
optisch stimulierter Lumineszenz**

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

Zusammenfassung

Die letzte Belichtung von Gesteinsoberflächen birgt ein großes Informationspotential für archäologische und geologische Untersuchungen, das bisher von keiner chronometrischen Datierungsmethode ausgeschöpft werden kann. Aufgrund des betrachteten Systems liegt es nahe, eine Altersbestimmung mittels optisch stimulierter Lumineszenz (OSL) an den in vielen Festgesteinen vorhandenen Mineralen Quarz und Feldspat durchzuführen. Jedoch ist für Oberflächen die sonst übliche Vorgehensweise nicht durchführbar, welche zur Beherrschung der – in natürlichen Proben unvermeidbaren – Gradienten in den für eine OSL-Datierung wichtigen Messgrößen dient. Daher wurde in der vorliegenden Arbeit ein neuer Ansatz entwickelt, der eine geeignete Probennahme für Oberflächenproben, den hochaufgelösten (25 μm), quantitativen Nachweis optisch stimulierter Lumineszenzsignale durch Abbildung auf einen CCD-Baustein (HR-OSL) und ein Softwareprogramm zur Analyse umfasst. Dies ermöglicht, den Messbereich in der Fläche so weit zu verkleinern, dass innerhalb der betrachteten Gebiete die Gradienten vernachlässigbar werden. So konnten erstmals erfolgreich orts aufgelöste Datierungen an Gesteinsoberflächen der Burg Lindenfels im Odenwald (12. Jh. n. Chr.) und an den präkolumbischen Erdzeichnungen von Palpa/Peru (200 v. Chr. – 600 n. Chr.) durchgeführt werden. Des Weiteren wurde die Eignung der Methode für neuartige Grundlagenuntersuchungen und die Anwendbarkeit für die Datierung keramischer Artefakte nachgewiesen. Da die abbildende Technik aber keine Diskriminierung von OSL-Signalen in der Tiefendimension erlaubt, wurde ein konfokales Rastermikroskop entwickelt, das den hochaufgelösten, spektralen Nachweis der OSL an definierten Volumina ermöglicht.

Abstract

Dating the last exposure of stone surfaces to light could provide valuable information to archaeology and geosciences. However, no known chronometric method is able to elucidate this information to date. In general, OSL is the method used to date problems associated with light and minerals. Yet, gradients of relevant parameters essential to OSL dating exist in all natural samples. Common techniques to control these gradients are not feasible for stone surfaces. This work presents a new approach which includes preparation of samples, highly resolved (up to 25 μm) detection of optically stimulated luminescence by imaging to a CCD chip, and a software solution for data analyses. In this way, the area of measurement can be reduced to a size where the gradients become insignificant. Using this method, spatially resolved dating was successfully performed on stone surfaces from the medieval castle of Lindenfels (Odenwald, 12th century AD), Germany, and from the geoglyphs of Palpa, Peru (200 BC – 600 AD). Furthermore, the suitability of the approach for new kinds of research on OSL and the applicability for dating pottery samples is shown. However, imaging does not provide direct discrimination between OSL signals at varying depths. To overcome this restriction, a confocal scanning microscope was built with the capability for high resolution recording of optically stimulated luminescence from a defined volume with added spectral information.

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	v
Abstract	v
Inhaltsverzeichnis	vii
Abbildungsverzeichnis	ix
Tabellenverzeichnis	xii
1 Einleitung	1
2 Grundlagen der Lumineszenzdatierung	4
2.1 Lumineszenz in Isolatoren.....	4
2.2 Optisch und thermisch stimulierte Radiolumineszenz natürlicher Minerale.....	6
2.3 Strahlendosimetrie an Mineralen.....	9
2.3.1 Methodik und Altersgleichung.....	9
2.3.2 Einflussparameter / Gradienten.....	10
2.4 Die Datierungstechnik.....	11
2.4.1 Dosisbestimmung.....	12
2.4.2 Dosisleistungsbestimmung.....	14
2.4.3 Berechnung des Probenalters.....	15
2.5 Lumineszenzeigenschaften verwendeter Materialien.....	16
2.5.1 Quarz.....	16
2.5.2 Feldspat.....	17
2.5.3 Apatit.....	19
2.5.4 α -Al ₂ O ₃ :C.....	19
2.5.5 BaBrF:Eu ²⁺	20
3 Gesteinsoberflächen als Proben für die Lumineszenzdatierung	23
3.1 Datierungspotential.....	23
3.2 Vorarbeiten.....	24
3.3 Idee einer ortsauflösenden Lumineszenzdatierung.....	26
3.4 Erweiterung des Konzeptes.....	28
3.5 Notwendigkeit von Neuentwicklungen.....	29
3.6 Die hochaufgelöste Detektion des OSL-Signals.....	30
3.7 Statistik vieler Messpunkte.....	33
3.8 Tiefengradienten in Lumineszenzproben.....	34
4 Geräte und Geräteentwicklung	39
4.1 Probennahme und Probenpräparation.....	39
4.1.1 Probenformat.....	39
4.1.2 Oberflächenprobennahme.....	42
4.2 Konventionelle Geräte und Verfahren.....	44
4.2.1 Bestrahlung.....	44
4.2.2 Ofen.....	45
4.2.3 Bleichung.....	45
4.2.4 REM-EDX.....	46
4.2.5 Induzierte Spaltspuren.....	47
4.3 Messgerät LasLUM I.....	48
4.3.1 Detektor.....	50
4.3.2 Opto-mechanisches Schienensystem.....	52

4.3.3 Probenhalter	52
4.3.4 Stimulation	54
4.3.5 Filter	55
4.3.6 Abbildende Optik	56
4.3.7 Strahlteiler	64
4.3.8 Tisch und Aufbau	65
4.3.9 Aussicht	67
4.4 Software	67
4.4.1 Einlesen und Anordnung der Daten	67
4.4.2 Modellanpassung und Äquivalenzdosen-Berechnung	69
4.4.3 Auswertedialog, Filterverfahren und <i>regions of interest (ROIs)</i>	71
4.4.4 Bildbetrachtung	74
4.4.5 Laden, Speichern und Export von Daten	74
4.4.6 Aussicht	75
5 Messungen	76
5.1 Vorgehen und Fehlerquellen	76
5.2 Hochaufgelöste OSL-Messungen an Oberflächen	77
5.2.1 Spektrale und räumliche Intensitätsverteilung der OSL	77
5.2.2 OSL-Verteilung bei unterschiedlichen Stimulationswellenlängen	83
5.2.3 Räumliche Verteilung der zeitlichen Eigenschaften der OSL	86
5.3 Bestimmung von Labordosen	90
5.3.1 Bestimmung von Äquivalenzdosen an einem künstlichen Luminophor	90
5.3.2 Bestimmung von Äquivalenzdosen an natürlichen Proben (blaue Emission)	94
5.3.3 Bestimmung von Äquivalenzdosen an natürlichen Proben (gelbe Emission)	98
5.3.4 Einfluss des Vorheizens auf die Signal-Verteilung einer natürlichen Probe	99
5.3.5 Einfluss des Ausheizens auf die Sensitivität eines α -Al ₂ O ₃ -Pellets	101
5.4 Bestimmung der natürlichen Dosis und Datierung	101
5.4.1 Burg Lindenfels	101
5.4.2 Geoglyphen von Palpa	109
5.4.3 Innere Oberflächen – ortsauflösende Keramikdatierung	116
5.5 Expositionsverfahren zur ortsaufgelösten Bestimmung der Dosisleistung	123
5.5.1 Dosisleistungsbestimmung mittels α -Al ₂ O ₃ :C	123
5.5.2 Dosisleistungsbestimmung mittels Autoradiographie	126
6 Entwicklung eines konfokalen Lumineszenz-Mikroskops	128
6.1 LasLUM II	128
6.1.1 Lasereinheit (A)	129
6.1.2 Zentraler Strahlengang (B)	131
6.1.3 Detektionseinheit (C)	132
6.1.4 Steuerungssoftware für das LasLUM II	136
6.2 LasLUM III	136
6.3 Messungen	138
6.3.1 Konfokalmikroskopie-Aufnahmen der OSL	138
6.3.2 OSL-Messungen auf dem LasLUM II	138
7 Zusammenfassung und Ausblick	141
Literatur	xiii
Danksagung	xviii

Der Dissertation liegt eine CD mit zwei der im Rahmen der Arbeit entwickelten Softwareprogrammen (OSL-TIEFENMODELL und Auswerteprogramm AGESGALORE für MICROSOFT WINDOWS 2000/98SE oder eine aktuellere Version), einem Beispieldatensatz sowie einer elektronischen Version dieser Arbeit (pdf-Format) bei.

Abbildungsverzeichnis

Abbildung 2.1:	Einfaches Modell der Lumineszenz.....	4
Abbildung 2.2:	Modell der Radiolumineszenz in Mineralen.....	5
Abbildung 2.3:	Ausbildung eines Lumineszenz- <i>Peaks</i> bei thermischer Stimulation.....	6
Abbildung 2.4:	Beispiele für Ausleuchtcurven	8
Abbildung 2.5:	Akkumulation und Ausheilen von Strahlenschäden.....	9
Abbildung 2.6:	Reichweiten von α -, β - und γ -Strahlung	10
Abbildung 2.7:	Beispiele für Wachstumskurven	12
Abbildung 2.8:	Hochaufgelöstes γ -Spektrum einer Lumineszenzprobe.....	14
Abbildung 2.9:	Ablauf der optisch stimulierten Lumineszenz in einem Quarz-Kristall.	16
Abbildung 2.10:	OSL-Spektrum von Quarz.	17
Abbildung 2.11:	OSL-Stimulationsspektrum von Quarz.....	17
Abbildung 2.12:	Struktur von Feldspat und das ternäre System der Feldspäte.....	18
Abbildung 2.13:	Beispiele für ein TL- und ein IRSL-Spektrum einer Feldspat-Probe.....	18
Abbildung 2.14:	IRSL-Stimulationsspektrum einer Feldspatprobe.....	19
Abbildung 2.15:	TL-Spektrum einer α -Al ₂ O ₃ :C-Probe.....	20
Abbildung 2.16:	Energieschema für BaBrF:Eu ²⁺ [Iwabuchi, 1994].....	20
Abbildung 3.1:	Erdzeichnung auf der Hochfläche von San Ignatio	22
Abbildung 3.2:	Bestimmung des Zeitpunktes der Abdeckung	24
Abbildung 3.3:	Bestimmung des Zeitpunktes der Umlagerung.....	25
Abbildung 3.4:	Lumineszenzsignal in Abhängigkeit von der Tiefe	26
Abbildung 3.5:	Modell-Lumineszenzprobe mit zwei Komponenten	27
Abbildung 3.6:	Modell-Lumineszenzprobe mit fünf Mineralkomponenten.....	28
Abbildung 3.7:	Verfahren zur hochaufgelösten OSL-Detektion	31
Abbildung 3.8:	Dosisleistung einer ⁹⁰ Sr/ ⁹⁰ Y-Quelle in Abhängigkeit von der Tiefe	35
Abbildung 3.9:	Bildschirmdialog OSL-TIEFENMODELL.	36
Abbildung 3.10:	Relatives Verhältnis von Labordosis und natürlicher Dosisleistung.....	37
Abbildung 4.1:	Probenhalter	40
Abbildung 4.2:	Präparation von Probenscheiben.....	41
Abbildung 4.3:	Probenrahmen	41
Abbildung 4.4:	Nächtliche Bohrkernentnahme	42
Abbildung 4.5:	Entnahme eines Querbohrkerns.....	43
Abbildung 4.6:	Entfernen des Mörtels.....	43
Abbildung 4.7:	β -Bestrahlungsgeräte LM1 und LM2.	44
Abbildung 4.8:	Vorrichtung zum Vorheizen der Proben.....	45
Abbildung 4.9:	Elementverteilungs-Analysen.....	46
Abbildung 4.10:	EDX-Spektrum eines kaliumhaltigen Feldspats.....	47
Abbildung 4.11:	Spaltspurverteilung auf einer Keramikprobe.....	48
Abbildung 4.12:	LasLUM I	49
Abbildung 4.13:	Quanteneffizienz des CCD-Bausteins	50
Abbildung 4.14:	Drift von Ausleseoffset und Nachweisempfindlichkeit.....	51
Abbildung 4.15:	Probenhalter und Aufnahme für die Probenrahmen	53
Abbildung 4.16:	Reproduzierbarkeit der Probenposition im LasLUM I.....	53
Abbildung 4.17:	Bild des IR-Lasers in der Fokalebene.....	55

Abbildung 4.18: Abbildungsverhältnisse für ein einzelnes Kamera-Objektiv.....	57
Abbildung 4.19: Lage der Hauptebenen und weitere Größen	58
Abbildung 4.20: Verlauf der Bild- und Gegenstandsweite.....	58
Abbildung 4.21: Abbildungsverhältnisse für einen telezentrischen Aufbau	59
Abbildung 4.22: Verlauf der Bild- und Gegenstandsweite für telezentrischen Aufbau	60
Abbildung 4.23: Vergleich der Lichtstärken	61
Abbildung 4.24: Gesamtbrennweite des Systems.....	61
Abbildung 4.25: Transmission des OLYMPUS ZUIKO-Objektives.....	61
Abbildung 4.26: Numerische Apertur.....	63
Abbildung 4.27: Orientierung der Probe	64
Abbildung 4.28: Halter für die dichroitischen Spiegel	65
Abbildung 4.29: Entwicklung des LasLUM I.....	66
Abbildung 4.30: Hauptbildschirm des AGESGALORE-Programms	68
Abbildung 4.31: Einrichten der Dosisgruppen und Dialog zur Zuordnung der Bilder	70
Abbildung 4.32: Dialog zur Berechnung.....	70
Abbildung 4.33: Ablaufdiagramm des Software-Programms AGESGALORE	72
Abbildung 4.34: Auswertedialog	73
Abbildung 4.35: Dialog zum Erstellen und Verändern von <i>regions of interest</i>	73
Abbildung 4.36: Bildbetrachtung.....	74
Abbildung 5.1: Probe OPF1S2.	78
Abbildung 5.2: Die räumliche und spektrale Verteilung der IRSL der Probe OPF1S2	79
Abbildung 5.3: Plagioklas-Einschlüsse im K-Feldspat	79
Abbildung 5.4: EDX-Punktanalysen auf der Probe OPF1S2	80
Abbildung 5.5: Lumineszenzverteilung und EDX-Analysen für die Probe MED3S1	81
Abbildung 5.6: Lumineszenzverteilung und EDX-Analysen für die Probe MED1S1	82
Abbildung 5.7: OSL-Messungen an vier α -Al ₂ O ₃ :C-Pellets	82
Abbildung 5.8: Blaue Lumineszenz eines Apatit-Kristalls.....	83
Abbildung 5.9: Lumineszenz an einer Keramikfläche	84
Abbildung 5.10: Vergrößerter Ausschnitt der Probe K866S1	85
Abbildung 5.11: GRSL und IRSL einer unaufbereiteten Sedimentprobe (HDS1337).....	85
Abbildung 5.12: Darstellung einer Ausleuchtkurve im Programm AGESGALORE.....	86
Abbildung 5.13: Parametrisierung der Ausleuchtkurven eines α -Al ₂ O ₃ :C-Pellets	88
Abbildung 5.14: Parametrisierung der Ausleuchtkurven der Probe OPF1S2.....	89
Abbildung 5.15: Bestimmung der Äquivalenz-Bestrahlungsdauern (α -Al ₂ O ₃ :C-Pellet).....	92
Abbildung 5.16: Relative Fehler der Äquivalenz-Bestrahlungsdauern	92
Abbildung 5.17: Bestimmung der Äquivalenz-Bestrahlungsdauern (OPF1S2).....	94
Abbildung 5.18: Bestimmung der Äquivalenz-Bestrahlungsdauern (MED3S1)	95
Abbildung 5.19: Bestimmung der Äquivalenz-Bestrahlungsdauern (MED1S1)	95
Abbildung 5.20: Räumliche und Häufigkeits-Verteilung der relativen Fehler.....	98
Abbildung 5.21: Zurückverfolgen der Einträge der Häufigkeitsverteilung.....	98
Abbildung 5.22: Einfluss des Vorheizens auf Minerale der Probe OPF1S2	99
Abbildung 5.23: Einfluss des Ausheizens auf die Sensitivität eines α -Al ₂ O ₃ :C-Pellets.....	100
Abbildung 5.24: Photo und Plan der Burgruine Lindenfels	102
Abbildung 5.25: Bestimmung der Äquivalenzdosen der Oberflächenprobe LIN1S1	103
Abbildung 5.26: Häufigkeitsverteilung der Äquivalenz-Bestrahlungsdauern.....	103
Abbildung 5.27: Ausschnitt der Äquivalenzdosen-Verteilung der Probe LIN1S1.....	104
Abbildung 5.28: Wachstumskurven und relative Sensitivitäten.....	105
Abbildung 5.29: Simulierte integrale Bestimmung der Äquivalenzdosis	105
Abbildung 5.30: Verteilung der Hauptelemente	106
Abbildung 5.31: Dosisleistungsmodell für LIN1S1	108
Abbildung 5.32: Untersuchungen an Mörtelstücken	109

Abbildung 5.33: Arbeitsgebiet in Südperu	110
Abbildung 5.34: Spektren von drei Proben aus Palpa	111
Abbildung 5.35: Normierung einer IRSL-Wachstumskurve	112
Abbildung 5.36: Äquivalenzdosis-Bestimmungen und EDX-Analysen	113
Abbildung 5.37: Fundlokalitäten der datierten Proben	115
Abbildung 5.38: Altersbestimmung der Keramikprobe K866S3	116
Abbildung 5.39: Spaltspuren auf KAPTON-Folie	118
Abbildung 5.40: Äquivalenzdosen-Bestimmung der Probe HC-17	119
Abbildung 5.41: Elementverteilung und Spaltspur-Detektor für die Probe HC-17.....	120
Abbildung 5.42: Extrapolation der Korrekturfaktoren für β -Strahlung.....	120
Abbildung 5.43: Konventionell berechnete Alter für die Körner der Probe HC-17.....	121
Abbildung 5.44: Subtraktionsmethode für Körner der Probe HC-17	121
Abbildung 5.45: Hochauflösende Messungen an α -Al ₂ O ₃ :C -Dosimetern	124
Abbildung 5.46: Zwei Wachstumskurven an α -Al ₂ O ₃ :C-Tabletten	125
Abbildung 5.47: Autoradiographie-Bild einer Probenscheibe.....	127
Abbildung 6.1: Funktionsskizze des LasLUM II.....	130
Abbildung 6.2: Laserspot des LasLUM II auf einem geätzten Glasmaßstab	132
Abbildung 6.3: Aufbau des LasLUM II.....	133
Abbildung 6.4: Transmissionsverhalten der IRSL- und GRSL-Filter des LasLUM II.	134
Abbildung 6.5: Konstruktionszeichnungen der Detektionseinheit	135
Abbildung 6.6: Entwurf LasLUM III.....	137
Abbildung 6.7: Konfokalaufnahmen der Probe OPF1S2	138
Abbildung 6.8: Messung der Oberflächentopographie der Probe ODW4	139
Abbildung 6.9: IRSL-Messung der Probe OPF1S4 im LasLUM II.	140

Tabellenverzeichnis

Tabelle 2.1:	Abschätzung der mittleren Aufenthaltsdauern	7
Tabelle 2.2:	Protokoll zum Aufbau einer regenerativen Wachstumskurve.....	13
Tabelle 2.3:	Strahlungsspezifische Abschwächungsfaktoren.....	15
Tabelle 3.1:	Modell-Lumineszenzprobe mit zwei Mineralkomponenten.	27
Tabelle 3.2:	Modell-Lumineszenzprobe mit fünf Mineralkomponenten.	28
Tabelle 4.1:	Kalibration von LM1 und LM2.....	45
Tabelle 4.2:	Leistung und Leistungsdichte der Laser am Ort der Probe.	54
Tabelle 4.3:	Filterkombinationen im LasLUM I	56
Tabelle 4.4:	Chromatische Abberation der verwendeten Kamera-Objektive.....	56
Tabelle 4.5:	Verhältnis der Transmissionen der verwendeten Kamera-Objektive.....	62
Tabelle 4.6:	Verhältnis der Transmissionen Objektiv / telezentrischer Aufbau.....	62
Tabelle 4.7:	Zur Verfügung stehende Modelle für AGESGALORE.....	69
Tabelle 5.1:	Ergebnisse für die EDX-Punktanalysen auf der Probe OPF1S2	80
Tabelle 5.2:	Korrelation der Emissionswellenlängen mit den Elementanalysen	81
Tabelle 5.3:	EDX-Punktanalysen der Probe K866S1.....	83
Tabelle 5.4:	Korrelationskoeffizienten für die Modellanpassung (α -Al ₂ O ₃ :C-Pellets)	87
Tabelle 5.5:	Korrelationskoeffizienten für die Modellanpassung (OPF1S2).....	87
Tabelle 5.6:	Bestimmung von Äquivalenz-Bestrahlungsdauern an einem Al ₂ O ₃ -Pellet	91
Tabelle 5.7:	Veränderung der Ergebnisse in Abhängigkeit vom Ausleseoffset.....	93
Tabelle 5.8:	Bestimmung der Äquivalenz-Bestrahlungsdauern (OPF1S2, blau).....	96
Tabelle 5.9:	Bestimmung der Äquivalenz-Bestrahlungsdauern (MED3S1).....	97
Tabelle 5.10:	Bestimmung der Äquivalenz-Bestrahlungsdauern (MED1S1)	97
Tabelle 5.11:	Bestimmung der Äquivalenz-Bestrahlungsdauern (OPF1S2, gelb).....	98
Tabelle 5.12:	Parameter der Gauß-Kurve in Abhängigkeit vom Ausleseoffset.....	99
Tabelle 5.13:	Äquivalenzdosis-Bestimmung für die Probe LIN1S1	104
Tabelle 5.14:	EDX Punktanalysen der Probe LIN1S1	107
Tabelle 5.15:	Dosisleistungsbeiträge und Altersberechnung für die Probe LIN1S1.....	108
Tabelle 5.16:	Definition der ROIs	114
Tabelle 5.17:	Bestimmung der Äquivalenzdosen für die Proben aus Palpa.....	114
Tabelle 5.18:	Dosisleistung und berechnetes Alter der Proben aus Palpa.....	115
Tabelle 5.19:	Äquivalenzdosis-Bestimmungen für zwei Körner der Probe K866S3.....	117
Tabelle 5.20:	Dosisleistungsbestimmung für zwei Körner der Probe K866S3.....	117
Tabelle 5.21:	Altersbestimmung für die Körner der Probe HC-17	122
Tabelle 6.1:	Rechnerische Größe des Laserflecks.....	131

1 Einleitung

Unser Wissen über Ereignisse in der Vergangenheit muss sich, um im Sinne einer kritisch-rationalen Betrachtung zu bestehen, auf ein chronologisches Gerüst stützen. Fragen über Ursache und Wirkung, über Auslöser und Folgen, über zufällige Gleichzeitigkeit oder wechselseitige Beeinflussung lassen sich ohne eine zeitliche Ordnung der Ereignisse nicht beantworten. Schlüsse können ohne dieses Fundament nicht gezogen, Abschätzungen für die Zukunft nicht getroffen werden.

Die großen Umwälzungen des physikalischen Weltbildes an der Wende zum vergangenen Jahrhundert stießen mit der Erforschung der Vorgänge im Inneren der Atome die Tür in das Allerkleinste auf. Es wurden Prozesse beobachtet, die eine bis dahin nicht gekannte Regelmäßigkeit besaßen, unbeeinflusst von makroskopischen Größen wie Druck, Temperatur oder chemischer Bindung. Die dabei gewonnenen Kenntnisse ermöglichten nicht nur, sehr exakte Uhren zur Messung der Jetztzeit zu schaffen – sie bildeten auch die Grundlage für eine numerische Datierung vergangener Ereignisse. Der britische Physiker und Nobelpreisträger Ernest Rutherford schlug als erster 1904 die Zählung der beim Zerfall von Urankernen in einem Gestein entstandenen Heliumatome zur Altersbestimmung vor. Einer breiten Öffentlichkeit wurde die von Willard F. Libby 1947 entdeckte Radiokohlenstoff- oder ^{14}C -Methode bekannt. Ab Mitte der fünfziger Jahre nahm die Zahl der chronometrischen Techniken stetig zu, und heute gehören auf physikalischen Prozessen beruhende Datierungen zum Stand der Forschung in Archäologie, Geologie und Umweltwissenschaften.

Trotz ihrer großen Bedeutung ist die Radiokohlenstoff-Methode wie alle chronometrischen Techniken in ihrer Anwendbarkeit begrenzt – in Bezug auf die Art des Ereignisses, das datiert werden soll, in Bezug auf das Material, an dem die Messungen durchgeführt werden können, und in Bezug auf den Altersbereich, der mit der Datierung erfasst werden kann. Unter günstigen Umständen kann mit Hilfe der ^{14}C -Technik bestimmt werden, wann ein Kohlenstoffsystem (z. B. ein Lebewesen), zu letzten Mal im Austausch mit der Atmosphäre stand – wenn dieses Ereignis nicht länger als 40.000, mit Fortschritt der Technik vielleicht 70.000 Jahre zurückliegt.

Als Gegenstück zur Radiokohlenstoff-Methode wird oft die Lumineszenz-Datierungstechnik bezeichnet. Sie erlaubt Datierungen an mineralischen, nicht-organischen Proben. Lumineszenz ist die nicht-thermische Abgabe von Licht. Dieses kalte Leuchten isolierender Festkörper wurde Ende des 19. Jahrhunderts wissenschaftlich erstmals von Eilhard E. G. Wiedemann untersucht. Über ein halbes Jahrhundert später, 1953, schlug Farington Daniels die Lumineszenz als ein Hilfsmittel zur Datierung der letzten Erwärmung von Artefakten vor.

Die Altersbestimmung beruht auf dem Vergleich der von einem Mineral als einem natürlichen Dosimeter absorbierten Energiedosis mit der an der Stelle des Dosimeters herrschenden, natürlichen ionisierenden Dosisleistung (der Energiedosis pro Zeit). Die Energiedosis selbst kann nicht gemessen werden, wohl aber das ihr proportionale, durch den Strahlenschaden im Mineral hervorgerufene Lumineszenzsignal. Eine Datierung der letzten Erwärmung oder Belichtung ist möglich, da der Strahlenschaden durch die Einwirkung von Wärme oder Licht wieder ausgeheilt werden kann.

Erste Thermolumineszenz (TL)-Datierungen konnten 1958 in Bern von Fritz G. Houtermans und seinen Mitarbeitern an Keramiken durchgeführt werden. Zum Auslösen der TL heizten sie quarzhaltige Proben langsam auf, bis die eigentliche Wärmestrahlung die Lumineszenze-

mission überstrahlte. Inzwischen wird die TL-Methode auf ein breites Spektrum von Materialien und Fragestellungen angewendet. Neben gebrannten Tonen können auch erhitzte Feuersteine oder belichtete Sedimente datiert werden. Die Gruppe um David J. Huntley konnte 1985 zeigen, dass mit Hilfe der durch kontrolliertes Belichten der Probe im Labor ausgelösten, optisch stimulierten Lumineszenz (OSL) ebenfalls Datierungen durchgeführt werden konnten. Sie ist durch die Analogie des Messvorgangs im Labor und der Ausheilung der Strahlenschäden während des zu datierenden Ereignisses besonders für eine Datierung der letzten Belichtung geeignet.

Diese Eigenschaft macht die OSL-Datierung auch zu einer potentiell geeigneten Methode zur Datierung von Gesteinsoberflächen, deren letzte Lichteinwirkung mit einem relevanten Ereignis verknüpft ist. Letzteres kann bei Bausteinen die Errichtung oder die Zerstörung des Bauwerkes sein, aber auch der Zeitpunkt einer geologischen Bedeckung eines Festgesteins. Es existiert bisher keine Methode, die es erlaubt, derartige Prozesse direkt zu datieren. Die zeitliche Information ist im archäologischen Kontext insbesondere dann wertvoll, wenn keine schriftlichen Zeugnisse existieren oder der Bezug anderer Quellen zum Ereignis unklar ist.

In natürlichen Proben treten jedoch aufgrund von Heterogenitäten in Struktur und Elementgehalten auf verschiedenen Skalen starke Gradienten bezüglich der Lumineszenzeigenschaften und der Radioaktivität auf, was sie zu hochkomplexen Systemen für eine Datierung macht. In den letzten vierzig Jahren konnte aber eine Vorgehensweise entwickelt und verfeinert werden, die jene Gradienten beherrschbar macht. So werden meist Lockerproben, also z. B. Sedimente oder gemahlene keramisches Material aus einem bezüglich der radioaktiven Dosisleistung möglichst homogenen Kontext datiert. Durch Trennverfahren wird eine Fraktion von Mineralkörnern gewonnen, die ein ähnliches Lumineszenzverhalten zeigen. Für die Einwirkung der Strahlung im statistischen Mittel gut modelliert werden. Die Intensität der Lumineszenzemission selbst wird üblicherweise durch ein hochempfindliches Nachweisgerät integral an einigen tausend Körner gemessen, die auf Probenträgern mit einem Durchmesser von ca. 8 – 10 mm aufgebracht sind.

Dieses Vorgehen ist für Festgesteine aus nahe liegenden Gründen nicht anwendbar. Denn gerade ihre Eigenschaft als Grenzfläche machen die Proben für eine Datierung interessant – und bringt unweigerlich die Gradienten an einer solchen Fläche mit sich. So ist mit der Suche nach einer OSL-Datierungsmethode für Oberflächen auch die Frage nach einem alternativen Ansatz im Umgang mit der zwangsläufigen Heterogenität von natürlichen Lumineszenzproben verbunden.

Die Idee der vorliegenden Arbeit war es, die räumliche Auflösung von Lumineszenzmessungen so weit zu erhöhen, dass die Bestimmung der für eine Datierung wichtigen Größen in Bereichen stattfinden kann, innerhalb derer die problematischen Gradienten hinreichend klein sind. So wird die Trennung der Probe durch physikalische Separation ersetzt durch den hochauflösenden Nachweis des OSL-Signals (HR-OSL).

Mit diesem Ansatz sollte eine Methodik entwickelt werden, die es erlaubt, an Gesteinsoberflächen orts aufgelöste Datierungen durchzuführen. Da bei diesem Vorgehen weiterhin der Vorteil besteht, die Lumineszenzdaten direkt mit anderen bildgebenden Verfahren abzugleichen und die Probe in ihrem originalen Kontext betrachten zu können, sollte darüber hinaus die Eignung der HR-OSL für Grundlagenuntersuchungen und für andere Datierungsanwendungen untersucht werden.

Hochauflösende Aufnahmen der räumlichen Verteilung und Dynamik der Lumineszenz sind selbstverständlich immer wieder Gegenstand von Untersuchungen gewesen. Es gab aber keine Entwicklung einer konsequent auf derartigen Daten aufbauenden Datierungstechnik. Hatte in den 50er Jahren die Entwicklung hochempfindlicher Photoelektronenvervielfacher (*Photomultiplier*, *PMT*) den quantitativen Nachweis der meist lichtschwachen Lumineszenzemission

erst ermöglicht, waren diese Geräte aber nicht in der Lage, auch die Herkunft der Photonen zu bestimmen. Dies ist der technische Grund für die Entwicklung der beschriebenen aktuellen Vorgehensweise in der Lumineszenzdatierung. Zudem involviert eine hohe Ortsauflösung eine Fülle zusätzlicher methodischer Probleme, z. B. in der numerischen Auswertung und in der Vergleichbarkeit von Messungen. In den letzten Jahren aber haben sich die Voraussetzungen für einen hochauflösenden quantitativen Nachweis entscheidend verbessert, vor allem durch die Entwicklung hochempfindlicher CCD (*„charged couple device“*)-Bausteine, die unter anderem durch die Verbreitung digitaler Photokameras inzwischen ihren Weg in den Alltag gefunden haben.

Im folgenden Kapitel 2 soll eine Übersicht über die physikalischen Grundlagen der OSL gegeben und beispielhaft die aktuelle Vorgehensweise bei Lumineszenzdatierungen dargestellt werden. Darauf aufbauend werden in Kapitel 3 die besonderen Anforderungen von Gesteinsoberflächen als Lumineszenzproben und der Ansatz einer ortsauflösenden Datierung diskutiert. Die hierfür notwendigen Geräte, die Probennahme an Oberflächen und die Neuentwicklung eines auf einer stickstoffgekühlten, hochempfindlichen CCD-Kamera basierenden Messaufbaus (LasLUM I) sowie eines Softwareprogramms zur Analyse der damit gewonnenen Daten sind in Kapitel 4 beschrieben. Die Messungen (Kapitel 5) zeigen zunächst, wie mit dieser Technik die Verteilung von OSL-Signalen an Oberflächen quantifiziert und Labordosen ermittelt werden können, bevor die Datierung von Oberflächenproben dargestellt wird. In Kapitel 6 wird schließlich der Aufbau eines konfokalen OSL-Rastermikroskops (LasLUM II) beschrieben, das Messungen über die Möglichkeiten der abbildenden Technik des LasLUM I hinaus ermöglicht.

2 Grundlagen der Lumineszenzdatierung

2.1 Lumineszenz in Isolatoren

Keht ein Elektron nach einer nicht-thermischen Anregung in einen tieferen Energiezustand zurück, so kann es Energie in Form von Photonen abgeben. Diese Emission wird als Lumineszenz bezeichnet. Da Lumineszenz zusätzlich zur und unabhängig von der Wärmestrahlung beobachtet wird, wird sie auch „kaltes“ Leuchten genannt. Ausgehend vom Zeitraum, der von der ursprünglichen Anregung bis zur Relaxation des Systems vergeht, wird die Lumineszenz grob in *Fluoreszenz* (Halbwertszeit $\tau < 10^{-8}$ s) und *Phosphoreszenz* ($\tau > 10^{-8}$ s) unterteilt. Finden die Vorgänge nur unter Beteiligung zweier Energiezustände statt (Abb. 2.1, links), so erfolgt die Relaxation sehr rasch. Sie kann durch einen spin- oder paritätsverbotenen Übergang (A-G) maximal bis zu einigen Millisekunden verzögert werden [Chen und McKeever, 1997].

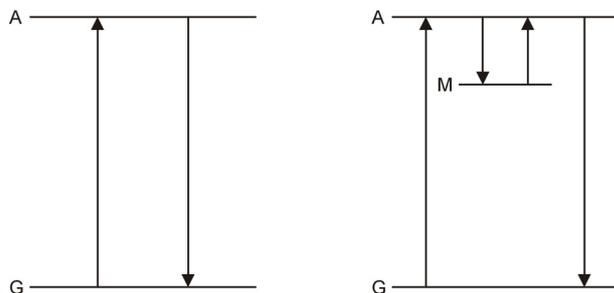


Abbildung 2.1: Einfaches Modell der Lumineszenz, mit und ohne Zwischenzustand, nach Chen und McKeever [1997].

jedoch möglich, in einen weiteren (Zwischen-)Zustand M zu gelangen (Abb. 2.1, rechts). In diesem Zustand kann sich die Rückkehr in den Grundzustand verzögern, wenn der direkte Übergang (M-G) verboten ist und den Elektronen die für den Wiederübergang in den Zustand A notwendige Energie nicht zur Verfügung steht. Die mittlere Aufenthaltsdauer τ eines Elektrons in dem metastabilen Zustand M wird vor allem durch die zur Verfügung stehende thermische Energie W

$$W = \frac{f}{2} \cdot k \cdot T \quad (2.1)$$

(f : Zahl der Freiheitsgrade des Moleküls, k : Boltzmann-Konstante $1,381 \cdot 10^{-23}$ J/K bzw. $8,621 \cdot 10^{-5}$ eV/K) bestimmt. Sie ist gegeben durch

$$\tau = Y^{-1} \cdot e^{\frac{E}{k \cdot T}} \quad (2.2)$$

wobei E den Abstand (M-A) in eV und Y den so genannten Frequenzfaktor (Einheit s^{-1}) darstellt. Letzterer kann als die Zahl der Übergangsversuche pro Sekunde interpretiert werden [Aitken, 1985].

Auch eine kurzfristige äußere Zufuhr von Energie, die man als Stimulation bezeichnet, kann das Elektron aus dem Zustand M befreien und so die Lumineszenz auslösen. Im Allgemeinen ist dies Wärme (dann spricht man von „thermisch stimulierter Lumineszenz“ oder TL) oder Licht („optisch stimulierte Lumineszenz“, OSL).

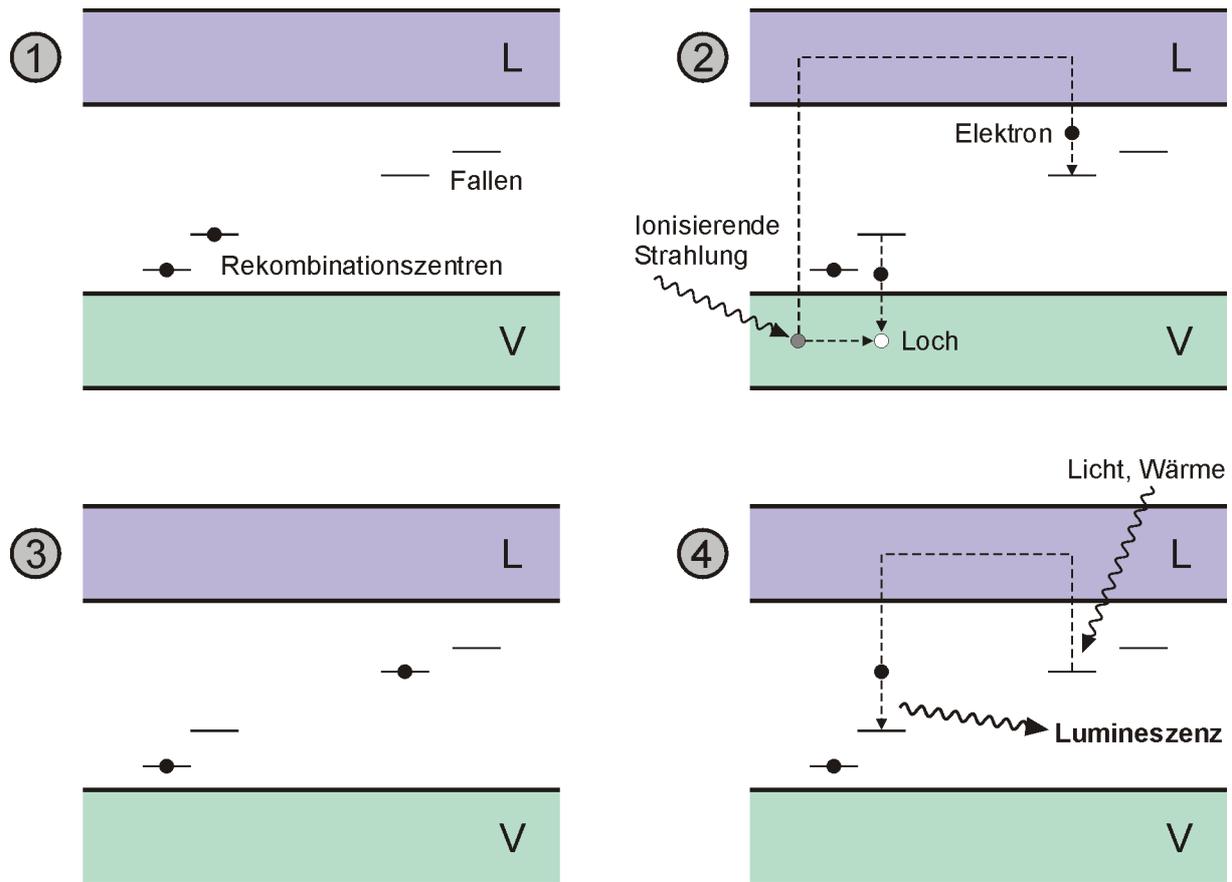


Abbildung 2.2: Modell der Radiolumineszenz in Mineralen, nach Wagner [1998].

Lumineszenz wird neben den klassischen Luminophoren, wie beispielsweise ZnS, in vielen isolierenden Festkörpern beobachtet werden, unter anderem in ca. zwei Dritteln der natürlichen Minerale [McKeever, 1985]. Die Ursachen für die ursprüngliche Anregung der Elektronen sind dabei vielfältig: so werden von der *Radiolumineszenz* (Anregung durch hochenergetische Strahlung) die *Kathodolumineszenz* (Anregung durch Elektronen im keV-Bereich) und die *Photolumineszenz* (Anregung durch Licht, im Allgemeinen UV-Licht) unterschieden. *Chemilumineszenz* bezieht ihre Energie aus Reaktionsprozessen. Daneben gibt es Fälle von Anregungen durch mechanische (*Tribolumineszenz*) oder sogar durch Schallenergie (*Sonolumineszenz*) [Chen und McKeever, 1997].

Die technische Verwertung der Lumineszenz findet sich in einer Vielzahl, auch alltäglicher Anwendungen – von der Braunschen Röhre bis hin zu optischen Aufhellern in Textilwaschmitteln. Die Chemilumineszenz ist landläufig vom Leuchten der Glühwürmchen bekannt und dient häufig zur Visualisierung biochemischer Prozesse. Kathodo- und Photolumineszenz werden in der Mineralogie zur Unterscheidung von Mineralphasen genutzt. Materialien, die ein besonders intensives Nachleuchten zeigen, haben die Menschen von alters her fasziniert. Eine Kulturgeschichte des Lumineszenzphänomens findet sich bei Harvey [1957]. Die leuchtenden Substanzen waren naturgegeben zumeist Minerale. Die Möglichkeit einer Akkumulation von Elektronen in einem langlebigen Zustand aber bildet die Grundlage einer Datierungsmethode, die sich dieser Minerale bedient. Der Prozess, der dabei eine gleichmäßige Anregung erlaubt, ist die Umgebungsradioaktivität.

2.2 Optisch und thermisch stimulierte Radiolumineszenz natürlicher Minerale

Minerale – laut Duden anorganische, chemisch einheitliche und natürlich gebildete Bestandteile der Erdkruste – sind Festkörper mit periodischem, kristallinem Aufbau. Durch die Periodizität kommt es zur Überlagerung der Wellenfunktionen der Einzelmoleküle eines Kristalls. Im Falle idealisierter Festkörper führt dies zur Ausbildung von scharf abgesetzten Energiebändern, in denen sich die Elektronen des Festkörpers aufhalten, und so genannten „verbotenen“ Zonen, in denen keine Lösung für die Gesamt-Schrödingergleichung existiert [Kittel, 1966]. Dabei wird zur Betrachtung meist nur das (energetisch) höchste vollbesetzte Band (das „Valenzband“) und der darüber liegenden Bereich (das „Leitungsband“) herangezogen [Gerthsen, 1993]. Dies entspricht einem Viel-Elektronen-System mit zwei Niveaus, analog Abb. 2.1. Für Isolatoren, wie sie die natürlichen Minerale darstellen, beträgt der Abstand zwischen Valenz- und (leerem) Leitungsband einige eV.

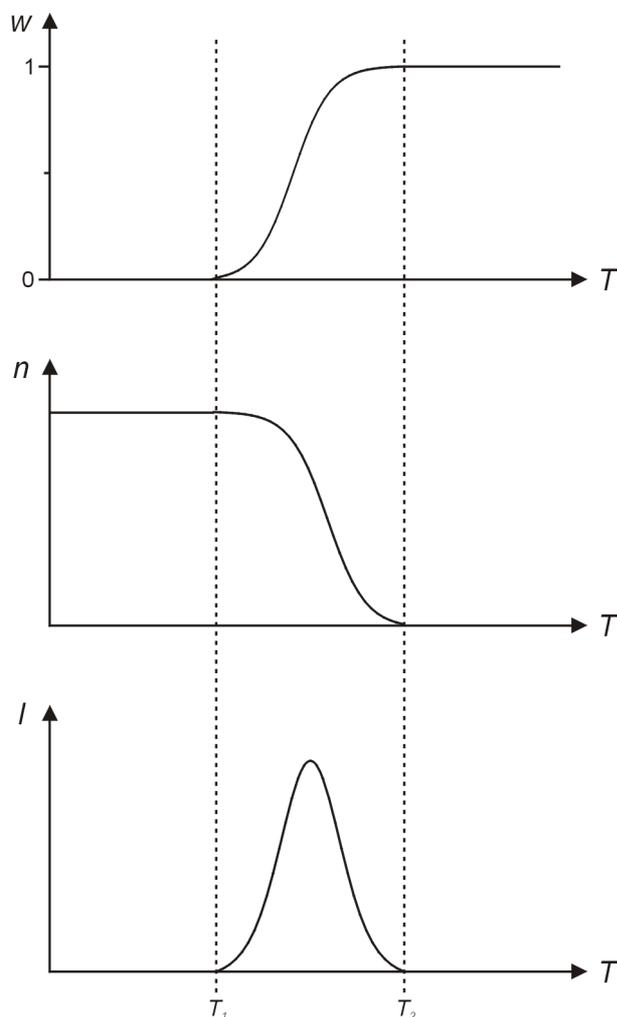


Abbildung 2.3: Ausbildung eines Lumineszenz-Peaks bei thermischer Stimulation (unten) als Produkt zwischen Übergangswahrscheinlichkeit w und Besetzungsdichte des metastabilen Zustands n in Abhängigkeit von der Temperatur T , nach [Kuhn, 2000].

Störungen der Periodizität in einem Mineral können in der verbotenen Zone Zwischenzustände erzeugen (Abb. 2.2, 1 und Abb. 2.1, rechts). Diese Störungen können beispielsweise von *thermischen* Fehlordnungen herühren – hierzu zählen Punktdefekte, wie der Schottky-Defekt, bei dem Gitterplätze unbesetzt sind oder die Anti-Schottky-Fehlordnung, die ein auf einem Zwischengitterplatz sitzendes Teilchen bezeichnet. Ein Frenkel-Defekt umfasst das gleichzeitige Auftreten der beiden Phänomene. Weiterhin kann es *Versetzungen* im Gitter geben, beispielsweise Stufen in der Kristallordnung oder Schraubenversetzungen. Daneben existieren *chemische* Fehlordnungen – Fremdatome können reguläre Gitterplätze oder auch Zwischengitterplätze besetzen. Dies können beabsichtigte oder natürliche Dotierungen des Festkörpers sein, z. B. mit *Donatoren* (Elektronenüberschuss, resultierend in Energiezuständen unterhalb des Leitungsbandes) oder *Akzeptoren* (Elektronenmangel, Energiezustände nahe des Valenzbandes). Unter anderem Fe, Mn, Pb sowie viele seltene Erden, die als Spurenelemente in Mineralen zu finden sind, können hierfür verantwortlich sein.

Die direkte Auswirkung der Fehlordnungen lässt sich beispielsweise am NaCl-Kristall beobachten, das eine Bandlücke von einigen eV außerhalb des sichtbaren Bereiches besitzt. Durch Halogenlücken, so genannte F(„Farb“-)Zentren, bilden sich positiv geladene Bereiche, die sich wasserstoffähnlich verhalten und eine Absorptionsenergie von

2,7 eV besitzen. Dies erzeugt einen Zwischenzustand, der für die bläuliche Reflexion bzw. gelbliche Farbe des Kristalls im transmittierten Licht verantwortlich ist [Gerthsen, 1993].

Bei einem radioaktiven Zerfall werden hochenergetische Teilchen und Strahlung emittiert. Durchdringen diese einen Festkörper, so kommt es aufgrund von Wechselwirkungen unter anderem zur Ionisation. Die dabei im Valenzband eines Minerals entstandenen Elektron-Loch-Paare können die Zwischenzustände mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit besetzen (Abb. 2.2, 2). Die mittlere Aufenthaltsdauer der Elektronen wird durch den Abstand des Zwischenzustands zum Leitungsband, durch die Temperatur und den Frequenzfaktor bestimmt. Letzterer liegt im Bereich der Gitterschwingungen des Festkörpers ($\sim 10^{14} \text{ s}^{-1}$). Der Abschätzung in Tab. 2.1 ist zu entnehmen, dass Verweildauer leicht einige Millionen Jahre betragen kann. Die Zwischenzustände werden auch als „Fallen“ bezeichnet. Die Lebensdauer kann aber auch durch nicht-thermische Einwirkung beeinflusst werden. Dieser Effekt auf die Fallenpopulation wird als ‚*anomalous fading*‘ bezeichnet. Als Ursache wird unter anderem ein quantenmechanisches Tunneln der Elektronen aus dem Zwischenzustand heraus diskutiert [Aitken, 1985].

Bei der Rückkehr in den Grundzustand – wobei im Gegensatz zur vereinfachenden Darstellung im Allgemeinen nicht von einer direkten Rekombination ausgegangen wird – kann es dann zur Emission von Lumineszenzstrahlung kommen (Abb. 2.2, 4). Die Intensität der Lumineszenz ist der zeitlichen Änderung der Fallenpopulation n und damit dem Produkt der im Zwischenzustand befindlichen Elektronen und ihrer Übergangswahrscheinlichkeit w proportional:

$$I(t) \propto \frac{dn}{dt} \propto n \cdot w \quad (2.3)$$

Die an dem Vorgang beteiligten Rekombinationszentren sind für die Wellenlänge der Lumineszenzemission verantwortlich, wobei aber auch ein Zentrum mehrere Emissionswellenlängen aufweisen kann.

E	1,0 eV	1,25 eV	1,50 eV	1,75 eV
τ	40 min	600 d	36100 a	800 Ma

Tabelle 2.1: Abschätzung der mittleren Aufenthaltsdauern bei 20°C (0,025 eV) und einem Frequenzfaktor von 10^{14} s^{-1} in Abhängigkeit vom energetischen Abstand E des metastabilen Zwischenzustands zum Leitungsband. Diese Größe wird etwas irreführend auch die „Lebensdauer“ des Zustandes genannt. Die Unterschiede führen zur Differenzierung so genannter „flacher“ Elektronen-Fallen mit geringen Lebensdauern und „tiefer“ Fallen, die eine hohe Aufenthaltsdauer der Elektronen aufweisen.

Wird das Mineral gleichmäßig erhitzt, so steigt mit der zur Verfügung stehenden thermischen Energie die Übergangswahrscheinlichkeit als Kehrwert der mittleren Verweildauer aus der Falle (Abb. 2.3):

$$w = \frac{1}{\tau} \quad (2.4)$$

Dies hat eine Abreicherung der Fallenpopulation zur Folge. Hieraus resultiert schließlich ein Aufleuchten der Probe („Peak“) in einem charakteristischen Temperaturbereich. Die Intensität des Peaks ist abhängig von der ursprünglichen Fallenpopulation und kann zu ihrer Bestimmung dienen.

Bei Stimulation unter Verwendung monochromatischen Lichtes der Wellenlänge λ und gleichbleibender Leistung dagegen ist die Übergangswahrscheinlichkeit konstant und der Energiedichte proportional:

$$w \propto P(\lambda) \quad (2.5)$$

Dies führt zu einer Abreicherung mit einer konstanter Rate a , die ebenfalls proportional zur Leistung ist:

$$a = \eta \cdot P(\lambda) \quad (2.6)$$

Vernachlässigt man zunächst kinetische Effekte zweiter Ordnung, wie beispielsweise den Wiedereinfang von Elektronen durch eine Falle, so führt die Ratengleichung zur Beschreibung der zeitlichen Entwicklung des OSL-Signals (die so genannte „Ausleuchtkurve“, Abb. 2.4) durch eine einfach-exponentielle Funktion:

$$I(t) = I_0 \cdot e^{-a \cdot t} \quad (2.7)$$

Die Gesamtzahl der emittierten Lumineszenzphotonen ist unabhängig von der Stimulationsleistung (nicht aber von anderen Größen, die in n eingehen!):

$$\int_0^{\infty} I(t) \cdot dt = \frac{I_0}{n} = I_{ges} \quad (2.8)$$

Die Ausleuchtkurve kann somit auch ausgedrückt werden als

$$I(t) = n \cdot I_{ges} \cdot e^{-a \cdot t} \quad (2.9)$$

wodurch die wechselseitige Beziehung von Initialwert und Ausleuchtverhalten in Abhängigkeit von der Stimulationsleistung deutlich wird.

Für die thermisch bzw. optisch stimulierte Radiolumineszenz werden meist verkürzend die Begriffe „Thermolumineszenz“ bzw. „optisch stimulierte Lumineszenz“ verwendet.

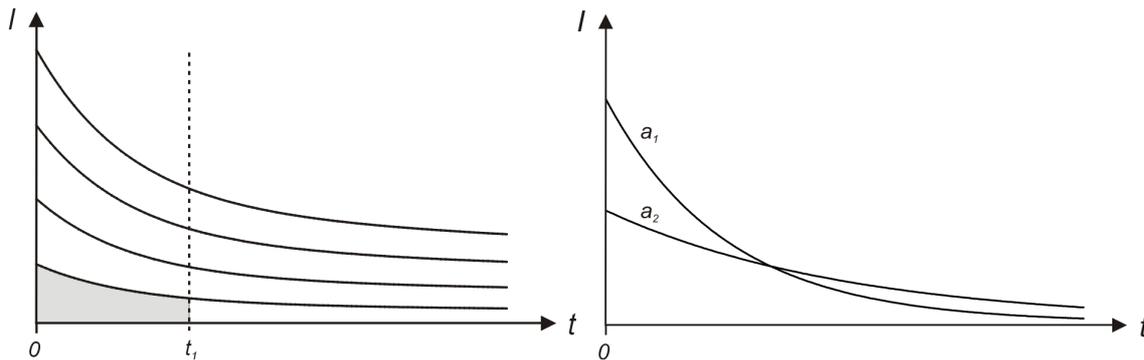


Abbildung 2.4: Beispiele für Ausleuchtkurven. Mit der Stimulationsdauer nimmt das Signal ab (links). Die Fläche unter der Kurve ist von der ursprünglichen Zahl der Elektronen in der Falle abhängig. Eine höhere Stimulationsleistung führt zu einem steileren Verlauf der Kurve (rechts). Bei sehr geringer Stimulationsleistung können Abweichungen von der exponentiellen Form festgestellt werden [Chen und McKeever, 1997].

2.3 Strahlendosimetrie an Mineralen

2.3.1 Methodik und Altersgleichung

Die Ionisierung eines Minerals durch hochenergetische Strahlung und die Anreicherung von Elektronen in den Zwischenzuständen stellt einen Strahlenschaden dar. Die Strahlenschäden heilen durch ihre thermische Instabilität in einem Zeitbereich, der durch die Lebensdauern der Fallen gegeben ist, oder auch kurzfristig durch die Anwesenheit einer hinlänglichen Stimulationsenergie, z. B. in Form von Licht bzw. Wärme, aus. Ist die Falle ausreichend stabil und fehlt eine externe Stimulation, so akkumuliert das Material die Schäden. Kennt man die Rate für die Bildung der Strahlenschäden, so ist es möglich, die Zeit zu ermitteln, über sie sich bilden konnten (Abb. 2.5).

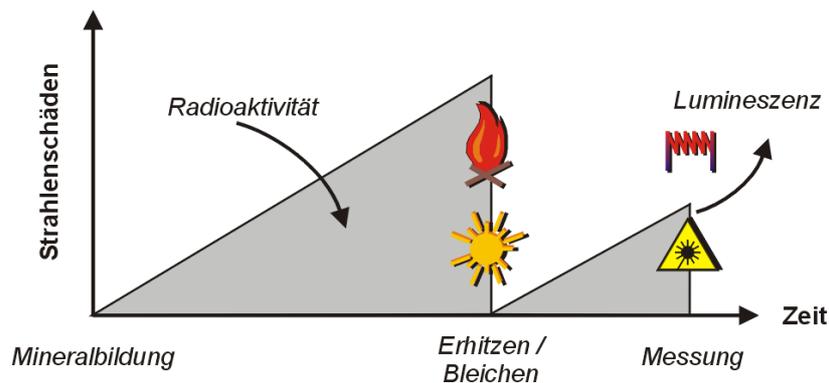


Abbildung 2.5: Akkumulation und Ausheilen von Strahlenschäden.

Die Zahl der Elektronen in den Fallen kann nicht direkt ermittelt werden. Vielmehr sind diese Strahlenschäden ein Maß für die Dosis (Energie pro Masse) D_{nat} , die das Material absorbiert hat. Die Bildungsrate ist durch die Dosisleistung \dot{D} an der Stelle des Minerals gegeben. Die Verknüpfung dieser beiden Größen führt zu der Altersgleichung:

$$t = \frac{D_{nat}}{\dot{D}} \quad (2.10)$$

$$[D_{nat}] = \text{J/kg} = 1 \text{ Gy (Gray)}, [\dot{D}] = 1 \text{ Gy/a}$$

Aber auch die vom Mineral absorbierte Dosis ist nicht direkt zugänglich. Doch die Intensität der bei einer kurzfristigen Stimulation emittierten Lumineszenz I_{nat} ist der Zahl der in einer Falle akkumulierten Elektronen n und somit der Dosis proportional:

$$t = \frac{D_{nat}}{\dot{D}} = \frac{s}{\dot{D}} \cdot I_{nat} \quad (2.11)$$

Der Proportionalitätsfaktor s wird als die Sensitivität des Materials bezeichnet. Da das Lumineszenzsignal meist sehr schwach ist, wird als Maß der Intensität die Zahl der nachgewiesenen Photonen eines festgelegten Wellenlängenbereiches verwendet. Entsprechend ist die Einheit der Sensitivität angepasst.

Eine Datierung von archäologischen oder geologischen Ereignissen mit Hilfe der TL oder OSL ist dann möglich, wenn jene mit der Einwirkung von Licht oder Wärme auf geeignete Minerale verknüpft sind und zu einem möglichst vollständigen Ausheilen der Strahlenschäden, der so genannten „Nullstellung“ geführt haben.

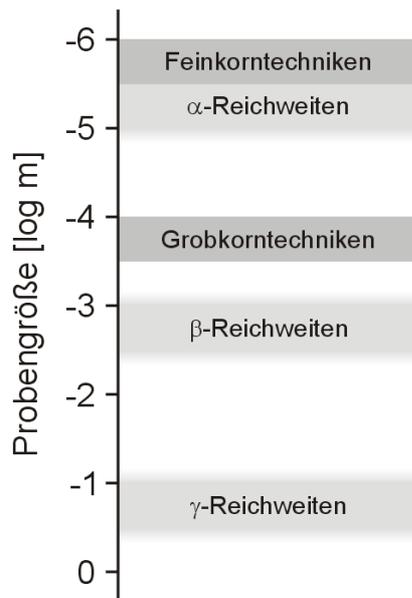


Abbildung 2.6: Reichweiten von α -, β - und γ -Strahlung in einer Probe im Vergleich zu den angewandten Datierungstechniken (s. 2.4.3).

Die Lumineszenz-Datierungsmethode gehört (zusammen mit der Elektronenspin-Resonanz-Technik, ESR) zu den so genannten „Strahlendosimetrie“-Methoden. Die Bezeichnung leitet sich aus der Verwendung der Minerale als Dosimeter ab, auf die die Strahlung der natürlichen radioaktiven Isotope aus den Zerfallsreihen von Uran-235, Uran-238 und Thorium-232, sowie von Kalium-40 und Rubidium-87 und die kosmische Höhenstrahlung einwirkt. Aufgrund ihrer Häufigkeit in der Erdkruste werden zumeist Quarz und Feldspat, aber auch Zirkon für Datierungen genutzt. Der erfassbare Altersbereich liegt ungefähr zwischen 10^2 und 10^6 Jahren [Wagner, 1998] und deckt somit grob den Zeitraum des Quartärs ab. Die Untergrenze wird vor allem durch die Nachweisempfindlichkeit für das Lumineszenzsignal und die geringe Rate der Bildung von neuen Strahlenschäden bestimmt. So können an uranreichen Zirkon-Körnern aufgrund der hohen Dosisleistung bereits Zeiträume von einigen Dutzend Jahren datiert werden [den Hartog, 2001]. Trotz der unter Umständen sehr hohen Lebensdauer der Elektronenfallen ist die Methodik zu langen Zeiträumen hin durch die Sättigung der verfügbaren Fallenplätze und durch das nicht-thermische Ausheilen der Strahlenschäden beschränkt.

Die TL-Technik ist inzwischen ein fester Bestandteil der Quartärdatierung geworden und besitzt zahlreiche Anwendungen, z. B. die Datierung von Keramiken und gebrannten Tonen, von Feuersteinen oder auch Vulkaniten. Die Lichtempfindlichkeit der TL-Proben (Bleichbarkeit) war bereits lange bekannt. Sie erlaubte die Ausdehnung der TL-Technik auch auf gebleichte Proben wie Löss, Dünen sande oder Archäosedimente, bevor auch direkt das optisch stimulierte Signal zur Datierung verwendet wurde. Das OSL-Signal stammt von leicht bleichbaren Elektronenfallen, die unter Tageslicht in ca. einer halben Stunde entleert sind. Die Bleichung von TL-Fallen kann dagegen bis zu einem Tag dauern. Dies begründet die besondere Eignung der OSL-Technik für gebleichte Proben. Aber auch gebrannte Materialien, z. B. Keramik-Artefakte, lassen sich wiederum mit dieser Technik bearbeiten.

2.3.2 Einflussparameter / Gradienten

Wenngleich die Altersgleichung der Lumineszenzdatierung (2.10) mathematisch sehr einfach ist, so kann diese Einfachheit nicht auf die Bestimmung der Einzelgrößen Dosis und Dosisleistung übertragen werden. Durch eine Vielzahl von Einflussparametern ist das betrachtete System überaus komplex. Denn natürliche Minerale unterscheiden sich nicht nur in ihrer Elementzusammensetzung und ihrer Kristallstruktur. Auch Art und Anzahl der Fehlordnungen können stark unterschiedlich ausgeprägt sein. Die Gehalte an Spurenelementen sind sehr variabel. Darüber hinaus liegt innerhalb einer Probe oft noch ein großes Spektrum an Mineral Korngrößen und -beschaffenheiten vor. Diese Variabilitäten, die auch innerhalb von einzelnen Körnern zu finden sind¹, wirken sich auf die materialbezogenen Größen s und \dot{D} in (2.9) aus:

¹ Intensität und Farbe der Lumineszenz sind äußerst empfindlich auf kleinste Schwankungen z. B. im Gehalts an seltenen Erden. Gerade daher werden Kathodo- oder Photolumineszenz genutzt, um feinste Unterschiede, die mit einer Konzentrationsmessung nicht mehr aufgelöst werden könnten, leicht visualisieren und unter anderem Rückschlüsse auf das Kristallwachstum ziehen zu können [Marshall, 1988].

1. Sensitivität:

- Die spektrale Sensitivität $s(\lambda)$, d. h. die Lumineszenzintensität pro absorbiertes Dosis in Abhängigkeit von der Emissionswellenlänge.
- Das zeitliche Verhalten des Lumineszenzsignals, mithin die Sensitivität als Funktion der Messzeit $s(t_{Lab})$.
- Das Verhalten der Sensitivität in Abhängigkeit von der Dosis $s(D)$. Beispielsweise wird für niedrige Dosisbereiche von einigen Gray z. T. ein supralinearer Zusammenhang beobachtet. Im Bereich hoher Dosen machen sich dagegen exponentielle Sättigungseffekte bemerkbar.
- Das Verhalten der Sensitivität $s(D)$ selbst in Abhängigkeit von der Geschichte der Probe (Häufigkeit wiederholter Bestrahlungen, eventuelle Wärmeeinwirkungen)².

2. Dosisleistung:

- Variierende Gehalte an Radionukliden – ob als stöchiometrisches (K) oder Spurenelement (U, Th) – haben unterschiedliche *Dosisleistungen* zur Folge.
- Die Reichweiten von α -, β - und γ -Strahlen unterscheiden sich stark (Abb. 2.6). Während α -Teilchen in Quarz, Feldspat und Mineralen ähnlicher Dichte und Kernladungszahlen eine Reichweite von nur ca. 20 μm besitzen, können die β -Elektronen das Volumen bereits ungefähr 2 mm durchdringen. Für γ -Strahlen muss gar von ca. 30 cm ausgegangen werden.
- Die Strahlungsarten weisen darüber hinaus bedingt durch ihre spezifische Ionisationsdichte Unterschiede in der Effizienz der Fallenbesetzung auf. Während diese für β -, γ - und kosmische Strahlung gleich sind, ist sie für α -Teilchen im Vergleich um einen Faktor sieben bis zehn niedriger.
- Weiterhin können, z. B. durch Ausgasen von Radon, Ungleichgewichte in den Zerfallsreihen von Uran und Thorium auftreten.
- Ein eventueller Wassergehalt der Probe beeinflusst die Dosisleistung, wobei auch hier von einer von der Strahlungsart abhängigen Stärke des Effektes ausgegangen werden muss.

Diese Punkte führen zu einem sehr komplexen Mikrodosimetriefeld, für dessen Bestimmung auch die Umgebung der Probe miteinbezogen werden muss [Aitken, 1985].

2.4 Die Datierungstechnik

Um das Alter einer Probe mit Hilfe der Altersgleichung der Lumineszenzdatierung (2.11) zu ermitteln, müssen drei Größen bestimmt werden:

- Die Energiedosis D_{nat} über die Messung der natürlichen Lumineszenz I_{nat} und der spezifischen Sensitivität der Probe s (2.4.1).
- Die Dosisleistung \dot{D} an der Stelle der Probe (2.4.2).

² Chen und McKeever [1997] geben ein einfaches Beispiel für eine derartige Sensitivitätsänderung – bei nur zwei am Lumineszenz-Vorgang beteiligten Fallen reicht es aus, wenn eine Falle nicht durch den Messvorgang geleert wird. Bei wiederholter Bestrahlung füllt sich diese Falle bis sich Sättigungseffekte bemerkbar machen und der Einfangquerschnitt der radiativen Falle und mit ihm auch die Sensitivität der Probe ansteigt.

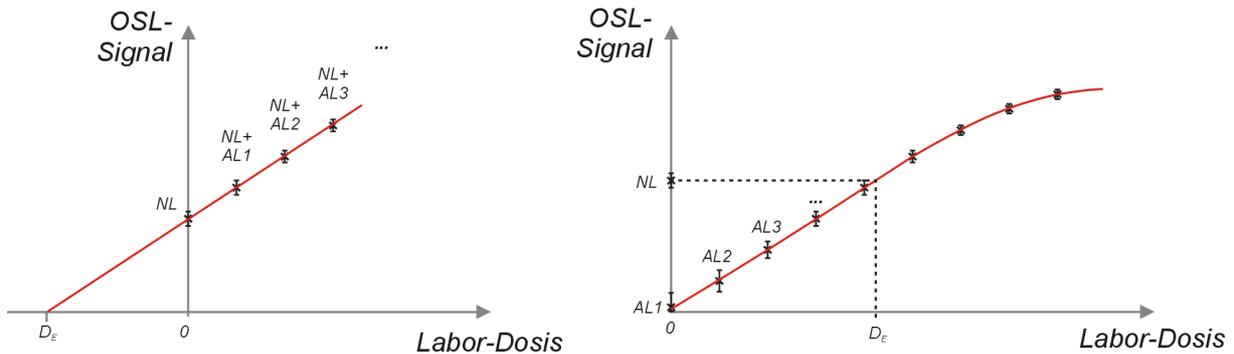


Abbildung 2.7: Beispiele für Wachstumskurven: beim so genannten „additiven“ Vorgehen (links) werden Laborbestrahlungen vorgenommen, die zusätzlich zur natürlichen Lumineszenz (NL) einen weiteren Signalbeitrag (AL) liefern. Durch Extrapolation kann der Wert der Äquivalenzdosis bestimmt werden. Bei den „regenerativen“ Verfahren (rechts) wird das natürliche Signal (NL) vor den Laborbestrahlungen vollständig gelöscht und die Äquivalenzdosis durch die Messwerte interpoliert. Darstellung nach Kadereit [2000].

Diese Größen können nur dann in einer sinnvollen Weise zu einem Alter verknüpft werden, wenn Bereichen betrachtet werden, in denen sie homogen sind. Dies trifft im Allgemeinen nur für Teile einer natürlichen Probe zu (2.4.3).

2.4.1 Dosisbestimmung

2.4.1.1 Äquivalenzdosis

Die Messung der Intensität der natürlichen Lumineszenz I_{nat} ist recht unkompliziert mit einem ausreichend empfindlichen Nachweisgerät möglich.

Für die Sensitivität einer Probe ist aber aufgrund der angesprochenen Komplexität eine quantitative Vorhersage nicht einmal annähernd möglich. Daher muss die spezifische Dosis-Signal-Beziehung jeder Probe im Labor durch die Bestrahlung mit einer bekannten Dosis (meist durch β -Quellen) bestimmt werden:

$$s = \frac{I_{Lab}}{D_{Lab}} \quad (2.12)$$

Da die natürliche Dosis kann dann ausgedrückt werden durch:

$$D_{nat} = \frac{I_{nat}}{s} = \frac{I_{nat}}{I_{Lab}} D_{Lab} \quad (2.13)$$

Damit verändert sich die Altersgleichung zu:

$$t = \frac{D_{nat}}{\dot{D}_{nat}} = \frac{I_{nat}}{I_{Lab}} \cdot \frac{D_{Lab}}{\dot{D}_{nat}} \quad (2.14)$$

Hier wird deutlich, dass es sich bei der Lumineszenz-Datierungstechnik um den Vergleich einer Laborquelle mit einer natürlichen Dosisleistung handelt und die Zeit in Form eines Faktors auftritt, der durch das Verhältnis der jeweils erzeugten Lumineszenzintensitäten ausgedrückt wird.

Aufgrund der Abhängigkeit der Sensitivität von der Dosis und der Behandlungsgeschichte wird statt einer einzigen Messung gemäß (2.12) aus den Lumineszenzsignalen mehrerer, unterschiedlich starker Laborbestrahlungen eine Kalibrationsfunktion für die Probe, die so genannte „Wachstumskurve“, erstellt. Dies erlaubt zudem eine präzisere Messung von s . Die Wachstumskurve ermöglicht die Bestimmung einer „Äquivalenzdosis“ (D_E), also derjenigen

Labordosis, die in der Probe ein dem natürlichen äquivalentes Lumineszenzsignal erzeugt. Bei diesem Vorgehen werden so genannte additive und regenerative Verfahren unterschieden (Abb. 2.7).

2.4.1.2 Vorheizen

Probleme bei dem Erstellen der Wachstumskurve bereitet unter anderem, dass der Aufbau der Strahlenschäden, die zum natürlichen Lumineszenzsignal führen, auf einer gänzlich anderen Zeitskala stattfindet als die Laborbestrahlungen. Einigen Hunderten oder Tausenden von Jahren stehen einige Sekunden oder Minuten gegenüber. Dies hat zu Folge, dass Fallen mit einer kurzen Lebensdauer, die im Fundzustand der Probe leer sind, nach Laborbestrahlungen einen erheblichen Beitrag zum Signal leisten. In der Regel können diese Fallen durch ein kurzes Aufheizen (einige Minuten) der Probe („Vorheizen“) auf Temperaturen zwischen 200 und 300 °C entleert werden, während der Füllungszustand tieferer, zur Datierung genutzter Fallen ausreichend nahezu bleibt.

2.4.1.3 Normierungen

Die Veränderungen der Sensitivität im Laufe der Messungen im Datierungslabor sind besonders dann kritisch, wenn die Messungen zum Aufbau der Wachstumskurve an einer einzelnen Probe (so genannte ‚single aliquot‘-Protokolle) vorgenommen, und nicht viele Unterproben jeweils mit einer anderen Labordosis bestrahlt werden (‚multiple aliquot‘-Protokolle). Üblicherweise wird die Probe daher immer wieder mit einer konstanten „Test-“ oder „Normierungs-dosis“ bestrahlt, um die Sensitivitätsänderung quantifizieren zu können.

Schritt	Vorgang
1	Bestrahlung mit Dosis D_i (entfällt bei Zyklus 1)
2	Vorheizen (entfällt bei Zyklus 1)
3	Stimulation (OSL) liefert Signal L_i
4	Bestrahlung mit Testdosis D_i^t
5	Vorheizen
6	Stimulation (OSL) liefert Testsignal L_i^t
7	nächster Zyklus (Start bei 1)

Tabelle 2.2: Protokoll zum Aufbau einer regenerativen Wachstumskurve an einer einzigen Probe (SAR-Protokoll) [Murray und Wintle, 2000, zitiert nach Schilles, 2002].

Die Änderung der Lumineszenzintensität, die diese Testdosis erzeugt, wird dann zur Korrektur Wachstumskurve genutzt.

2.4.1.4 Anomalous Fading

Besonders feldspathaltige Proben werden, nachdem die Messungen zur Äquivalenzdosis-Bestimmung abgeschlossen sind, zumeist noch einmal bestrahlt und über mehrere Wochen bei Raumtemperatur dunkel gelagert. So kann der nicht-thermische Signalverlust quantifiziert und zu einer Korrektur der Äquivalenzdosis verwendet werden.

2.4.1.5 Messgeräte

Moderne Lumineszenz-Messgeräte erlauben heutzutage die automatisierte Bestimmung der Äquivalenzdosis einer Probe. Diese Geräte sind mit Laser bzw. Hochleistungs-LEDs zur Stimulation, Photoelektronenvervielfachern mit Filtern zur Unterdrückung des Stimulationslichtes und zur Auswahl des Wellenlängenbereiches der Detektion, Vorheiz-Einrichtungen sowie radioaktiven Quellen (meist $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ - β - und ^{241}Am - α -Quellen) zur Bestrahlung ausgestattet. Daneben gibt es auch (vor allem ältere) Geräte, die nur für einzelne Abschnitte der Datierungsprozedur geeignet sind.

2.4.2 Dosisleistungsbestimmung

Zur Bestimmung der Dosisleistung werden üblicherweise die Elementkonzentrationen der Radionuklide Uran, Thorium, Kalium in der Probe selbst und ihrer Umgebung bestimmt. Mit Hilfe hochauflösender γ -Spektrometer werden die Energiespektren von ca. 30 g Probenmaterial ausgewertet (Abb. 2.8.). Zusätzlich können eine direkte β -Aktivitätszählung, eine α -Zählung sowie eine in-situ γ -Messung am Fundort erfolgen.

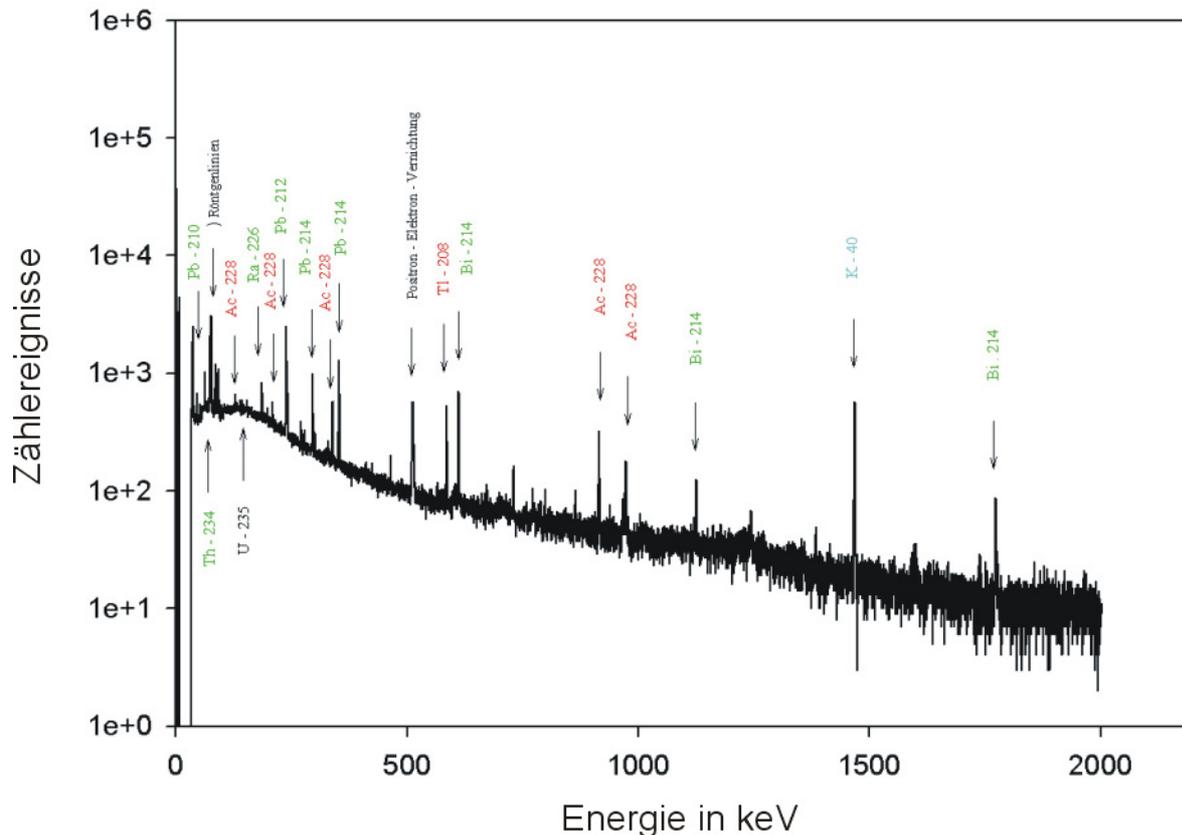


Abbildung 2.8: Hochauflöstes γ -Spektrum einer Lumineszenzprobe (S. Lindauer, Forschungsstelle Archäometrie, pers. Mitteilung). Die markierten Zählspitzen dienen der Analyse einzelner Elemente der U- und Th-Zerfallsreihen und können so auch radioaktive Ungleichgewichte aufdecken.

Die Bestimmung des Porenvolumens der Probe dient zusammen mit der Abschätzung des mittleren Wassergehaltes der Ermittlung der Strahlungsabschwächung. Sie kann berechnet werden durch

$$\dot{D}_{\text{feucht}} = \frac{\dot{D}_{\text{trocken}}}{1 + c \cdot P \cdot W} \quad (2.15)$$

wobei P die Porosität (das relative Porenvolumen), W den mittleren relativen Wassergehalt und c den spezifischen Schwächungsfaktor darstellt (Tab. 2.3).

Neben der Bestimmung der Radionuklidkonzentrationen existieren auch in-situ Expositionsverfahren, bei denen ein Dosimeter an der Stelle der Probe eingesetzt wird. Ein Beispiel hierfür ist die Verwendung des hochempfindlichen, künstlichen Luminophors $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ [Kalchgruber, 2002].

Strahlung	c
α	1,50
β	1,25
γ	1,14

Tabelle 2.3: Strahlungsspezifische Abschwächungsfaktoren [Zimmermann, 1971].

2.4.3 Berechnung des Probenalters

Die Analyse unaufbereiteter Proben führt aufgrund der in 2.3.2 beschriebenen Inhomogenitäten zu Mischsignalen und so zu fehlerhaften Bestimmungen. Daher werden in der Vorbereitung der Probe eine Mineral- und eine Korngrößentrennung vorgenommen. So erhält man eine Auswahl (Fraktion) an Körnern, die nicht nur ähnliche Lumineszenzeigenschaften aufweisen, sondern im statistischen Mittel auch der gleichen Dosisleistung ausgesetzt waren. Mit Hilfe eines Dosisleistungsmodells ist es möglich, aus den ermittelten Radionuklidkonzentrationen die Dosisleistung für die gewählte Fraktion zu errechnen. Neben den von Radionukliden innerhalb des Korns ausgehenden internen Anteilen werden auch aus der Umgebung des Korns beziehungsweise der Probe stammende externe Anteile (meist γ - oder kosmische Komponente) betrachtet.

Üblich ist hierbei die Arbeit an der so genannte „Quarz-Grobkornfraktion“ mit Korngrößen zwischen 90 und 120 μm (Quarz-Inklusions-Methode). Da Quarzkörner sehr niedrige Gehalte an Uran sowie Thorium besitzen und kein Kalium enthalten, wird ihre Dosisleistung in dieser Größenklasse durch das externe β - und γ -Strahlenfeld bestimmt [Fleming, 1966]. Die geringe, interne Abschwächung der β -Strahlung wird dabei berücksichtigt. Die ca. 10-20 μm messende äußere Rinde der Körner, in die noch α -Teilchen eindringen können, wird durch Flusssäure entfernt. Eine andere gängige Option ist die Extraktion einer polymineralischen „Feinkornfraktion“ zwischen 4 und 11 μm , bei der alle Körner vollständig von einem α -, β - und γ -Strahlenfeld durchdrungen waren (Abb. 2.6). Diese Präparate werden dann in der Regel in Einkornlagen auf ca. 8-10 mm große Metall-Träger zur Messung aufgebracht.

Nachdem zu Beginn der Lumineszenzdatierung *multiple aliquot*-Techniken angewendet wurden, sind verstärkt Verfahren entwickelt worden, die Messungen an einer oder an einigen wenigen Unterproben erlaubten. Das gerade bei antiken Artefakten nur begrenzt zur Verfügung stehende Probenmaterial kann so geschont und der Präparationsaufwand im Labor verringert werden.

Bemühungen um eine weitere Reduktion der Probenmenge und die Aussicht, dabei auch die Varianz der Lumineszenzeigenschaften zwischen den Körnern besser untersuchen zu können, führte in jüngerer Zeit dazu, dass verstärkt Messungen auf einige wenige oder gar ein einzelne Körner reduziert wurden. So arbeitet ein modernes Lumineszenz-Messgerät mit einem fokussierten Laser, der über ein Raster von Einzelkörnern streift [Duller et al., 2000]. Es ist inzwischen möglich – nach einem erhebliche Aufwand für die Präparation, da jedes Korn im Dunkeln für die Messung vorbereitet werden muss – die Äquivalenzdosis für einzelne Mineralkörner sehr genau zu bestimmen. Doch sind auch diese Körner aus ihrem Probenkontext gerissen. So ist die Verteilung der Äquivalenzdosen zwar bekannt, doch bleiben Ungewissheiten über die Ursachen ihrer Streuung. Sie kann in einer unzureichenden Bleichung oder in einem inhomogenen Mikrodosimetriefeld, z. B. der Nachbarschaft zu einem starken Punktstrahler liegen. Der ursprünglich verwendete statistische Ansatz kann im Fall eines Einzelkorns nicht mehr tragen.

2.5 Lumineszenzeigenschaften verwendeter Materialien

2.5.1 Quarz

Quarz (chemische Summenformel SiO_2) zeigt vor allem aufgrund von Punktdefekten (Abb. 2.9) bei optischer Stimulation Lumineszenzmissionen im sichtbaren und UV-Bereich (Abb. 2.10). Zur Stimulation wird zumeist Licht genutzt, dessen Wellenlänge im grünen oder blauen Wellenlängenbereich liegt, häufig bei 470 nm oder 532 nm („blau bzw. grün stimulierte Lumineszenz“, BLSL/GRSL). Mit zunehmender Wellenlänge sinkt die Stimulatioeffizienz rasch ab (Abb. 2.11). Quarze bauen im Vergleich zu Feldspäten in der Regel relativ wenige Spurenstoffe und Radionuklide ein.

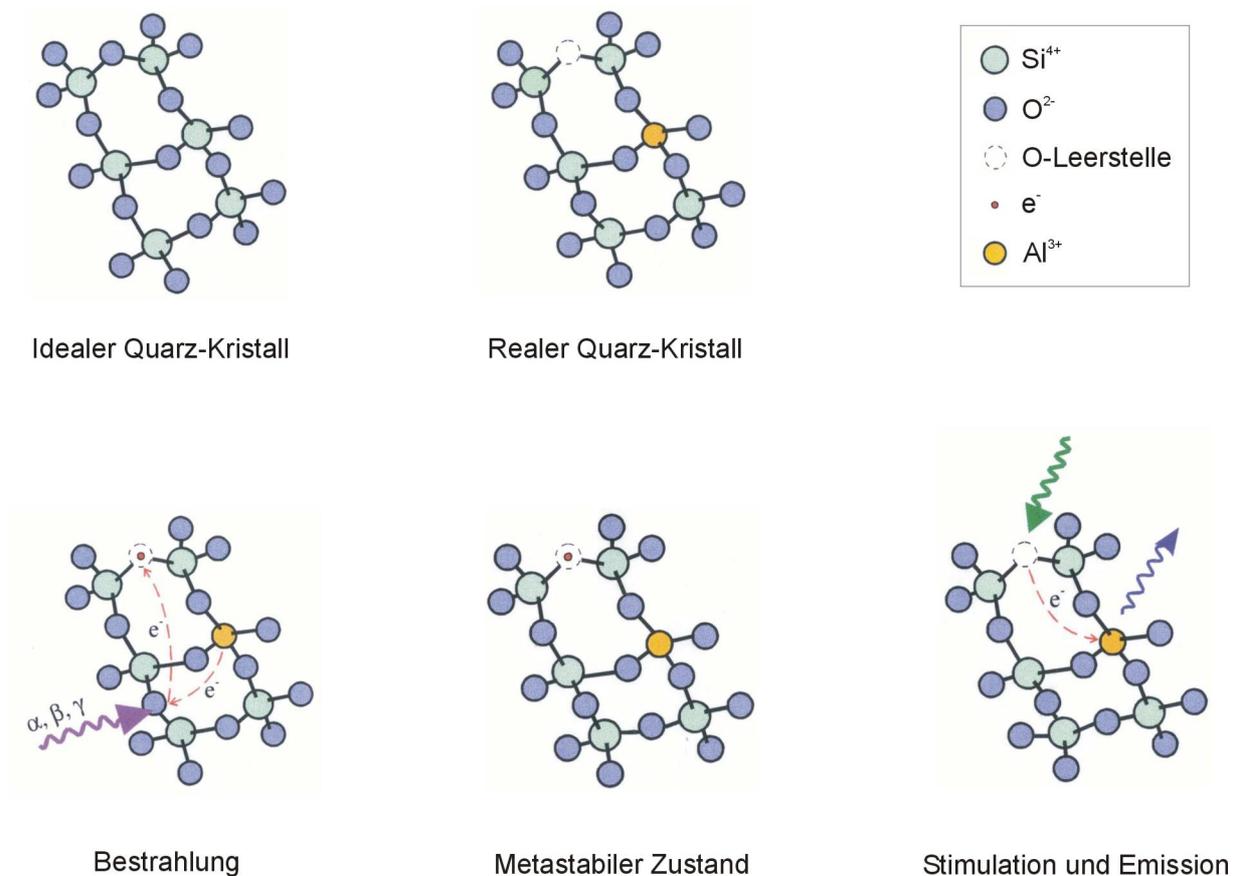


Abbildung 2.9: Beispiel für den Ablauf der optisch stimulierten Lumineszenz in einem Quarz-Kristall.

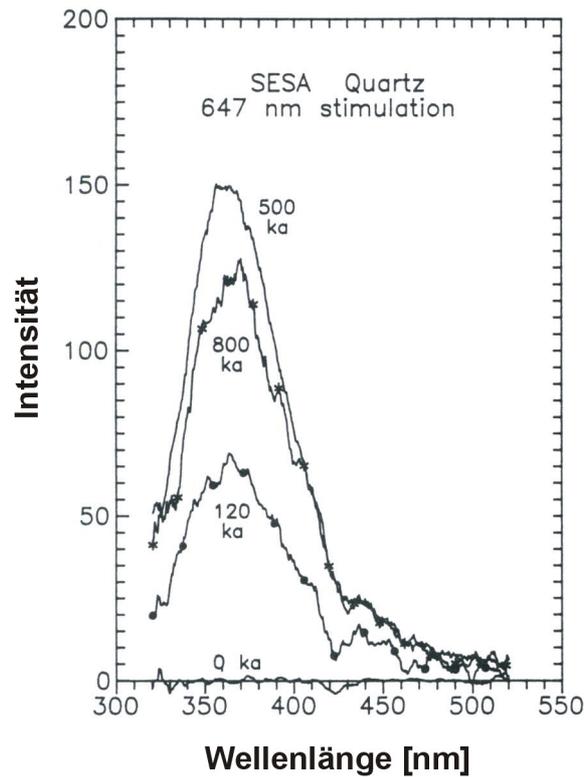


Abbildung 2.10: OSL-Spektrum (nach Huntley et al. [1991]) von Quarz.

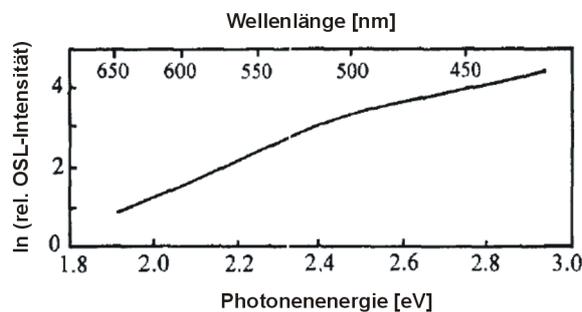


Abbildung 2.11: OSL-Stimulationsspektrum von Quarz, nach Bøtter-Jensen et al. [1994].

2.5.2 Feldspat

Feldspat gehört zur Gruppe der Aluminium-Silikate. Seine Summenformel unterscheidet sich je nach Anteil der Hauptelemente K, Na oder Ca (Orthoklas $K[AlSi_3O_8]$, Albit $Na[AlSi_3O_8]$, Anorthit $Ca[Al_2Si_2O_8]$, Abb. 2.12). Zwischen den Feldspat-Varietäten können im OSL-Verhalten große Unterschiede festgestellt werden [Rieser, 1999]. Dies liegt unter anderem daran, dass Feldspäte sehr häufig Fremdatome einbauen („Müllschlucker der Mineralogie“). Feldspat wird wie Quarz zu Datierungszwecken meist mit blauem und grünem Licht stimuliert. Darüber hinaus besitzen Feldspäte auch Fallen, die auf Licht im nahen Infrarotbereich (1,40-1,44 eV, Abb. 2.14) reagieren. Dieses Verhalten erlaubt die gesonderte Stimulation von Feldspäten auch in polymineralischen Proben unter Verwendung von Wellenlängen zwischen 800 nm und 900 nm („infrarot stimulierte Lumineszenz“, IRSL). Als Erklärung wird ein thermisch unterstützter [Hütt et al., 1988] Übergang in das Leitungsband oder auch eine direkte Rekombination ohne Beteiligung des Leitungsbandes herangezogen [Poolton et al., 1995].

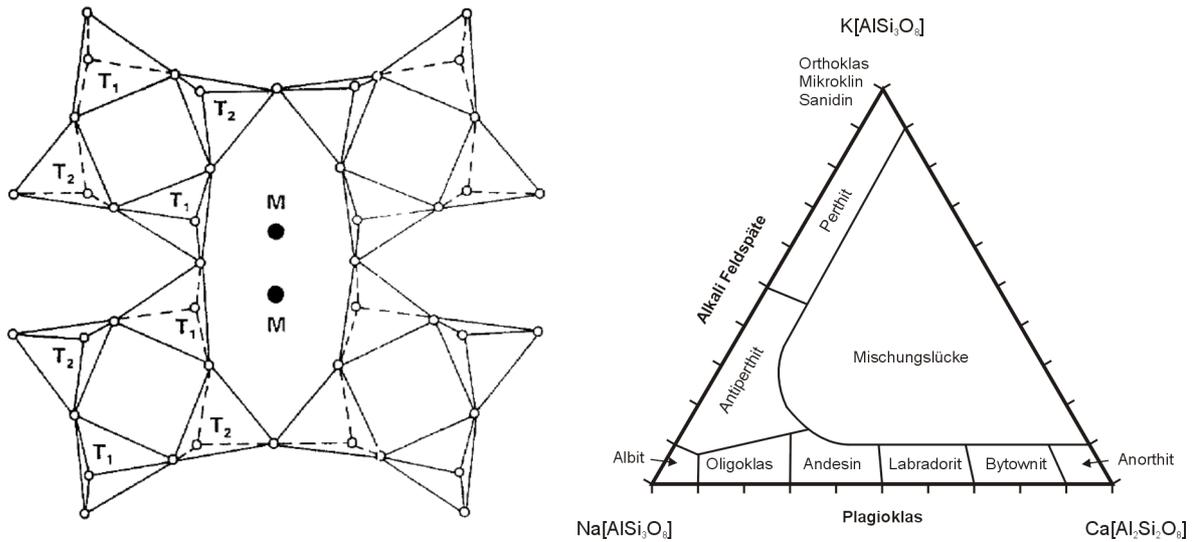


Abbildung 2.12: Struktur von Feldspat (links) mit AlO_4/SiO_4 -Tetraeder (T) und den Kationenplätzen (M). Rechts das ternäre System der Feldspäte mit den Hauptelementen K, Na und Ca.

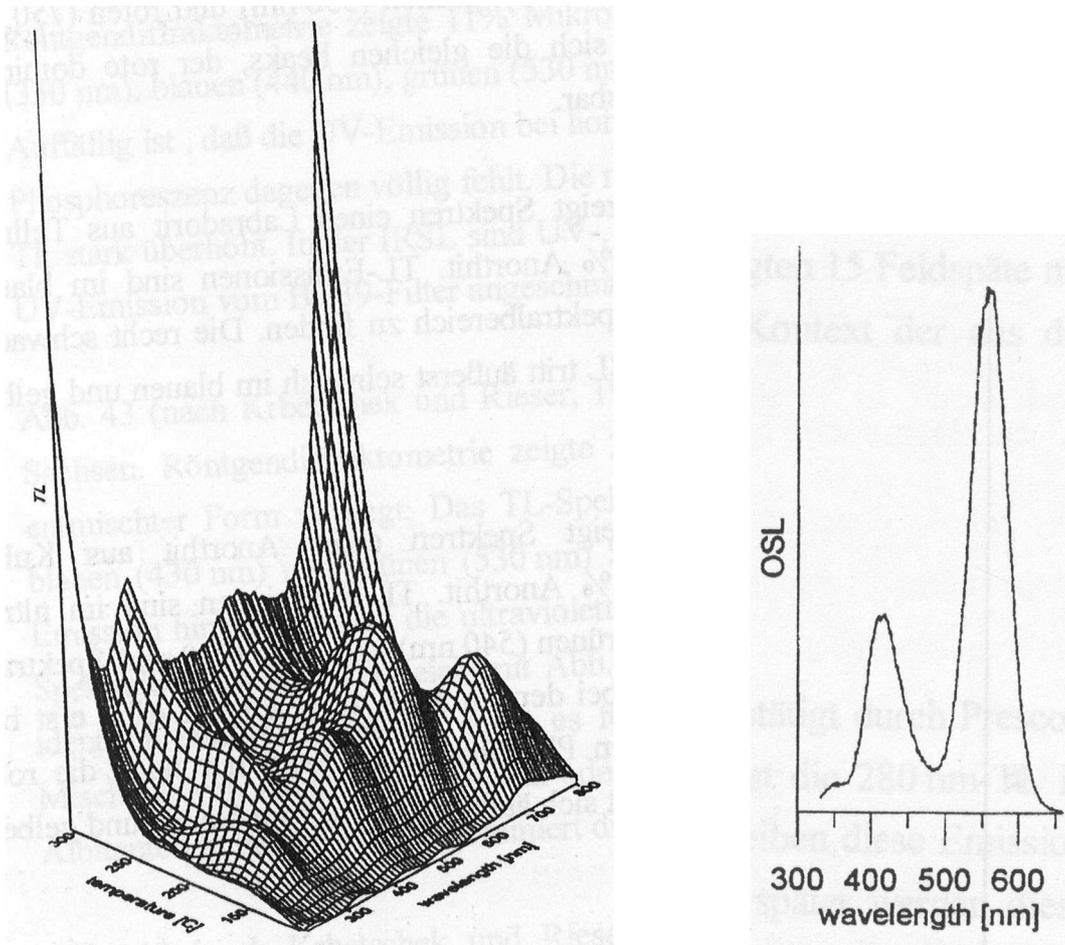


Abbildung 2.13: Beispiele für ein TL- und ein IRSL-Spektrum einer Feldspat-Probe [Rieser, 1999].

Zur Datierung wird aufgrund ihrer stabilen Eigenschaften üblicherweise die blaue Emission genutzt (bei ca. 420 nm, Abb. 2.13). Rieser [1999] schlägt als Alternative IRSL-Datierungen an der gelben Emission (ca. 560 nm) vor. Für hochaufgelöste OSL-Messungen ist letztere vor

allem aufgrund ihrer höheren Intensität interessant, die nicht nur auf eine relative Überlegenheit der Emissionsstärke, sondern vor allem auf die ungleich bessere Transmission der für die IRSL im gelben Bereich verwendete Filterkombination zurückzuführen ist. Die Anwendung der gelben Emission für Datierung ist weniger gut untersucht als für den blauen Bereich. So ist die Rolle eventueller thermischer Zwischenzustände nicht geklärt, ebenso wie die Frage, ob es sich um die Überlagerung zweier Emissionen (550 nm/ Fe^{2+} und 570 nm/ Mn^{2+}) handelt. Im Rahmen dieser Arbeit gemessene Proben wiesen starke Sensitivitätsänderungen der gelben IRSL auf.

Feldspäte zeigen im Gegensatz zu Quarz oft das Phänomen des nicht-thermischen Signalverlustes bis hin zu einer Größenordnung von ca. 25 %. Eine sehr ausführliche Darstellung spektraler Eigenschaften der bei Lumineszenzdatierung verwendeten Minerale geben Krbetschek et al. [1997].

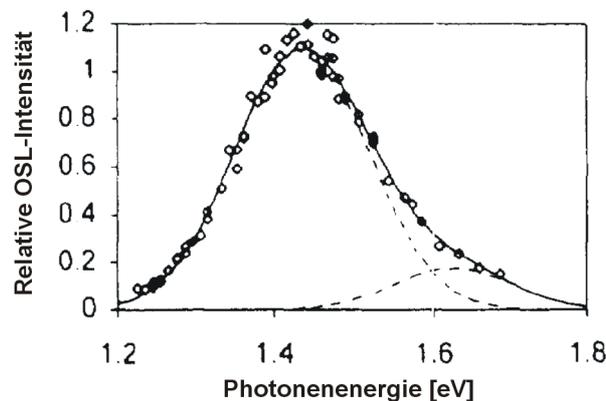


Abbildung 2.14: IRSL-Stimulationsspektrum einer Feldspatprobe [Barnett und Bailiff, 1997].

2.5.3 Apatit

Apatit [$\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3(\text{F}, \text{Cl}, \text{OH})$] zeigt unter Elektronenbeschuss unter anderem eine Lumineszenzemission bei ca. 410 nm, die mit Eu^{2+} -Aktivatoren in Zusammenhang gebracht wird [Marshall, 1988]. Der Verwendbarkeit von Apatit für TL/OSL-Datierungen ist bisher nicht eindeutig geklärt. Eine blaue OSL-Emission unter grüner Stimulation konnte während dieser Arbeit festgestellt werden.

2.5.4 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$

Gezüchtete Aluminiumoxid-Kristalle können zur Herstellung eines hochempfindlichen Lumiphors mit Kohlenstoff dotiert werden, um Fehlordnung zu erzeugen. Dieses Material wird vor allem in der TL- und OSL-Dosimetrie genutzt. Es liegt als Tabletten („Pellets“) mit ca. 5 mm Durchmesser und 1 mm Dicke bzw. als aufgemalenes Pulver vor. Abb. 2.15 zeigt das TL-Spektrum eines solchen Pellets. OSL tritt unter grüner und blauer Stimulation auf, wobei eine blaue und eine UV-Emission nachgewiesen werden kann.

$\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ ist um Größenordnungen sensitiver als natürlicher Quarz oder Feldspat. Ein hinreichendes Lumineszenzsignal bereits bei Dosen im μGy -Bereich ermöglicht den Einsatz als in-situ-Dosimeter mit Expositionszeiten von einigen Tagen bis Wochen. Die Lumineszenzeigenschaften, insbesondere die Sensitivität des Materials bleibt über eine Messreihe sehr stabil. Eine eingehende Beschreibung gibt Kalchgruber [2002]. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde das Material bei der Methodenentwicklung und zum Test orts aufgelöster Dosisleistungsbestimmungen eingesetzt.

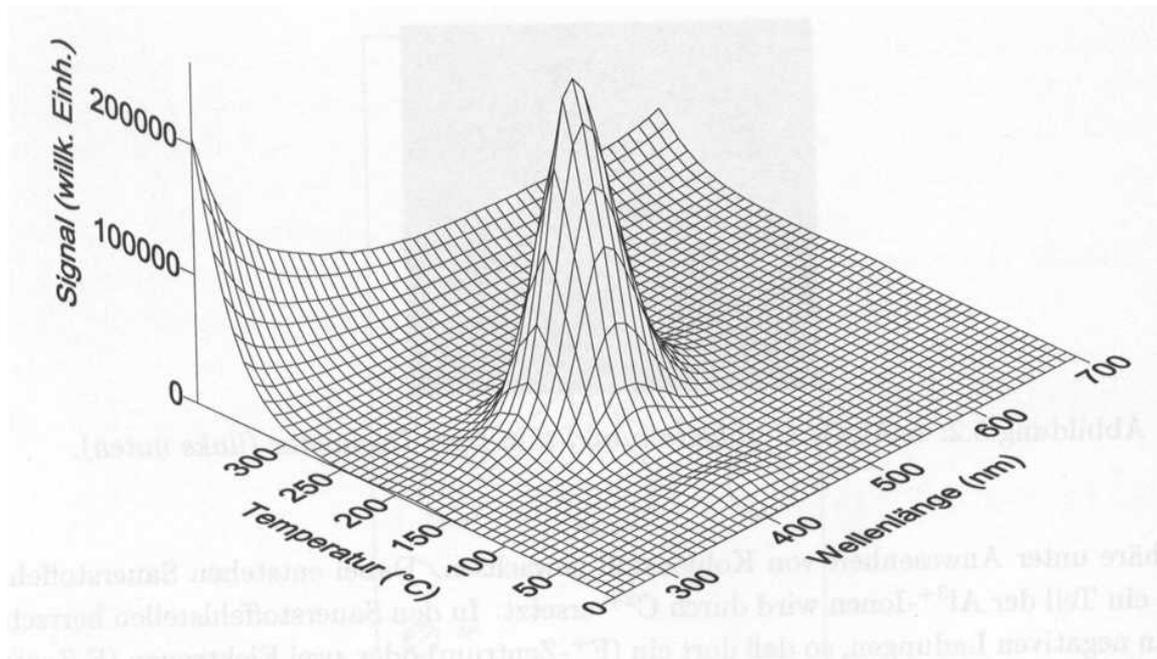


Abbildung 2.15: TL-Spektrum einer α - $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Probe [Kalchgruber, 2002].

2.5.5 BaBrF:Eu²⁺

Neben α - $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ werden eine ganze Reihe weiterer künstlicher Luminophore als Expositions-dosimeter verwendet. In der biomedizinischen Forschung lösen wieder verwendbare Bildplatten Röntgenfilme in der Autoradiographie immer stärker ab. Diese Platten sind in der Lage, das durch Exposition entstandene latente (Lumineszenz-)Bild bis zu einem späteren Auslesen zu speichern. Ein in den letzten Jahren intensiv erforschtes Material, mit Eu^{2+} dotiertes BaFBr, zeigt eine sehr hohe Sensitivität, kann hochauflösend (bis 25 μm) ausgelesen werden und weist nur ein geringes thermisches Ausheilen auf. So konnten Hareyama et al. [2000] die natürliche Dosisleistung einiger Gesteinsplatten ortsaufgelöst messen. Takebe und Abe [1994] weisen darauf hin, dass nicht nur mit Hilfe verschiedener Absorber die Unterscheidung zwischen α - und β/γ -Anteilen möglich ist, sondern dass BaFBr:Eu²⁺ auch die Fähigkeit zur Unterscheidung von Partikelenergien besitzt, wenn es mit unterschiedlichen Wellenlängen ausgelesen wird. Dies könnte dazu führen, dass die ortsauflösende Bestimmung von U, Th und K in natürlichen Proben mit diesem Material in absehbarer Zeit möglich wird [Tsuchiya, pers. Mitteilung]. Der Lumineszenzmechanismus von BaFBr:Eu²⁺ ist gut untersucht und vergleichsweise simpel (Abb. 2.18).

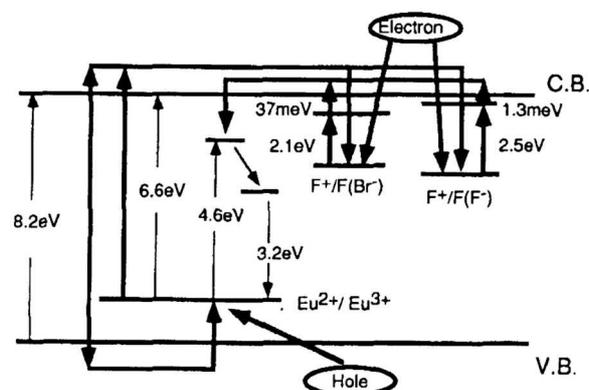


Abbildung 2.16: Energieschema für BaBrF:Eu²⁺ [Iwabuchi, 1994].



Abbildung 3.1: Der Nasca-Kultur (ca. 200 v. Chr. bis 600 n. Chr.) zugeschriebene Erdzeichnung auf der Hochfläche von San Ignacio (Cerro Llipata) bei Palpa in Südperu. Diese Geoglyphen wurden durch Abräumen der mit einem dunklen Wüstenlack überzogenen Steine geschaffen, wodurch das unter der dünnen Steinlage befindliche, helle und feinsandige Material freigelegt wird. Bei diesem Vorgang werden die Steine dem Licht ausgesetzt. Die weiträumige, oft mehrere Kilometer betragende Ausdehnung und die teils hoch abstrakte Formgebung faszinieren – und machen die Geoglyphen auf den Fußflächen der Anden zum Gegenstand wissenschaftlicher Diskussionen. Der Zeitpunkt ihrer Anlage aber konnte bisher nicht direkt gefasst werden. Altersabschätzungen beruhen auf Stilvergleichen mit Motiven auf Keramikartefakten und auf angelagerten Funden. Photo: Ingmar Unkel / Forschungsstelle Radiometrie am IUP Heidelberg.

3 Gesteinsoberflächen als Proben für die Lumineszenzdatierung

3.1 Datierungspotential

Quarz und Feldspat als im Grundsatz für eine Lumineszenzdatierung geeignete Minerale finden sich in weitaus mehr Materialien, als nur denjenigen, welche das aktuell übliche Anwendungsspektrum der Methode beinhaltet. So kommen sie auch in sehr vielen Festgesteinen vor. Die Mineralen derartiger Gesteine bauen durch die interne und externe natürliche Radioaktivität ebenfalls Lumineszenzsignale auf. An der Oberfläche des Steines aber können die akkumulierten Strahlenschäden durch Licht ausgeheilt werden³. Durch eine spätere Abdeckung dieser Flächen beginnt dann der Aufbau eines latenten Lumineszenzsignals wieder von neuem. Die Vorgänge sind also ganz analog denjenigen, die in bisher mit Hilfe der optisch stimulierten Lumineszenz datierbaren Systemen stattfinden. Gelänge es, an den Mineralen der Oberfläche eines Gesteins eine Lumineszenzdatierung durchzuführen, so wäre es möglich, den Zeitpunkt der letzten Belichtung zu bestimmen – diese Information wäre für viele Untersuchungen von großem Interesse.

So werden Bausteine im Allgemeinen vor ihrer Verwendung belichtet und zu Teilen durch den Bau wieder abgedeckt (Abb. 3.2). Eine Datierung der abgedeckten Stellen könnte eine direkte Aussage über den Zeitpunkt der Errichtung erlauben, ohne auf einen Bezug zu Funden im Kontext (Inschriften, verbautes Holz oder Stroh u. a.) angewiesen sein zu müssen. Ein solcher Bezug – wenn er im Einzelfall denn möglich ist – kann immer mit Unsicherheiten verbunden sei. Daneben können auch zunächst in einem Bauwerk freiliegende Stellen durch eine spätere Umlagerung, Zerstörung oder Bedeckung begraben werden. Diese Ereignisse ließen sich ebenfalls zeitlich fassen (Abb. 3.1, 3.3). Die Möglichkeiten einer Lumineszenzdatierung an Gesteinsoberflächen sind aber nicht auf die Archäologie beschränkt – von Interesse können sie auch für die Quartärgeologie sein, z. B. bei der Bestimmung von Bedeckungsaltern. Dieses Informationspotential kann bis heute durch keine andere chronometrische Methode befriedigend erschlossen werden. Warum also werden bisher keine Lumineszenzdatierungen an Gesteinsoberflächen durchgeführt?

Aufgrund der unvermeidbaren Heterogenitäten stellt die in Kapitel 2 beschriebene OSL-Datierungstechnik Bedingungen an eine Probe. Diese muss für eine Vorgehensweise geeignet sein, die es erlaubt, die vielfältigen Gradienten in Sensitivität und Dosisleistung zu umgehen, indem sie die Trennung von Kornfraktionen und einen statistischen Ansatz für die Dosimetrie einzelner dieser Fraktionen ermöglicht. Eventuelle feste Proben, z. B. Keramiken, werden entsprechend aufgemahlen und Abweichungen vom Ideal einer Lumineszenzprobe in einem homogenen Sediment in 30 cm Umgebung sind inzwischen (z. B. für Keramikscherben) beherrschbar. Doch genau diese Kriterien können Festgesteinsproben nicht erfüllen – Habermann bezeichnet sie bei seinen Untersuchungen zur Anwendbarkeit der Lumineszenzmethodik auf Oberflächen als die denkbar ungünstigsten Proben für eine OSL-Datierung [Habermann, 2000, Habermann et al., 2000].

³ Selbiges gilt natürlich mit Einschränkungen auch für Wärme oder mechanische Spannung. Im folgenden wird der Schwerpunkt aber immer auf einer Lichteinwirkung liegen.

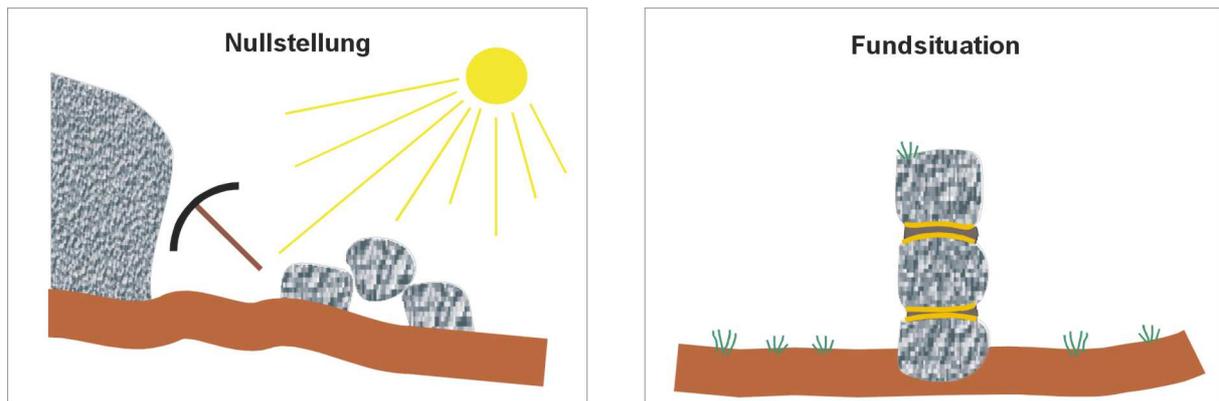


Abbildung 3.2: Bestimmung des Zeitpunktes der Abdeckung bei Errichtung eines Bauwerkes (oben). Die Granitsäulen von Assos (Türkei, unten rechts) zeigen deutlich die beim Bau abgedeckte Gesteinsoberflächen. Die Steine eines Fundamentes in der Nähe einer Erdzeichnung in Palpa/Peru (Mitte) wurden bei der Errichtung des Gebäudes im feinsandigen Boden vergraben. Auch durch Mörtel (links, Burg Frankenstein/Odenwald) können die Oberflächen von Bausteinen abgedeckt werden.

Eine Oberflächenprobe steckt *per se* voller Gradienten – nicht nur bezüglich ihrer Mineralverteilung, deren Auftrennung in definierte Einzelkörner analog zu Lockerproben unmöglich ist. Auch ist die Verteilung der entscheidenden Lumineszenzinformation eine Funktion der Tiefe unter der Oberfläche. Dies geht nur schwer mit dem Versuch einer (technisch schwierigen) Abtragung des Materials zusammen – denn wo ist die Grenze für das abzutragende Material zu ziehen? Eine Oberfläche ist immer eine auch Grenzfläche und Gradienten in der Dosisleistung zwischen zwei Medien, die mit hoher Wahrscheinlichkeit unterschiedliche Radionuklidgehalte aufweisen, unvermeidlich. Zudem können chemische Prozesse, eventuelle Verwitterungen, die Oberfläche in ganz unterschiedlicher Weise angegriffen haben.

3.2 Vorarbeiten

Nachdem sich erste Ansätze mit der Erwärmung von Oberflächen durch die Erwirkung von Sonnenlicht konzentrierten [Vaz, 1983], konnte später die Bleichung des Signal durch Licht nachgewiesen werden [Richards, 1994 und Huntley und Richards, 1997]. Versuche, die informationstragende Schicht abzutrennen, wurde bereits für Proben griechischen Marmors verfolgt, ohne dass dabei allerdings bisher Datierungen durchgeführt werden konnten [Liritzis und Galloway, 1999]. Habermann [2000] konnte zeigen, dass alle relevanten Voraussetzungen für eine OSL-Datierung – die Dosis-Abhängigkeit des Lumineszenzsignals, die thermische Langzeitstabilität und die optische Bleichbarkeit – von granitischen Oberflächen erfüllt werden. Darüber hinaus bestimmte er für eine Granitprobe das Tiefenprofil der OSL und konnte so direkt nachweisen, dass die Eindringtiefe der Bleichung für eine Nullstellung an der Oberfläche ausreicht (Abb. 3.4).

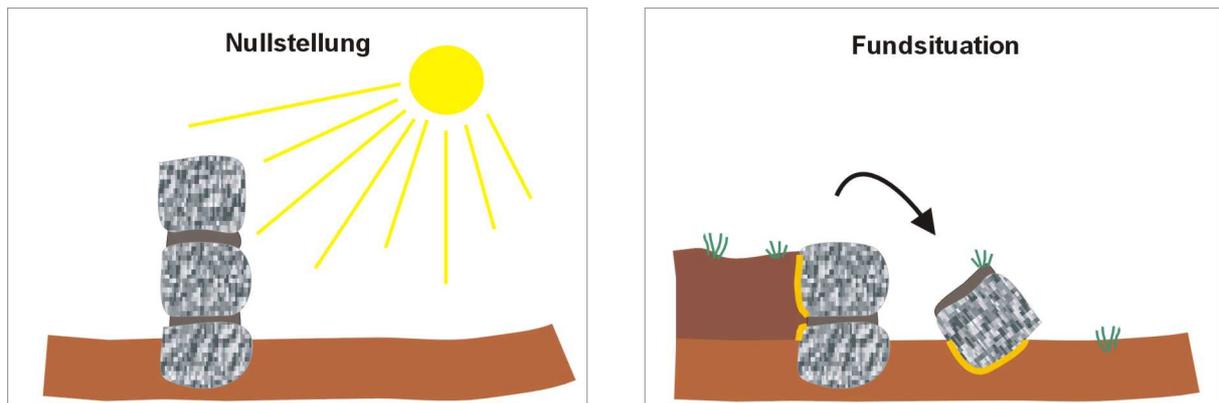


Abbildung 3.3: Eine Umlagerung oder eine Zerstörung ist ebenfalls mit der Bleichung und Abdeckung von Oberflächen verknüpft (obere Reihe). Die untere Reihe neben den Steinwällen, die durch die Schaffung der Nasca-Erdzeichnungen entstanden (links), römische Säulen in einem Steinbruch von Kestambul/Türkei, die seit ihrer Herstellung vermutlich nicht mehr bewegt wurden, sowie Trockenmauern auf der griechischen Insel Syphnos (rechts), die zur Begrenzung der Bodenerosion errichtet wurden.

Habermann ging in Anlehnung an herkömmliche Verfahren von integralen Messungen der OSL auf einem ca. 8 mm großen Punkt auf der Gesteinsoberfläche aus. Seine Überlegungen über die Auswirkungen der Gradienten der Dosisleistung an Grenzflächen führten ihn zu dem Schluss, dass besonders Granitgesteine mit großen Kali-Feldspäten (von einigen Millimetern Durchmesser) oder sehr feinkörniges Material zur Datierung geeignet sein könnten. Da Habermann die Durchführungen aller Messungen an *einer* Stelle des Gesteins vorschlägt, bedeutet dies die Anwendung regenerativer *single aliquot*-Protokolle. Er empfiehlt weiterhin die Verwendung einer Infrarot-Stimulation, um an der polymineralischen Oberfläche ausschließlich mit der Feldspatkomponente arbeiten zu können.

Doch Habermanns Betrachtungen zur Dosisleistung zeigen auch, dass selbst innerhalb der Feldspäte erhebliche Unterschiede auftreten können. So schwankt die Modell-Dosisleistung bedingt durch die Kaliumgehalte zwischen einem Plagioklas (0 % K, 0,8 mGy/a) und z. B. einem Sanidin (14 % K, 15 mGy/a) in einem Granit (5 % K, 0,8 ppm U, 12,3 ppm Th) erheblich. Auch das Verhalten der OSL (s. Kapitel 2.5) kann sehr unterschiedlich ausfallen. Noch problematischer wird die Situation natürlich, wenn man statt Infrarot auch andere Wellenlängen zur Stimulation verwenden möchte, um beispielsweise Altersinformation auch aus der Quarzkomponente zu erhalten.

Darüber hinaus zeigen die von Schilles [2002] durchgeführten EDX-Messungen an Kornseparaten eindrucklich, dass die üblichen mechanische Trennverfahren, z. B. die Schwereretrennung dort versagen müssen, wo Verwachsungen zweier Minerale (z. B. Plagioklas und Kali-Feldspat) und Einschlüsse vorliegen.

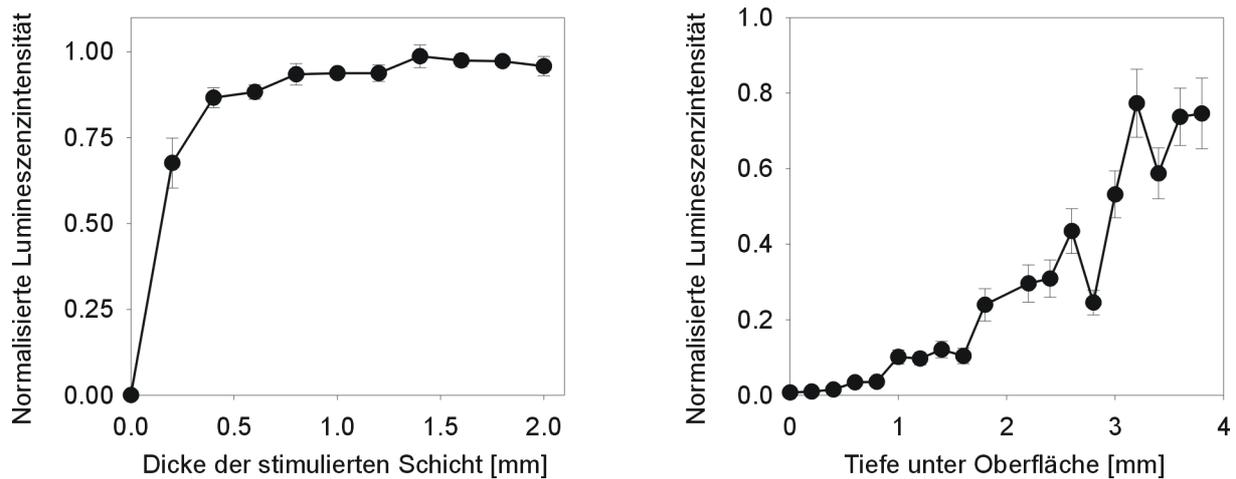


Abbildung 3.4: Relativer Anteil am Lumineszenz-Gesamtsignal in Abhängigkeit von der Dicke der stimulierten Schicht (links). 75 % stammen bereits aus den ersten 250 μm , ca. 90 % aus dem obersten halben Millimeter. Die Bleichung (20 min Sonnenlicht) reicht dagegen mehrere Millimeter tief in das Material hinein (rechts). Beide Abbildungen nach Habermann [2000].

In einem nach den Laborvorgaben für eine Kalifeldspatprobe getrennten Separat waren praktisch keine Kalifeldspäte, dafür aber Plagioklas und Quarz enthalten, die eigentlich geringere spezifische Dichten besitzen sollten. Die EDX-Daten wiesen auf Einschlüsse (spezifisch schweren) Titanits hin. Üblicherweise findet eine solche Kontrolle bei Datierungen überhaupt nicht statt. So „funktioniert“ eine aufbereitete Probe manchmal „einfach nicht“. Und da das Signal auf einer Probenscheibe meist nur von einigen hellen Körnern getragen wird, können nur wenige leuchtstarke Fremdminerale das Ergebnis bereits stark verfälschen.

Eine Möglichkeit aber, die Minerale einer Probe in ihrem originären Verband belassen und sie zum Zwecke einer Lumineszenzdatierung trotzdem trennen zu können, ist, die räumliche Auflösung der Messung soweit zu erhöhen, dass innerhalb eines Messpunktes die Gradienten eine untergeordnete Rolle spielen. Es liegt an der Beschaffenheit der jeweiligen Probe, wann dieser Fall eintritt.

Da kleine Messpunkte viele serielle bzw. parallele Messungen an einer räumlich größeren Probe erlauben, wird so die Möglichkeit geschaffen, Bilddaten der Lumineszenz zu erhalten und von einem statistischen Ansatz zu einer orts aufgelösten Datierung überzugehen.

3.3 Idee einer ortsauflösenden Lumineszenzdatierung

Die folgenden Beispiele sollen einen Eindruck vermitteln, welche Effekte die Mittelung der Einzelgrößen in einem Mineralverband besitzt. Betrachten wir eine Probe, die sich nur aus zwei Mineralen – einem Kalifeldspat (K-Fsp) und einem Plagioklas (Plg) – zusammensetzt (Abb. 3.5). Diese Minerale können nicht durch die Verwendung zweier Stimulationswellenlängen getrennt werden (wie beispielsweise Quarz und Feldspat in polymineralischen Feinkornproben durch vergleichende Messungen mit infraroter und blauer Stimulation). Vereinfachenderweise nehmen wir an, dass innerhalb der Minerale und bis exakt an ihre Grenzen eine einheitliche Dosisleistung herrscht. Für den Kalifeldspat werden 15 mGy/a, für den Plagioklas 1 mGy/a veranschlagt (s. o.). Weiterhin sollen die Minerale in sich eine einheitliche Sensitivität aufweisen. Nehmen wir nun an, das Alter der Probe sei 10.000 Jahre, so ergibt der in Tab. 3.1 dargestellte Zusammenhang.

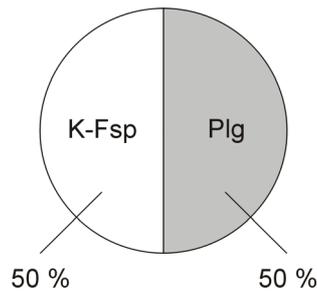


Abbildung 3.5: Modell-Lumineszenzprobe mit zwei Komponenten. Dies kann ein idealisiertes Sediment darstellen, bei dem die Einzelkörner zusammengefasst wurden, aber auch eine Gesteinsoberfläche mit zwei großen Mineralkörnern.

Die einzelnen Sensitivitäten addieren sich für die Gesamtprobe, die Dosisleistung – da massebezogen – bildet einen gewichteten Durchschnitt. Die Lumineszenzsignale (in Zählereignissen, *counts* bzw. *Cts*) errechnen sich aus (dem angenommenen Alter und somit) den Dosen der Einzelminerale und addieren sich wiederum für die Gesamtprobe. Hat man nur Zugriff auf die Größen der Gesamtprobe (rechte Spalte), so erhält man ein scheinbares Alter von 5.625 Jahren.

	Kalifeldspat	Plagioklas	Gesamte Probe
Sensitivität:	10.000 Cts/Gy	30.000 Cts/Gy	40.000 Cts/Gy
Dosisleistung:	15 mGy/a	1 mGy/a	8 mGy/a
Absorbierte Dosis:	150 Gy	10 Gy	
OSL-Signal:	1.500.000 Cts	300.000 Cts	1.800.000 Cts
Äquivalenzdosis:			45 Gy
Scheinbares Alter:	10.000 a	10.000 a	5.625 a

Tabelle 3.1: Einzel- und gemittelte Größen für eine Modell-Lumineszenzprobe mit zwei Mineralkomponenten.

Stark oder schwach strahlende Komponenten sowie unterschiedliche Sensitivitäten innerhalb eines Minerals können das Problem weiter verschärfen, wie ein Beispiel zeigt, bei dem zwei unterschiedliche Plagioklase sowie ein beinahe radionuklidfreier Quarz und ein stark uranhaltiger Zirkon hinzukommen (Abb. 3.6). Eine solche Situation kann bei einer Anregungswellenlänge (z. B. im blauen Bereich) und einem Detektionsfenster (z. B. nahes UV), bei denen unterschiedliche Minerale Lumineszenzemissionen zeigen, vorliegen. Das Alter dieser Probe soll wiederum 10.000 Jahre betragen.

In diesem Beispiel kommt es zu einer noch deutlicheren Altersunterschätzung. Natürlich liegen in einem Gesteinsverbund keine scharf getrennten Bereiche vor – durch die Reichweiten der β - und γ -Strahlung treten Verwischungen auf. Trotzdem wird deutlich, dass, wenn es gelingt, auf die Parameter der einzelnen Minerale zuzugreifen, statt der Verrechnung gemittelter Größen die Mittelung vieler Einzelgrößen erfolgen kann. Eine hochauflösende Messung bedeutet keine bessere Statistik, wohl aber genauere Bestimmungen, denn man gewinnt Informationen über das Verhalten der Parameter in der Probe und durch die Ortsauflösung die räumliche Verteilung der Lumineszenzemissionen. Diese Daten erlauben über die Ortskoordinaten einen direkten Vergleich mit anderen bildgebenden Verfahren (Auflicht-Photographie, Elementbestimmungen, Kathodolumineszenz-Aufnahmen) und liefern Kriterien zum Ausschluss oder zur getrennten Untersuchung einzelner Bereiche der Probe.

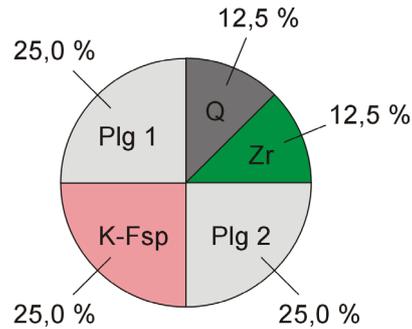


Abbildung 3.6: Modell-Lumineszenzprobe mit fünf Mineralkomponenten.

Arbeiten zur räumlich aufgelösten Bestimmung des Lumineszenzsignals (meist TL, sehr selten OSL) liegen bereits lange vor. Doch vom Charakter einer aufwendigen Grundlagen- bzw. Zusatzuntersuchung konnten sich diese Messungen nicht lösen. Keiner der Ansätze beinhaltet bisher eine umfassende Methodik und konsequente Umstellung der Lumineszenzdatierung, obwohl die technischen Voraussetzungen in der Zwischenzeit gegeben sind. Denn dem großen Potential, das hochauflösende Messungen bieten, steht eine Vielzahl technischer und methodischer Probleme gegenüber.

	Kalifeldspat	Plagioclas 1	Plagioclas 2	Quarz	Zirkon	Gesamtprobe
Sensitivität:	10 kCts/Gy	20 kCts/Gy	30 kCts/Gy	1 kCts/Gy	1 kCts/Gy	62 kCts/Gy
Dosisleistung:	15,0 mGy/a	1,0 mGy/a	1,0 mGy/a	0,1 mGy/a	100,0 mGy/a	16,7 mGy/a
Abs. Dosis:	150 Gy	10 Gy	10 Gy	1 Gy	1000 Gy	
OSL-Signal:	1.500 kCts	200 kCts	300 kCts	1 kCts	1 kCts	3.001 kCts
Äq.-Dosis:						48,4 Gy
Sch. Alter:	10 ka	10 ka	10 ka	10 ka	10 ka	2888 a

Tabelle 3.2: Einzel- und gemittelte Größen für eine Modell-Lumineszenzprobe mit fünf Mineralkomponenten.

3.4 Erweiterung des Konzeptes

Das beschriebene Vorgehen muss nicht auf Oberflächenproben beschränkt bleiben. Die Anwendung kann mit verschiedenen Zielrichtungen auch auf Proben ausgedehnt werden, die bisher mit der herkömmlichen Technik datiert werden oder auf Proben, die bis dato nicht mit der optisch stimulierten Lumineszenz datiert werden konnten.

- Keramikdatierungen können mit einem weitaus geringeren Aufwand an Probenpräparation direkt an einer frisch aufgeschnittenen Innenfläche („innere Oberfläche“) der Keramik stattfinden.
- Die Datierung archäometallurgischer Schlacken bzw. der in ihnen enthaltenen kristallinen Silikatphasen gestaltet sich bisher aufgrund der Komplexität von Verwachsungen und der daraus folgenden Schwierigkeit der Auftrennung als problematisch [E-litzsch et al., 1983, Wagner, 1998, und Haustein et al., 2003].
- In-situ Untersuchungen können an verfestigten Sedimenten, insbesondere zu einer besseren Beurteilung des Mikrodosimetriefeldes, durchgeführt werden. So ist z. B. umstritten, ob die breite Verteilung von Äquivalenzdosen in einem Sediment auf unvollständige Bleichung oder auf ein Muster von uran- und thoriumreichen Strahlern zurückzuführen sind [U. Rieser, pers. Mitteilung].

- Durch das bildgebende Verfahren wird auch für Proben, die nicht aus Festgesteinen stammen, die direkte Korrelation mit anderen Untersuchungen möglich.
- Besteht die Möglichkeit, innerhalb einer Probe Untersuchungen z. B. an Fraktionen unterschiedlichen Kaliumgehaltes durchzuführen, so kann eine Datierung ohne die Kenntnis der externen Komponenten der Dosisleistung nur aufgrund der Differenzen der internen β -Dosisleistung erfolgen (*'subtraction dating'*) [Aitken, 1985 und Aitken und Valladas, 1992]. Eine orts aufgelöste Messung einer polymineralischen Probe kann aufgrund der gleichzeitigen Aufnahme unterschiedlicher Körner (z. B. Quarz und K-Feldspat) und der direkten Vergleichbarkeit mit K-Bestimmungen dieses Isochronenverfahren an einer einzigen Grenzfläche erlauben.

Da der Hauptaspekt dieser Arbeit auf der Entwicklung der ortsauflösenden Technik und ihrer Anwendung bei der Datierung von Gesteinsoberflächen liegt, wurde von diesen Punkten nur die Möglichkeit der (Isochronen-) Datierung von Keramiken verfolgt, sowie die Lumineszenzverteilung in Sedimenten betrachtet.

3.5 Notwendigkeit von Neuentwicklungen

Eine Lumineszenz-Datierungstechnik, die auf hoch aufgelösten Daten beruht, erfordert an entscheidenden Stellen des Laborprozesses Neuentwicklungen. Andere Teile des Verfahrens und Geräte können dagegen unverändert gelassen oder müssen allenfalls angepasst werden. So können die Laborbestrahlung, das Erwärmen (Vorheizen) der Probe und eine eventuelle zusätzliche Bleichung zunächst weiterhin wie gewohnt erfolgen. Denn in diesen Fällen werden alle Messpunkte auf der Probe gleich behandelt.

Die Detektion der optisch stimulierten Lumineszenz erfordert dagegen zumindest eine umfassende Modifikation der vorhandenen Geräte, da diese ausschließlich mit *Photomultipliern* ausgerüstet und auf die Messung von Fein- oder Grobkornproben ausgelegt sind. Im Rahmen dieser Arbeit wurde der komplette Neuaufbau eines Messgerätes durchgeführt (LasLUM I, 4.3), da nicht nur die Festlegung durch die Eigenschaften der vorhandenen Geräte als zu einschränkend erschien, sondern auch, weil die starke Auslastung dieser Geräte in der Forschungsstelle Archäometrie einen solchen Umbau nur schwerlich zugelassen hätte.

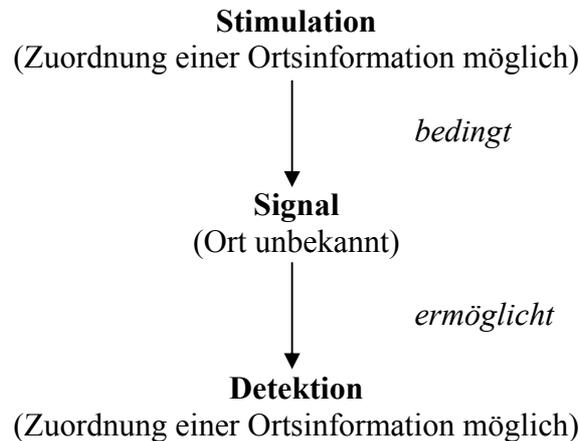
Für eine Auswertung der mit dem neuen Messgerät gewonnenen Daten, insbesondere die Berechnung der Äquivalenzdosen, existierte aus nahe liegenden Gründen keine Software. Daher wurde ein entsprechendes Programm (AGESGALORE, 4.4) entwickelt, das im Wesentlichen eine Bildverarbeitung mit elementaren, auf die Lumineszenzdatierung zugeschnittenen mathematischen Operationen sowie durch die hohe Zahl von parallelen Messdaten nun anwendbaren statistischen Verfahren darstellt.

Die Probennahme im Feld und die Präparationstechnik im Labor (4.1) muss zum einen den neuen Objekten, also Gesteinsoberflächen und ggf. Keramik- und anderen Proben, gerecht werden. Zum anderen sollen sie die Verwendbarkeit der Proben sowohl in den bisherigen als auch in den neuen Geräten sicherstellen.

Zur Bestimmung der Dosisleistung auf einer ähnlichen Skala wie die der Äquivalenzdosen mussten ebenfalls Alternativen bzw. Ergänzungen zur γ -Spektrometrie gefunden werden. In dieser Arbeit wurden dazu die hochauflösende Kaliumbestimmung mit Hilfe der energiedispersiven Röntgenfluoreszenz am Rasterelektronenmikroskop sowie die Verwendung von Spaltspuren zur qualitativen Bestimmung der Uran- und Thorium-Verteilung genutzt (4.2).

3.6 Die hochaufgelöste Detektion des OSL-Signals

Durch das neue Messgerät soll das optisch stimulierte Lumineszenzsignal mit dem Ort seiner Entstehung und ggf. seiner Energieverteilung verknüpft werden. Die OSL tritt nur dann in einem abgegrenzten Raumgebiet der Probe auf, wenn dieses Gebiet eine äußere Anregung, die Stimulation, erfährt. Die Stimulation ist eine hinreichende Bedingung für das Entstehen des detektierbaren Signals:



Um nun den Ort des Signalursprungs festzustellen, können zwei Ansätze verfolgt werden:

(A) Nutzen der Ortsinformation des Detektors und Übertragen auf das Lumineszenzsignal

a. *Direkte Detektion am Ort des Entstehens*

Dieses Verfahren ist z. B. von Halbleiterdetektoren zur Untersuchung von Teilchenreaktionen bekannt, bei denen die Partikel den Detektor durchdringen und im Material eine Wechselwirkung stattfindet. Für die OSL ist die Methode *in* der Probe nicht realisierbar. Allerdings kann ein Nachweisgerät an der Grenzfläche der Probe angebracht werden, z. B. indem ein Film auf die Probenoberfläche gebracht wird.

b. *Indirekte Detektion*

Da die Lumineszenz ein Lichtphänomen ist, kann ihre Verteilung mit Hilfe einer Optik auf einen Detektor abgebildet werden. Dies kann ein Film oder ein anderer ortsauflösender Detektor, z. B. eine CCD-Kamera oder ein spezieller *Photomultiplier*, sein.

(B) Übertragung der Ortsinformation der Stimulation auf das Lumineszenzsignal

Erfolgt die Stimulation zu einer bestimmten Zeit nur in einem räumlich abgegrenzten Teil der Gesamtprobe, so ist das während dieser Zeit aufgezeichnete Signal jenem Raumgebiet zuzuordnen. Ein vollständiges Bild kann durch Abrastern (*Scannen*) der Probe und anschließendem Arrangieren der Einzelmessungen erzeugt werden.

Die erste der beiden Methoden (A) ist grundsätzlich leichter zu realisieren, da sie sich auf technisch recht einfache Verfahren stützt. Bereits in der grundlegenden Arbeit von Daniels et al. [1953] werden Photographien der natürlichen und der γ -induzierten TL eines Kalksteins präsentiert. Und in einer der Arbeiten von Wiedemann und Schmidt zur Lumineszenz [1895] wird, da hochempfindliche Geräte zum quantitativen Nachweis einzelner Photonen noch nicht zur Verfügung standen, die Abklingkurve eines Luminophors festgehalten, indem die auf einer rotierenden Scheibe aufgebrachte Probe eine Filmplatte belichtete, auf der sie einen Kreis beschreibt. Die nicht zugängliche Zeitauflösung wurde in eine Ortsinformation transformiert.

Später arbeiteten Debenham und Walton mit einem Bildverstärker (Verstärkung 10^6) und einer herkömmlichen Photokamera. Sie konnten starke Unterschiede der Lumineszenzintensitäten selbst innerhalb einzelner (Zirkon-)Körner [Walton, 1980] und die Diskrepanz zwischen natürlicher und durch Laborbestrahlung hervorgerufener Lumineszenz [Debenham, 1984] zeigen. Elitzsch et al. [1983] untersuchten ebenfalls mit einem Bildverstärker die Verteilung der Lumineszenz in archäometallurgischen Schlacken, Huntley und Kirkey [1985] mit demselben Verfahren die Variabilität von TL-Signalen in Sedimentproben.

Bei Grundlagenuntersuchungen mittels Kathodolumineszenz-Messungen sind ortsaufgelöste Messungen (meist Farbphotographien) Standard. Für die thermisch stimulierte Lumineszenz veröffentlichten dagegen hauptsächlich Hashimoto et al. [1983, 1995a, 1996, 1998, 2000] Untersuchungen an Granitscheiben, deren TL-Signal ebenfalls auf hochempfindlichen (Farb-)Filmen festgehalten wurde.

Durch die Entwicklung von leistungsfähigen, hochempfindlichen CCD-Bausteinen wurde es seit Mitte der 1990er Jahre möglich, räumliche Lumineszenzverteilungen auch direkt quantitativ zu erfassen. Arbeiten zu abbildenden CCD-Lumineszenz-Messgeräten und hochauflösenden TL-Messungen voröffentlichen unter anderem Duller et al. [1997] und Spooner [2000]. Duller untersucht vor allem die grundsätzliche Eignung von CCD-Sensoren und gibt einen Überblick über die bis dato verwendeten Forschungsansätze. Auch ein ortsauflösender Spezial-*Photomultiplier* kam bei Messungen zum Einsatz [McFee, 1998, McFee und Tite, 1988]. Mit diesem vergleichsweise sehr aufwendigen Gerät gelang unter anderem die Bestimmung von einzelnen Äquivalenzdosen an einem Sediment. Baril [2002] gelang die Aufnahme der infrarot stimulierten Lumineszenz an hochbestrahlten Gesteinsscheiben.

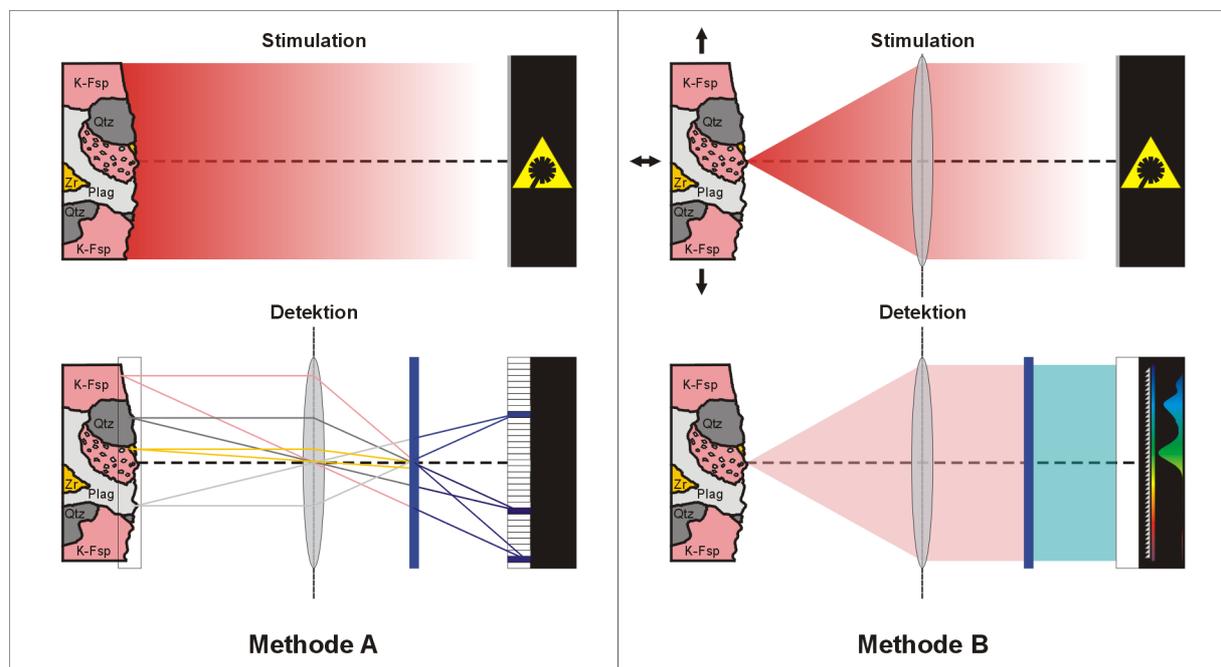


Abbildung 3.7: Das abbildende Verfahren (links) nutzt die Ortsinformation des Detektors. Ein Filter (blau) unterdrückt das Stimulationslicht und wählt den Detektionsbereich aus, da der Baustein selbst keine Spektralinformationen liefern kann. Das nicht abbildende Verfahren (rechts) fährt die Probe ab und kann die Fokussierung des Lasers an eine beinahe beliebige Oberfläche anpassen. Da durch das Rasterverfahren zudem auf der Detektionsseite keine Bildinformation erhalten bleiben muss, kann das Signal z. B. einem Spektrometer zugeführt werden.

Die abbildende Methodik weist allerdings grundlegende Limitierungen auf. So ist die Fokalebene des Gerätes während der Messung festgelegt und beschränkt. Gerade bei der Datierung von Oberflächenproben können aber sehr starke Rauigkeiten der Proben auftreten. Des Weiteren werden Bereiche außerhalb dieser Brennebene unscharf abgebildet und liefern so Signalbeiträge. Hochempfindliche CCD-Bausteine sind bisher⁴ nur in der Lage, die Intensität des Signals, nicht aber seine Energieverteilung festzustellen. Daher steht immer nur ein zuvor durch Filter ausgewählter Wellenlängenbereich für die Detektion zur Verfügung (Abb. 3.7, links).

Wird die Probe dagegen mit einem Laserstrahl abgerastert (Methode B), so muss keine bilderhaltende Optik verwendet werden. Ein (Pseudo-)Bild entsteht erst durch die Synthese der Einzel-Messungen. Die beschriebenen Einschränkungen der abbildenden Methodik können so größtenteils überwunden werden (Abb. 3.7, rechts). Raster-Geräte sind trotz ihres technologischen Mehraufwandes inzwischen hinlänglich etabliert. Beispiele sind das Raster-Elektronen-Mikroskop (REM), bei dem die Rückstreuung eines abtastenden Elektronenstrahls als Signal dient, oder das ‚*atomic force microscope (AFM)*‘, bei dem eine nur wenige Atome große Messspitze über die Probe gefahren wird. Auch die konfokale (Fluoreszenz-)Licht-Mikroskopie, bei der ein fokussierter Lichtstrahl über die Probe geführt wird, gehört zu dieser Gruppe [Minsky, 1988]. Ende der fünfziger Jahre entwickelt, konnte sie im Zusammenspiel mit der Lasertechnik und immer neuen Fluorophoren in den letzten Jahren zu einer erheblichen Ausweitung der Informationsgewinnung gerade in den Biowissenschaften [Pawley, 1999] beitragen. Auch in der Archäometrie wurden Konfokal-Mikroskope bereits eingesetzt, um die Schrift auf Stücken der Qumran-Rollen vom Toten Meer wieder sichtbar machen zu können [Thiede und Masuch, 1997].

Obwohl diese Mikroskope prinzipiell ebenfalls in der Lage sein sollten, die OSL von Mineralen zu messen, konnten bisher keine entsprechenden Untersuchungen gefunden werden. Grund könnte nicht nur der sehr hohe Preis der Geräte, sondern auch ihre Optimierung für den biologisch-medizinischen Bereich sein. Weder die Belichtungszeiten noch die Unterdrückungsverhältnisse der Filter genügen den Bedingungen der OSL und können an Standard-Geräten ausreichend angepasst werden. Des Weiteren werden dreidimensionale Messungen der Proben oder Messungen reliefierter Proben durch sukzessive Aufnahmen planer Schichten (in x-y) erstellt, die einen Tiefenstapel (in z) erzeugen. Dies kann bei den hochempfindlichen OSL-Proben zur ungewollten Beeinflussung (Bleichung) der Oberfläche führen, bevor diese überhaupt im Fokus liegt.

Im Gegensatz zu konfokalen Lasermikroskopen sind so genannte ‚Lumineszenz-Scanner‘ sehr weit verbreitet. Sie lesen latente Lumineszenzbilder in künstlichen Luminophor-Bildplatten aus und finden beispielsweise in der Autoradiographie-Untersuchung radioaktiv markierter medizinischer Präparate oder in der Kristallographie (Röntgenbeugungsbilder) Anwendung. Die Geräte arbeiten nur in einer Ebene. Ein fokussierter und gepulster Laserstrahl wird über die Bildplatte bewegt und das OSL-Signal von einem synchronisierten *Photomultiplier* aufgezeichnet. Ein solches Gerät benutzte Hashimoto [1995b] für die Aufnahme der OSL einer Granitplatte. Bailiff et al. [1996] adaptierten das Verfahren für die OSL an archäologischen Proben und stellte einen modifizierten Aufbau vor, mit welchem später auch die Evaluation dreier Äquivalenzdosen auf jeweils ca. 250 µm großen Flächen eines Ziegelsteins gelang [Bailiff, 2003].

⁴ Auf die Entwicklung von Bausteinen [Cabrera et al., 1998, Miller et al., 2001], die neben ihrer Ortsauflösung auch fähig sind, die Energie einzelner Photonen zu bestimmen, weist schon Rieser [1999] hin. Inzwischen werden so genannte ‚*Feveon-Chips*‘ in kommerziellen Digitalkameras eingesetzt, entsprechende Bausteine für den Einzelphotonen-Betrieb sind jedoch nach Aussage eines führenden Herstellers auf absehbare Zeit nicht zu erwarten [Willmann, Fa. ANDOR, pers. Mitteilung].

Während dieser Arbeit sollte mit einem zweiten Gerät, dem LasLUM II, ein den besonderen Bedingungen der OSL angepasstes konfokales Messgerät aufgebaut werden (Kap. 6).

3.7 Statistik vieler Messpunkte

Innerhalb eines Bereiches einer Probe, der einer homogenen Dosisleistung ausgesetzt ist – die gesamte Probe bei einer Laborbestrahlung oder ein hinreichend großes Mineralkorn – kann eine der Normalverteilung ähnelnde Anordnung der Äquivalenzdosen erwartet werden. Ihr Mittelwert hängt von der absorbierten Dosis ab und kann als deren Schätzer verwendet werden. Während die statistischen Prozesse vor allem Breite und Form der Verteilung bestimmen, wird der Mittelwert hauptsächlich durch systematische Fehler beeinflusst. Eine exakte Normal-Verteilung ist nur in dem recht unwahrscheinlichen Fall einer Probe mit homogener Sensitivität zu erwarten, da die Varianz der Verteilung eine Funktion der im Normalfall stark unterschiedlichen Sensitivitäten (d. h. der Helligkeit und somit des relativen Zählfehlers) der Einzelflächen ist.

Bei einem orts aufgelösten Vorgehen werden statt des integrierten OSL-Signals einer gesamten Probenfläche die Intensitäten vieler Unterflächen bestimmt. Die Fehler dieser einzelnen Messungen weisen aufgrund der geringeren Zählereignisse einen höheren relativen Fehler auf als das Signal der Gesamtprobe. So liegt dieser beispielsweise für 10^6 Photonen auf einer Gesamtfläche bei 1%. Ist das Signal aber *homogen* auf 10.000 Unterflächen mit dann jeweils 100 Ereignissen verteilt, so weist jede Fläche einen relativen Fehler von bereits 10 % auf. Der Mittelwert aller Messungen eines Parameters führt nach Umrechnung meist zu einer Größe, die für die gesamte Probe gleich sein sollte. Im angeführten einfachen Beispiel ist dies die *Helligkeit* (im Mittel 100 Photonen, mit einer geringeren Wahrscheinlichkeit werden aber auch 90 und 110 detektiert werden). Im Falle der Messungen in 5.3 ist dies die *Bestrahlungsdauer*. Beim natürlichen Lumineszenzsignal von Proben kann dies die *Äquivalenzdosis* für eventuell vorhandene homogene Bereiche (z. B. ein großer K-Feldspat) oder auch nach Verrechnung mit der Dosisleistungsverteilung das *Alter* der Probe sein. Für den Mittelwert

$$\bar{x} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n x_i \quad (3.1)$$

also den Schätzer für den „wahren“ Wert, gilt aber ein sehr viel engerer Fehlerbereich als die Breite der Verteilung [Gottwald, 2000]. Der „Fehler des Mittelwertes“ ist definiert als

$$\Delta\bar{x} = \frac{\sigma}{\sqrt{n}} \quad (3.2)$$

wobei σ die „Standardabweichung“ und n die Zahl der Messungen bezeichnet. Die Standardabweichung ist definiert als

$$\sigma = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2} \quad (3.3)$$

Im Falle einer Normalverteilung liegt der wahre Wert mit der bekannten 68,1 %igen Wahrscheinlichkeit im Intervall $\bar{x} \pm \Delta\bar{x}$. Dieses Intervall schrumpft stark mit zunehmender Anzahl der Messungen, was leicht nachvollziehbar ist: auch wenn jede einzelne Messung um den wahren Wert streut, so geschieht dies doch statistisch, und bei der Mittelwertbildung heben sich links- und rechtsseitige Beiträge mit steigender Zahl der Messungen immer mehr auf. Der Fehler des Mittelwertes aller Messungen stimmt mit dem relativen Fehler der Gesamtmessung wieder überein, wie auch für das angeführte Beispiel leicht nachzurechnen ist.

In einer Häufigkeitsverteilung der Äquivalenzdosen machen sich eventuelle konstante Offsetanteile in den Ausgangsdaten, also den OSL-Signalen, allerdings nicht nur in der Lage des Maximums der Verteilung bemerkbar, sondern auch in der Breite und in der so genannten „Schiefe“ der Kurve. Diese ‚skewness‘ ist nach dem Mittelwert und der Varianz ein Schätzer dritter Ordnung und wird durch

$$k = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \frac{(x_i - \bar{x})^3}{\sigma} \quad (3.4)$$

beschrieben. Positive Werte stellen eine rechtsschiefe, negative Werte eine linksschiefe Verteilung dar. Für $k = 0$ liegt eine symmetrische Verteilung vor.

3.8 Tiefengradienten in Lumineszenzproben

Gleichung (2.14) verdeutlicht, dass die Altersgleichung der Lumineszenzdatierung auf einem Vergleich zwischen der natürlichen Radioaktivität und einer Laborquelle beruht. Die Dosis der Laborquelle ist mit Einschränkungen homogen über die Probefläche verteilt, während die natürliche Dosisleistung über diese Fläche schwanken kann. Ebenso ist die Sensitivität vom Messort auf der Probe abhängig, in Bereichen gleicher Sensitivität aber ist das Verhältnis von natürlicher zu künstlicher Lumineszenz unter festen Messbedingungen konstant und nur vom Alter abhängig. Eine ortsauflösende Detektion des Lumineszenzsignals ermöglicht nun die Messung in Bereichen, in denen eine relative Homogenität der genannten Parameter vorliegt. Die räumliche Trennung erfolgt bei Verwendung eines abbildenden Verfahrens allerdings nur in der Ebene parallel zur Probenoberfläche, der x-y-Ebene. Die Technik bietet aber keine Diskriminierung in der dritten, der Tiefen- oder z-Dimension. Da die überwiegende Zahl der Mineralphasen aber eine signifikante Transparenz, sowohl im Wellenlängenbereich des Stimulationslichtes als auch in dem der Lumineszenzemissionen zeigten, liefern auch Anteile der Probe unterhalb der eigentlichen Oberfläche einen Beitrag zum OSL-Signal, so dass effektiv ein kleines Volumen an der Oberfläche der Probe durch die Messungen erfasst wird. Dies gilt im Übrigen auch für herkömmliche, nicht hochauflösende OSL-Messungen. Daher arbeiten diese Techniken nach Möglichkeit mit Präparaten in Ein-Korn-Lagen, die zwischen ca. 4 und 100 μm dick sind. Aber bereits bei Messungen der Grobkornfraktion treten Unterschiede in den Messergebnissen zwischen klaren und milchigen („smoky“) Quarzen auf. Erst eine konfokale Messung der OSL bietet die Möglichkeit einer z-Auflösung („optical sectioning“), bei der nur in einer definierten Tiefenschicht der Probe Signale detektiert werden – aber in Abhängigkeit von der Dicke dieser Schicht können auch hier bereits Gradienten eine Rolle spielen. Im Folgenden soll daher auf die Auswirkungen der z-Beiträge eingegangen werden.

Dabei werden mineralogische Inhomogenitäten der Probe zunächst nicht betrachtet. Vielmehr weisen die zur Laborbestrahlung verwendeten β -Quellen bereits eine charakteristische Abschwächung der Strahlung mit zunehmender Tiefe auf. Als grober Anhaltspunkt kann eine maximale Eindringtiefe von ca. 1 mm pro MeV dienen. Bei den in der Lumineszenzdatierung zumeist verwendeten ^{90}Sr -Quellen (Halbwertszeit 28 Jahre) liefert das Tochternuklid ^{90}Y (Halbwertszeit 64 Stunden) die eigentliche β -Dosis mit einer maximalen Energie von 2,26 MeV. Das Spektrum ist nicht monochromatisch, vielmehr liegt die Durchschnittsenergie bei ca.

$$\beta_{\text{av}} \approx \frac{1}{3} \beta_{\text{max}} = 0,75 \text{ MeV}$$

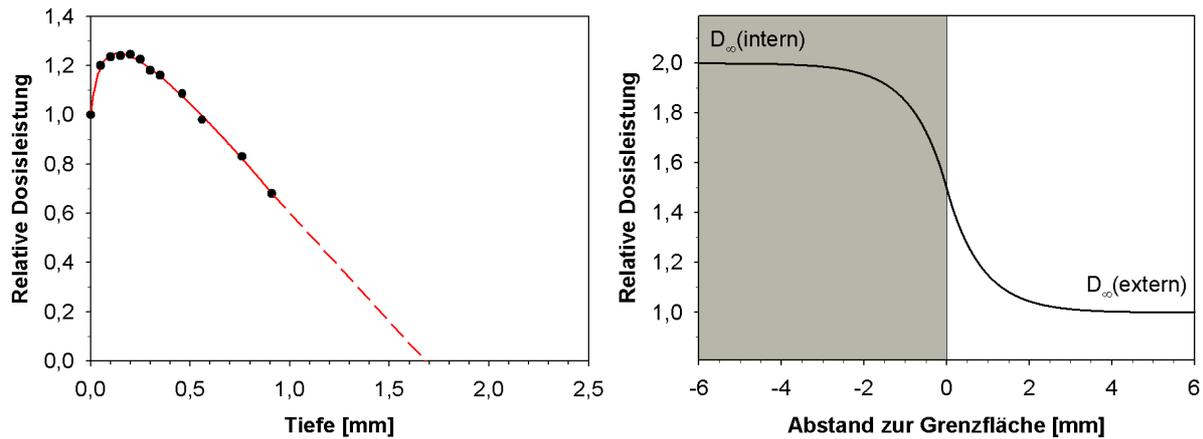


Abbildung 3.8: Relative Dosisleistung einer $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -Quelle in Abhängigkeit von der Eindringtiefe (Material: Aluminium), nach Wintle und Aitken [1977] (links). Rechts Verlauf der natürlichen β -Dosisleistung an der Grenzfläche zwischen zwei Medien, nach Habermann [2000].

Wie in Abb. 3.8 deutlich wird, sinkt die Labordosis innerhalb einer 2 mm dicken Probe auf null ab. Zudem bildet sich durch im Material erzeugte Sekundärelektronen zunächst ein Verstärkungseffekt aus. Das für die OSL-Datierung fundamentale Verhältnis von Labordosis und natürlicher Dosisleistung variiert also mit der Tiefe erheblich.

Die Gradienten der β -Komponente der natürlichen Dosisleistung liegen im Gegensatz zur α - und γ -Strahlung auf einer ähnlichen Skala wie die Variationen der Laborquelle [Habermann, 2000]. So muss auch ein eventueller Unterschied der β -Dosisleistung dies- und jenseits der Grenzfläche in Betracht gezogen werden. Dies führt zu einem sigmoidalen Verlauf der Dosisleistung (Abb. 3.8, rechts).

Über die Stärke des Einflusses tiefer Schichten auf das Gesamtsignal entscheidet die Transparenz der Minerale. In Abhängigkeit von der Tiefe T und der Transparenz des Mediums (gegeben durch den Extinktionskoeffizienten τ) wird das Stimulationslicht, das mit einer Intensität von P_0 auf die Oberfläche einer Probe trifft, nach dem Beer-Gesetz abgeschwächt:

$$P(\tau, T) = P_0 \cdot e^{-\tau \cdot T} \quad (3.5)$$

Mit

$$n = \eta \cdot P(T, \tau) \quad (3.6)$$

folgt dann für das zeitliche Verhalten der OSL-Intensität in einer bestimmten Tiefe:

$$I(t, T, \tau) = \eta \cdot P_0 \cdot e^{-\tau \cdot T} \cdot I_{ges} \cdot e^{-\eta \cdot P_0 \cdot e^{-\tau \cdot T} \cdot t} \quad (3.7)$$

Um das Lumineszenzsignal, das während der Messung einer Probe der Dicke T_{\max} im Zeitintervall $[t_{\text{Start}} \dots t_{\text{Stop}}]$ auftritt zu erhalten, ist das Integral

$$\int_{t_{\text{Stop}}}^{t_{\text{Start}}} \int_0^{T_{\max}} \eta \cdot P_0 \cdot e^{-\tau \cdot T} \cdot I_{ges} \cdot e^{-\eta \cdot P_0 \cdot e^{-\tau \cdot T} \cdot t} \quad (3.8)$$

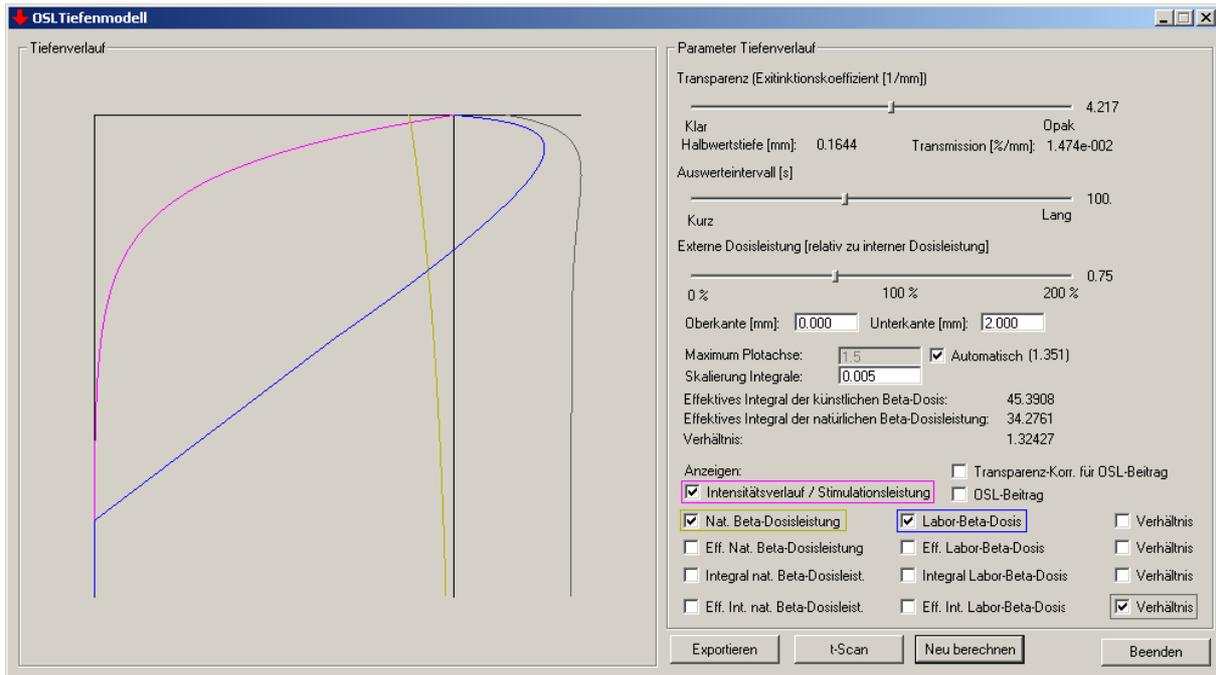


Abbildung 3.9: Bildschirmdialog des OSL-TIEFENMODELL-Programms.

auszuwerten. Dabei werden Effekte der optischen Abbildung vernachlässigt – das Licht, das auf einen Bildpunkt des Detektors trifft, stammt im Grunde nicht wie hier vereinfachend angenommen aus einer Säule unterhalb der Probenoberfläche, sondern vielmehr aus einem Kegel.

Die Lösung des Integrals ist analytisch nicht möglich. Einfacher wird die Situation aber durch die Einschränkung, nur das bis zu einem Zeitpunkt t_{max} emittierte Signal zu betrachten (was im Allgemeinen auch den Umständen einer Lumineszenzmessung entspricht). Dieses kann als Bruchteil aller emittierten OSL-Photonen angegeben werden

$$I(t_{max}) = I_{ges} \cdot (1 - e^{-a \cdot t_{max}}) \quad (3.9)$$

bzw. in einer Tiefe T

$$I(t_{max}, T) = I_{ges} \cdot (1 - e^{-\eta \cdot P_0 \cdot e^{-\tau \cdot T} \cdot t_{max}}) \quad (3.10)$$

Da aber auch das OSL-Signal wieder beim Durchgang durch das Mineral abgeschwächt wird, ergibt sich unter der Annahme gleicher Extinktionskoeffizienten für Stimulation und OSL-Emission

$$I_{eff}(t_{max}, T) = I \cdot e^{-\tau \cdot T} = I_{ges} \cdot (1 - e^{-\eta \cdot P_0 \cdot e^{-\tau \cdot T} \cdot t_{max}}) \cdot e^{-\tau \cdot T} \quad (3.11)$$

Auf Grundlage dieses Zusammenhangs wurde ein Tiefenmodell programmiert, das das effektive Verhältnis

$$\frac{D_{Lab}}{\dot{D}_{nat}}$$

in Abhängigkeit von der Transparenz (als Extinktionskoeffizient) τ , Auslesezeit t_{max} und Verhältnis der inneren und äußeren β -Dosisleistung berechnet (Abb. 3.9). Der Extinktionskoeffizient wird auch als Halbwertstiefe h in mm (Tiefe, in der die Intensität auf 50 % abgesunken ist) und Transmission u in % pro mm angegeben, wobei die Größen in folgender Beziehung stehen:

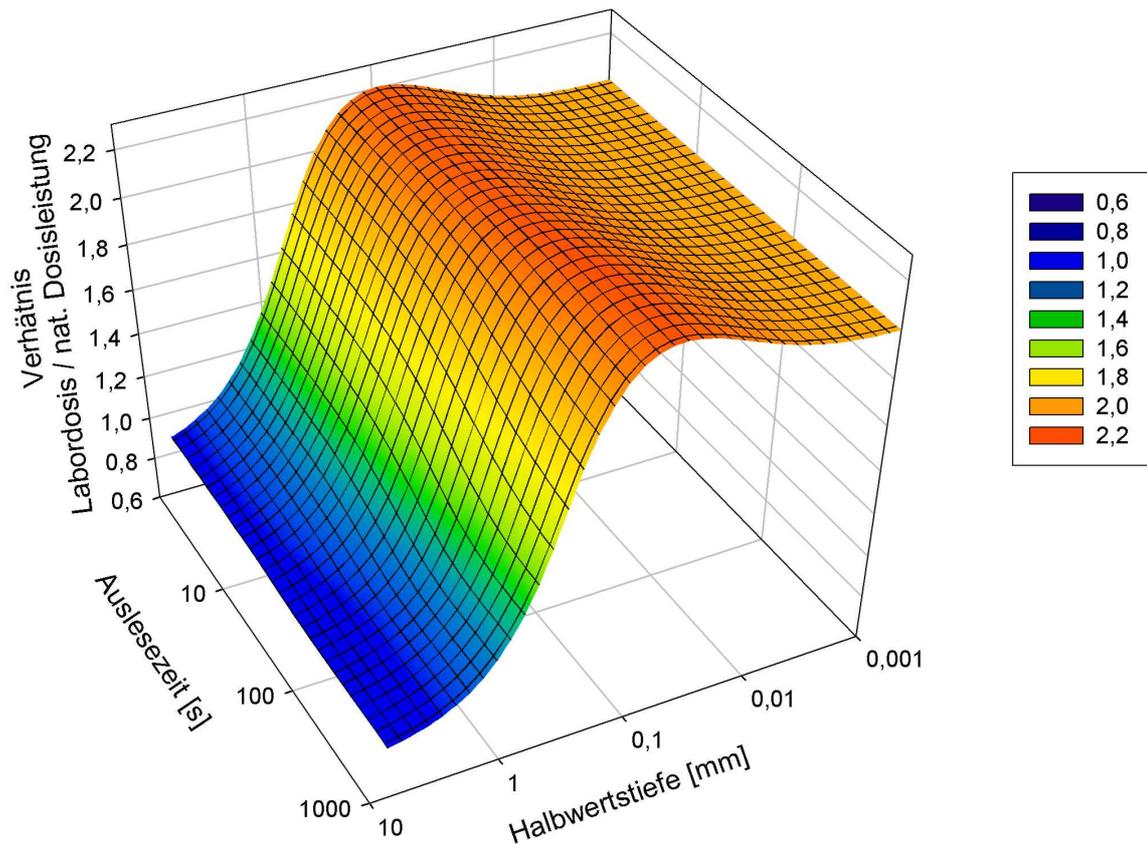


Abbildung 3.10: Relatives Verhältnis von Labordosis und natürlicher Dosisleistung für eine 2 mm dicke Probenscheibe in Abhängigkeit von Transparenz und Auslesezeit.

$$h = \frac{\log 2}{\tau} \quad \text{bzw.} \quad u = e^{-\tau \cdot 1 \text{ mm}} \quad (3.12)$$

Abbildung 3.10 zeigt das Verhältnis von Labordosis zu natürlicher Dosisleistung in Abhängigkeit von der Auslesezeit und der Transparenz für eine 2 mm dicke Probenscheibe. Es erweist sich, dass für Werte von $\tau < 5 \text{ mm}^{-1}$ (entsprechend einer Halbwertstiefe von ca. 140 μm) das Verhältnis sehr schnell absinkt, dagegen für geringe Transparenz-Werte sich dem Wert einer idealen Oberfläche nähert. Zwischen $\tau \approx 5 \text{ mm}^{-1}$ und einer völlig opaken Probe besteht eine Dynamik von bis zu 10 %, nahezu unabhängig von der Auslesezeit. Für transparente Materialien dagegen geht die Auslesezeit aufgrund des höheren Beitrags tieferer Schichten, in denen die Ausleuchtcurve flacher verläuft, stärker ein. Für die Datierung bedeutet dieses Ergebnis, hochtransparente Minerale zu meiden und opake Proben zu bevorzugen. Trotzdem kann eine gewisse Verfälschung der Ergebnisse durch Tiefenbeiträge derzeit nicht ausgeschlossen werden. Denn eine Messung der (effektiven) Transparenz der Probe zur Festlegung eines Korrekturwertes ist noch nicht möglich. Es existieren auch keine verlässlichen Werte in der Literatur [R. Altherr, Mineralogisches Institut der Universität Heidelberg, pers. Mitteilung]. In Zukunft könnte dies aber durch Vergleiche mit konfokalen Messungen geschehen. Ein weiteres, interessantes Testinstrument wäre die Durchführung von Plateau-Tests ähnlich denen, welche in der Lumineszenzdatierung zur Feststellung unvollständiger Bleichung einer Probe verwendet werden. Dabei wird die unter Nutzung der Daten eines frühen Intervalls der Ausleuchtcurve ermittelten Äquivalenzdosen mit denen aus späteren Intervallen verglichen [Aitken, 1998]. Da die effektiven Ausleuchtcurven einer transparenten, ausgedehnten Probe eine Überlagerung der Kurven aus verschiedenen Schichten darstellen, wird der Einfluss tiefer liegender Schichten mit der Zeit dominanter. Es müsste allerdings untersucht werden, in-

wiefern Effekte der Transparenz und der Einflüsse der geringeren Bleichung tieferer Schichten (resultierend in scheinbar höheren Altern) bei einem solchen Test zu trennen sind.

Betrachtet man statt einer 2 mm dicken Probenscheibe eine 100 μm messende Schicht (z. B. die Körner einer Grobkornprobe oder die Tiefenschicht einer Konfokal-Messung), so beträgt der Effekt im Modell (bei einem ausgeglichenen Verhältnis von externer und interner Dosisleistung) aufgrund der starken Varianz der Labordosis in den oberen Schichten zwischen klaren und opaken Körnern bis zu 20 %, für die Feinkornfraktion (10 μm) nur noch 3 %. Es ist aber davon auszugehen, dass durch Rückstreuung der Elektronen durch das unter der Probe befindliche Metall, das bei dünnen Probenschichten ebenfalls einer hohen β -Dosisleistung ausgesetzt ist, der Effekt z. T. nivelliert wird.

4 Geräte und Geräteentwicklung

4.1 Probennahme und Probenpräparation

4.1.1 Probenformat

An Dimension, Präparation und Behandlung der Proben für eine orts aufgelöste Methodik müssen mehrere Anforderungen gestellt werden:

- Die Probe darf sich während einer hochauflösenden Messung nicht bewegen können. Die Arbeitsschritte einer orts aufgelösten Äquivalenzdosen-Bestimmung werden nicht in einem Gerät durchgeführt. Die Proben müssen vorgeheizt und bestrahlt, unter Umständen auch gebleicht werden. Für die eigentliche Lumineszenzaufnahme muss eine Repositionierung der Probe garantiert werden, die besser als die Auflösung ist⁵.
- Die Proben sollten in Form und Größe zu bisher in der Lumineszenzdatierung verwendeten Geräten kompatibel sein, damit diese für Teilarbeitsschritte und für Vergleichsmessungen verwendet werden können.
- Die Probennahme an Gesteinsoberflächen soll sich möglichst einfach gestalten.

In den Messgeräten der Firmen RISØ NATIONAL LABORATORY (Roskilde, Dänemark) und LITTLEMORE SCIENTIFIC ENGINEERING (ELSEC, Oxford, England), die in der Forschungsstelle Verwendung finden, werden die Proben auf Edelstahl- oder Aluminium-Scheiben von 10 mm Durchmesser aufgebracht. Daneben werden auch so genannte Proben-Teller verwendet, die eine ca. 8 mm große Vertiefung besitzen. Maximal 64 von ihnen können beispielsweise auf einem Probenträger der Firma LITTLEMORE eingelegt werden (Abb. 4.1, links).

Diese Träger können verwendet werden in:

- zwei Geräten mit β -Quellen zur Bestrahlung der Probe (4.2.1)
- einem speziell für kurze Vorheizzeiten ausgelegten Ofen (4.2.2)
- einem Sonnenlichtsimulator (4.2.3)

Daher wurden kleine Probenscheiben hergestellt, die auch statt der üblichen Belegung auf den 8 mm messenden Edelmetalltellern Platz fanden. Mittels diamantbesetzter Miniatur-Kernbohrer kann Festgestein, aber auch anderen Materialien wie Keramik oder gebundenen Sedimenten ein kleiner Bohrkern entnommen werden⁶ (Abb. 4.2, oben links und unten links). Mit Hilfe eines Sägemikrotoms (Firma LEICA, Abb. 4.2, oben rechts) kann dieser Kern anschließend in kleine Scheiben zerlegt werden. Eine Scheibendicke von 1-2 mm hat sich aus Stabilitätsgründen bewährt, dickere Scheiben verursachen Probleme in den in der Höhe beschränkten Geräten und Haltern.

⁵ Die Verwendung von Markern erschien – wenn überhaupt anwendbar – als sehr aufwändig. Zunächst müsste ein Weg gefunden werden, sehr feine Marken auf die Probe zu setzen, die entweder selbst lumineszieren – ohne dabei das OSL-Bild zu überbelichten oder zu dunkel zu sein und die nach der Messung in einem Auflichtbild wieder zu finden sind. Darüber hinaus müsste die Auswertesoftware in der Lage sein, die Bilder durch Rotation und Translation übereinander zu legen. Bei diesem Vorgang käme es zu Verschmierungen des Signals zwischen den Bildpunkten.

⁶ Nach der bisherigen Erfahrung ist es in den allermeisten Fällen möglich, einen einige bis ca. 20 mm langen Bohrkern zu entnehmen. Kritisch sind stark verwittertes Gestein und Materialien, die empfindlich auf Wasser reagieren, wie beispielsweise einige Sandsteine oder bei niedrigen Temperaturen gebrannte Keramiken.

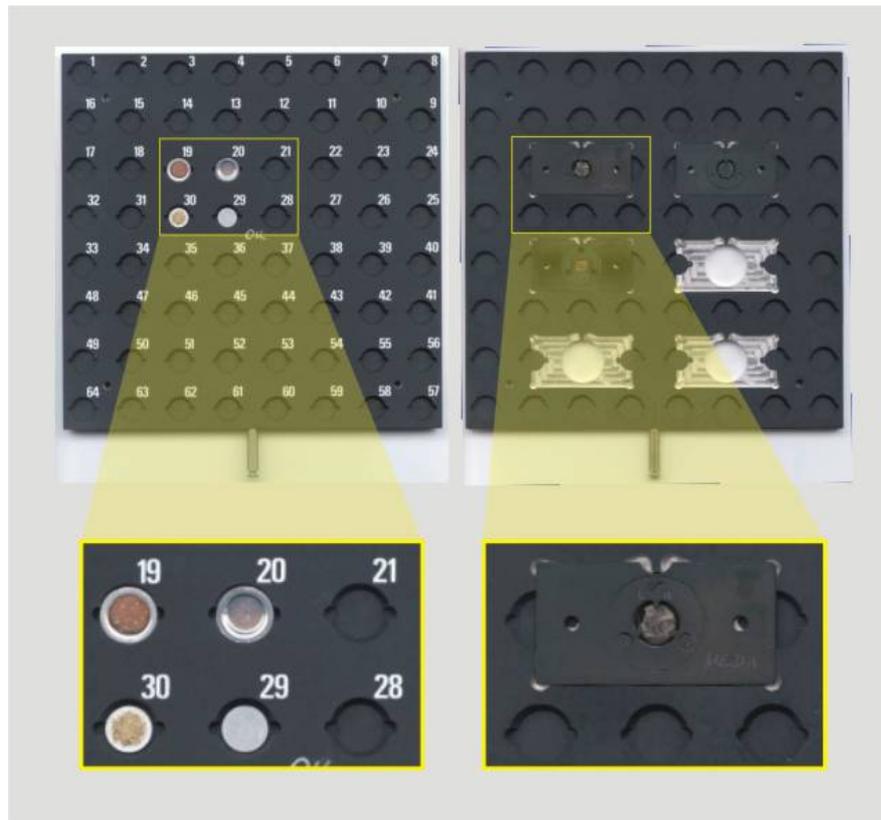


Abbildung 4.1: Links Probesteller und -scheibchen in einem konventionellen Halter, wie sie in der Forschungsstelle Archäometrie verwendet werden. Rechts 8 mm große, aus Bohrkernen geschnittene Probenscheiben in Probenrahmen, die wiederum in einen modifizierten Halter eingelegt werden können.

Als sehr effektiv hat sich ein zur Schmucksteinbearbeitung angefertigter Bohrer erwiesen, der von innen mit Wasser gespült wird (Abb. 4.2, unten Mitte), was hohe Temperaturen während des Bohrens vermeiden hilft. Ca. 1 cm Bohrtiefe pro Minute ist selbst bei vorsichtigem Vorschub möglich. Der Kern reißt in einer gewissen Tiefe selbst ab oder kann später, sofern die Probe nicht vollständig durchbohrt wird, mit einem kleinen Schraubenzieher o. ä. durch ein leichtes (!) Aushebeln abgetrennt werden⁷. Ein eventuell im Bohrer verbleibendes Stück kann mit einem Stab ausgestoßen werden.

Beim Schneiden mit dem Sägemikrotom wird der Kern in einen eigens angefertigten Träger eingespannt, der 8 mm Bohrungen mit verschiedener Tiefe besitzt. Die genutzte Bohrung sollte so gewählt werden, dass der Kern bei Andruck an das Sägeblatt stabil sitzt. Mit einem einwandfreien Sägeblatt sollte das Durchtrennen eines Kerns ohne Splitter in ca. 2 Minuten möglich sein⁸. Der abgetrennte Kern kann mit einer Pinzette vor dem Wegschleudern bewahrt werden. Mehrfache Schnitte können durch das Absenken der Probe in 20 µm Schritten am Sägemikrotom eingestellt werden.

⁷ Achtung: Bruchgefahr der Gesamtprobe beim Durchtritt des Bohrers!

⁸ Der Vorschub sollte besonders beim Eintritt und bei Austritt des Sägeblattes kontrolliert werden (bewährt hat sich die Einstellung „10“-„15“ für den Ein- und Austritt sowie „20“-„25“ für das eigentlich Durchtrennen).

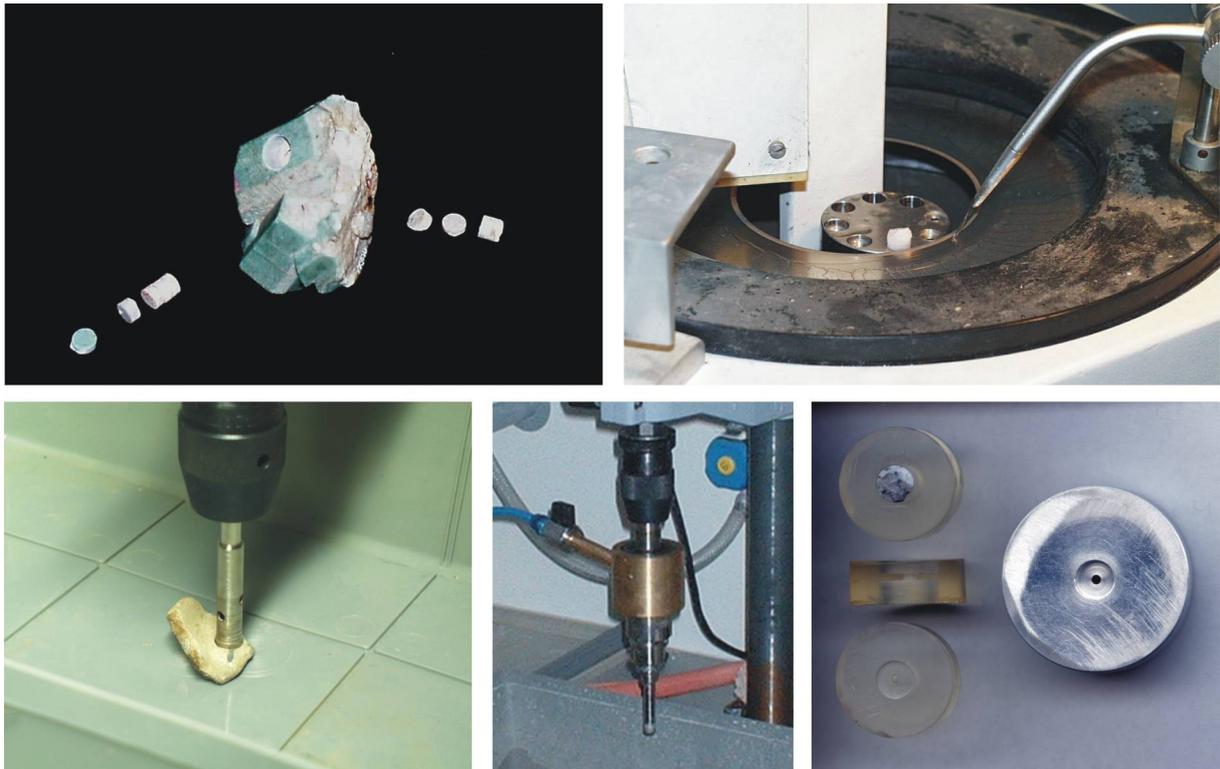


Abbildung 4.2: Präparation von Probenscheiben (oben links) mit Hilfe eines Miniatur-Kernbohrers (unten links und Mitte) und eines Innenloch-Sagemikrotoms (oben rechts). Unten rechts Halterungen zum eventuellen Nachschleifen der Oberfläche.

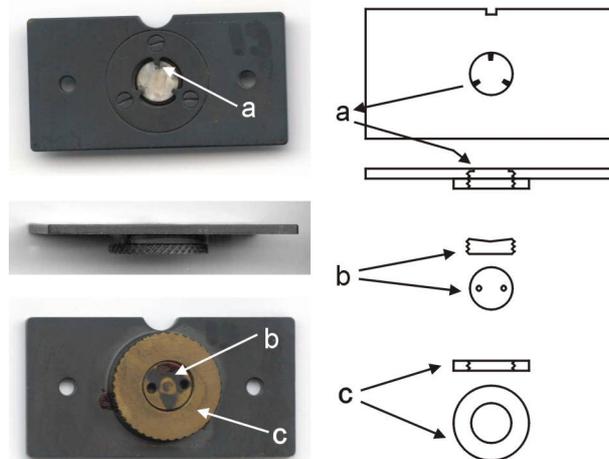


Abbildung 4.3: Probenrahmen zur Halterung der Probenscheiben. Erläuterung der Bezeichnungen im Text.

Sollte eine Weiterbearbeitung einer Probe notwendig sein, z. B. um Grate zu entfernen oder einen Winkel zwischen Ober- und Unterseite auszugleichen, stehen kleine Aluminium- und Epoxyscheiben zur Verfügung, die eine zentrale Bohrung (in Tiefen von 2, 1½ oder 1mm) besitzen, in die die Probe eingelegt werden kann (Abb. 4.2, rechts unten). Mit Hilfe einer rotierenden SiC-Scheibe kann die Probe auf die gewünschte Dicke geschliffen werden. Eine kleine, durchgehende Bohrung erleichtert das Herausnehmen der Probe.

Um die Probenscheibe sowohl für die Lumineszenzmessung zu halten, als auch in anderen Geräten benutzen zu können, wurde ein 50x26 mm großer (Objektträgergröße für Mikroskope) Probenrahmen entwickelt, in den die Steinscheiben eingeschraubt werden können (Abb.

4.3). Hierbei wird die Probe mit Ihrer Oberfläche gegen Klammern (a) geschraubt, die einen definierten Abstand zur Ober- und Unterseite des Trägers besitzen. Bei der feinmechanischen Fertigung wurden diese Abstände mit möglichst engen Toleranzen hergestellt. Somit ist, unabhängig von der tatsächlichen Dicke der Probe garantiert, dass die Oberfläche sich im Fokus der Optik für die OSL-Aufnahme oder im gewünschten Abstand zur Quelle während der Bestrahlung befindet – mit entsprechenden Abstrichen für reliefierte Proben. Der Einsatz (b), auf dem die Probe aufsitzt, wird mit einem speziellen Schlüssel in den Rahmen eingeschraubt. Der Einsatz sitzt auf dem Schlüssel auf, so dass auch im Dunkel ein Einschrauben leicht möglich ist. Das Festziehen sollte entsprechend vorsichtig geschehen. Der Einsatz wird wiederum durch einen Konterring (c) gehalten und besitzt eine konische Bohrung, die die Zentrierung der Probe erleichtert. Eine kleine Einkerbung an der oberen Kante verhindert eine unabsichtliche 180°-Drehung.

Die Klammern können Spuren auf der Probe verursachen oder sich sogar bei sehr empfindlichen Proben (Keramik) eingraben. Hierfür wurden Probenrahmen gefertigt, die statt der Klammern eine etwas kleinere Bohrung besitzen (Abb. 4.1, rechts). Der Probenrahmen wiederum kann in einen ausgefrästen ELSEC-Träger eingelassen werden, bei dem nun 6 der 64 (Nr. 19, 22, 35, 38, 51, 54) Positionen genutzt werden können. Zur Repositionierung der Probe im Lumineszenzgerät werden die Kanten des Trägers genutzt. Unabhängig von den exakten Maßen des Rahmens bieten sie so einen definierten Abstand, solange die Probe in den Träger eingeschraubt bleibt.

4.1.2 Oberflächenprobennahme

Für Keramiken reicht eine Bohrkernentnahme aus, um durch den folgenden Anschnitt eine Fläche für die Datierung zu präparieren. Die Probennahme an Oberflächen, die lediglich abgedeckt oder mit Mörtel bedeckt sind, kann im Labor mit der Kernbohrmaschine, im Feld mit Hilfe eines Akku-Kernbohrers erfolgen (Abb. 4.4). Dieser wurde mit einer 12V-Pumpe versehen, die aus einem Kanister Wasser für den Bohrer fördert⁹. Bei Ansetzen des Bohrers, besonders an rauen Oberflächen kann eine Schablone mit ca. 9-10 mm großen, durchgehenden Bohrungen helfen. Im Falle einer Steinwand muss eventuell zunächst ein größerer Querbohrkern (Abb. 4.5) entnommen werden (auch hier hilft eine Schablone). Aus diesem kann dann wiederum ein kleiner 8 mm-Bohrkern gezogen werden. Durch ein Zurücksetzen des großen Bohrkerns bleibt der sichtbare Eingriff in das Mauerwerk relativ gering.



Abbildung 4.4: Nächtliche Bohrkernentnahme während einer Feldkampagne an den Geoglyphen in Palpa. Als Lichtquelle wurden für diesen Zweck mit roten LEDs umgerüstete Stirnlampen verwendet, die zur Orientierung im Gelände auf weißes Halogenlicht umgeschaltet werden können (Photos: I. Unkel).

⁹ Ca. 4 Bohrkerns können mit einem Akku erbohrt werden.



Abbildung 4.5: Links Entnahme eines Querböhrkerns mit ca. 55 mm Durchmesser (rechts).

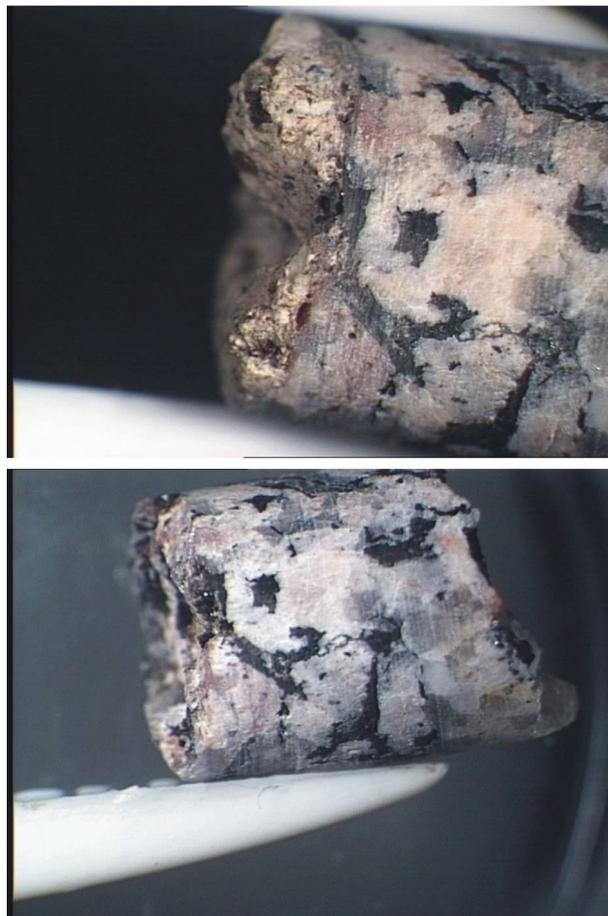


Abbildung 4.6: Entfernen des Mörtels mit Hilfe von HCl. Oben eine Probe vor dem Ätzen, unten nach 10 min in 10 %iger Salzsäure. Die gelbliche Mörtelschicht ist verschwunden.

Mörtel, der auf der Oberfläche liegt, kann durch Säure abgelöst werden¹⁰ (Abb. 4.6). Es bleibt allerdings zu untersuchen, ob eventuell auch Material von der Oberfläche gelöst wird. Die Freilegung tieferer Schichten, deren Signal durch das zu datierende Ereignis nicht ausreichend gebleicht wurde, kann zu einer Verfälschung des Ergebnisses führen.

¹⁰ Zehn Minuten in 10 %iger HCl reichen nach bisheriger Erfahrung aus.

4.2 Konventionelle Geräte und Verfahren

4.2.1 Bestrahlung

Zur Bestrahlung der Proben wurden zwei Geräte der Firma LITTLEMORE SCIENTIFIC ENGINEERING (ELSEC) vom Typ 9022 genutzt. Sie werden im Folgenden „LM1“ und „LM2“ genannt und arbeiten mit jeweils einer $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ - β -Quelle, die über Aktivitäten von 100 mCi (LM1, am 25. März 1996) bzw. 20 mCi (LM2, 10. Dez. 1992) verfügen. Zwei Schrittmotoren fahren den durch den Ladeschacht eingeführten Probenhalter in einer (x-, y-) Ebene unter die Quelle (Abb. 4.7). Der Abstand (z) zur Quelle ist fix und beträgt ca. 15 mm. Die Bestrahlungszeit wird durch einen Metall-Shutter zwischen Quelle und Probe gesteuert. Es ist bekannt, dass die Güte der Repositionierung in den Geräten mit der Zahl der Fahrten abnimmt. Daher ist es ratsam, vor einer neuen Messreihe eine Neujustierung vorzunehmen, die das Gerät selbständig mit Hilfe eingebauter Endschalter durchführt. Eventuelle Schwankungen in der z-Richtung können sich aufgrund des Abstandsgesetzes

$$\dot{D} \propto \frac{1}{r^2} \quad (4.1)$$

(\dot{D} : Dosisleistung am Orts der Probe, r Abstand der Probe zur Quelle) stark auswirken. Eine Abweichung von $\pm 0,5$ mm vom vorgegebenen Abstand führt bereits zu einer Änderung der Dosisleistung von 12 %.

Für die Quellen beider Geräte wurde für die in dieser Arbeit verwendeten Probenrahmen eine Kalibration durchgeführt (Tab. 4.1). Als Material wurden dabei α - $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Tabletten verwendet. Der Vergleich der beiden Quellen erfolgte gegen die $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -Quelle des RISØ-DA15-Messgerätes.

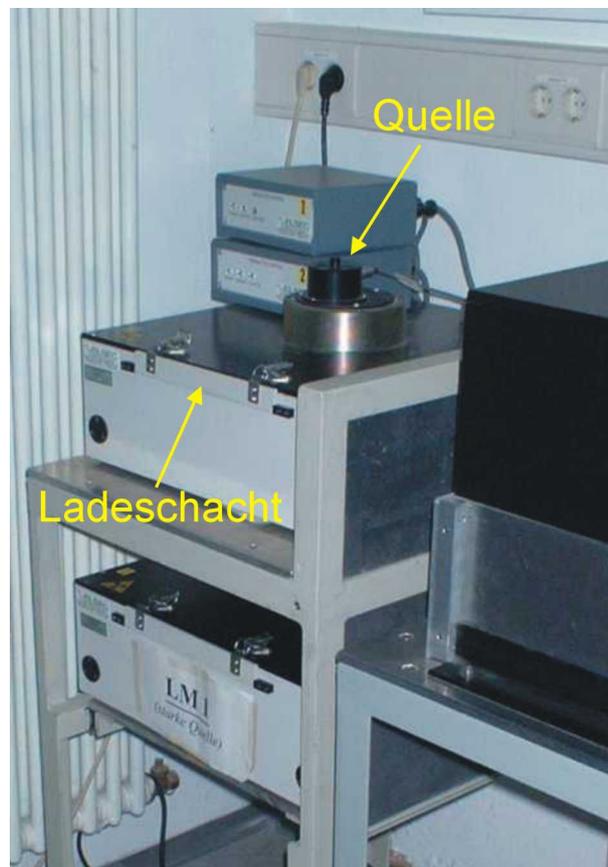


Abbildung 4.7: Die verwendeten β -Bestrahlungsgeräte LM1 und LM2.

Gerät	Dosisleistung [Gy/min]	Dosisleistung [mGy/s]
LM1	3,60±0,06	60,0±1,0
LM2	0,546±0,028	9,1±0,5

Tabelle 4.1: Kalibration von LM1 und LM2 für Probenrahmen [Kalchgruber, pers. Mitteilung].

Bei der Kalibration handelt es sich z. Z. um reine Umrechnungsfaktoren. Zu einer weiteren Verfeinerung der ortsauflösenden Technik ist aber notwendig, die räumliche Heterogenität (in allen drei Raumrichtungen) der Quelle durch Vergleich mit gleichmäßig (γ -)bestrahlten Proben zu quantifizieren, so dass die Umrechnung von Bestrahlungszeit in Dosis in Abhängigkeit vom Ort erfolgen kann. Die Unterschiede in der Dosisleistung in x,y-Ebene betragen für Proben mit 10 mm Durchmesser in den verwendeten Geräten weniger als 10 % [Aitken, 1985].

Eventuelle Abweichungen in den Steuerzeiten für den Shutter-Mechanismus sind besonders bei kurzen Bestrahlungszeiten zu berücksichtigen. Sie wurden durch wiederholte Zeitnahmen auf unter 0,1 s bestimmt.

4.2.2 Ofen

Die Forschungsstelle verfügt über zwei Laboröfen, die Temperaturen bis 220 °C bzw. 280 °C erreichen können. Da das Vorheizen von Lumineszenzproben ein schnelles Erreichen einer über eine Messreihe möglichst konstanten Temperatur sowie ein schnelles Wiederabkühlen erfordert, wurden zwei Aufnahmeschächte für die Probenhalter gebaut. Im Ofen (Abb. 4.8) sorgt ein massiver Metallblock hoher Wärmekapazität, in den der Halter eingeschoben wird, für ein schnelles Erhitzen und gleicht daneben auch Temperaturschwankungen aus, die durch das Öffnen der Tür und das Einschieben des kalten Halters verursacht werden. Neben dem Ofen befindet sich ein Halter, der von Kühlwasser durchflossen wird und in dem der Halter rasch abgekühlt werden kann.

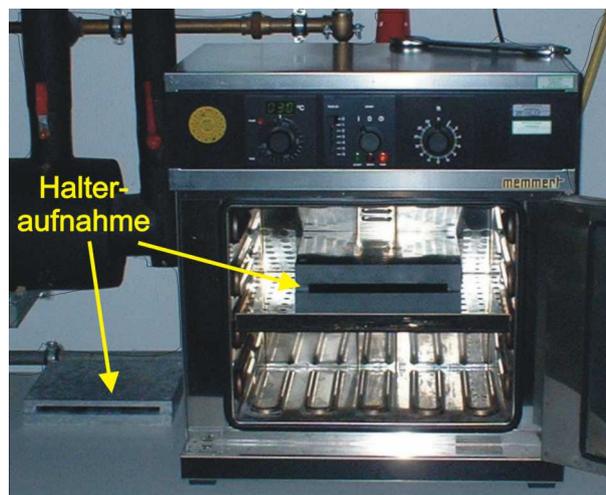


Abbildung 4.8: Vorrichtung zum Vorheizen der Proben.

4.2.3 Bleichung

Ein Hönle SOL2 Sonnenlichtsimulator kann verwendet werden, um die Nullstellung einer Probe durch Tageslicht im Labor nachzustellen. Das Gerät besitzt eine Halogenlampe mit ca. 20-facher Standardsonnenleistung. Um ein Aufheizen der Proben während der Bleichung zu verhindern, liegt der Probenhalter auf einem kühlwasserdurchflossenen Metallblock. Da ener-

giereiches Licht (vor allem im UV-Bereich) seinerseits wieder zur Auffüllung von Elektroden führen kann (s. 2.2), wird die Probe üblicherweise mit Filtergläsern abgedeckt.

4.2.4 REM-EDX

Der Beschuss einer Probe mit einem Elektronenstrahl führt zur Emission von Röntgenstrahlung. Die spektrale Detektion dieser Strahlung erlaubt die Analyse der Elementzusammensetzung der Probe (Lage der charakteristischen Röntgen-Linien) und die quantitative Bestimmung der Elementgehalte (Intensität der Linien). Die so genannten EDX („Energie-Dispersive-Röntgenfluoreszenz“)-Geräte sind meist als Zusatzeinrichtungen an Raster-Elektronen-Mikroskopen (REM) zu finden. Das bildgebende Verfahren des REM, das mit einem fokussierten Elektronenstrahl die Probe abtastet und die dabei im einige Kubikmikrometer¹¹ großen Probenvolumen entstandenen Sekundär- und Rückstreuelektronen nachweist, kann so mit den EDX-Daten kombiniert werden. Üblich sind ‚mappings‘, bei denen qualitativ die Verteilung der Elemente in einem Ausschnitt der Probe gemessen (Abb. 4.9) und quantitative Analysen, bei denen das Spektrum eines längere Zeit (ca. 60 s) auf einen Punkt gerichteten Elektronenstrahls ausgewertet wird (Abb. 4.10). Die Ergebnisse aller quantitativen EDX-Analysen in dieser Arbeit werden in Prozent Gewichtsanteil angegeben (Einheit „% w.t.“ bzw. wenn eindeutig „%“). Der Fehler beträgt für polierte Proben unter 0,2 % w.t., für Proben mit rauer Oberfläche nicht über 0,5 % w.t. [H.-P. Meyer, Mineralogisches Institut der Universität Heidelberg, pers. Mitteilung].

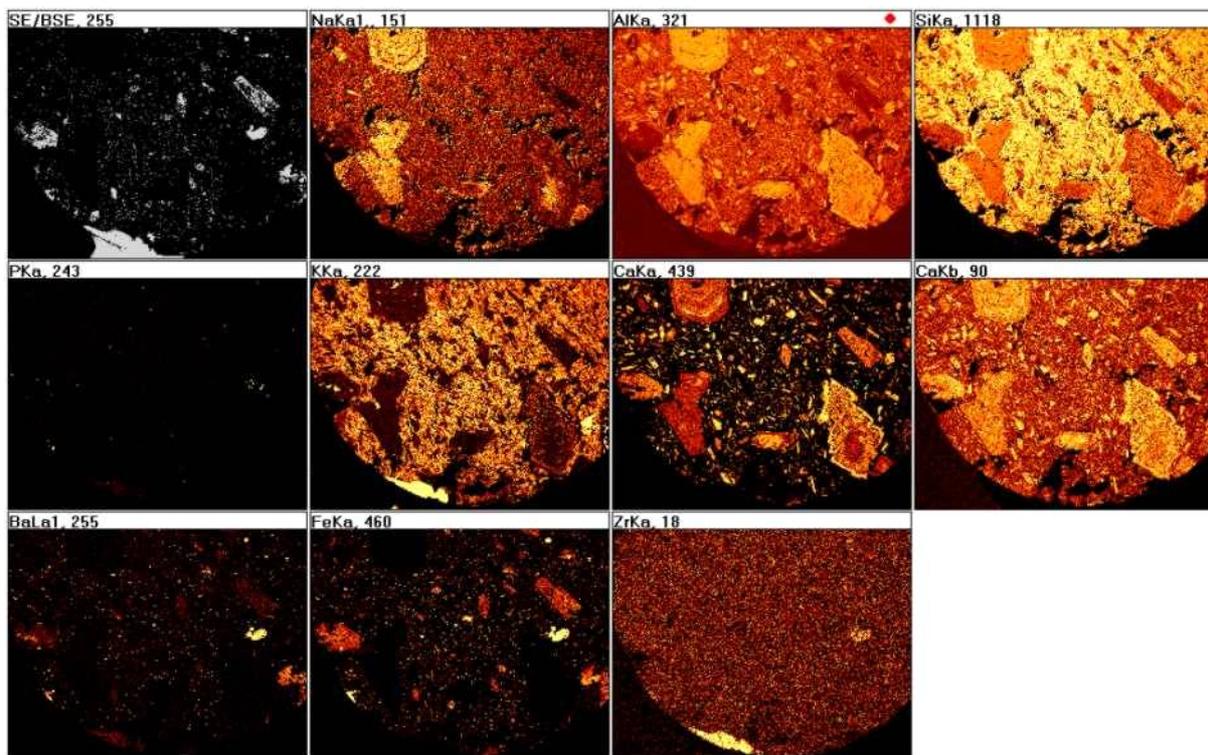


Abbildung 4.9: Elementverteilungs-Analysen an einer Vulkanit-Probe (Methana/Griechenland). Links oben das Bild der rückgestreuten Elektronen (horizontaler Ausschnitt ca. 5 mm). Über den Element-Analysen ist die Röntgenlinie angegeben, an der die Bestimmung erfolgt (z. B. K- α -Linie). Dunkle Farben spiegeln niedrige, helle Farben dagegen hohe relative Gehalte des betrachteten Elements wider.

¹¹ Die Größe des Brennflecks des genutzten Gerätes betrug ca. 1-2 μm die Eindringtiefe ebenfalls ca. 1-2 μm .

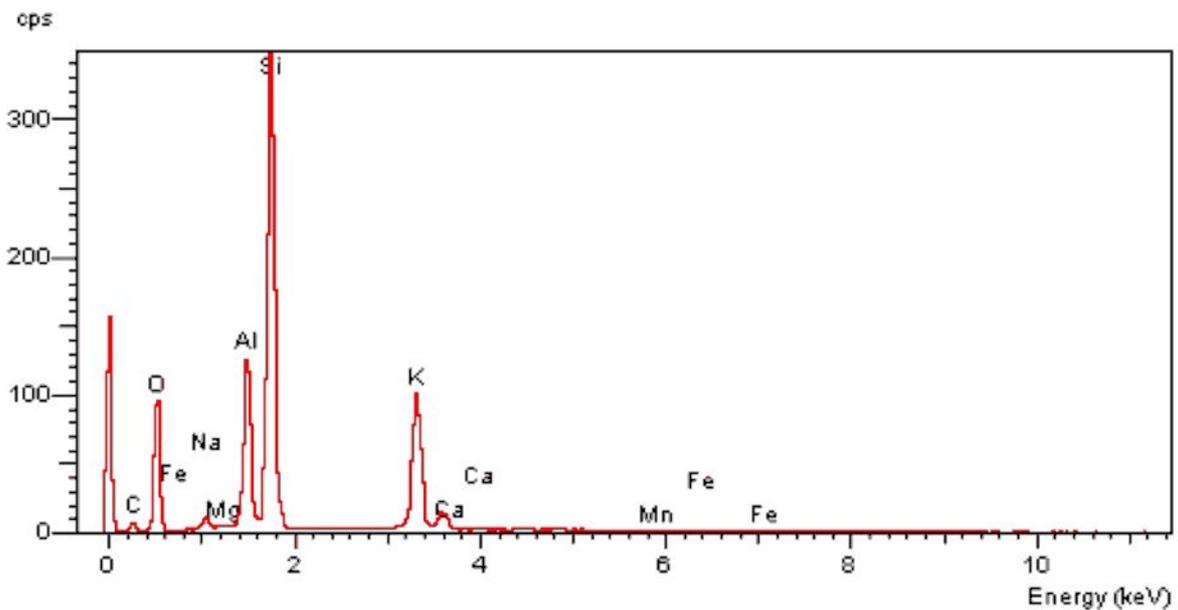


Abbildung 4.10: EDX-Spektrum eines kaliumhaltigen Feldspats. Man erkennt Röntgenlinien, die den Elementen O, Si, Al sowie K zugeordnet werden können.

4.2.5 Induzierte Spaltspuren

Für eine ortsauflösende Messung der Gehalte an Uran und Thorium kann die REM-EDX-Methode aufgrund ihrer Nachweisgrenzen nicht verwendet werden. Die Bestimmung kann aber mit Hilfe von Kernspaltspuren erfolgen [Wagner, 1976]. Unter Neutronenbeschuss werden in einem Reaktor die Uran- und Thorium-Kerne in der Probe zu induzierter Kernspaltung angeregt. Dabei erzeugen Spaltfragmente derjenigen Atome, welche sich nahe ($\sim 10 \mu\text{m}$) der Oberfläche befinden, Zerstörungen entlang ihrer Flugbahn in einem aufgebrachteten Detektor. Diese Detektoren sind zumeist Kunststofffolien (MAKROFOL, KAPTON) oder Muskovit-Mineralen. Da die von den Partikeln durchschlagenen Bereiche eine höhere Empfindlichkeit gegenüber Säuren besitzen, lassen die Spuren sich auf eine sichtbare Größe anätzen (Abb. 4.11). Die geätzten Spuren mit bis zu $16 \mu\text{m}$ Länge erlauben eine hohe Ortsauflösung. Bedingt durch Unterschiede in der Energieabhängigkeit der Wirkungsquerschnitte wird bei Reaktionen mit thermischen Neutronen vor allem das ^{235}U zur Kernspaltung veranlasst, bei Bestrahlung mit schnellen Neutronen dagegen ^{232}Th , und ^{238}U . Durch gleichzeitige Bestrahlung von Standardmaterialien mit bekannten Gehalten an Uran und Thorium lassen sich die Gehalte anhand der Zahl der Spaltspuren quantifizieren.

Für die Analyse der Spaltspuren ist es notwendig, eine geeignete Neutronendosis¹² zu wählen, um durch die Dynamik der Dichte der Spuren den Bereich der in der Probe vorhandenen Konzentrationen in einem sinnvollen Bereich abdecken zu können (von nahezu U/Th-freien Quarzen bis zu Zirkonen und anderen stark U/Th-haltigen Mineralen). Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Methodik für qualitative Untersuchungen der Uranverteilung in der Probe und zum Ausschluss von Bereich hoher α -Dosisleistungen genutzt. Durch eine Doppelbestrahlung (mit einem Detektor für die Bestrahlung mit schnellen Neutronen und einem anderen für thermische Neutronen) kann aber durch Vergleich sowohl die Uran als auch das Thorium-Konzentration bestimmt werden. Für die Dosisleistungsbestimmung bei Lumineszenzproben

¹² Im Fall von thermischen Neutronen für Gesteinsproben ca. 5×10^{16} Neutronen/cm².

ist auch eine einzelne Bestrahlung mit schnellen Neutronen denkbar, da sich das mittlere geochemische Verhältnis und die von Uran bzw. Thorium verursachte α -Dosisleistung im Allgemeinen nivellieren [Wagner, pers. Mitteilung].

Die Methode lässt sich – durch die Tatsache bedingt, dass die Detektionsfolien auf wenige μm eng an der Probe anliegen müssen – nur für flache Proben (z. B. Keramikscheiben, eingebettete Sedimente) verwenden. Damit ist die Anwendung bei Oberflächenproben nicht möglich. Ein Material, das unter Umständen geeignet sein könnte, diese Beschränkung zu umgehen, ist DAP (Diallyl-Phthalate) ein Harz, das in flüssigem Zustand auf die Probe gegeben werden kann und sich dann durch Polymerisation verfestigt. Tsuruta [1999] konnte zeigen, dass DAP als Spaltspurdetektor (in flache Formen gegossen) geeignet ist. Ob sich DAP von einer Gesteinsprobe wieder ablösen lässt und wie sich das Zählen von Spaltspuren an rauen Oberflächen gestaltet, bleibt abzuwarten. Der zur Polymerisationsreaktion erforderliche Starter ist in Deutschland allerdings nur sehr schwer zu erhalten.

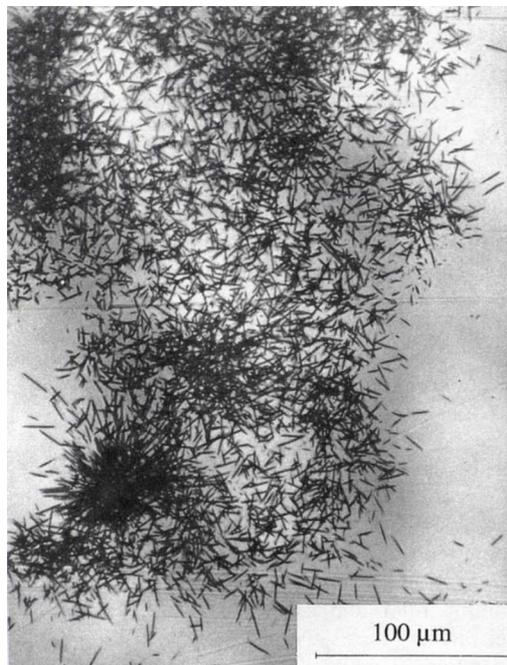


Abbildung. 4.11: Spaltspurverteilung eines auf einer Keramikprobe aufgetragenen Detektors [Wagner, 1998].

4.3 Messgerät LasLUM I

Die Forschungsstelle Archäometrie besitzt ein hochempfindliches, mit flüssigem Stickstoff gekühltes CCD-Kamera-System der Firma PRINCETON OPTICS (inzwischen ROPER SCIENTIFIC). Rieser [1999] baute hiermit ein Spektrometer für TL und IRSL auf. Die Lumineszenz konventioneller Proben wurde dabei durch einen Spektrographen in Abhängigkeit von der Wellenlänge über den CCD-Chip verteilt. Diese Kamera bildet den zentralen Baustein für das Gerät LasLUM I (Abb. 4.12), indem sie als abbildendes Instrument genutzt wurde. Die optischen und mechanischen Komponenten, die die Kamera umgeben, wurden auf einer optischen Rasterplatte aufgebaut. Auf diese Weise konnte eine große experimentelle Flexibilität gewonnen werden. Dafür muss allerdings eine aufwendigere Messprozedur in Kauf genommen werden, denn das LasLUM I ist nicht in der Lage, die Probe vorzuheizen, zu bestrahlen oder gar automatisch zu wechseln. Hierzu werden die in 3.2 beschriebenen Geräte verwendet. Der Benutzer muss die Probe(n) zwischen den Geräten wechseln.

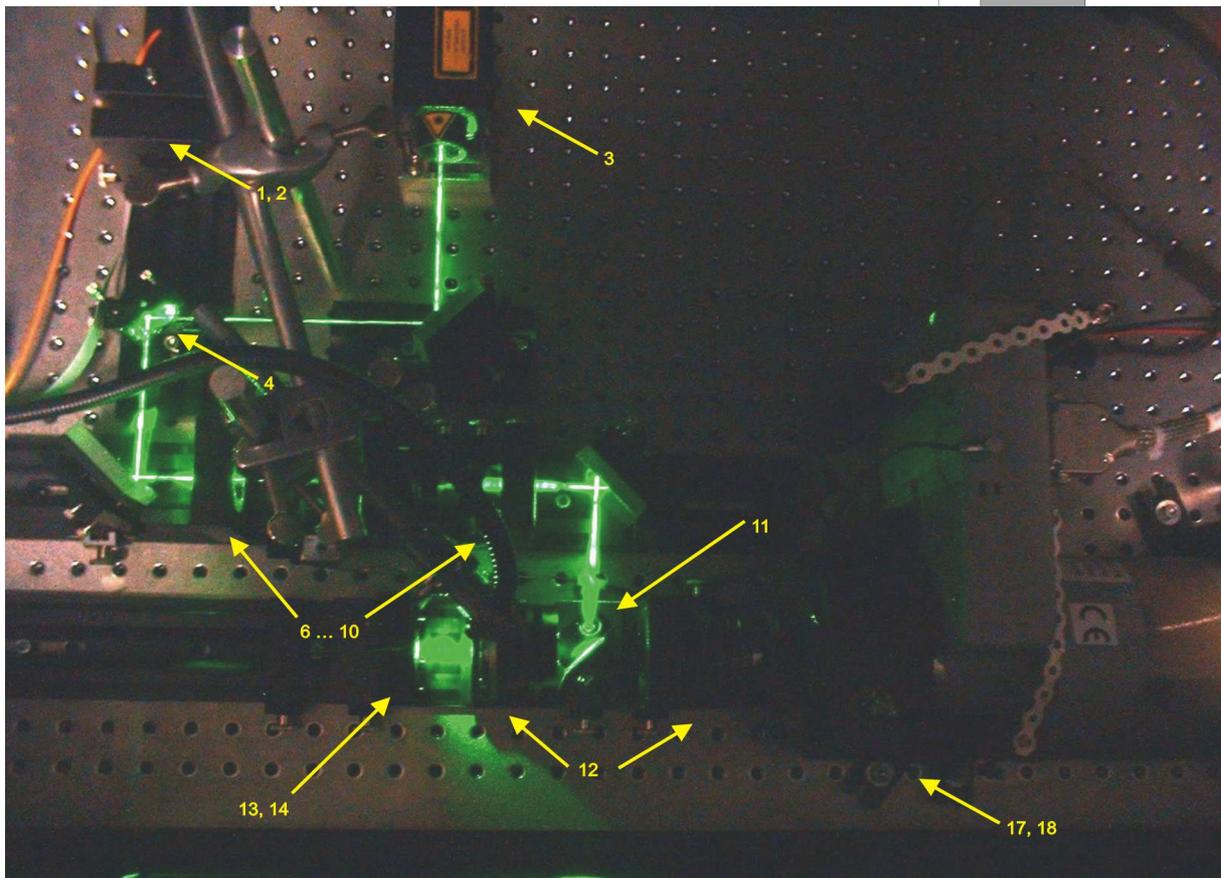
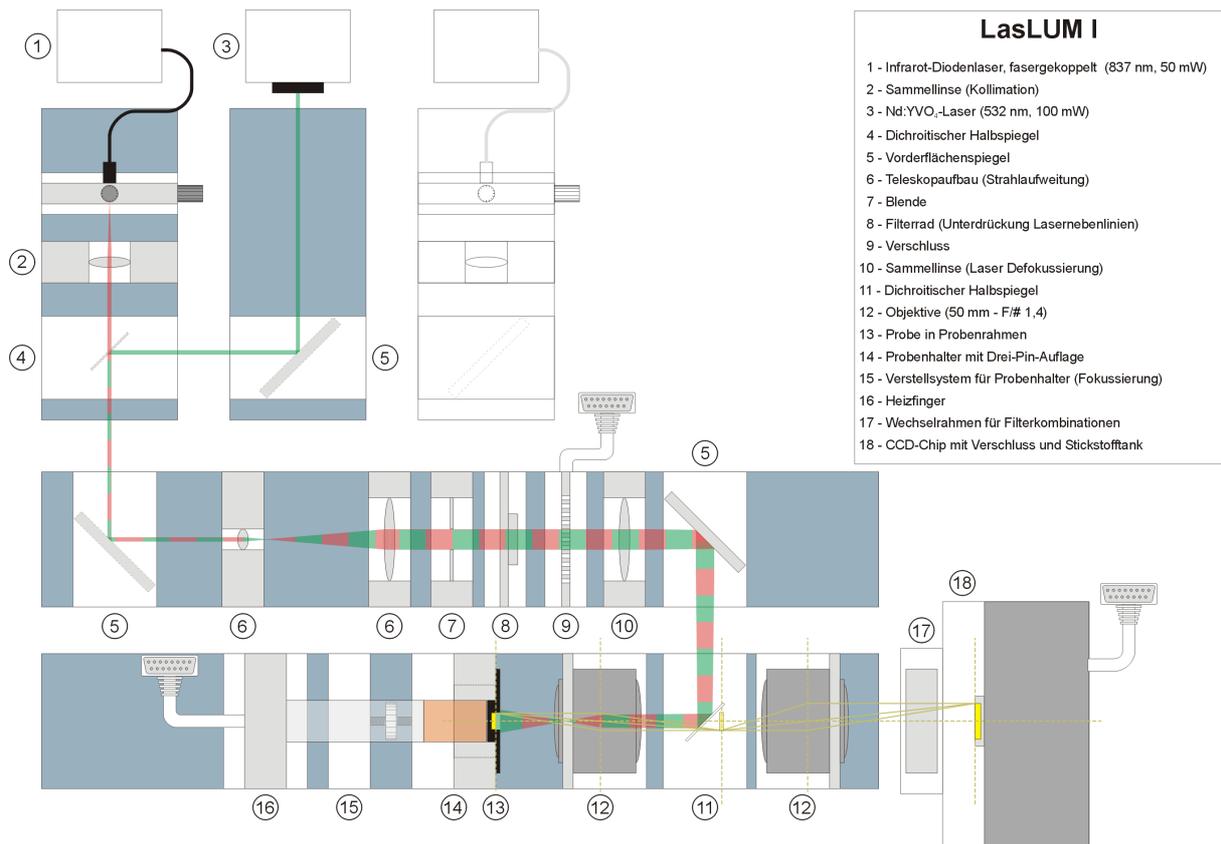


Abbildung 4.12: LasLUM I. Oben: Funktionszeichnung – die auch im Text verwendeten Nummern bezeichnen die Elemente des Aufbaus. Die durchscheinenden Teile zeigen die Einkopplung eines blauen Lasers im Bedarfsfall. Unten: Aufnahme während des GRSL-Betriebs (ohne Temperaturkontrolle [16]).

4.3.1 Detektor (Abb. 4.12, 18)

Hauptbestandteil der CCD-Kamera ist ein *Chip* (Typ Princeton Instruments LN/CCD-1100PB/UVAR), der auf 26,4 x 7,9 mm 1100x330 Bildpunkte (*Pixel*) besitzt. Ein einzelner *Pixel* ist ungefähr 24 x 24 μm groß. Allerdings besteht konstruktionsbedingt ein ca. 2 μm breiter, umlaufender Rand aus nicht-sensitivem Material. Der Baustein ist ein *back-illuminated*-Typ. Das bedeutet, dass das Licht im Gegensatz zur herkömmlichen, lichtschwächeren *front-illuminated*-Bauweise nicht von der streifenförmigen Metallbedampfung reflektiert werden kann, sondern durch den Siliziumträger strahlt. Dieser muss daher sehr dünn gefertigt werden und ist technisch schwieriger zu realisieren als der *front-illuminated*-Typ. Zusammen mit einer speziellen Antireflexions-Beschichtung (*coating*) erlaubt die Bauweise aber eine sehr hohe Quanteneffizienz, die der von *Photomultipliern* weit überlegen ist (Abb. 4.13).

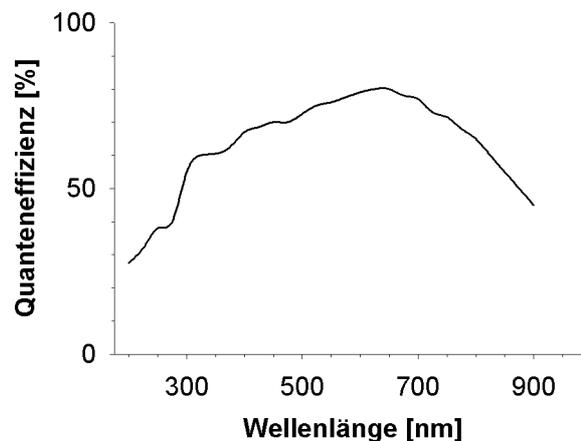


Abbildung 4.13: Quanteneffizienz des verwendeten CCD-Bausteins. Nicht nur in ihrer Höhe (bis über 70 %), sondern auch in der spektralen Breite, die sogar in den nahen Infrarot-Bereich reicht (die Bandlücke des Halbleiters beträgt 1,14 eV), ist sie der von Photomultipliern überlegen.

Die Steuer- und Ausleseelektronik kommuniziert über eine Schnittstellenkarte (PCI-Bus) mit einem konventionellen PC, wobei eine Abtastrate von 100 kHz bei einer Dynamik von 18 Bit erreicht wird. Die Digitalisierung einer Aufnahme, bei der der gesamte *Chip* in voller Auflösung angesteuert wird, nimmt also einige Sekunden in Anspruch. Die Software WINSPEC (ebenfalls PRINCETON INSTRUMENTS, MICROSOFT WINDOWS NT 4.0 oder eine aktuellere Version) regelt die Kamerasteuerung und die Datenakquisition. Sie erlaubt neben der Wahl der Belichtungsdauer und der Zahl der Bilder einer Aufnahmesequenz auch die Festlegung eines aktiven *Chip*-Ausschnitts (*region of interest*, *ROI*) und der Auflösung. Durch so genanntes *binning* können beliebige Rechtecke von *Pixeln* im aktiven Ausschnitt bereits durch die Ausleseelektronik zusammengefasst werden. So kann beispielsweise nur der Bereich ausgelesen werden, auf den das (annähernd quadratische) Bild der Probe fällt. Für diesen Abschnitt wiederum kann eine Auflösung von ca. 25, 50 oder 75 μm usw. gewählt werden.

WINSPEC bietet weiterhin einige grundsätzliche Optionen zur Datenverarbeitung. So können Filter (z. B. Tiefpass zur Rauschreduktion) und mathematische Grund-Operationen auf bzw. zwischen Datensätzen angewendet werden. Die Daten können dann neben einem programm-spezifischen WINX-Format mit Angaben zur Belichtungszeit etc. auch als Text im ASCII-Format oder als Bild im TIF-Format (*tagged image format*, bei 8-bit-Format mit Datenverlust) ausgegeben werden.

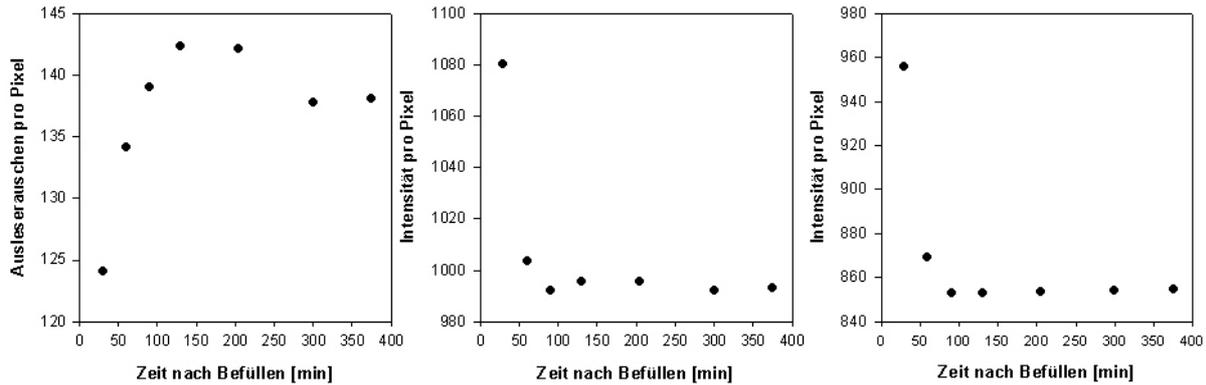


Abbildung 4.14: Drift von Ausleseoffset und Nachweisempfindlichkeit des CCD-Bausteins im Laufe eines Messtages durch Temperaturänderungen (Verdampfen des Stickstoffs). Zu Messung der Empfindlichkeit des Chips wurden Aufnahmen eines hochstabilen β -Lichtes verwendet. Dieses ca. 1 cm große, kugelförmige Glasgefäß enthält im Inneren ^{40}K und einen Phosphor der unter β -Bestrahlung blau leuchtet. In der Mitte die unkorrigierte Intensität pro Pixel. Die Intensitäts-Daten rechts wurden mit dem Ausleseoffset (links) korrigiert. Nach ca. 90 Minuten ist die Kamera messbereit und die korrigierte Sensitivität (rechts) hinreichend stabil.

Die Zahl der während der Messung einer Probe emittierten OSL-Photonen ist eng begrenzt. Bei konventionellen Messungen wird diese Menge vor allem über die Zeit verteilt, indem z. B. jede Sekunde ein Intensitätswert erfasst wird. Bei ausreichender Intensität ist so die zeitliche Entwicklung der Ausleuchtcurve gut darzustellen. Werden durch eine hochauflösende Messung die Photonen aber zusätzlich auf zwei weitere (Raum-)Dimensionen verteilt, so ist ihre Anzahl zum Erreichen eines ausreichenden Signal-Rausch-Verhältnisses bei guter Auflösung in räumlicher *und* zeitlicher Hinsicht zu gering. Man ist in der Regel, gezwungen, eine Entscheidung hinsichtlich der Gewichtung zu treffen. Das bedeutet, dass die Zeitkomponente für Datierungsmessungen hinter der Ortsauflösung zurücktreten muss und die Integrationszeiten entsprechend steigen. Sie betragen bei Messungen in der vorliegenden Arbeit im Allgemeinen – je nach Stärke des Stimulationslasers und der Form der Ausleuchtcurve – zwischen 60 und 180 s.

Lange Auslesezeiten sind mit CCD-Bausteinen vergleichsweise unkompliziert zu realisieren. Während selbst handverlesene PMTs noch einen Dunkelstrom aufweisen, der ca. 20 Ereignissen/s beträgt, spielt das *thermische Rauschen* des CCD-Bausteins selbst bei langen Belichtungszeiten aufgrund der Kühlung nur eine untergeordnete Rolle (ca. $1 \text{ e}^-/\text{Pixel}/\text{h}^{13}$). Die Hauptkomponente des Rauschens stammt aus dem statistischen Verhalten während des *Auslesevorgangs* des Bausteins. Die Varianz des bei der Wandlung addierten Ausleseoffsets beträgt ca. 5-7 e^- und tritt nur einmal in jedem ausgelesenen Element auf. Daher kann man durch das Zusammenfassen von Bildpunkten (2x2, 3x3...) das Signal-Rausch-Verhältnis (um einen Faktor 4, 9...) recht effektiv steigern, was allerdings gleichzeitig eine geringere räumliche Auflösung bedeutet. Weitere Störungen treten durch den Einschlag geladener *kosmischer Teilchen* (besonders Myonen) auf. Rieser [1999] gibt eine Häufigkeit von ca. 2 Ereignissen pro Sekunde auf der gesamten CCD-Fläche in Abhängigkeit von astronomischen Parametern an. Sie betreffen im Allgemeinen bei 180 s Belichtungszeit 1‰ der Bildpunkte bei höchster Auflösung und spielen eine untergeordnete Rolle.

¹³ Ein Elektron entspricht bei einer Quanteneffizienz von 50 % im Mittel zwei zum Detektor gelangten Photonen. Wie vielen Zählereignissen dies wiederum in der Software entspricht, hängt von der Verstärkung („gain“) und der Einstellung des D/A-Wandlers ab. Diese werden meist so gewählt, dass ein größtmöglicher dynamischer Bereich ausgenutzt wird. Die maximale Speicherkapazität eines Pixels („full well“) sollte dabei unter Berücksichtigung des Rauschens möglichst gut an die Zahl der verfügbaren Digitalstufen (65536 bei 16 Bit) angepasst sein.

Nicht nur das thermische Rauschen, sondern auch der Betrag des Ausleseoffsets und die Nachweisempfindlichkeit des CCD-Bausteins sind stark temperaturabhängig. Eine Regelungselektronik sorgt für konstante Bedingungen am Kamerakopf, in dem ein Heizelement untergebracht ist. Nach Befüllen des Stickstoffgefäßes dauert es ca. 90 min bis zum Erreichen eines Temperatur-Gleichgewichtes bei ca. $-110\text{ }^{\circ}\text{C}$, das acht bis zehn Stunden aufrechterhalten werden kann¹⁴. Die Temperatur am *Chip* steigt in dieser Zeit leicht an und verursacht eine Drift der temperaturabhängigen Parameter. Sie wurde für die Nachweisempfindlichkeit mit zwei von 850 Zählereignissen, entsprechend $\sim 0,25\%$, für den Ausleseoffset mit 5 Zählereignissen unabhängig von der Zahl der Ereignisse bestimmt (Abb. 4.14).

4.3.2 Opto-mechanisches Schienensystem

Der Aufbau erfolgte auf einer Rasterplatte mit M6-Gewindebohrungen im Abstand von 25x25 mm. Zur Anordnung von optischen Elementen gibt es verschiedene Lösungen – z. B. einzelne Trägersäulen oder Schienensysteme. In vorliegendem Fall war ein Schienensystem von Vorteil, da sich so alle Elemente leicht entlang der Strahlachse ausrichten und einfach austauschen lassen. Kommerziell werden nur Aufnahmen für Standardteile wie Linsen, Blenden, Spiegel etc. angeboten. Spezielle Elemente, z. B. die Halterungen für die Kamera-Objektive, wurden in der feinmechanischen Werkstatt des Max-Planck-Instituts gefertigt. Für den Aufbau eignete sich aufgrund der Dimensionierung das SYS65-System der Firma OWIS. Die Strahlachse befindet sich hierbei 65 mm über der Rasterplatte.

4.3.3 Probenhalter (14,15)

Der Probenrahmen, in den die Probe selbst eingeschraubt ist, muss während einer Messreihe nach jedem Arbeitsvorgang, der außerhalb des LasLUM I stattfindet, wieder in die Position der letzten Lumineszenzaufnahme zurückgebracht werden können. Hierzu wurde ein Probenträger konstruiert, in dem der Rahmen auf drei Stifte (Abb. 4.15, a) aufgelegt und von Federn gehalten wird (b). Der Probenrahmen wird dabei um 30° zum Benutzer hin geneigt, um mit Hilfe der Einkerbung an der oberen Kante ein sicheres Finden der Endposition auch im Dunkeln zu erleichtern. Die Probe sitzt dann mittig in der Strahlachse. Der Abschluss des Rahmens mit der Kante der Aufnahme (c) ist gut zu ertasten. Die Aussparung dient dem Heranführen einer Temperatursteuerung, z. B. einer Heizeinrichtung (16), auch eine Kühlung ist denkbar. Die Frontplatte (d) kann durch Teflonscheiben zur Verringerung der Wärmeleitung entkoppelt werden.

Eine Weißlichtquelle mit Lichtleiter beleuchtet die Probe im Probenträger. So kann mit einem beliebigen Probenrahmen eine Fokussierung vorgenommen werden, die dann für alle anderen Proben – unabhängig von der Probendicke – aufgrund der Konstruktion der Rahmen (Kap. 4.1.1) übernommen werden kann. Ein Fokussieren während einer Lumineszenzmessung ist nicht notwendig. Eine Grobfokussierung des Probenhalters ist nach Lösen der Rändelschrauben (e, f) durch Verschieben möglich. Die Feinjustierung erfolgt dann nach Fixieren der z-Halterung (15) durch Drehen der Justierschraube (g) zwischen (14) und (15) mit M4-Links- und Rechtsgewinde. Diese Normgewinde besitzen eine Gangsteigung von 0,7 mm, so dass mit einer Umdrehung der Schraube die Probe um 1,4 mm verschoben wird. Ca. 8 Gänge, d. h. 10,5 mm Verschiebeweg sind möglich. Mit dem Probenhalter kann eine hinreichende Reproduktion der Probenposition erreicht werden (Abb. 4.16).

¹⁴ Die Kühldauer ist abhängig von der Qualität des Vakuums im Dewar-Gefäß. Daher sollte die Kamera alle sechs bis zwölf Monate evakuiert werden ($<10^{-4}$ bar), auch um den empfindlichen Chip vor Korrosion zu schützen. Dabei darf keinesfalls Öl aus der Pumpe an den CCD-Baustein geraten.

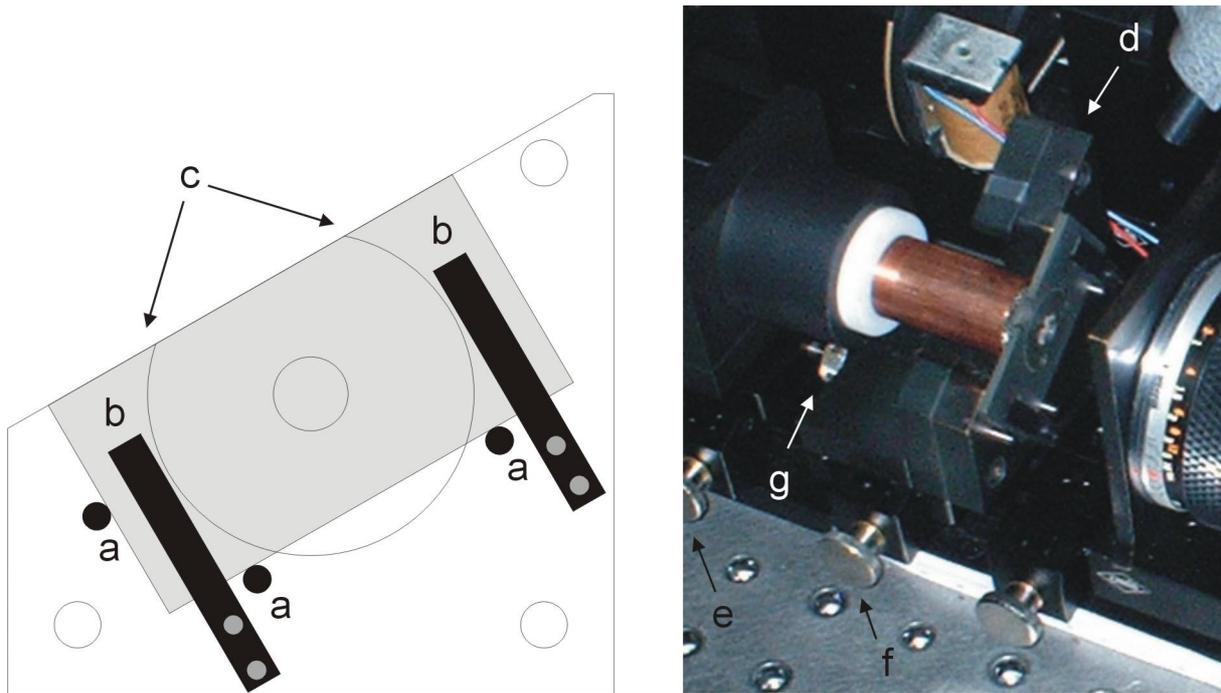


Abbildung 4.15: Probenhalter und Aufnahme für die Probenrahmen im LasLUM I. Zur Erläuterung der Zeichen s. Text.

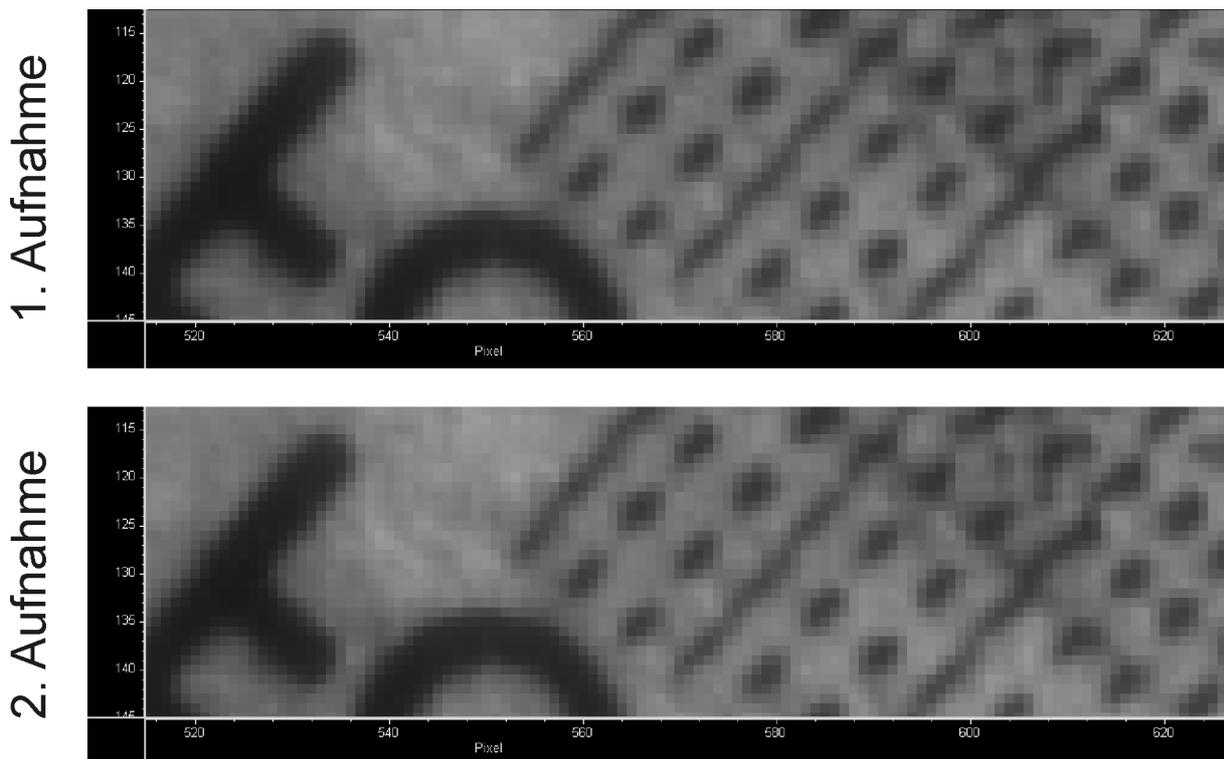


Abbildung 4.16: Reproduzierbarkeit der Probenposition im LasLUM I. Die zwei Aufnahmen mit einer Weißlichtquelle (hier ein vergrößerter Ausschnitt, Auflösung $25 \times 25 \mu\text{m}$) entstanden vor (oben) und nach Herausnehmen und Zurücksetzen (unten) des Probenrahmens.

4.3.4 Stimulation

In das LasLUM I sind zwei Laser fest als Lichtquellen zur Stimulation eingebaut:

- ein fasergekoppelter infraroter Laser (1) mit 100 mW (50 mW am Faserende) bei 837 nm und
- ein frequenzverdoppelter Nd:YVO₄-Laser (4) mit zunächst 47 mW, später ein neues Modell mit 100 mW bei 532 nm.

Zudem kann ein fasergekoppelter Argon-Ionen-Laser der Forschungsstelle mit 40 mW bei 488 nm bei Bedarf eingekoppelt werden.

Die Laser werden zunächst durch einen dichroitischen Halbspiegel (4) auf einer Strahllinie vereinigt. Der nachfolgende Strahlengang ist für beide Laser gleich, so dass keine weiteren Justagearbeiten beim Wechsel der Lichtquelle anfallen. Lediglich das Filterrad, das Platz für vier 1st-Filter enthält, um eventuell störende Nebenlinien¹⁵ der Laser zu unterdrücken, und der Strahlteiler müssen auf den jeweiligen Laser eingestellt werden – diese Filter könnten aber auch vor den dichroitischen Spiegel (4) verlegt werden, um den Wechsel überflüssig zu machen.

Mit einem Leistungsmessgerät (LaserMate Q, Firma COHERENT) wurde die Laserleistung am Ort der Probe bei Verwendung des telezentrischen Aufbaus ermittelt (Tab. 4.2).

Laser	Leistung	Leistung an der Probe	Leistungsdichte an der Probe
IR-Diodenlaser	50 mW	12 mW	15 mW/cm ²
Nd:YVO ₄ -Laser	47 mW	24 mW	24 mW/cm ²
Nd:YVO ₄ -Laser	100 mW	45 mW	45 mW/cm ²

Tabelle 4.2: Leistung und Leistungsdichte der Laser am Ort der Probe.

Mit Neutralfiltern wurde die Intensitätsverteilung des Lasers auf der Probenoberfläche (in diesem Fall ein Blatt weißes Photopapier) ermittelt (Abb. 4.17). Bei der Bestimmung der Äquivalenzdosen spielt eine Heterogenität eine untergeordnete Rolle, da sie – sofern konstant – durch das Messprotokoll verrechnet werden. Dies gilt ebenso für eine eventuelle Abschattung der Bilder in den Außenbereichen trotz des großen Bildfeldes der Objektivs. Wichtig ist der Einfluss der Stimulationsleistung jedoch bei der Beurteilung der Lumineszenzverteilung zu Grundlagenuntersuchungen und in Korrelation zu mineralogischen Parametern. Interessanterweise wurde aber selbst bei einem kleineren Laserfleck auf der Probe noch ein relative homogenes Leuchten beobachtet, das unter Umständen auf Brechung, Spiegelung und Verteilung des Laserlichtes an den Grenzflächen der transparenten Minerale in der Probe zurückgeführt werden kann.

¹⁵ Der verwendete Infrarotlaser besitzt z. B. zwei sehr schwache Emissionen im blauen und roten Bereich. Um diese Nebenlinien zu unterdrücken, wird ein Langpassfilter IR780 von Schott benutzt.

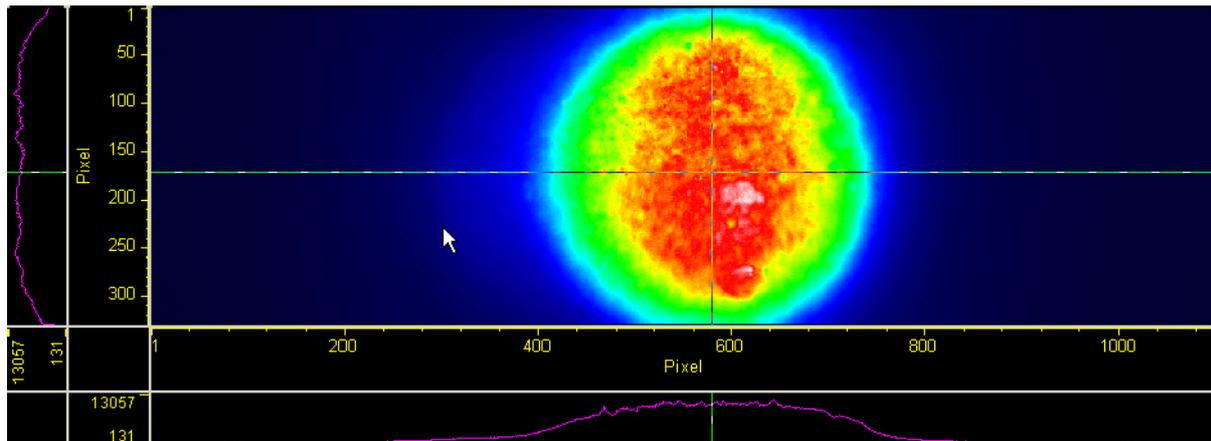


Abbildung 4.17: Bild des IR-Lasers in der Fokalebene (vertikaler Bildausschnitt ca. 9 mm). An den Achsen des Diagramms sind zwei Querschnitte durch die Mittelpunkt in X- und Y-Richtung dargestellt. Da die Messung das Abbild der Laserintensität auf dem CCD-Chip darstellt, ist noch der Effekt der Abschattung in den äußeren Bereichen zu beachten. Die Intensitätsverteilung auf der Probe ist also entweder gleich oder sogar weniger variabel als das gezeigte Bild.

4.3.5 Filter (17)

Die bei Messungen der optisch stimulierten Lumineszenz verwendeten Filter müssen aufgrund der hohen Leistung des Stimulationslasers und der geringen Intensität des Lumineszenzlichtes sehr gute Unterdrückungsverhältnisse aufweisen. Die Detektoren – ob *Photomultiplier* oder CCD-Bausteine – liefern im Allgemeinen keine Information über die Energie der Lichtteilchen und können nicht zwischen dem Stimulations- und dem Lumineszenzlicht unterscheiden. So erfüllen die Filter bei einer Messung der optisch stimulierten Lumineszenz eine doppelte Funktion: um einen ungestörten Nachweis der schwachen Lumineszenzemission zu ermöglichen, muss der Filter dafür sorgen, dass das Stimulationslicht den Detektor ausreichend abgeschwächt erreicht. Zum anderen aber erfolgt auch die Auswahl des Wellenlängenbereiches der Detektion (z. B. die blaue oder gelbe IRSL-Emission bei Feldspäten) durch die Filter.

Typische Laserleistungen bei OSL-Messungen liegen bei ca. 100 mW/cm², nach

$$E = h \cdot \nu \quad \text{mit} \quad \nu = \frac{c}{\lambda} \quad \text{und} \quad P = \frac{E}{t} \quad (4.13)$$

entspricht das bei $\lambda = 532 \text{ nm}$ $2,7 \cdot 10^{17}$ Stimulations-Photonen/s·cm². Dem gegenüber stehen 10^5 Lumineszenzphotonen/s·cm², oft auch ein oder zwei Größenordnungen weniger. Dies entspricht einer erforderlichen Unterdrückung von 10^{13} und mehr.

Trotz der im LasLUM I auftretenden direkten Reflexion¹⁶ des Stimulationslichtes auf der Probenoberfläche zeigte sich, dass sich die bisher im Laborbetrieb üblichen Filterkombinationen (Tab. 4.3) auch hier eignen. Durch die Verwendung einer Kombination stark unterdrückender Interferenzfilter gelang auch die Messung der roten IRSL-Emissionslinie eines Feldspats. Bei grüner Stimulation war im blauen Detektionsbereich ein leichter Durchbruch (max. 0,3 Ereignisse/s) des Lasers zu beobachten, der aber meist vernachlässigbar gegenüber der Lumineszenz ist. Der Einfluss derartiger Artefakte kann zudem durch eine Subtraktion des

¹⁶ Meist wird das Stimulationslicht schräg eingestrahlt, um eine direkte Reflexion in den Detektor zu vermeiden.

Untergrundes verringert werden, da sie im Gegensatz zum OSL-Signal konstant sind. Dies wurde z. T. bei Messungen mit der roten Filterkombination notwendig¹⁷.

Auf den Kamera-Kopf wurde eine geschwärzte Messingplatte aufgebracht, die eine zentrale Gewindebohrung besitzt. In dieses Gewinde können fertig bestückte Filterträger eingeschraubt werden. Die Gewinde erwiesen sich als ausreichend lichtdicht, allerdings müssen sie vor der Verwendung schwarz gebeizt (Messing) oder eloxiert (Aluminium) werden, da sich ansonsten Reflexe bemerkbar machen können.

	Transmissionsbereich	Max. Transmission	Verwendete Filtergläser
UV	340±40 nm	35 % (25 %)	3 x 2,6 mm U340 ^H (GRSL 4x)
Blau	420±30 nm	10 %	3 mm BG3 ^S , 3 mm GG400 ^S , 3 mm BG3 ^S , 3 mm BG39 ^S
Gelb	540±60 nm	52 %	3 mm GG475 ^S , 3 mm BG3 ^S
Rot	700±40 nm	45 %	700FS10-50 ^A , (3mm RG610 ^S), 2x HQ700/75 ^C
IR	860±40 nm	50 %	RG610 ^S , 860FS10-50 ^A
ND	-	2,9·10 ⁻⁴	4x 2,6 mm ND13 ^H

Tabelle 4.3: Filterkombinationen im LasLUM I. Als Transmissionsbereich wurden der Wellenlängenbereich mit $T > 1\%$ definiert. Die Reihenfolge der Filter entspricht dem Weg des OSL-Signals von der Probe zum Detektor. Bei den Filterbezeichnungen handelt es sich um Produktnamen der Firmen Schott (S), Andover (A), Chroma (C) und Hoya (H). ND steht für ‚neutral density‘, d. h. Graufilter. Die hier definierten Wellenlängenbereiche gelten für alle in dieser Arbeit beschriebenen Messungen.

4.3.6 Abbildende Optik (12)

Für den Aufbau einer Optik, welche die Probe ungefähr im Verhältnis 1:1 auf den CCD-Chip abbildet, wurden zwei handelsübliche Kleinbildkamera-Objektive verwendet – ein OLYMPUS ZUIKO und ein YASHICA ML. Beide besitzen Brennweiten von ca. 50 mm (Tab. 4.4). Sowohl die äußeren Abmessungen als auch die Brennweite und das Bildfeld eignen sich für die Verhältnisse im LasLUM I. Beide Objektive bieten eine gute Lichtstärke (Öffnungszahl $F/\# = 1,4$) und sind für Abbildungen mit einem Format von 24 x 36 mm ausgelegt. Auch die erwünschte Auflösung von max. 24 μm ist unproblematisch. Die Objektive sind zudem aufgrund der Massenfertigung relativ preiswert. Einschränkungen müssen aber im Bereich der Transmission im nicht sichtbaren Wellenlängenbereich, besonders im UV-Bereich, und bei der Korrektur chromatischer Abberationen hingenommen werden. Eine Darstellung der technischen Parameter des Kleinbildformates gibt Hecht [1994].

Filterkombination	UV	Blau	Gelb	Rot	IR
OLYMPUS [mm]	47,25±0,08	47,60±0,07	47,00±0,07	47,21±0,07	47,50±0,07
YASHICA [mm]	49,42±0,06	49,70±0,07	49,05±0,06	49,21±0,07	49,50±0,06

Tabelle 4.4: Chromatische Abberation der verwendeten Kamera-Objektive. Angegeben ist die Brennweite bei Verwendung einer Weißlichtlampe und in den 4.3.5 beschriebenen Filterkombinationen. Zur Bestimmung wurde das Bessel-Verfahren verwendet [Hecht, 1994].

¹⁷ Durch die Ortsauflösung besteht die Möglichkeit zur schnellen Beurteilung des Leuchtmusters und eventuelle Artefakte (Lichteinfall, Reflexionen).

4.3.6.1 Abbildender Aufbau unter Verwendung eines Objektivs

Allgemein gilt für eine Abbildung mit Hilfe einer „dünnen“ Linse, deren Ausdehnung vernachlässigt werden kann, der Zusammenhang

$$\frac{1}{b} - \frac{1}{g} = \frac{1}{f} \quad \text{bzw.} \quad b = \frac{g \cdot f}{g + f} \quad (4.2)$$

wobei b die Bild-, g die Gegenstands- und f die Brennweite bezeichnet. Der Ursprung des Koordinatensystems ist dabei in die Linsenebene gelegt. Dies kann zu negativen Werten z. B. von g führen, erleichtert jedoch die Darstellung, insbesondere bei Systemen mehrerer Linsen.

Ein Kamera-Objektiv besteht aus einer Kombination von Streu- und Sammellinsen, um die unvermeidlichen chromatischen und sphärischen Abberationen (Abbildungsfehler) einer herkömmlichen Einzellinse zu kompensieren. In der Regel sind dies Kombinationen aus vier bis sechs Linsen. Die Fehlerkorrektur ist für einen bestimmten Arbeitsbereich ausgelegt. Im vorliegenden Fall ist dies die Abbildung entfernter (>1 m) Objekte auf einen ca. 50 mm hinter dem Objektiv liegenden Kleinbildfilm. Jede Linsenkombination kann allerdings wiederum als eine einzige, so genannte „dicke“ Linse betrachtet werden, bei der Brenn-, Gegenstands- und Bildweiten auf zwei Hauptebenen bezogen werden. So kann (4.2) auch auf die im LasLUM I verwendeten Kleinbildkamera-Objektive in ihrer Einheit wie auf Sammellinse angewendet werden (Abb. 4.18).

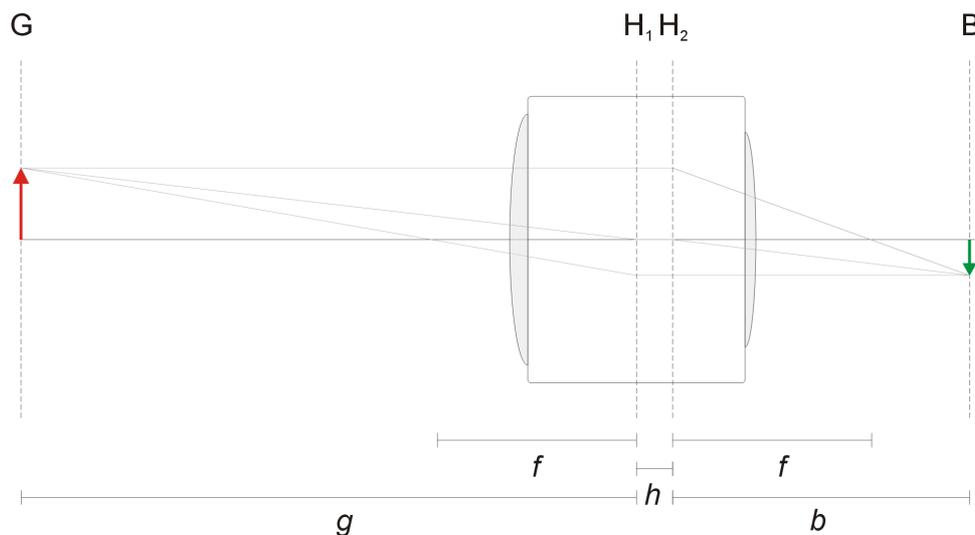


Abbildung 4.18: Abbildungsverhältnisse für ein einzelnes Kamera-Objektiv.

Die Hauptebenen besitzen bei den betrachteten Objektiven einen negativen Abstand von $-7,5$ bzw. -5 mm (Abb. 4.19). Die filmseitige Hauptebene liegt in beiden Fällen in der Ebene des Bajonettverschlusses, mit dem das Objektiv an eine Kamera angebracht werden kann.

Mit (4.2) ergibt sich für eine Abbildung unter Verwendung eines Objektivs ein Maßstab von:

$$\beta = \frac{b}{g} = \frac{f}{g + f} \quad (4.3)$$

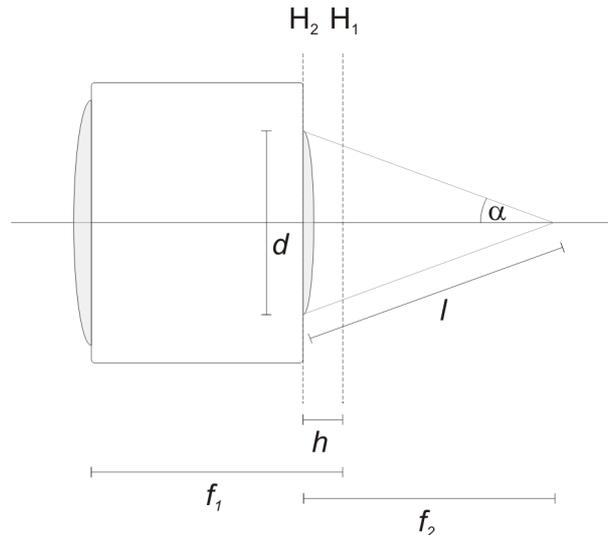


Abbildung 4.19: Lage der Hauptebenen und weitere Größen der verwendeten Kleinbildkamera-Objektive.

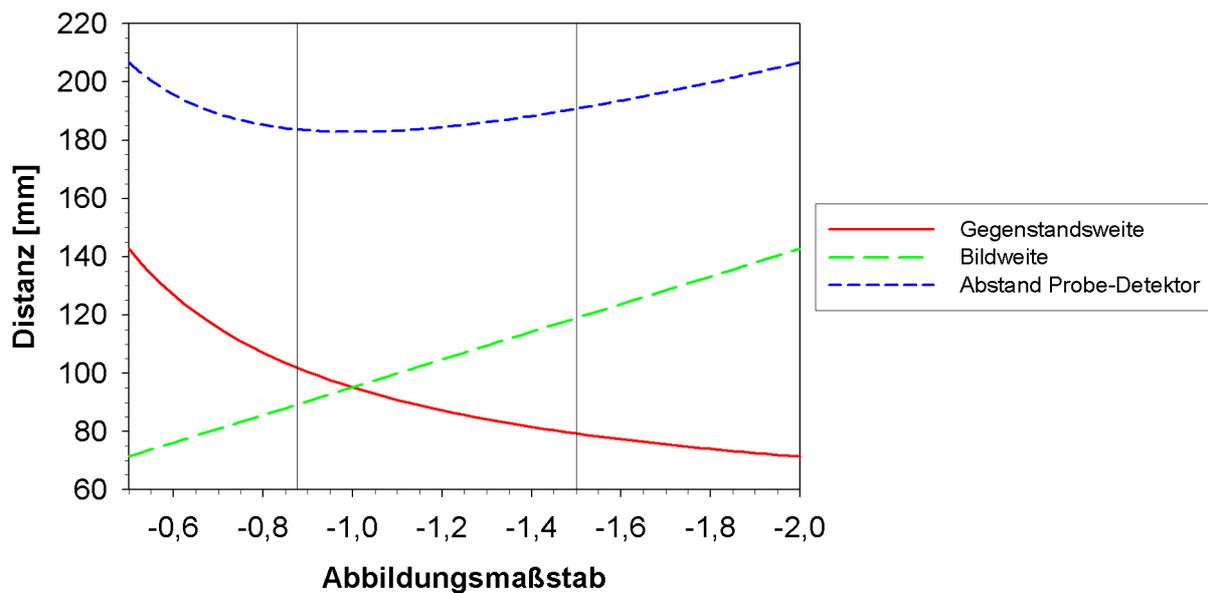


Abbildung 4.20: Verlauf der Bild- und Gegenstandsweite sowie des Abstands Probe-Detektor in Abhängigkeit vom Abbildungsmaßstab für den optischen Aufbau mit einem Objektiv (Brennweite 47,6 mm, $h = -7,5$ mm). Aus Darstellungsgründen ist der Betrag der Gegenstandsweite angegeben.

Bei der Abbildung einer 8,0 mm großen Probe auf den 7,9 mm großen *Chip* sollte die Vergrößerung bei Berücksichtigung eines ausreichenden Bildrandes ca. -0,875 betragen, bei kleineren Objekten wie den α -Al₂O₃:C-Pellets (Durchmesser 5 mm) kann sie bis auf $\beta = -1,5$ erhöht werden. Das negative Vorzeichen weist darauf hin, dass das Bild auf dem Kopf steht. In Abbildung 4.20 ist der Verlauf von Gegenstands- und Bildweite sowie des Abstandes von Probe (Gegenstandsebene) zu Detektor (Bildebene) in Abhängigkeit vom Abbildungsmaßstab dargestellt. Zu beachten ist, dass der CCD-Chip ca. 14 mm hinter der Frontplatte des Kamerakopfes liegt. Dies begrenzt zusätzlich zusammen mit der Adapterplatte (6 mm) und dem Filterstapel (15-17 mm) den Abstand des Objektivs.

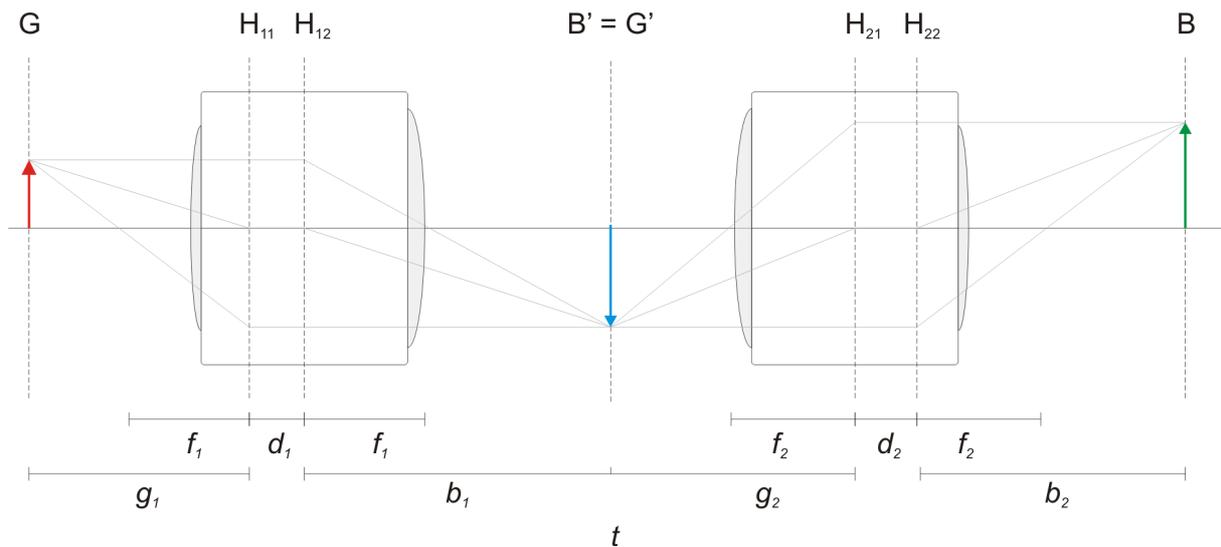


Abbildung 4.21: Abbildungsverhältnisse für einen telezentrischen Aufbau mit zwei Kamera-Objektiven.

4.3.6.2 Telezentrischer Aufbau

Mit Hilfe von zwei Sammellinsen bzw. zwei Kamera-Objektiven lässt sich durch einen so genannten telezentrischen Aufbau ebenfalls eine Abbildung realisieren (Abb. 4.21). In ähnlicher Weise findet sich dieser Aufbau in Mikroskopen wieder. Die erste Linse erzeugt von der Probe (G) zunächst ein Zwischenbild (B'), während das zweite Objektiv dieses Zwischenbild auf den Detektor (B) abbildet. Der Abstand der beiden dem Zwischenbild zugewandten Hauptebenen H_{12} und H_{21} wird dabei die Tubuslänge t genannt. Die Wirkung beider Linsen kann rechnerisch wieder zu der einer einzigen dicken Linse mit der Brennweite

$$f = \frac{1}{f_1} + \frac{1}{f_2} - \frac{t}{f_1 \cdot f_2} \quad (4.4)$$

kombiniert werden. Die Lage der Hauptebenen H_1 und H_2 dieser virtuellen Linse errechnet sich mit Hilfe der Abstände

$$\overline{H_1 H_{11}} = \frac{f \cdot t}{f_2} \quad \text{bzw.} \quad \overline{H_2 H_{22}} = \frac{f \cdot t}{f_1} \quad (4.5)$$

Zur Herleitung der Zusammenhänge s. Hecht [1994]. Die neuen Hauptebenen können auch (z. T. sehr weit) außerhalb des eigentlichen optischen Aufbaus liegen. Je mehr die Gegenstandsweite g_1 der Brennweite f_1 der ersten Linse entspricht, desto größer wird der Abstand des Zwischenbildes, bis es schließlich unendlich weit entfernt ist. In diesem Fall befindet sich zwischen den Linsen ein kollimierter Strahl und das Abbildungsverhältnis wird unabhängig von t durch das Verhältnis der beiden Brennweiten bestimmt. Die reale Lage der Hauptebenen (Abb. 4.19) zeigt, dass die Objektive schon aus Platzgründen mit der normalerweise zum Film zugewandten Seite zur Probe bzw. zur CCD-Kamera eingebaut werden müssen¹⁸. Abbildung 4.22 zeigt das Verhalten von g_1 , b_2 sowie des Abstandes der Probe vom Detektor in Abhängigkeit vom Abbildungsmaßstab.

¹⁸ Zweckmäßigerweise sollten beide Objektive auf die Gegenstandsweite ∞ eingestellt sein. Zwar ändert ein anderer Wert nicht die Brennweite des Objektivs, da in einer Kleinbildkamera der Fokus durch ein Verschieben des gesamten Linsenkörpers von oder zur Filmebene (der Bildweite) eingestellt wird, doch vergrößert das Verstellen nur unnötig die ohnehin störenden Überhänge der die Linsengruppe fassenden Mechanik über die Hauptebenen hinaus.

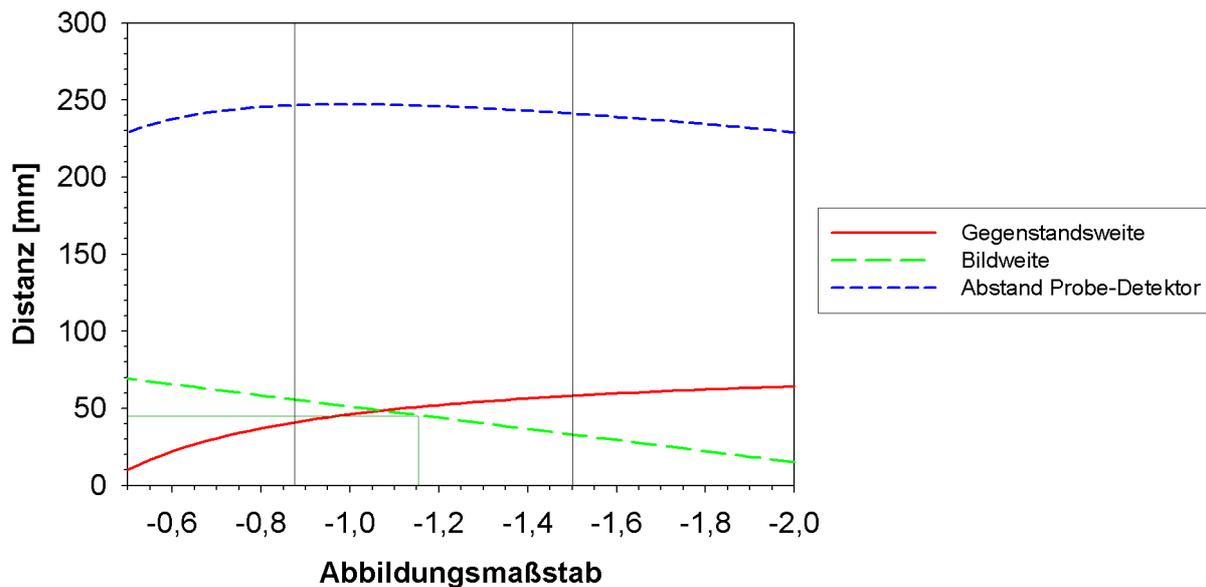


Abbildung 4.22: Verlauf der Bild- und Gegenstandsweite sowie des Abstands Probe-Detektor in Abhängigkeit vom Abbildungsmaßstab für einen telezentrischen Aufbau ($f_1 = 47,6 \text{ mm}$, $h_1 = -7,5 \text{ mm}$, $f_2 = 49,6 \text{ mm}$, $h_2 = -7,5 \text{ mm}$, $t = 162,5 \text{ mm}$). Für die Gegenstandsweite ist wieder der Betrag angegeben.

Da die Hauptebene H_{22} nicht weiter als 45 mm an den CCD-Baustein herangefahren werden kann, liegt der maximale Abbildungsmaßstab des telezentrischen Aufbaus bei ca. $-1,16$. Eine Tubuslänge ($\overline{H_{12}H_{21}}$) von 162,5 mm entspricht einem Abstand der Bajonettebenen ($\overline{H_{11}H_{22}}$) von 150 mm. Dies ist der kleinstmögliche Abstand bei dem derzeitiger verwendeter Strahlteiler (11). Abb. 4.24 zeigt, dass die Gesamtbrennweite f des Aufbaus bei kleinen Werten von t stark sinkt, größere Abstände zwischen den Objektiven wirken sich dagegen nicht ganz so stark aus – es ist aber zu bedenken, dass es bei einer großen Strecke zu Lichtverlusten kommen kann, wenn g_l und f_l sich unterscheiden, da der Lichtstrahl zwischen den Objektiven nicht kollimiert ist. Die Lage der Bajonettebenen ist im realen Aufbau im Gegensatz zur Tubuslänge leicht zu bestimmen.

Der telezentrische Aufbau besitzt unter anderem eine größere Lichtstärke als die Abbildung mit nur einer Linse, da die Optik näher an die Probe (G) herangeführt werden kann, ohne dass es zu einer starken Vergrößerung kommt. Abb. 4.23 zeigt, dass die Gesamtzahl der nachgewiesenen OSL-Photonen in der Größenordnung eines mit einem *Photomultiplier* arbeitenden Gerätes liegt. Zudem werden die Objektive in ihren üblichen Arbeitsbereichen verwendet. Eine geringere Gegenstandsweite bedeutet aber auch, dass der Laser nicht mehr unter einem Winkel, sondern senkrecht zur Probe eingestrahlt werden muss, da die Probe vom Objektiv verdeckt wird. Dies führt zu höheren Anforderungen an die Unterdrückung des anregenden Lasers durch die Filter. Das Problem kann durch Reflexe an den Linsenoberflächen der Objektive verschärft werden. So wurden z. T. neben dem Bild der Probe Geisterbilder beobachtet, die aufgrund ihrer geringen Intensität die durchgeführten Messungen aber nicht beeinflussten. Ein weiteres Problem ist die Abschwächung der Laser (insbesondere des IR-Lasers), da diese auf dem Weg zur Probe zunächst das Objektiv passieren müssen. Dies führt zu längeren OSL-Auslesezeiten und kann auch zu Abweichung der Ausleuchtcurve vom exponentiellen Verlauf verursachen [Chen und McKeever, 1997]. Dieser Effekt wurde aber im LasLUM I nicht beobachtet.

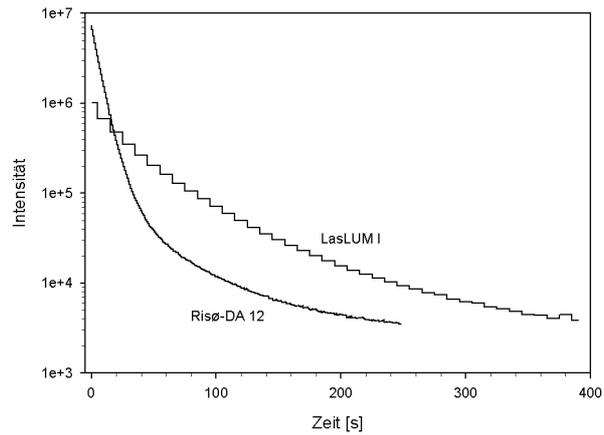


Abbildung 4.23: Vergleich der Lichtstärke des Aufbaus LasLUM I mit dem RISØ-LUMINESCENCE-READER DA-12. In beiden Geräten wurde eine IRSL-Messung der blauen Emission (420 nm) einer Albitscheibe durchgeführt (Labordosis 36 Gy). Die Intensitäten wurden für das LasLUM I (10s-Schritte) in Zählereignisse pro Sekunde umgerechnet. Deutlich ist der langsamere Abfall aufgrund der geringeren Laser-Intensität im LasLUM zu erkennen. Das Verhältnis der Kurvenintegrale beträgt ungefähr 1,4 (RISØ/LasLUM I).

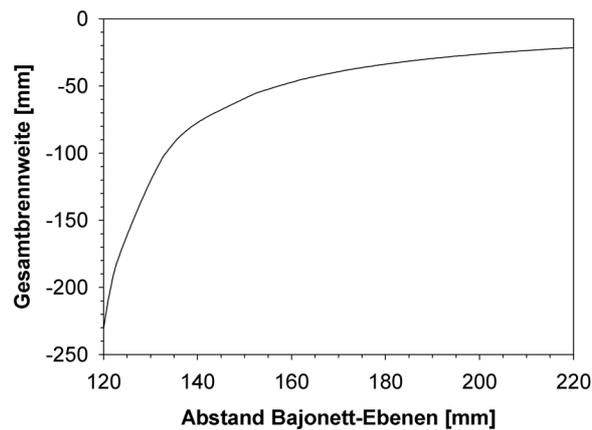


Abbildung 4.24: Gesamtbrennweite des Systems in Abhängigkeit von der Lage der Bajonett-Ebenen. Zur Umrechnung auf die Tubuslänge muss der Abstand der Hauptebenen für die beiden Objektive addiert werden.

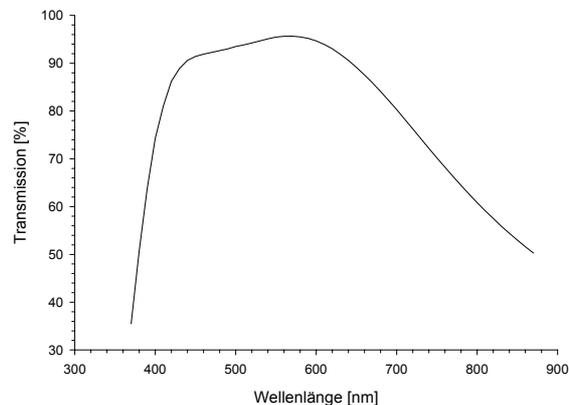


Abbildung 4.25: Transmission des OLYMPUS ZUIKO-Objektives.

4.3.6.3 Transmission

Die Transmission des verwendeten OLYMPUS-Objektivs ist in Abbildung 4.25 dargestellt (A. Pfuhl, Firma OLYMPUS OPTICAL DEUTSCHLAND, pers. Mitteilung). Sie sinkt unterhalb von 380 nm stark ab. Für das YASHICA-Objektiv waren keine derartigen Daten zu erhalten. Daher wurde die Transmission durch Messungen in den wichtigsten Detektionsbereichen durch Vergleich des Detektorsignals bei Abbildung einer Weißlichtquelle bestimmt (Tab. 4.5). Außer im UV-Bereich besitzt das OLYMPUS-Objektiv die günstigeren Werte, weshalb es bevorzugt verwendet wurde, wenn nur ein Objektiv eingesetzt war.

Filterkombination	UV	Blau	Gelb	Rot	IR
$T_{\text{Olympus}}/T_{\text{Yashica}}$	0,562	1,01	1,15	1,20	1,42

Tabelle 4.5: Verhältnis der Transmissionen der verwendeten Kamera-Objektive.

Mit einem analogen Versuch wurde das Verhältnis der Lichtstärke zwischen dem Aufbau unter Verwendung eines (des OLYMPUS-) Objektivs und dem telezentrischen Aufbau ermittelt (Tab. 4.6). Dabei wird wie erwartet deutlich, dass der telezentrische Aufbau in allen Wellenlängenbereichen (besonders im wichtigen blauen Bereich) überlegen ist, mit Ausnahme des UV-Bandes. Bei letzterem überwiegt der Multiplikationseffekt der geringen Transmissionswerte beider Objektive. Daher wurden Messungen der UV-Emission mit nur einem Objektiv durchgeführt.

Filterkombination	UV	Blau	Gelb	Rot	IR
$T_{\text{Telezentr.}}/T_{\text{Olympus}}$	0,333	7,95	4,71	3,36	4,79

Tabelle 4.6: Verhältnis der Transmissionen zwischen einem Aufbau mit einem Objektiv und einem telezentrischen Aufbau.

4.3.6.4 Lichtsammlung

Der von einer punktförmigen Quelle ausgehende Lichtkegel, welcher von einer Linse eingefangen werden kann, wird durch den Durchmesser der Linse und ihrer Brechkraft begrenzt. Diese Größe wird üblicherweise als numerische Apertur angegeben und ist definiert als

$$NA = n \cdot \sin \alpha = n \cdot \frac{d}{2l} \quad (4.6)$$

wobei n die optische Dichte des Mediums vor der Linse ist. Für kleine Winkel kann vereinfachend mit $\sin \alpha \approx \tan \alpha = d/2f$ gerechnet werden. Bei Kamera-Objektiven wird statt der numerischen Apertur die Angabe der F/#-Zahl bevorzugt:

$$F = \frac{f}{d} = \frac{1}{2 \cdot \tan \alpha} \quad (4.7)$$

Die im LasLUM I verwendeten Objektive besitzen beide eine F/#-Zahl von 1,4 ($d \approx 35$ mm). Dies entspricht einem Öffnungswinkel von $19,7^\circ$ und – in Luft – einer numerischen Apertur von 0,34. Die Beziehung zwischen der numerischen Apertur und F-Zahl ist gegeben durch:

$$NA = n \cdot \sin \left(\tan^{-1} \frac{1}{2F} \right) \quad \text{bzw.} \quad NA \approx \frac{n}{2F} \quad (4.8)$$

Betrachtet man die von einer Punktquelle ausgehenden Photonen, so errechnet sich der Anteil der erfassten Photonen aus dem Verhältnis der Kugelkappe mit dem Radius l und dem Abstand f von der Punktquelle zur Oberfläche der 2π -Halbkugel (Abb. 4.26):

$$M = 2\pi \cdot l \cdot h = 2\pi \cdot l \cdot (l - f) \quad (4.9)$$

$$I = \frac{M}{2\pi l^2} = \frac{2\pi l(l-f)}{2\pi l^2} = 1 - \frac{f}{l} = 1 - \cos \alpha = 1 - \cos \left(\sin^{-1} \frac{NA}{n} \right) \quad (4.10)$$

Mit den verwendeten Objektiven können also bis zu maximal 6,0 % der von einem Punkt auf der Probe isotrop emittierten Photonen erfasst werden (bzw. 3,0 %, wenn man die zweite Halbkugel einbezieht). 50 mm-Photoobjektive werden ebenfalls mit F/#-Zahlen von 1,2 (NA = 0,39 / I = 7,7 %) und 1,0 angeboten (NA = 0,45 / I = 10,6 %). Der Preis für letztere ist allerdings exorbitant. Zudem müssen bei Systemen mit hohen F/#-Zahlen stärker brechende Gläser und mehr Linsen eingesetzt werden. Dies führt dazu, dass die Transmission besonders an den Grenzen des sichtbaren Lichtes abnimmt, so dass ein großer Vorteil für die Verwendung im LasLUM I zweifelhaft erscheint.

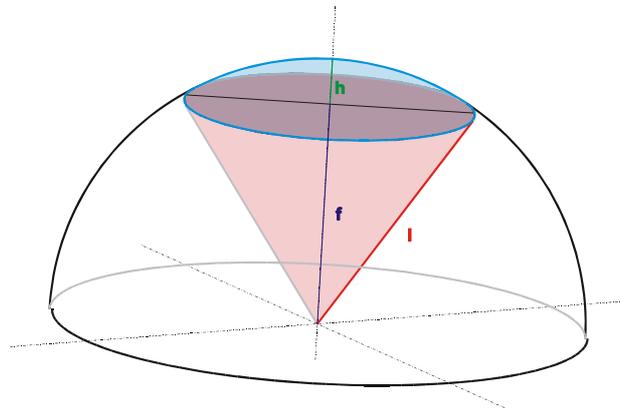


Abbildung 4.26: Numerische Apertur – der von einer Optik erfasste Lichtkegel einer Punktquelle.

4.3.6.5 Tiefenschärfe

Leuchtquellen außerhalb der Gegenstandsebene werden auf dem Detektor als ein Kreis abgebildet. Der Bereich, in dem sich Quellen um die Gegenstandsebene herum befinden können, ohne dass der Detektor aufgrund seiner Ortsauflösung (also der Körnung des Films bzw. der diskreten *Pixel* des CCD-Bausteins) die unscharfe Abbildung erfassen könnte, wird als Tiefenschärfenbereich bezeichnet. Er errechnet sich (Ansatz nach [Gerthsen, 1993, 11.11.2]) zu

$$\Delta g = 2 \cdot \frac{\delta}{d} \cdot \frac{g}{1 - \frac{g}{g+f}} \quad (4.11)$$

wobei δ die Ortsauflösung des Detektors darstellt. Die Tiefenschärfe setzt eine Obergrenze für die Rauigkeit betrachteter Proben in Abhängigkeit von der gewählten Auflösung. Für einen telezentrischen Aufbau ($f_1 = 47,6$ mm, $h_1 = -7,5$ mm, $f_2 = 49,6$ mm, $h_2 = -7,5$ mm, $t = 162,5$ mm) mit $\beta = 0,875$ (d. h. $g_1 = -41$ mm, $f = -36,16$ mm, $g = 77,45$ mm) ergibt sich folgender Zusammenhang:

$$|\Delta g| = 4,06 \cdot \delta \quad (4.12)$$

Bei höchster Auflösung ergibt sich ein Tiefenschärfenbereich von ca. 0,1 mm, fasst man 4 x 4 Bildpunkte zusammen (Auflösung 100 x 100 μm) bereits 0,4 mm. Im Experiment aber zeigte sich, dass mit einem telezentrischen Aufbau bei Verwendung der blauen Filterkombination 25 μm große Strukturen eines gedruckten Standards in einem Bereich von $|\Delta g| \approx 0,8$ mm noch ausreichend getrennt werden konnten.

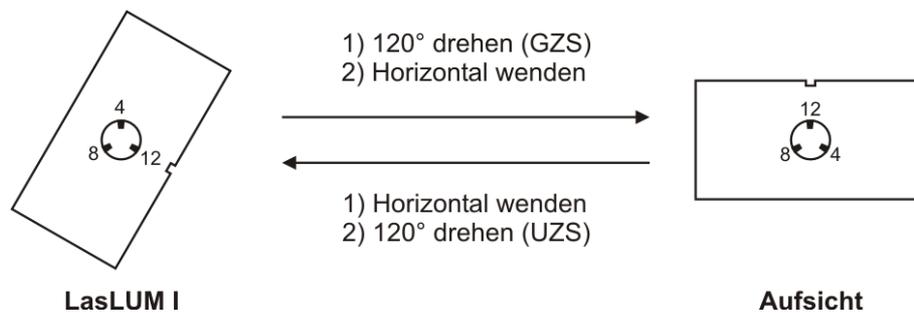


Abbildung 4.27: Orientierung der Probe in den Aufnahmen des LasLUM I und in der Aufsicht, z. B. unter einem seitenrichtigen Auflichtmikroskop (GZS – Gegenuhrzeigersinn, UZS – Uhrzeigersinn).

4.3.6.6 Orientierung der Bilder

Die Optik bildet die Probe spiegelverkehrt ab. Durch die Kippung des Kamerakopfes (90°) und die schräge Lagerung des Probenrahmens im Halter (30°) kommt es zusätzlich zu einer Drehung. Daher sind zwei Bildoperationen notwendig, um Aufnahmen des LasLUM I in ein Aufsichtbild zu überführen (Abb. 4.27).

Durch das Schienensystem ist ein Wechsel vom Einlinsen- auf das Zweilinsensystem relativ einfach. Sofern nicht anders angemerkt, wurden alle Messungen in dieser Arbeit mit zwei Objektiven durchgeführt.

4.3.7 Strahlteiler (11)

Der Strahlteiler ermöglicht die Einkoppelung des Stimulationslichtes in den abbildenden Strahlengang. Zu diesem Zweck muss das im Winkel von ca. 45° eingebaute, beschichtete Glas das Stimulationslicht reflektieren, aber möglichst transparent für das Lumineszenzsignal sein. Da das OSL-Signal im kürzeren Wellenlängenbereich liegt, bietet sich der Einsatz eines dichroitischen Spiegels an, dessen von der Energie des Lichtes abhängige Reflexions- und Transmissionswerte den Anforderungen entsprechend gewählt werden können. Bei dem für IRSL-Messungen verwendeten Typ (700DCSX, Firma AHF/CHROMA) kehrt sich das Verhältnis von Reflexion zu Transmission (R/T-Verhalten) bei ca. 700 nm um. So besitzt er bei 837 nm eine Reflexion von über 95 %, d. h. beinahe die gesamte infrarote Laserleistung wird in den abbildenden Strahlengang gespiegelt. Die Transmission ($T + R \approx 1$), also der Verlust an Laserleistung, ist entsprechend gering. Zwischen 400 und 690 nm können über 50 %, zwischen 430 und 660 nm sogar über 90 % des Lumineszenzsignals den Strahlteiler passieren. Ähnliche Eigenschaften zeigt der Typ 460DCSPUV (Firma AHF/CHROMA), der für die grüne und blaue Laserstimulation verwendet wird, allerdings liegt hier der R/T-Umkehrpunkt bei ca. 460 nm.

Eine weitere Möglichkeit ist die Verwendung eines Halbspiegels, der ein relativ konstantes R/T-Verhältnis über einen großen Wellenlängenbereich besitzt (UV-IR). Dieser kann universell bei beliebigen Anregungswellenlängen verwendet werden. Da jedoch nur ein geringer Anteil des Lumineszenzlichtes verloren gehen soll, muss das R/T-Verhältnis möglichst klein sein. Der zur Verfügung stehende Halbspiegel besitzt ein konstantes R/T-Verhältnis von 20/80. Dies bedeutet jedoch einen Verlust von 80 % der im LasLUM I ohnehin nicht übermäßig vorhandenen Laserleistung und ist daher nicht praktikabel. Dieser Typ von Halbspiegels wird allerdings im Nachfolgegerät LasLUM II verwendet, da hier durch die Fokussierung ausreichend Laserleistung zur Verfügung steht (Kap. 6)

Zum unkomplizierten Austausch der Strahlteiler (z. B. bei Wechsel des Anregungslasers) wurde ein spezieller Träger entwickelt (Abb. 4.28). Er besteht aus einem dem Schienensystem

angepassten Grundgerüst und Einsätzen, die die dichroitischen Spiegel tragen. Die Halbspiegel können in den Einsätzen individuell justiert werden. Diese Einstellung bleibt auch bei einem Wechsel erhalten, so dass eine Neu-Justage entfällt.

Da der Strahlteiler (11) sich im Bereich des kollimierten Lichtstrahls befindet, erzeugt er auf dem CCD-Baustein kein (verschwommenes) Bild, sondern lediglich eine Reduzierung der Helligkeit.

4.3.8 Tisch und Aufbau

Die optische Rasterplatte des LasLUM I liegt auf einer polierten Granitplatte, die wiederum auf vier Vespa-Roller-Luftschläuchen gelagert ist. Dieser Aufbau koppelt das LasLUM I ausreichend von Schwingungen der Umgebung ab. Ventilverlängerungen von LKW-Doppelreifen ermöglichen ein Befüllen der Luftschläuche. Eine Kreuz-Wasserwaage ist auf die Rasterplatte geschraubt und zeigt die Neigung der Platte an. Der Aufbau leistet nicht die Dämmwerte kommerzieller schwingungsdämpfender Tische – für den Betrieb des LasLUM I ist er aber völlig ausreichend.

Um den optischen Aufbau herum wurde ein schwarz lackierter Holzkasten gebaut, in den neben einem Deckel zwei weitere Klappen eingelassen sind, die dem Probenwechsel und dem Befüllen des Kamera-Dewar-Behälters mit flüssigem Stickstoff dienen (Abb. 4.29). Um die Handhabbarkeit zu verbessern, sind Schienen angebracht, die die Klappen und den Deckel im geöffneten Zustand halten können.

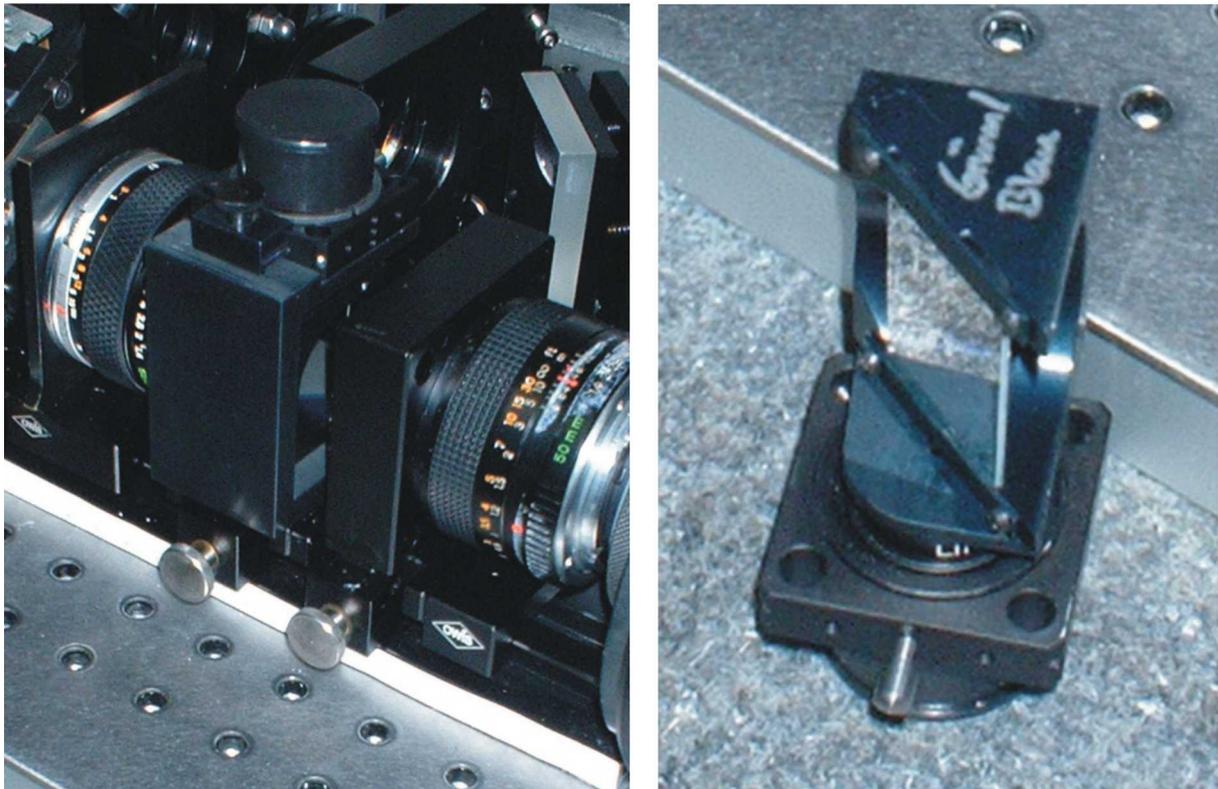


Abbildung 4.28: Halter für die dichroitischen Spiegel zwischen den beiden Objektiven (links). Rechts einer der Einsätze mit vorjustiertem Dichroiten.

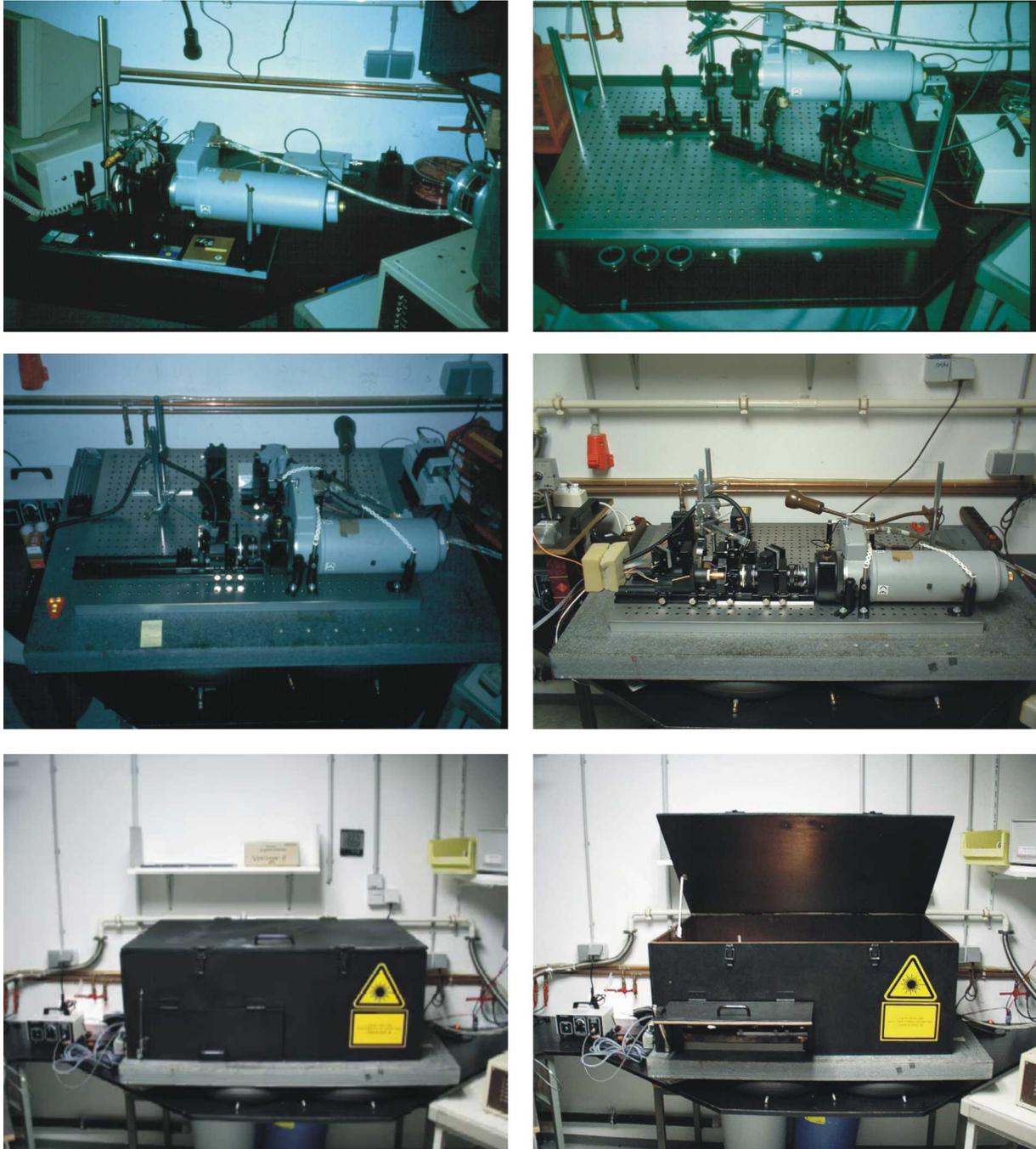


Abbildung 4.29: Entwicklung des LasLUM I: Testaufbau mit Sammellinse und CCD-Kamera (Juli 2000, links oben), erstes Schienensystem, Ein-Linsen-Aufbau mit schrägem Einfallswinkel des Lasers (Jan 2001, rechts oben), Ein-Linsen-Aufbau mit Dichroit (Juli 2001, links mittlere Reihe), Stand Dez 2002 (rechts Mitte), Außenaufbau mit Probenwechselklappe und schwingungsdämpfendem Unterbau (untere Reihe).

4.3.9 Aussicht

- Die sehr niedrige Transmission der Kleinbild-Objektive im UV-Bereich lässt einen Einsatz eines blauen Lasers zur Messung der UV-Emission bei Quarzen in Dosisbereichen, wie sie in der Datierung vorkommen, selbst bei Verwendung nur eines Objektivs nicht zu. Es wurden bereits erfolgreiche Aufnahmen unter Verwendung eines Mikroskop-Objektivs der Firma OLYMPUS gemacht (XLFLUOR4X), das bei vierfacher Vergrößerung eine Brennweite von 45 mm – ähnlich den Kleinbild-Objektiven – besitzt. Das Bildfeld und die numerische Apertur (0,28) liegen ebenfalls in einem geeigneten Bereich. Die Optik ist für Licht ab 340 nm durchlässig. Es bleibt zu prüfen, ob dieses Objektiv (bzw. zwei Objektive) auch in den anderen Wellenlängenbereichen den Kleinbild-Objektiven überlegen ist und diese ablösen kann.
- In diesem Zusammenhang wäre ein geschlossener Aufbau um das zweite Objektiv denkbar, an dessen Frontseite dann die Filter angebracht werden könnten. So könnte aufgrund des Fehlens von Adapterplatte und Filterhalter das zweite Objektiv weiter an den *Chip* herangefahren werden und eine größere Variabilität im optischen Aufbau geschaffen werden. Weiterhin könnten die Interferenzfilter, die in ihren Eigenschaften stark vom Einfallswinkel des Lichtes abhängen sind, im kollimierten Strahl platziert werden.
- Der Einbau einer Temperaturkontrolle ist schon aus Gründen der großen Variabilität des OSL-Signals in Abhängigkeit von der Temperatur [Habermann, 2000] wünschenswert. Die Heizeinheit und Temperaturkontrolle (16) konnte aber im Rahmen dieser Arbeit nicht verwendet werden. Es zeigte sich, dass sowohl der Wärmeübertrag zur Probe zu gering war, als auch trotz Isolierung die Abgabe an den restlichen Aufbau. Vorteilhafter ist vermutlich die Erwärmung der Probe in einem geschlossenen Raum mit Quarzfenster mit Hilfe eines Stickstoffstroms ähnlich einem Heißluftofen. Ein solches Gerät soll in nächster Zeit getestet werden und könnte langfristig auch eine TL-Funktion des LasLUM I möglich machen.
- Für einen routinemäßigen Einsatz des LasLUM I wäre es von großem Vorteil, wenn das Gerät automatisiert würde, d. h. eine zusätzliche Bestrahlungs- und Vorheizeinrichtung eingebaut und eine Steuerung über einen PC geschaffen würde, die die Probe an diese Einrichtungen bewegen könnte. Ein solches System wird z. Z. konstruiert.

4.4 Software

4.4.1 Einlesen und Anordnung der Daten

Die Rohdaten der Kamera werden vom Steuerprogramm WINSPEC zunächst in Bilderstapeln abgelegt. Ein Bilderstapel entspricht dabei den unmittelbar nacheinander durchgeführten Aufnahmen im LasLUM I. Eine weitere Belichtungsserie, z. B. für eine zusätzliche Laborbestrahlung der Probe, wird dann in einem zweiten, separaten Stapel gespeichert. Das Programm verwendet zum Speichern der Bildstapel das WINX-Format, bei dem im Dateikopf zunächst Informationen zur Bildgröße, zur Anzahl der Bilder (auch *frames* genannt) im Stapel, zur Belichtungszeit usw. abgelegt sind. Dann folgen die eigentlichen Bild-Datensätze mit einem Wertebereich von 16 Bit pro Datenpunkt (*Pixel*), was einer Dynamik von 65535 Zählereignissen entspricht.

The screenshot displays the AGESGALORE software interface. The title bar indicates the file path: "Age galore v0.9.2 build 0924 - D:\01 - Archäometrie (Stand 17Jul03)\03 - Messungen\31-40\37 - Al203 auf Probenscheiben Aug02\Filmdöschchen 4 (MINI)\WTK\WTK Döschchen 4.agd". The menu bar includes "Konfiguration", "Berechnungen", and "Auswertung".

The main area is divided into two primary sections:

- Dosisgruppen der Labor-Bestrahlungen (AL):** A grid of 30 image thumbnails arranged in 5 rows and 6 columns. The columns are labeled "DG 1 - AL (0 s)", "DG 2 - AL (1 s)", "DG 3 - AL (2 s)", "DG 4 - AL (3 s)", "DG 5 - AL (4 s)", and "DG 6 - AL (5 s)". Each thumbnail is accompanied by text: "Bild Nr.: 1 (110x110)", "ZeitOffset: 0 s", "Belichtung: 180 s", "Rauschen: 146.1 Cts", and "Versatz: (+0,+0),+0°". The cell for "DG 3 - AL (2 s)" at "Bild Nr.: 2 (110x110)" is highlighted in red.
- Natürliche Lumineszenz (NL):** A vertical column of 5 image thumbnails. Each is accompanied by text: "ZeitOffset: 0 ms", "Belichtung: 180 ms", and "Rauschen: 137.8 Cts". The other thumbnails have time offsets of 180 ms, 360 ms, 540 ms, and 720 ms.

At the bottom of the interface, there are two sections:

- Ausleuchtcurven:** Labeled "Nicht berechnet".
- Wachstumskurven:** Labeled "Für Zeitschiene (1) berechnet nach dem (MASS-SAR-Protokoll)".

Abbildung 4.30: Hauptbildschirm des AGESGALORE-Programms. Hier werden die Bilddaten in Zeitachsen (vertikal) und Dosisgruppen (horizontal) eingeordnet. Die zur Berechnung der Ausleucht- bzw. Wachstumskurven gewählte Zeitschiene bzw. Dosisgruppe ist rot hinterlegt.

Die im Rahmen dieser Arbeit entstandene Visual-C⁺⁺-Software AGESGALORE (etwa: „Alter in Hülle und Fülle“) für MICROSOFT WINDOWS kann die im WINX-Format abgelegten Bildstapel und die zusätzlichen Informationen direkt einlesen und ordnet sie entlang einer Zeitachse an (Abb. 4.30). Mehrere Bilderstapel können an einer Zeitachse aneinandergeschängt oder – der weit häufigere Fall – zuvor definierten Dosisgruppen zugeordnet werden (Abb. 4.31, links). Eine Dosisgruppe enthält dabei die Daten der Messungen des natürlichen Lumineszenzsignals oder des OSL-Signals nach einer Laborbestrahlung der Probe. Daneben können, sofern vorhanden, die Daten eventueller Normierungsmessungen in der Dosisgruppe abgelegt werden. Die Anordnung der Bilddaten in Zeitschienen und Dosisgruppen wird im Programm als „Konfiguration“ bezeichnet. Beim Einlesen kann das Programm den Ausleseoffset sowie dessen Varianz ermitteln oder vom Benutzer eingeben lassen (Abb. 4.32, rechts). Die automatische Ermittlung erfolgt durch die Auswahl eines dunklen Bereiches der letzten Aufnahme eines Bilderstapels. Mittelwert und Standardabweichung werden sofort angegeben, um eine Verzerrung der Werte durch versehentlich eingeschlossene *Pixel* zu vermeiden, die aufgrund kosmischer Teilchen überhöhte Werte zeigen. Der Offset wird durch das Programm bei den anschließenden Berechnungen von den Intensitäten subtrahiert.

4.4.2 Modellanpassung und Äquivalenzdosen-Berechnung

Nach Auswahl einer Dosisgruppe bzw. einer Zeitachse (die eingelesenen Daten müssen eine homogene Zeitstruktur besitzen) kann das Programm Ausleucht- und Wachstumskurven für jeden Punkt, d. h. für jede korrespondierende Fläche der Probe, darstellen. Gleichzeitig wird eine Parametrisierung der Kurven vorgenommen (Abb. 4.32), wobei mehrere Modelle zur Auswahl stehen. Sind Daten für das natürliche Lumineszenzsignal vorhanden, so werden diese mit der Wachstumskurve abgeglichen und ein Wert für die Äquivalenzdosis der ausgewählten Fläche errechnet (Tab. 4.7).

	Modell	Berechnete Parameter
Ausleuchtkurven	Einfach-exponentiell $I(t) = I_0 \cdot e^{-a \cdot t} + I_c$	I_0, a, I_c
	Doppelt-exponentiell $I(t) = I_f \cdot e^{-a_f \cdot t} + I_s \cdot e^{-a_s \cdot t} + I_c$	I_f, a_f, I_s, a_s, I_c
	Gestreckt-exponentiell $I(t) = I_0 - I_c' \cdot (1 - e^{-a \cdot t})^b$	$I_0, a, b, I_c' (I_c' = I_0 - I_c)$
Wachstumskurven	Linear $I(D) = m \cdot D + I_0$	I_0, m Äquivalenzdosis D_E Fehler der Äquivalenzdosis ΔD_E
	Exponentiell $I(D) = I_{\max} \cdot (1 - e^{-a \cdot D}) + I_0$	I_0, a, I_{\max} Äquivalenzdosis D_E Fehler der Äquivalenzdosis ΔD_E
	Supralinear (Polynom zweiter Ordnung) $I(D) = a \cdot D^2 + b \cdot D + I_0$	I_0, a, b Äquivalenzdosis D_E Fehler der Äquivalenzdosis ΔD_E
	Gaußsche Glockenkurve $H(x) = \frac{A}{\sqrt{2\pi \cdot b}} \cdot e^{-\frac{(x-x_c)^2}{2 \cdot b^2}}$	A, b, x_c
Alle Modelle		Korrelationskoeffizient r^2 Abweichung χ^2 Zahl der Anpassungszyklen n_{Fit}

Tabelle 4.7: Zur Verfügung stehende Modelle für AGESGALORE. Aus den berechneten Parametern werden weitere Größen abgeleitet, so z. B. die relativen Fehler der Äquivalenzdosen.



Abbildung 4.31: Einrichten der Dosisgruppen und Dialog zur Zuordnung der Bilder.

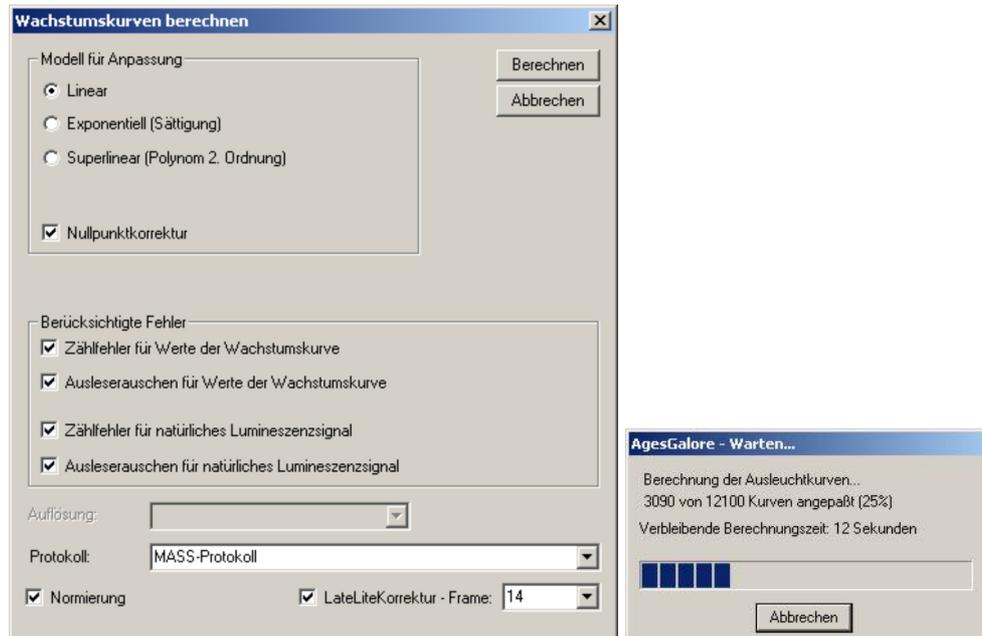


Abbildung 4.32: Dialog zur Berechnung.

Die Parameter stehen wiederum in zweidimensionaler Anordnung, also als neue Bilder zur Verfügung und können so direkt mit den Lumineszenzverteilungen oder anderen Bilddaten verglichen werden.

Für die Anpassung der Ausleucht- und Wachstumskurven wird eine Levenberg-Marquardt-Routine zur χ^2 -Minimierung aus der Sammlung *Numerical Recipes* [Press, 1992] (§15.5) verwendet. Diese Routine wird wiederholt, bis sich die Abweichung χ^2 in der fünften Stelle nicht mehr ändert ($\Delta\chi^2/\chi^2 < 10^{-4}$) oder 500 Durchgänge erreicht sind ($n_{Fit} < 500$). Die Güte des Algorithmus' wurde anhand von Testdaten im Vergleich mit dem Programm SPSS SIGMAPLOT überprüft. Als Unsicherheiten gehen in die Anpassung die Varianz des Ausleseoffsets und die statistischen Zählfehler der Lumineszenzsignale in den jeweiligen Dosisgruppen ein. Die errechneten Parameter der Wachstumskurve dienen dann zusammen mit ihren Fehlern der Berechnung der Äquivalenzdosis. Neben den Fehlern der Parameter gehen auch hier wiederum die Varianz des Ausleseoffsets und der Zählfehler des natürlichen Lumineszenzsignals ein.

Für den Aufbau der Wachstumskurve kann zwischen zwei Protokollen gewählt werden, einem MASS-Protokoll, das die Wachstumskurve für jeden Bildpunkt erstellt und die Äquivalenzdosis berechnet, sowie einem SAR-Protokoll, das vor der Berechnung die Intensitätswerte aller Bildpunkte zusammenfasst, um eine konventionelle Messung zu simulieren.

Des Weiteren kann der Benutzer auswählen, ob eine Normierung der Daten vorgenommen werden soll. Hierzu werden die Bilddaten der der jeweiligen Dosisgruppe zugeordneten Nor-

mierungsmessung *Pixel* für *Pixel* durch die Daten der Normierungsmessung des natürlichen Lumineszenzsignals dividiert. So erhält das Programm für jeden Bildpunkt einen Korrekturfaktor, der dann auf die Intensitätsdaten der betreffenden Dosisgruppe angewandt wird.

Zudem kann, wenn gewünscht, eine so genannte ‚*late light*‘-Korrektur durchgeführt werden, bei der die Intensitätswerte eines späten Intervalls der Ausleuchtkurve (hier also eine späte Aufnahme) von den Daten der zur Auswertung ausgewählten Zeitschiene abgezogen werden.

Das Programm ist so ausgelegt, dass für eine Konfiguration mehrere (z. Z. bis zu 10) Kurvenanpassungen durchgeführt werden können. Dies ermöglicht z. B. den Vergleich der Resultate einer normierten und einer nicht normierten Auswertung.

4.4.3 Auswertedialog, Filterverfahren und *regions of interest* (ROIs)

Die errechneten Daten werden im Auswertedialog angezeigt (Abb. 4.34), wobei aufgrund der Größenbeschränkung durch den Bildschirm jeweils sechs Bilder beliebig gewählt und jederzeit gewechselt werden können.

Weiterhin kann ein Datensatz (ein Bild) gewählt werden, für dessen Daten die Häufigkeitsverteilung in einem Histogramm dargestellt wird. Dabei ist das Intervall der Daten, die in das Histogramm eingehen, frei wählbar. Dargestellt werden 500 Zellen (entsprechend 500 Bildschirmpunkten), wobei intern aber mit 5000 Zellen gerechnet wird. Für die Daten werden Verteilungsparameter wie Mittelwert, Median, Modalwert (Maximum), Standardabweichung, mittlere Abweichung, Schiefe und Kurtosis (Durchbiegung) berechnet. Des Weiteren kann ein Gauß-Modell mit drei Parametern (Zentralwert, Breite und Höhe der Verteilung) angepasst werden, für das die gleiche Anpassungsroutine wie für die Modelle der Ausleucht- und Wachstumskurve verwendet wird.

Für ein Daten-Intervall innerhalb des Histogramms (dunkelgrau hinterlegt) kann darüber hinaus der Ursprung der gewählten Daten auf der Probe zurückverfolgt werden. So lässt sich beispielsweise prüfen, ob sich hohe Werte eines Parameters auf einem bestimmten Bereich der Probe häufen. Umgekehrt können auf der Probe bis zu acht, beliebig geformte Bereiche angegeben werden (z. B. mehrere Mineralkörner einer Probe, Abb. 4.35), die farblich getrennt in das Histogramm eingehen. Für jede diese *regions of interest* werden dann wiederum die Verteilungsparameter und, wenn gewünscht, eine Gauß-Kurve errechnet. Um die Darstellung der sich z. T. überlagernden Daten zu verbessern, kann die Reihenfolge der ROIs geändert oder die Überlagerung abgeschaltet werden (Stapeldarstellung).

Da in den errechneten zweidimensionalen Datensätzen, besonders dem der Äquivalenzdosen *alle* Flächen des Bildfeldes eingehen, stehen drei Filterkriterien zur Verfügung, die die Menge von Werten nach bestimmten Kriterien durchkämmen und die Daten bestimmter Bildpunkte aussortieren können. Ein *Korrelations-Filter* prüft die Übereinstimmung der Wachstumskurve des jeweiligen *Pixels* mit dem angewendeten Modell. So können beispielsweise alle Bildpunkte, die nicht einem linearen Dosis-Signal-Zusammenhang folgen, aussortiert werden. Ein *Intensitäts-Filter* entfernt alle Bildpunkte, denen Flächen auf der Probe entsprechen, die in ihrer natürlichen Lumineszenz dunkler als eine gewählte Schwelle sind. Ein *Fehler-Filter* entfernt schließlich alle Bildpunkte, denen ein relativer Fehler für die Äquivalenzdosis über einem gesetzten Wert zugeordnet ist. Die Wirkung der Filter überschneidet sich natürlich in Teilen, da z. B. *Pixel* niedriger Intensität auch immer mit hohen relativen Fehlern behaftet sind. Die Wahl der Filter und der vorgegebenen Schwellenwerte ist eine Frage der physikalischen Interpretation.

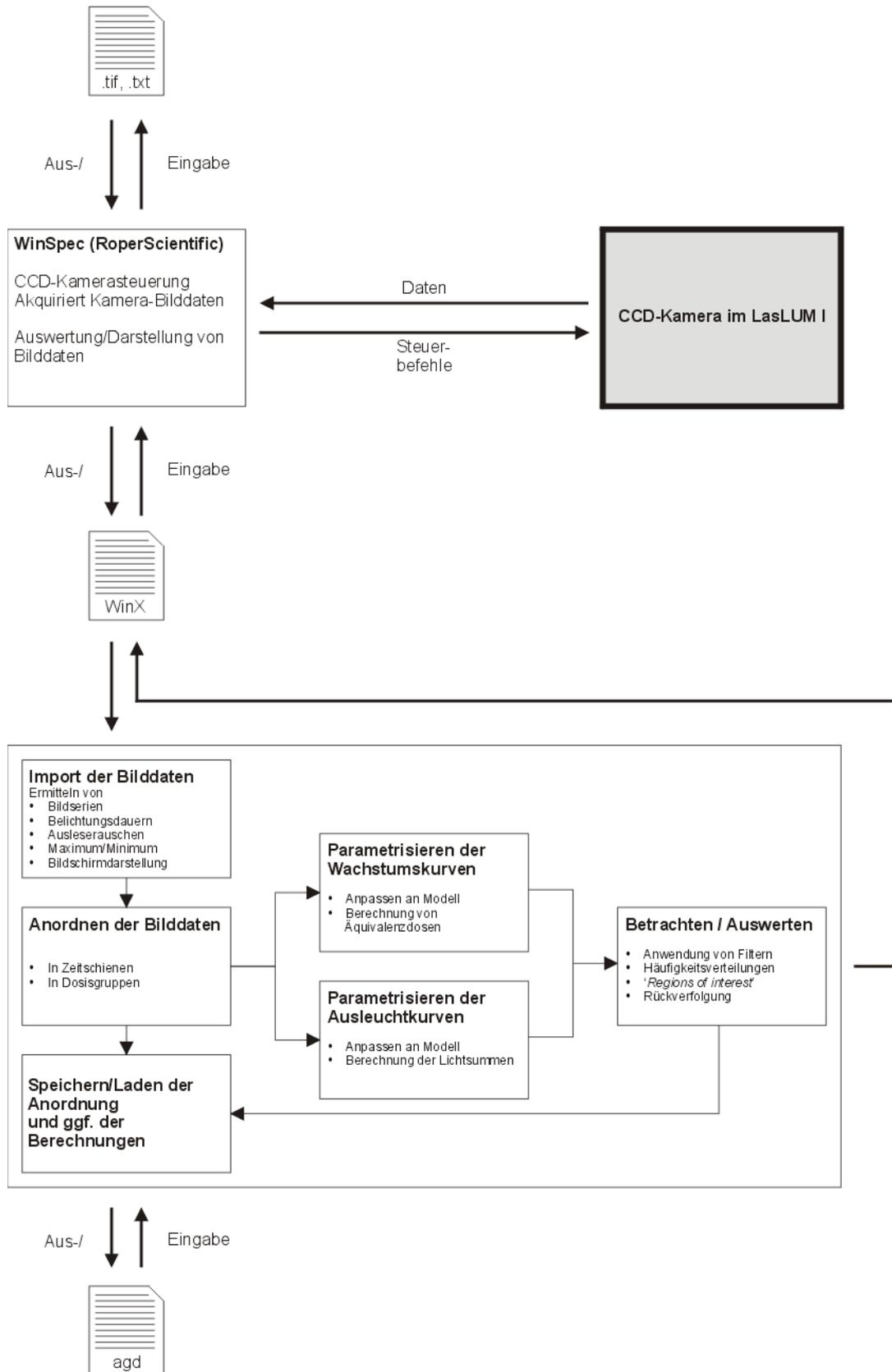


Abbildung 4.33: Ablaufdiagramm des Software-Programms AGESGALORE zur Auswertung der Messdaten des LasLUM.

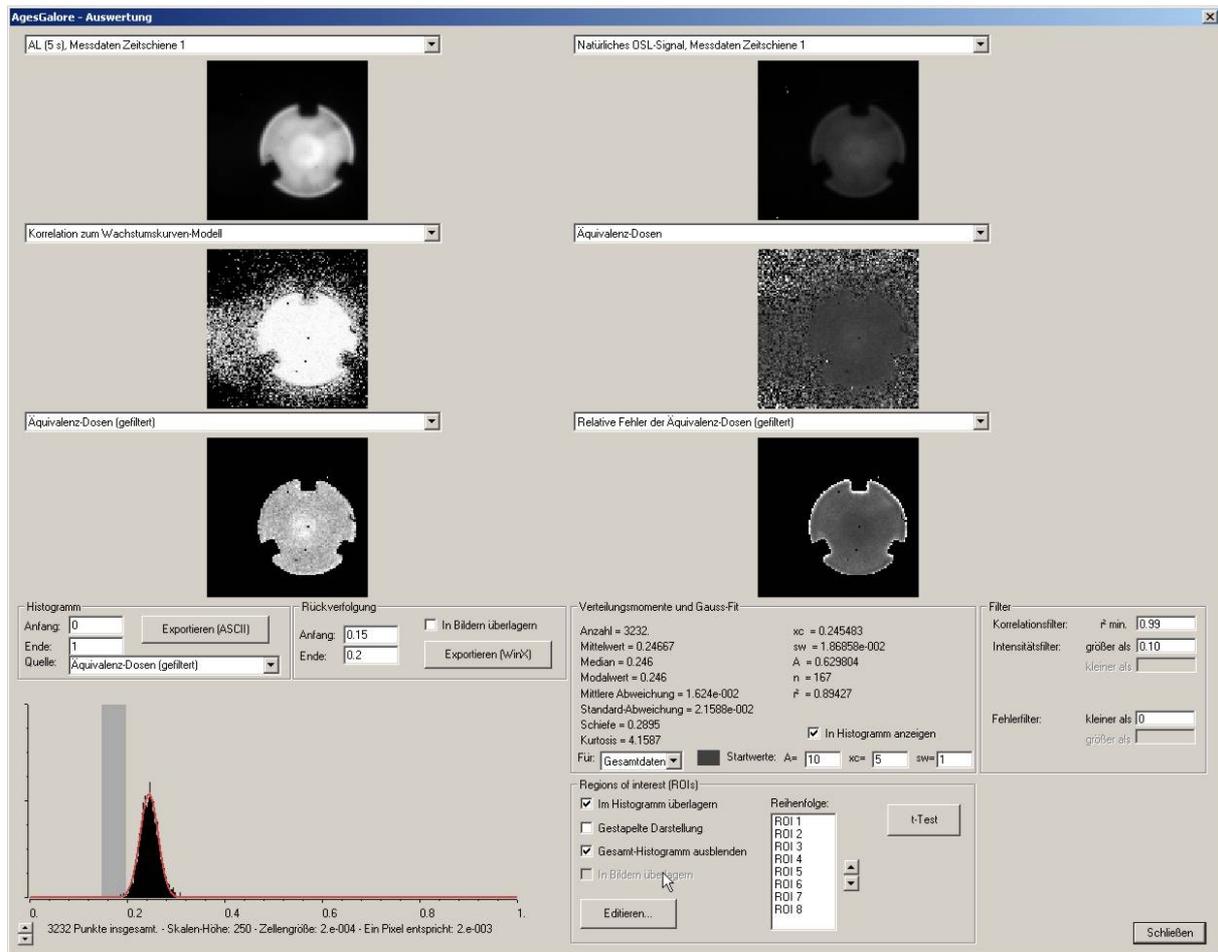


Abbildung 4.34: Auswertedialog. Die angezeigten Bilder können in ‚pull-down‘-Menüs ausgewählt werden. Links unten ist die Häufigkeitsverteilung zu sehen, daneben die Verteilungsparameter und die Steuerung der ROIs, ganz rechts die Eingabefelder für die Filterschwelwerte.

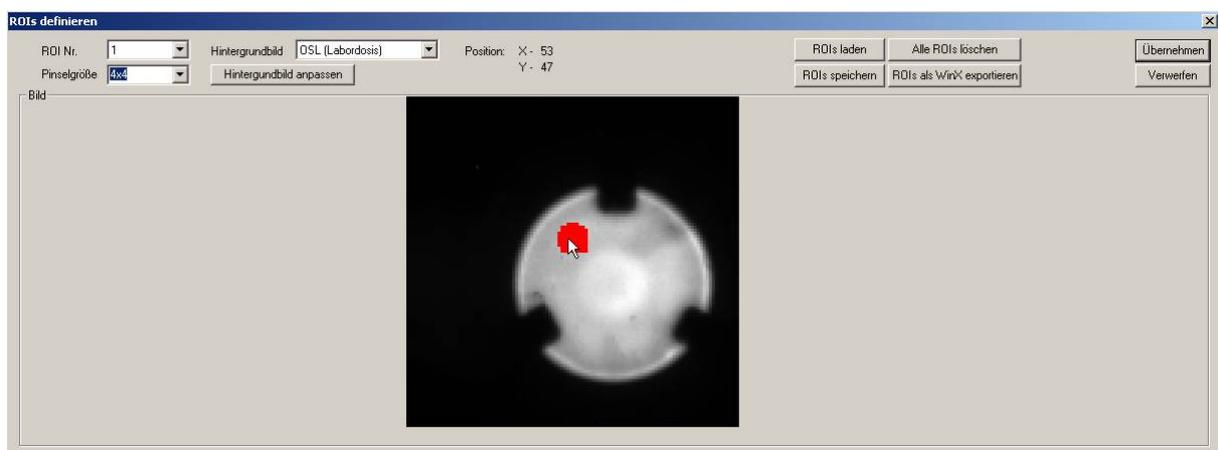


Abbildung 4.35: Dialog zum Erstellen und Verändern von regions of interest. Dabei kann das Hintergrundbild, auf dem die ROI erstellt wird, gewechselt werden (natürliches Lumineszenzsignal, Äquivalenzdosen-Bild, Korrelationswerte etc.).

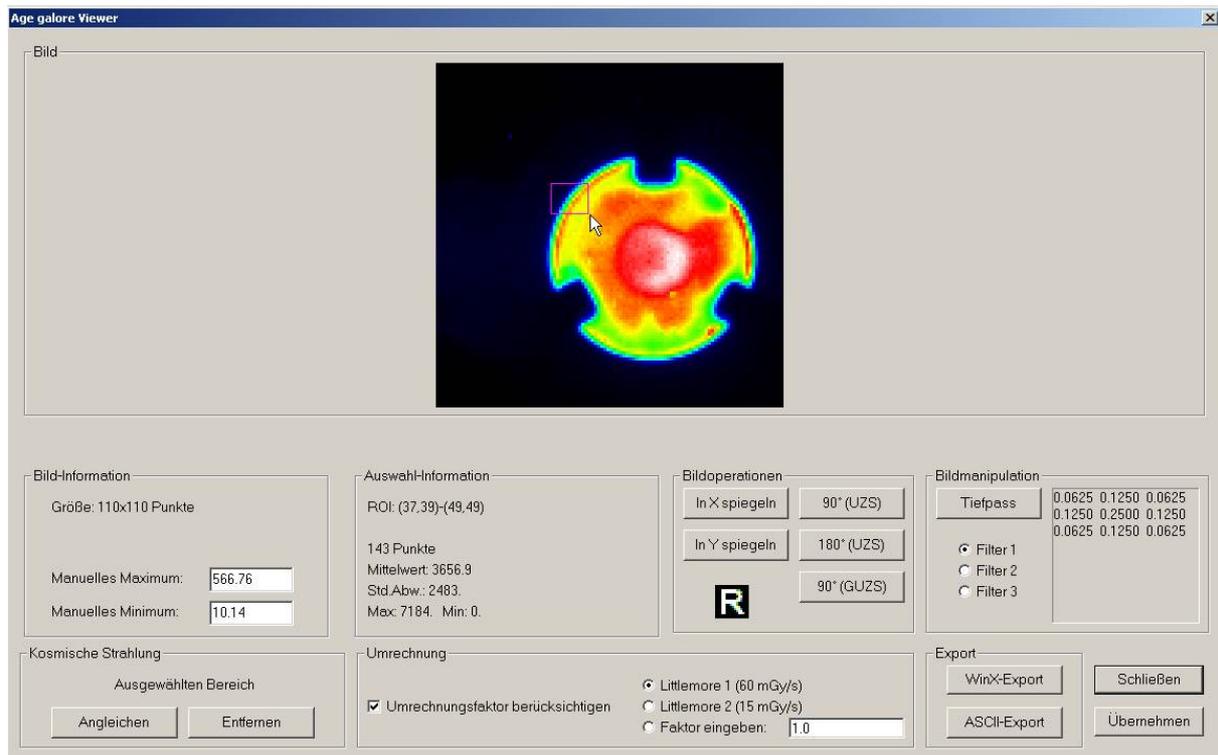


Abbildung 4.36: Bildbetrachtung (gleichermaßen für Rohdaten wie für Berechnungsergebnisse). Dieser Dialog bietet auch Einstellungsmöglichkeiten zur Helligkeit, zur Bildorientierung und Exportmöglichkeiten. Weiterhin können Tiefpassfilter und eine Routine zum Entfernen von Artefakten durch kosmische Strahlung sowie eine skalare Umrechnung angewendet werden. Es kann eine Grauwert- oder Spektralfarbdarstellung gewählt werden.

4.4.4 Bildbetrachtung

Für die eingelesenen und die berechneten Bilder steht ein Dialog zur Betrachtung zur Verfügung, der neben einer numerischen Anzeige auch erweiterte Bildoperationen erlaubt (Abb. 3.22). So können Zählereignisse durch kosmische Strahlung, wenn gewollt, entfernt werden, indem Punkte oder Bereiche des Bildes ausgewählt und durch den Mittelwert der umgebenden Punkte ersetzt werden. Des Weiteren kann das Bild gedreht und gewendet werden. Insbesondere kann die Bildposition, die die Probe im LasLUM einnimmt, in eine Aufsichtposition gewandelt werden, um eine bessere Vergleichbarkeit zu ermöglichen. Weiterhin ist die Anwendung dreier Tiefpass-Filter möglich. Zur besseren Orientierung werden alle Bildoperationen parallel an einem kleinen Testbild („R“) durchgeführt, da die OSL-Bilder oft annähernd rotationssymmetrisch sind.

4.4.5 Laden, Speichern und Export von Daten

Die Messdaten, die Konfiguration sowie eventuelle Berechnungen können im programmeigenen AGD-Format (*AgesGaloreData*) abgelegt und zu einem späteren Zeitpunkt wieder eingelesen werden.

Die Bilddaten im Betrachter – und somit jedes Bild innerhalb des Programms – können im WINX- (und somit auch im TIF-) Format ausgegeben werden. Damit ist die Kompatibilität mit allen handelsüblichen Bildbearbeitungsprogrammen gewährleistet.

Bilddaten und die Daten des Histogramms im Auswertedialog können weiterhin als ASCII-Text für die Verwendung in weiteren Analyse-Programmen (SPSS SIGMAPLOT, MICROSOFT EXCEL) exportiert werden.

Die *ROIs* können in einem programmeigenen Format (AGR) gespeichert, aber auch mit Hilfe des Betrachters als WINX-Bilder exportiert werden.

4.4.6 Aussicht

Die Software wurde, der Philosophie der C⁺⁺-Sprache folgend, objekt-orientiert entwickelt [RRZN, 1998]. Für spezifische Entitäten der OSL-Datierung (z. B. Bilddaten mit Belichtung und Untergrund, Wachstumskurven, Dosisgruppen, Häufigkeitsverteilungen etc.) wurden so genannte Klassen als kongruente Repräsentanten entwickelt, die nicht nur deren Struktur widerspiegeln, sondern auch innerhalb der Klasse die Routinen zur Manipulation (Erzeugung, Berechnung, Darstellung etc.) enthalten. Die Routinen zum Speichern und Laden der AGD-Dateien sind flexibel gehalten, indem ‚*Subheader*‘-Strukturen geschaffen wurden. Dabei ist jeweils einem Objekt einer Klasse eine spezifische Nummer zugeordnet (z. B. 0xABCDEF00 für Dosisgruppen, 0xABCDEF10 für eine Messung innerhalb einer Dosisgruppe etc). Die Laderoutine durchsucht die Datendatei nach den *Subheadern* und behandelt die folgenden Daten entsprechend. So wird ein starres, lineares Dateiformat vermieden.

Auf diesem Softwaregerüst können Erweiterungen des Programms in Zukunft sehr effektiv vorgenommen werden.

- Für das Modell der Wachstumskurven ist die Möglichkeit einer automatischen Auswahl des am besten geeigneten Modells für jeden Bildpunkt durch das Programm anhand der Korrelationswerte oder anderer Schätzer denkbar.
- Die Darstellung von Wachstums- und Ausleuchtkurven auch für auszuwählende beliebige Regionen (z. B. ein Mineral) sollte eingefügt werden.
- Die Filter könnten als Bandfilter programmiert werden, so dass z. B. nicht nur ein Anteil der hellsten Teile der Probe, sondern auch der dunkelsten oder ein Bereich zwischen diesen ausgewählt werden kann.
- Die Ergänzung der Häufigkeitsverteilung durch eine Darstellung als Radialplot wäre wünschenswert.
- Ein Plateautest (3.8) sollte implementiert werden.

5 Messungen

5.1 Vorgehen und Fehlerquellen

Um zu einer Datierung an Oberflächen mittels der hochauflösenden Lumineszenztechnik zu gelangen, wurde zunächst

- a) die Eignung des LasLUM I überprüft, die räumliche und spektrale Verteilung sowie die zeitliche Entwicklung der OSL an Oberflächenproben zu erfassen (5.2).
- b) Als nächster Schritt folgte die versuchsweise Bestimmung der von einer Probe absorbierten Dosis durch den Aufbau einer Wachstumskurve aus Messungen des LasLUM I und der Software AGESGALORE. Hierzu wurde eine mit einer β -Quelle applizierte Labordosis als Testgröße verwendet. Um die Einflussparameter gering zu halten, fanden erste Messungen an einem künstlichen Luminophor mit geringen Sensitivitätsschwankungen statt und es wurde auf das Vorheizen verzichtet (5.3.1).
- c) Als sich diese Vorgehensweise als erfolgreich herausstellte, wurde das Verfahren auf drei natürliche Proben angewendet (5.3.2).
- d) Erst dann wurden natürliche Dosen an mehreren Proben bestimmt. Zusammen mit der Messung der Radionuklide und der Berechnung der Dosisleistung konnten so für mehrere Oberflächenproben und zwei Keramikproben Lumineszenzalter ermittelt werden (5.4).

Die Entwicklung des Gerätes und die vorgestellten Messungen stellten eine parallele Entwicklung dar. Bei jedem dieser Schritte müssen neue Einflüsse auf das Messergebnis und Fehlerquellen berücksichtigt werden:

- a) Bei allen Messungen treten zwei statistische Fehler auf:
 - der Zählfehler der OSL-Messung, der zu einer Poisson-Verteilung der Werte führt. Für hohe Zählraten geht diese in eine Gaußsche Normalverteilung über. Die Standardabweichung der Verteilung beträgt bei N Ereignissen \sqrt{N} .
 - Das normalverteilte Rauschen des Aufleseoffsets der CCD-Kamera mit einer Standardabweichung, die im Mittel 2,3 Zählereignissen entspricht.
- b) Bei den für die Bestimmung einer Äquivalenzdosis notwendigen Wiederholungsmessungen gewinnen systematische Fehler an Einfluss:
 - die zeitliche Drift des Ausleseoffsets, ausgelöst durch die Temperaturänderungen im Kamerasystem durch das Verdampfen des Stickstoffs (s. 4.3). Sie wurde mit 5 Zählereignissen pro Messtag (was im Allgemeinen dem Aufbau einer Wachstumskurve für eine Probe entspricht) bestimmt.
 - die Drift der Nachweisempfindlichkeit des CCD-Bausteins. Sie beträgt ca. 0,25 % pro Messtag.
 - die Variabilität der Bestrahlungszeit ($<0,1$ s) in den ELSEC 9022-Geräten.
 - Eine nicht-exakte Repositionierung der Probe bei der Bestrahlung, insbesondere im Abstand zur Quelle.
 - Ein Verrutschen der Probe im Probenrahmen.

- Unsachgemäße Behandlung der Probe während der Messung, wodurch z. B. Fingerabdrücke auf der Probe entstehen. Sie können eine scheinbare Sensitivitätsänderung durch Abdunkelung zur Folge haben.

Die drei letzten Punkte führen zu schwer abzuschätzenden Auswirkungen auf die Messung, ein Verrutschen der Probe hat meist die Unbrauchbarkeit der Messung zur Folge. Zeitliche Schwankungen in der Bestrahlung können bei sehr kurzen Bestrahlungszeiten Effekte verursachen, liegen bei der Bestimmung von Äquivalenzdosen im Bereich einiger Gy aber im Promillebereich (0,1 s entsprechen 6 bzw. 1,5 mGy).

c) Im Falle natürlicher Proben

- müssen beim Vorheizen der Proben zusätzliche Größen, wie Temperatur und Vorheizdauer möglichst konstant gehalten werden.
- können bei der Bestimmung der Äquivalenzdosen Änderungen in der Sensitivität auftreten, die durch Normierungsmessungen ausgeglichen werden müssen.

d) Während für alle bisherigen beschriebenen Messungen Bestrahlungen im *selben* Gerät, in ähnlichen Zeitskalen, mit analoger Probenbehandlung, an derselben radioaktiven Quelle durchgeführt werden, ergeben sich bei der Bestimmung natürlicher Dosen zusätzliche Unsicherheiten aus eventuellen Unterschieden in den Eigenschaften der natürlichen Einwirkung der Radioaktivität und der Laborbestrahlung. Die betrifft vor allem

- die Eignung der gewählten Vorheizprozedur, Effekte der kurzfristigen Laborbestrahlung auszugleichen und
- Unterschiede in der räumlichen Verteilung der Dosisleistung, speziell in der Tiefenachse. Mit einer Modellierung (3.8) konnte dieser Effekt auf ca. 10 % abgeschätzt werden.

Durch die für eine letztendliche Datierung notwendige Dosisleistungsbestimmung treten weitere Fehlerquellen hinzu:

- Unsicherheiten in den Bestimmungen der Elementgehalte. Im Falle der Kalium-Analyse am Raster-Elektronenmikroskop betrug diese 0,2-0,5 % w.t. (4.2.4).
- Für Elemente, bei denen eine quantitative Analyse nicht möglich ist, können Literaturwerte z. B. über die geochemischen Mittelwerte für granitische Gesteine verwendet werden [Wedepohl, 1967], die dann aber mit einer entsprechenden Unsicherheit behaftet sind.
- Für die Errechnung der Gesamt-Dosisleistung in einer Probe ist die Erstellung eines Modells notwendig, in das weitere Unsicherheiten eingehen.

5.2 Hochaufgelöste OSL-Messungen an Oberflächen

5.2.1 Spektrale und räumliche Intensitätsverteilung der OSL

5.2.1.1 Granitische Gesteine

Die Verteilung der infrarot stimulierten Lumineszenz wurde an im Labor bestrahlten Anschnittflächen dreier feldspathaltiger Proben in vier Wellenlängenbereichen (UV, blau, gelb, rot) quantifiziert. Zudem wurde die Elementzusammensetzung der Proben durch REM-EDX-Messungen bestimmt. Die so zusammen mit der mineralogischen Untersuchung unter einem Auflichtmikroskop gewonnenen Aussagen über die Mineralverteilung der Probe – hier insbesondere die verschiedenen Feldspäte – wurden mit den Lumineszenzintensitäten verglichen.

Bei allen verwendeten Proben handelte es sich um Granite bzw. granitoide Gesteine mit archäologischem Bezug. Der Leuchtenburger Granit (OPF1) aus einem Steinbruch bei Roggenstein in der Oberpfalz bot sich durch seine außergewöhnlich hohe Sensitivität an. Granite dieser Region wurden vielfach beim Bau des Oberpfälzer Burgengürtels im 12. und 13. Jahrhundert verwendet [Wagner, pers. Mitteilung]. Da bei den Bauten das historische Datum der Errichtung meist recht genau bekannt ist, wurden sie wie auch die Burgen des kristallinen Odenwalds in Südhessen als Testobjekte für eine spätere Oberflächendatierung ins Auge gefasst. Der Granit aus Kestambul (Troas/Türkei, MED1) und der Rosengranit aus Assuan (Ägypten, MED3) fanden in der Antike als Baumaterial häufige Verwendung [Lazzarini, 1992].

Handstücken dieser Proben wurden Bohrkernen entnommen, die wiederum und im Mikrotom in mehrere Probenscheiben (S1, S2, ...) zersägt wurden. Die planparallelen Oberflächen wiesen nur noch eine geringe, durch das Sägen verursachte Rauigkeit auf. Von einem weiteren Schleifen und Polieren der Oberflächen wurde abgesehen.

Die Bestrahlung der zuvor 20 min im Sonnenlichtsimulator gebleichten Proben wurde im LM1 durchgeführt und so angepasst, dass durch eine hinreichende Signalhöhe kontrastreiche und hochauflösende Bilder erzielt werden konnten. Die applizierten Dosen lagen aufgrund der unterschiedlichen Sensitivitäten zwischen ca. 10 Gy (OPF1S2) und ca. 100 Gy (MED1S1). Trotz der Verwendung nur eines Objektivs war die UV-Transmission so gering, dass die Proben, um in diesem Wellenlängenbereich eine den anderen Messungen äquivalente Bildauflösung zu erreichen, nochmals erheblich länger bestrahlt werden mussten (bis zu 1000 Gy bei MED1S1). Um die Beeinträchtigung der Bilder durch kosmische Teilchen möglichst gering zu halten, betrug die Messzeit zwischen 60 und 120 s.

Bei der sehr sensitiven Probe OPF1S2 war es möglich, vor den OSL-Messungen das Nachleuchten der Probe direkt nach der künstlichen Bestrahlung zu messen. Es kommt durch die thermische Entleerung flacher Fallen zustande und wird als Radiophosphoreszenz bezeichnet. Die Belichtungszeiten lagen hier zwischen 600 und 900 s. Zudem wurde eine Kathodolumineszenz-Aufnahme der Probe angefertigt.

Das Auflichtbild sowie eine Rückstreu-Elektronen-Aufnahme und eine Kathodolumineszenz-Aufnahme sind in Abb. 5.1 zu sehen. Abb. 5.2 zeigt die Phosphoreszenz und Lumineszenzverteilungen der Probe OPF1S2 zusammen mit Verteilungen der Elemente an der Oberfläche.

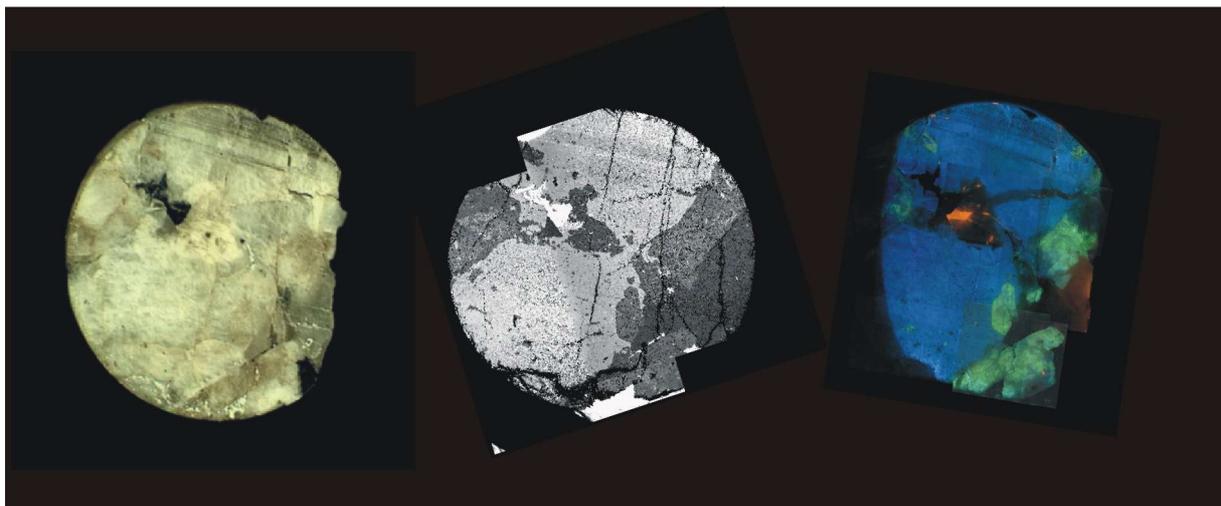


Abbildung 5.1: Auflichtaufnahme (links), Rückstreu-Elektronen-Bild (Mitte) und Kathodolumineszenz-Aufnahme (rechts) der Probe OPF1S2. Die beiden letzteren erlauben bereits eine klare Differenzierung der Mineralphasen.

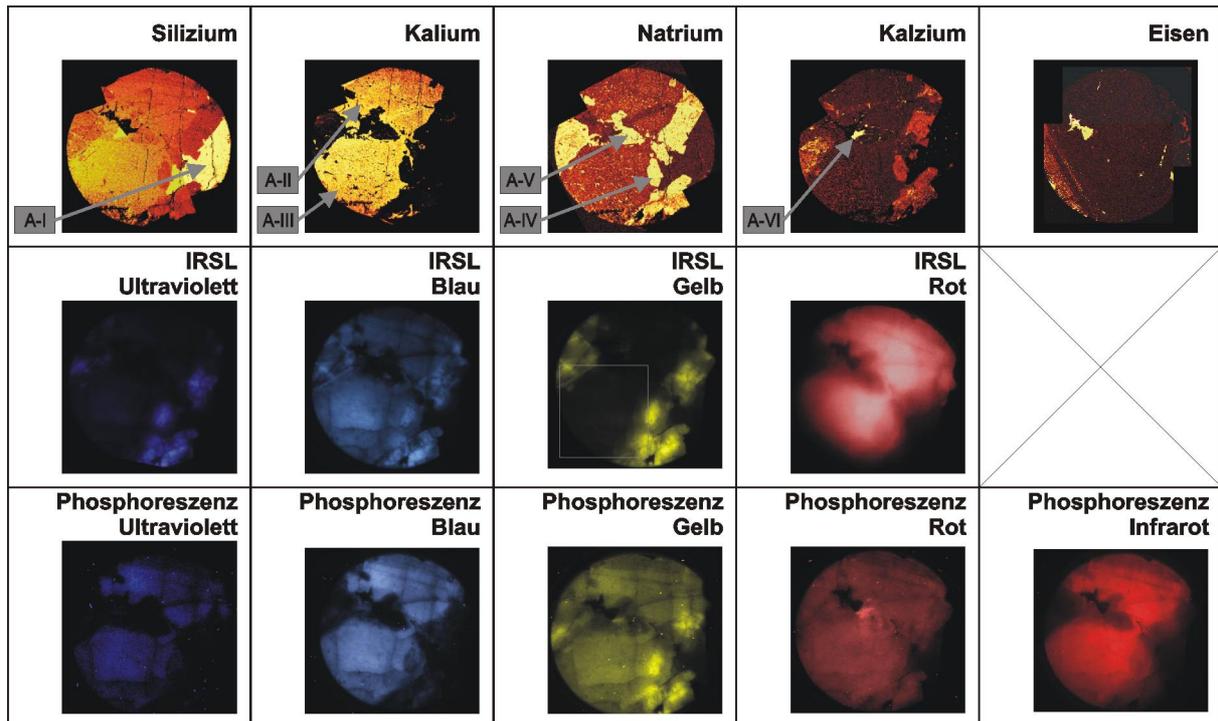


Abbildung 5.2: Die räumliche und spektrale Verteilung der infrarot stimulierten Lumineszenz der Probe OPF1S2 (mittlere Reihe, Auflösung 25 μm). Im Vergleich dazu die Verteilung der Hauptelemente sowie von Eisen (obere Reihe). In der unteren Reihe ist die Verteilung des Nachleuchtens nach der Bestrahlung durch die thermische Leerung flacher Fallen (Radio-phosphoreszenz, RP) zu sehen (Auflösung ebenfalls 25 μm). Die kleinen Punkte stellen Einschläge kosmischer Teilchen in den CCD-Detektor dar, die sich durch die lange Belichtungszeit (bis zu 900 Sekunden) häufen.

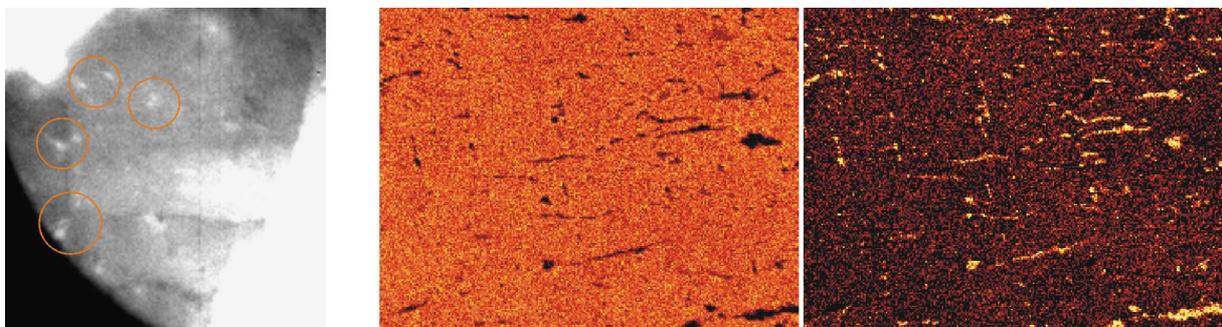


Abbildung 5.3: Plagioklas-Einschlüsse im K-Feldspat. Links eine Aufnahme aus dem Las-LUM I (s. Ausschnitt markiert in Abb. 5.2 unter IRSL gelb und Na/K-Analysen dort). Mitte und rechts EDX-Analysen für Kalium bzw. Natrium aus einem vergrößerten Ausschnitt des K-Feldspats (s. Ausschnitt in Abb. 5.4). Deutlich sind die spindelförmigen Entmischungslamellen zu erkennen.

Quarz, Kali-Feldspat und Plagioklas sind als Hauptphasen der Probe auszumachen. Daneben finden sich in geringerem Maße Biotit und Calcit (A-VI). Während Quarz nur im rechten Probenanteil (A-I) vorkommt, dominiert Kali-Feldspat mehr als 50 % der Probe (A-II, A-III). Quarz und Kali-Feldspat werden durch Plagioklase umgeben und getrennt. Wie die Na- und Ca-Verteilungen anzeigen, finden sich sowohl Na-Ca-Mischphasen (A-IV) als auch rein Na-dominierte Feldspäte (A-V). Im K-Feldspat sind orientierte Plagioklas-Einschlüsse (Entmischungslamellen) zu erkennen, die eine Größe von ca. 250 μm besitzen.

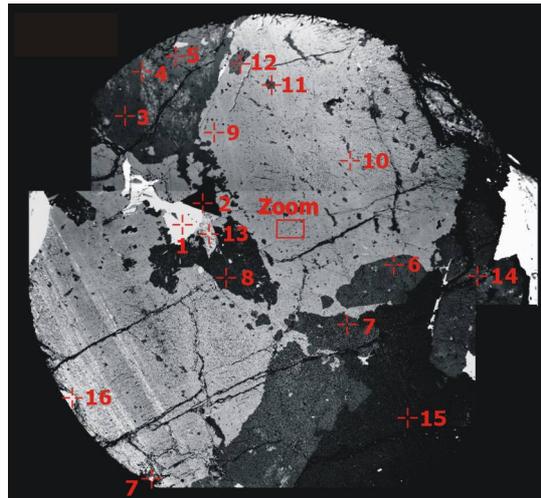


Abbildung 5.4: EDX-Punktanalysen auf der Probe OPFIS2.

Punkt	Si [%]	Al [%]	K [%]	Na [%]	Ca [%]	Mg [%]	Fe [%]	Mineral
2	99,3	-0,2	-0,1	0,5	0,0	0,1	0,1	Quarz
15	99,6	-0,3	0,0	0,5	-0,1	0,1	0,0	Quarz
3	64,6	22,3	1,0	9,9	2,2	-0,2	0,0	Na-Ca-Fsp
5	61,9	23,7	0,3	9,0	5,2	-0,1	0,0	Na-Ca-Fsp
6	62,7	23,2	0,3	9,1	4,8	-0,2	0,0	Na-Ca-Fsp
7	65,1	21,9	1,3	10,5	1,3	-0,2	0,1	Na-Ca-Fsp
8	67,4	19,8	0,1	11,8	1,0	-0,2	0,0	Na-Ca-Fsp
11	65,7	21,9	0,3	8,7	3,7	-0,2	-0,1	Na-Ca-Fsp
12	62,1	23,3	0,3	8,1	6,1	-0,4	0,0	Na-Ca-Fsp
14	62,7	23,3	0,2	7,5	6,0	-0,1	0,1	Na-Ca-Fsp
9	65,6	18,3	13,9	1,9	0,1	-0,1	0,0	K-Fsp
10	65,0	18,4	13,7	1,9	0,1	-0,1	0,0	K-Fsp
16	39,1	19,3	9,8	0,5	0,1	7,0	21,9	K-Fsp
13	0,7	0,5	0,2	0,9	96,8	0,3	0,5	Carbonat
1	31,9	27,4	0,0	1,5	0,2	11,3	27,5	Biotit
4	51,2	24,2	0,2	2,9	21,6	-0,2	0,1	?
17	32,1	10,1	0,6	2,2	3,0	0,1	52,1	?

Tabelle 5.1: Ergebnisse für die EDX-Punktanalysen auf der Probe OPFIS2. Im Gegensatz zu allen anderen gezeigten EDX-Daten wurden die Werte dieser Tabelle nicht auf den Sauerstoffanteil korrigiert.

Die an der Probe durchgeführten EDX-Analysen an den in Abb. 5.4 eingetragenen Stellen Messpunkten sind in Tab. 5.1 zusammengefasst.

Das Verteilungsmuster der Lumineszenz und der Phosphoreszenz kann sehr gut mit den Mineralverteilungen in Einklang gebracht werden. Sichtbar wird auch der Unterschied zwischen geringen Eindringtiefe des Elektronenstrahls und den tieferen Beiträgen der OSL. So können im roten Wellenlängenbereich gut die Tiefenstrukturen des zentralen K-Feldspates ausgemacht werden. Auffällig ist, dass der reine Na-Feldspat keine (vergleichbare) Emission zeigt, auch nicht im blauen Emissionsbereich, der gleichermaßen von K-Feldspat und Ca-Plagioklasen getragen wird. Die Phosphoreszenz im Infrarot-Bereich entspricht auffällig dem Bild der roten IRSL-Emission. Der Calcit fällt durch seine rote Radiophosphoreszenz auf. Die Verteilung der IRSL-Farben findet sich auch im Kathodolumineszenz-Bild wieder, was als Hinweis auf die Beteiligung gleicher oder ähnlicher Rekombinationszentren dienen kann (s. a. Marshall [1988]).

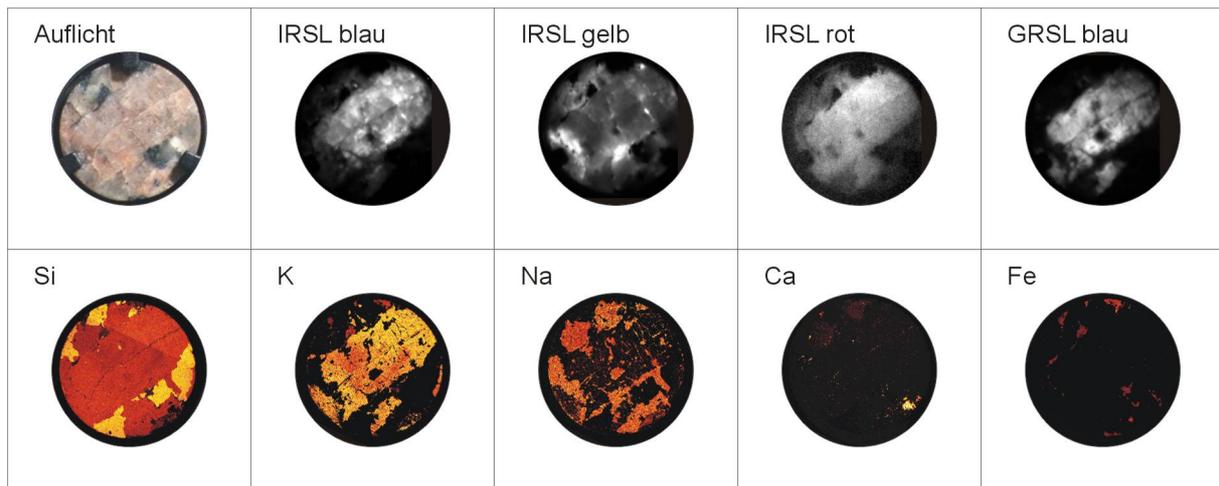


Abbildung 5.5: Vergleich der Lumineszenzverteilung mit EDX-Analysen für die Probe MED3S1.

Abb. 5.5 und 5.6 zeigen den Vergleich von OSL- und Elementverteilung für die Proben MED3S1 und MED1S1. Eine Messung der UV-Emission war hier aufgrund der geringen Intensität nicht möglich. Bei beiden Proben lassen sich die Mineralphasen weniger klar abgrenzen als bei der Probe OPF1S2. Die Oberfläche bei MED3S1 wird dominiert von einem großen Feldspat, in dem getrennte K- und Na-Anteile zu erkennen sind. Ca kommt in bedeutendem Maße nur in einer Nicht-Feldspat-Phase (rechter unter Teil der Probe) vor. Bei MED1S1 zeichnen sich die mafischen Komponenten (Biotite) als dunkle Stellen ab und können zur Orientierung auf der Probe genutzt werden. Tab. 5.2 fasst die Ergebnisse zusammen. Die zusätzlich gemessenen Verteilungen der grün stimulierten Lumineszenz im blauen Bereich korrespondieren mit der entsprechenden IRSL-Messung, wiesen aber eine höhere Gesamtintensität auf. Daher wurde die GRSL bei späteren Datierungsmessungen der IRSL im blauen Bereich meist vorgezogen.

Die Unterschiede zwischen der Radiophosphoreszenz- und IRSL-Verteilungen zeigen, dass das in Kap. 2 vorgestellte einfache Modell der IRSL unzureichend ist. Denn der beschriebene Übergang von Elektronen in das Leitungsband und die darauf folgende Rekombination entkoppelt Fallen und Rekombinationszentren. Bei den vorliegenden Messungen aber werden für Elektronen aus flachen Fallen (RP) andere Wellenlängenkombinationen emittiert als für Elektronen aus IRSL-Fallen.

IRSL	K	Na	Na/Ca	RP	K	Na	Na/Ca
UV			●	UV	●		
Blau	● ■ ◆	◆	● ■	Blau	●		
Gelb	■ ◆	■ ◆	● ■	Gelb	●	●	●
Rot	● ■ ◆	■ ◆		Rot	●	●	●
				IR	●		

Tabelle 5.2: Korrelation des Wellenlängenbandes der IRSL- bzw. der Radiophosphoreszenz-Emissionen und der Feldspat-Hauptelemente mit den Elementanalysen für die Proben OPF1S2 (●), MED3S1 (■), MED1S1 (◆). Die Stärke ist dabei durch die Grautöne repräsentiert, wobei Zuordnungen mit Unsicherheiten in schwachem Grau erscheinen.

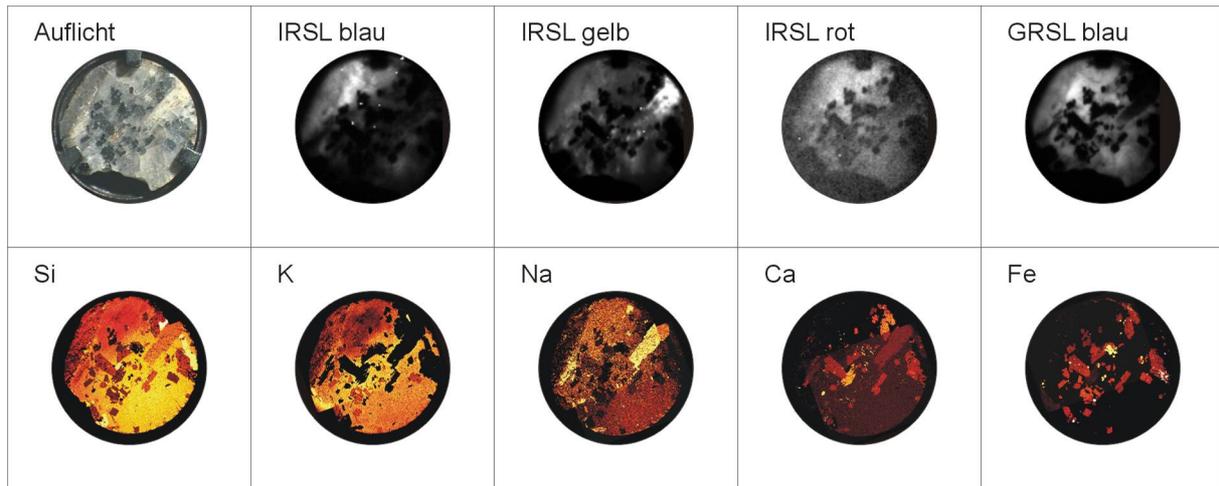


Abbildung 5.6: Vergleich der Lumineszenzverteilung mit EDX-Analysen für die Probe MEDISI.

5.2.1.2 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$

Bei Messungen der grün stimulierten Lumineszenz im blauen Wellenlängenbereich zeigte sich nach Laborbestrahlung (0,6 bis 2,7 Gy) eine starke Strukturierung des Signals der Aluminiumoxid-Pellets (Abb. 5.7). Die Dynamik in der Intensität betrug innerhalb einer Probe ungefähr einen Faktor zwei.

Da die Muster ähnlich, aber nicht deckungsgleich sind, scheiden Inhomogenitäten in der Laborbestrahlung als Ursache aus. Wahrscheinlicher scheinen herstellungsbedingte Schwankungen im Kohlenstoffgehalt und somit der Defektdichte.

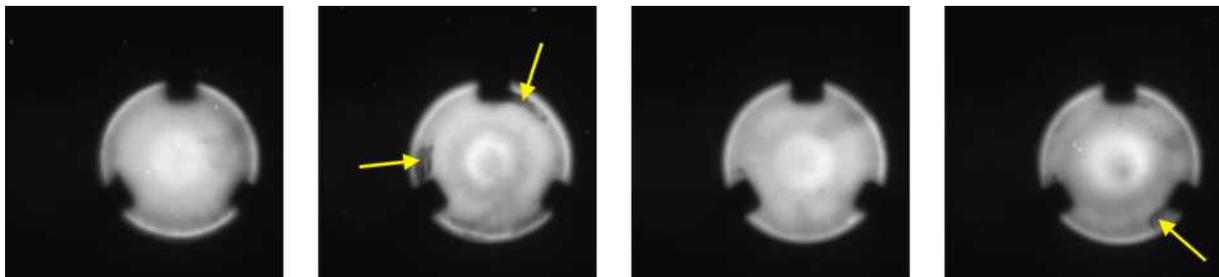


Abbildung 5.7: OSL-Messungen an vier $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Pellets. Die drei scheinbaren Einkerbungen am Rand kommen durch die Klammern der Probenrahmen zustande. Für die starken Abdunkelungen (Pfeile) ist der Abrieb von schwarzem Beizmaterial bei erstmaliger Verwendung der Probenrahmen verantwortlich.

5.2.1.3 Apatit

Eine Apatit-Scheibe (Durango/Mexiko), die entlang der C-Achse geschnitten worden war, zeigt nach Bestrahlung mit ca. 220 Gy unter grüner (532 nm) Stimulation blaue Lumineszenz (Abb. 5.8). Deutlich zu erkennen sind hexagonale Strukturen, die auf Wachstumszonen im Mineral zurückzuführen sind [Glasmacher, pers. Mitteilung]. Das Beispiel zeigt aber, dass hochaufgelöste OSL-Untersuchungen auch zur Aufklärung mineralogischer Strukturen interessant sein können. Bei transparenten Mineralen kann die OSL im Gegensatz zur Kathodolumineszenz, deren Elektronenstrahl nur wenige μm in die Probe eindringt, auch Informationen aus tieferen Schichten erbringen (s. a. LasLUM II).

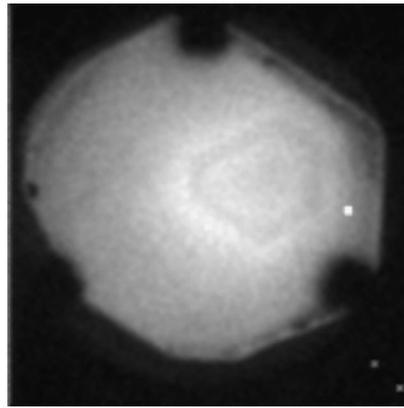


Abbildung 5.8: Blaue Lumineszenz eines Apatit-Kristalls. Größter Durchmesser ca. 8 mm, Auflösung 50x50 μm .

5.2.2 OSL-Verteilung bei unterschiedlichen Stimulationswellenlängen

5.2.2.1 Polymineralische Keramikprobe

Die Probe K866 einer römischen Ziegel (s. Beschreibung 5.4.3.1) enthält sowohl grobe Quarz- als auch Feldspatkörner ($>100 \mu\text{m}$) in der Magerung. Die Probenscheibe S1 aus einem der Probe entnommenen Bohrkern wurde gebleicht (20 min SOL2) und im Labor bestrahlt. Dabei waren Bestrahlungszeiten von bis zu 10 Stunden (LM1), entsprechend ca. 2100 Gy, notwendig, um kontrastreiche Bilder mit einer Auflösung von 50x50 μm bei unterschiedlichen Stimulationswellenlängen zu erreichen.

Die Gegenüberstellung der infrarot, grün und blau stimulierten Lumineszenz ist in Abb. 5.9 zu sehen. In der Reihe der IRSL-Messungen zeigen die hellsten Feldspäte Emissionen in jedem der gemessenen Wellenlängenbereiche. Im gelben Bereich können aufgrund der hohen Signalstärke bei geschickter Wahl des dargestellten Helligkeitsbereiches der dominantesten Körner noch viele weitere Feldspäte ausgemacht werden. Zusätzlich zu diesen Feldspäten kommen in der GRSL weitere Mineralkörner dazu, die bei der BSL das Lumineszenzbild dominieren. Genauer kann dies in einem Ausschnitt (Abb. 5.10) betrachtet werden, dessen Lage im Auflichtbild durch ein Rechteck markiert ist. In den EDX-Mappings zeigen sich Quarze, K-Feldspäte und Na-Feldspäte. Die Komponenten der feinkörnigen Matrix sind in dieser Auflösung nicht zu unterscheiden. Ca-Feldspäte finden sich im gewählten Ausschnitt nicht. Die für die markierten Punkte durchgeführten EDX-Punktanalysen bestätigen die Zuordnung (Tab. 5.3).

Betrachtet man das in Abb. 2.10 gezeigte OSL-Spektrum von Quarz, so liegt der Schluss nahe, dass die blaue Filterkombination nicht nur die Feldspatemitte in diesem Bereich, sondern auch noch langwellige Ausläufer der sehr breiten UV-Emission der Quarze passieren lässt. Für eine Messung natürlicher Lumineszenzsignale von Quarzen ist aber auch dieser Weg über die blaue Filterkombination zu lichtschwach. Hier muss eine spezielle Optik mit weit besserer UV-Transmission eingesetzt werden.

Messpunkt	Si [%]	Al [%]	O [%]	K [%]	Na [%]	Ca [%]	Fe [%]	Mineral
1	45,74	0,20	52,75	-0,11	1,44	-0,07	0,05	Quarz
3	46,38	0,17	53,14	-0,37	0,82	-0,22	0,08	Quarz
2	30,08	11,00	47,78	1,25	9,14	0,67	0,08	Na-Fsp
5	29,87	10,15	46,19	11,56	1,90	0,12	0,21	K-Fsp
4	38,34	5,68	50,39	1,07	1,51	0,48	2,52	Fsp?

Tabelle 5.3: EDX-Punktanalysen der Probe K866S1.

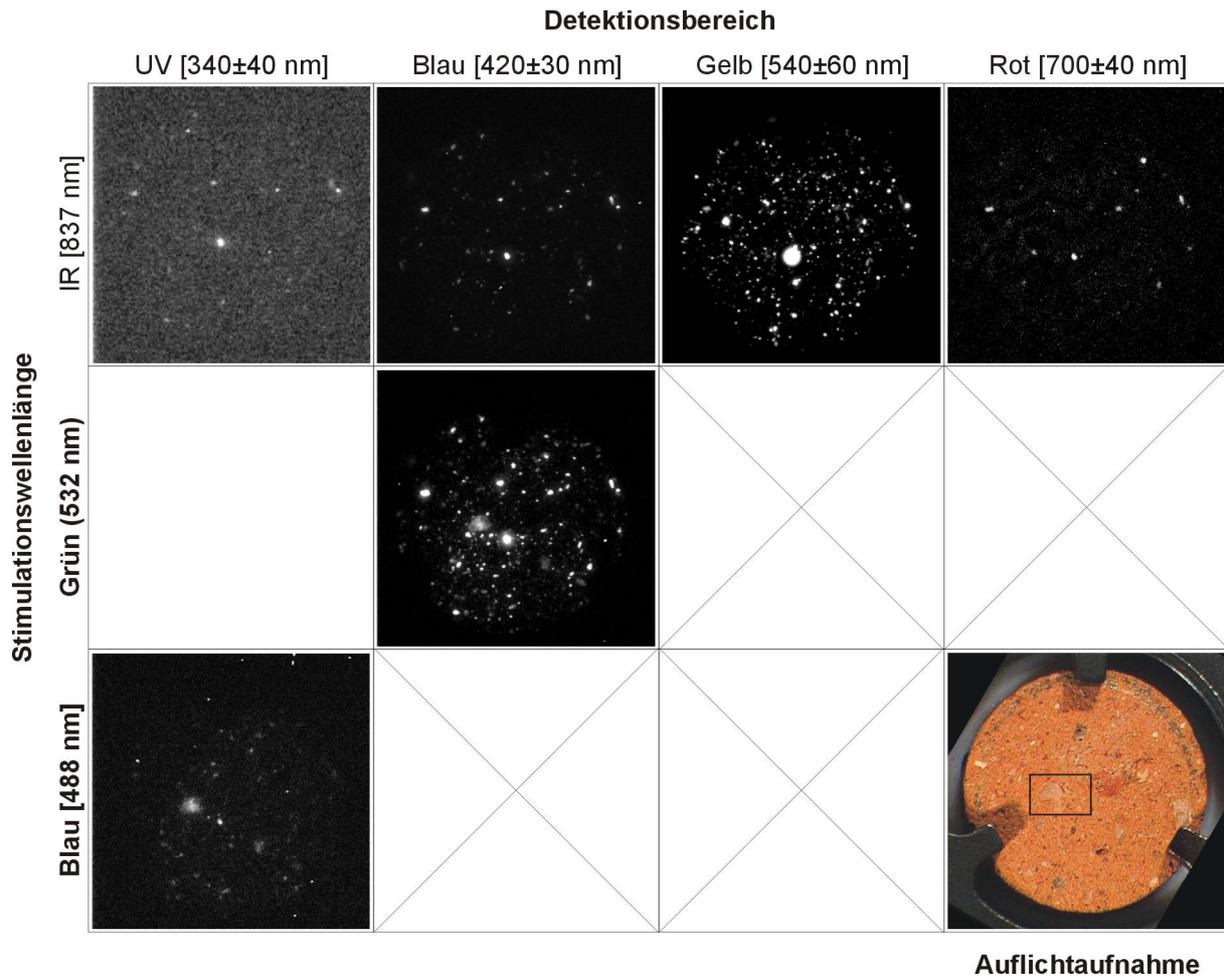


Abbildung 5.9: Lumineszenz an einer Keramikfläche bei unterschiedlichen Stimulationswellenlängen und Detektionsbereichen.

5.2.2.2 Polymineralische Sedimentproben

Einer spätglazialen Düne bei Sandhausen südlich von Heidelberg (HDS1335 und 1336) und dem mittelpleistozänen Fundplatz des *Homo heidelbergensis* bei Mauer (HDS1337) wurden Sedimentproben entnommen. Sie wurden unaufbereitet auf Probeträger aufgebracht. Da keine Dunkelproben verwendet wurden, sondern das natürliche Lumineszenzsignal bereits durch Licht gebleicht worden war, wurden die Proben mit ca. 25 bzw. 150 Gy bestrahlt. Diese Werte entsprechen ungefähr den erwarteten geoarchäologischen Äquivalenzdosen [Kadereit, pers. Mitteilung]. Danach wurden die grün stimulierte (Auflösung 50 µm) und die infrarot stimulierte (Auflösung 100 µm) Lumineszenz im blauen Bereich aufgenommen. Bereits der gute Kontrast der Bilder in Abb. 5.11 zeigt die hohen Signalintensitäten, die gemessen wurden. Wie schon bei der Keramikprobe in Abschnitt 5.2.2.1 sind einige Körner bei grüner, nicht aber bei infraroter Stimulation zu erkennen (roter und orange-farbener Kreis). Es liegt nahe, dass sich auch hier Feldspat- und Nicht-Feldspatkomponenten unterscheiden.

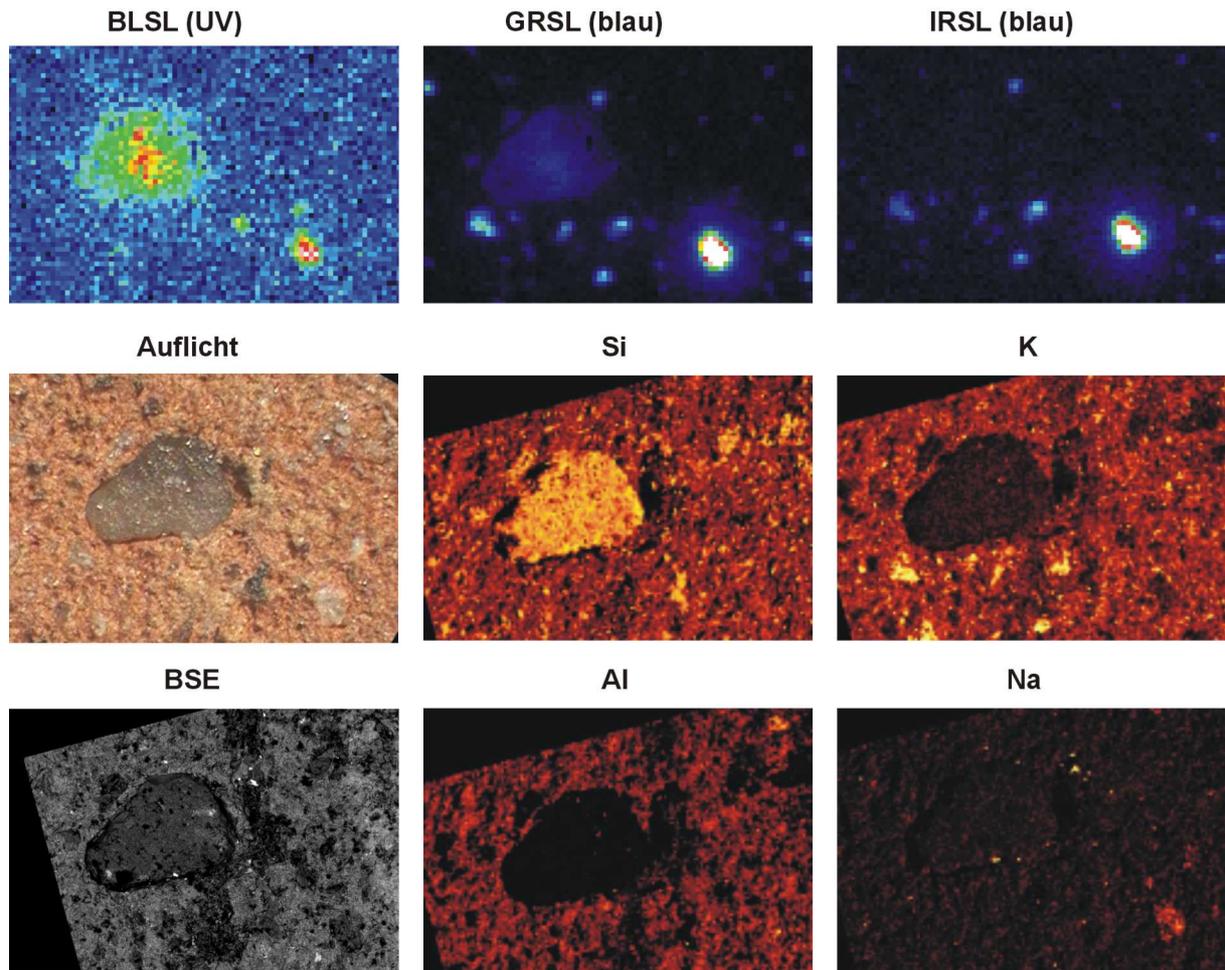


Abbildung 5.10: Vergrößerter Ausschnitt der Probe K866S1. Im Elektronenrückstreubild (BSE) sind die Punkte für die Elementanalysen markiert.

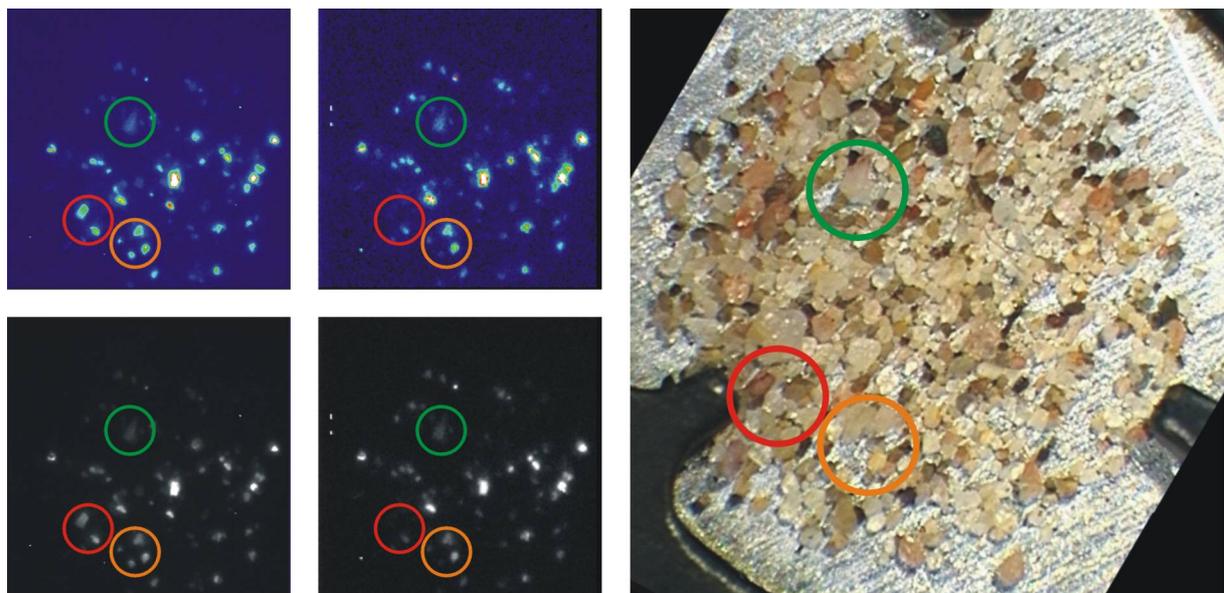


Abbildung 5.11: GRSL (links, oben Spektralfarben, unten Graustufendarstellung) und IRSL (Mitte) einer unaufbereiteten Sedimentprobe (HDS1337). Rechts eine Auflichtaufnahme. Die Zählereignisse der GRSL-Aufnahme liegen bei gleicher Dosis für die hellsten Körner ungefähr eine Größenordnung über denen der IRSL-Aufnahme.

Grundsätzlich lässt sich auf dem LasLUM I also auch die Lumineszenz von Sedimenten hochaufgelöst zu untersuchen. Dies ist besonders dann interessant, wenn es gelingt, die Probe in ihrem ursprünglichen Zusammenhang zu belassen und eine Grenzfläche herzustellen. Hier muss aber nach einem nicht lumineszierenden und gleichzeitig hitzebeständigen (Vorheizen bis zu 280 °C) Material zum Einbetten gesucht werden. Eventuell sind auch Messungen von vielen Einzelkörnern außerhalb des ursprünglichen Probenverbandes interessant, da die Präparation weniger aufwendig und die parallele Messung schneller als für herkömmliche ‚single grain‘-Analysen ist. Zudem könnten die Möglichkeiten der statistischen Auswertung mit der Software AGESGALORE (s. 4.4) genutzt werden.

5.2.3 Räumliche Verteilung der zeitlichen Eigenschaften der OSL

Bei hinreichender Signalintensität können die Belichtungsintervalle einer ortsaufgelösten OSL-Messung so kurz gewählt werden, dass die Signalabnahme (Ausleuchtcurve) zu verfolgen ist (Abb. 5.12).

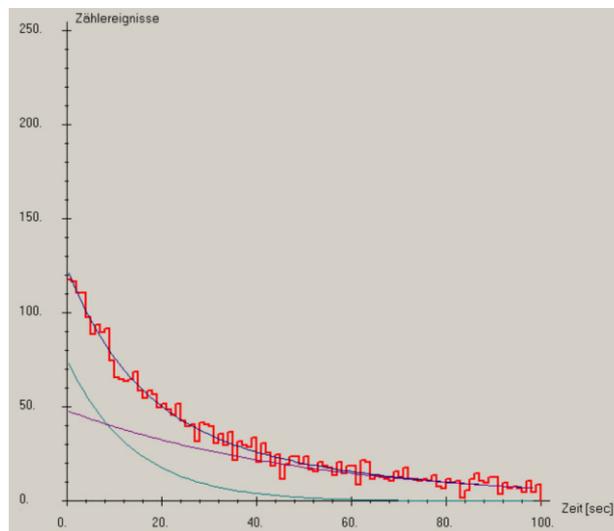


Abbildung 5.12: Darstellung einer Ausleuchtcurve im Programm AGESGALORE. An die Originaldaten (rot) wird eine doppel-logarithmische Kurve angepasst (blau), die in eine „schnelle“ (türkis) und eine „langsame“ (violett) Komponente zerfällt.

5.2.3.1 α -Al₂O₃:C

Ein α -Al₂O₃:C-Pellet wurde mit 4,5 Gy bestrahlt und in 90 Schritten zu je 10 s (15 Minuten insgesamt) bei grüner Stimulation mit einer Auflösung von 75 x 75 μ m ausgelesen. Die Detektion fand im blauen Bereich statt.

An die Daten wurden drei Modelle angepasst. Das doppelt-logarithmische Modell zeigt dabei die höchste Korrelation zu den Messdaten, was sich im Median der Korrelationskoeffizienten aller auf der Probe untersuchten Flächen widerspiegelt (Tabelle 5.4). Die Ausleuchtcurven zerfallen mithin also eine schnelle (Index f) und eine langsame (Index s) Komponente. Die Fläche unter den Kurven wird durch das Integral

$$I_{i=f,s}^{ges} = \int_0^{\infty} I_i \cdot e^{-a_i \cdot t} \cdot dt = \left[-\frac{I_i}{a_i} \cdot e^{-a_i \cdot t} \right]_0^{\infty} = \frac{I_i}{a_i} \quad (5.2)$$

ausgedrückt und gibt die gesamte, einer Komponente zugeordnete Intensität an. Die Parameter des doppelt-logarithmischen Modells wurden wiederum als Bilder dargestellt (Abb. 5.13). In den Verteilungen ist der Einfluss der in 5.2.1 beschriebenen Inhomogenitäten in der OSL-

Verteilung sichtbar. Wie zuvor bei der Frage einer eventuellen Heterogenität der Bestrahlung können Gradienten in der räumlichen Verteilung der Laserleistung die Effekte nicht erklären (s. Form des Laserspots, Abb. 4.16). Es zeigt sich, dass Bereiche, für die als Ursache ihrer geringeren Sensitivität eine ebenfalls geringe Defektdichte vermutet wurde, auch ein langsames Ausleuchtverhalten aufweisen. Bei einer räumlich nahezu homogenen Laserleistung wird die Probe von einer konstanten Zahl von Photonen pro Zeit- und Flächeneinheit durchdrungen. So ist auch die Wahrscheinlichkeit einer Wechselwirkung mit einem in einer Falle befindlichen Elektron (und damit die Abklingrate der OSL) der Defektdichte proportional.

Modell	Median der Korrelationskoeffizienten
Einfach-logarithmisch	0,977
Doppelt-logarithmisch	0,999
Gestreckt-logarithmisch	-

Tabelle 5.4: Median der Korrelationskoeffizienten für die Modellanpassung eines α -Al₂O₃:C-Pellets. Für das gestreckt-logarithmische Modell konnte kein Wert ermittelt werden, da die Messdaten keiner der insgesamt ca. 3000 Flächen auf der Probe angepasst werden konnten. Dieses im Vergleich zur Probe OPFIS2 striktere Verhalten der Anpassungsroutine kann mit der höheren Signalintensität, also den geringen Zählfehler jeder Einzelmessung begründet werden. Da die Verteilung der Korrelationskoeffizienten sehr stark von der Normalverteilung abwich (rechtsschiefe, monomodale Verteilung) wurde der Median als Schätzer gewählt.

5.2.3.2 Feldspathhaltige Granitoberfläche

Die Probe OPFIS2 wurde 80 min im LM1 (entsprechend ca. 290 Gy) bestrahlt, und die infrarot stimulierte Lumineszenz im blauen Emissionsbereich in 100 Schritten zu jeweils einer Sekunde mit einer Auflösung von 25 x 25 μ m ausgelesen. Die im Vergleich zur α -Al₂O₃:C Probe kürzere Auslesezeit war möglich, da nur mit einem Objektiv gearbeitet wurde, was die Laserleistung am Ort der Probe erhöhte. Die Daten wurden dabei jeweils vier auf vier Messpunkte zusammengefasst, was eine erhebliche Reduktion des Rauschens für die Parameter ermöglichte. Auch hier beschrieb das doppelt-logarithmische Modell die Daten am besten (Tab. 5.5).

Modell	Median der Korrelationskoeffizienten
Einfach-logarithmisch	0,978
Doppelt-logarithmisch	0,993
Gestreckt-logarithmisch	0,198

Tabelle 5.5: Median der Korrelationskoeffizienten für die Modellanpassung der Probe OPFIS2.

Es ist in Abb. 5.14 zu erkennen, dass auch die Feldspatkomponenten der Probe (s. Analysen in 5.2.1) sich klar in ihrem zeitlichen Verhalten ihrer OSL-Signale unterscheiden. Dies gilt für das Verhältnis der Abklingraten zwischen schneller und langsamer Komponente ebenso wie für das der Ausgangsintensitäten und der Gesamtintensitäten. Bei den Plagioklas-Anteilen überwog im Gegensatz zum Kali-Feldspat die schnelle Komponente.

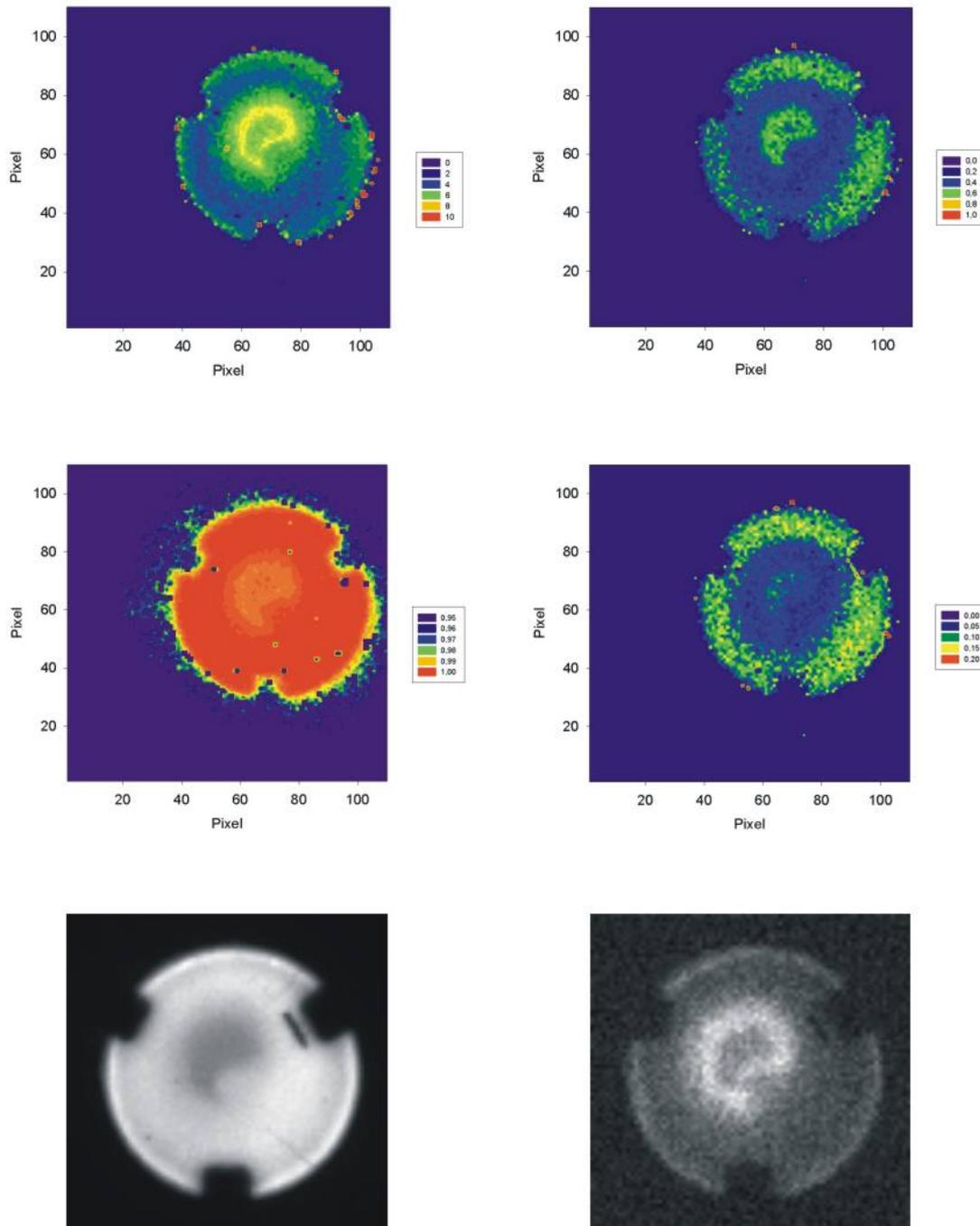


Abbildung 5.13 – Parametrisierung der Ausleuchtcurven eines $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Pellets. Links oben das Verhältnis der Raten a_f / a_s , rechts daneben das der Ausgangsintensitäten I_f / I_s . Mitte links: Korrelationskoeffizient r^2 für das doppelt-logarithmische Modell, Mitte rechts: Verhältnis der Gesamtintensitäten der schnellen und der langsamen Komponente. In der unteren Reihe ist die Signalverteilung der ersten Sekunde der der 100. Sekunde gegenübergestellt.

Dies wird auch in den relativen Signalstärken des ersten und des letzten gemessenen Bildes der Ausleuchtcurve deutlich. Eine vergleichbar einfache Erklärung wie für die $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Probe kann natürlich nicht gegeben werden, es ist aber auffällig, dass auch hier Bereiche mit höherer OSL-Intensität schnellere Abklingraten aufweisen.

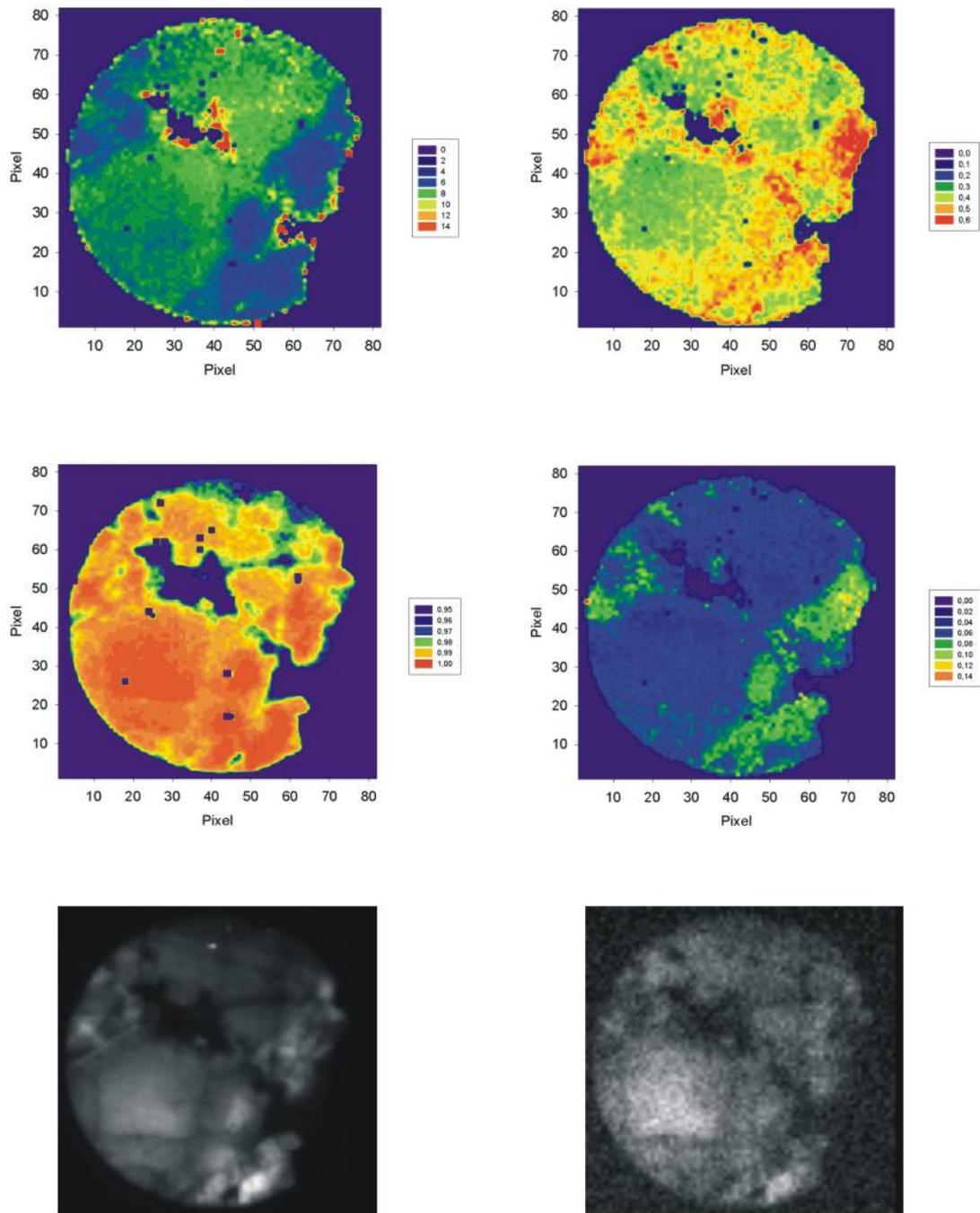


Abbildung 5.14: Parametrisierung der Ausleuchtcurven der Probe OPF1S2. Die Anordnung der Bilder entspricht derjenigen in Abb. 5.13.

5.3 Bestimmung von Labordosen

5.3.1 Bestimmung von Äquivalenzdosen an einem künstlichen Luminophor

Ein α -Al₂O₃:C-Pellet wurde mit sechs unterschiedlichen Labordosen (0-5 s in 1 s-Schritten) im LM2 bestrahlt und die grün stimulierte Lumineszenz im blauen Wellenlängenbereich gemessen. Die Belichtung fand in fünf Intervallen zu je 180 s statt. Zur Auswertung wurde jeweils die OSL-Intensität des ersten Intervalls genutzt. Die Messungen in 5.2.3 hatten gezeigt, dass das OSL-Signal während dieser Zeit auf unter 1 % des Ausgangswertes absinkt. Auf eine zusätzliche Bleichung des Signals konnte daher verzichtet werden.

Die Daten wurden für vier Auswertungen genutzt, bei denen jeweils eine der Messung (1 s, 2 s, 3 s bzw. 4 s Bestrahlung) als natürliches Lumineszenzsignal behandelt wurde. Mit Hilfe der anderen Messungen wurde getestet, wie gut die Labordosis aus den hochaufgelösten Daten mit Hilfe des MASS-Protokolls ermittelt werden konnte.

Als Filterkriterium für den Einschluss der Einzel-Äquivalenzdosen in die Berechnung wurde ein Korrelationskoeffizient der jeweiligen Wachstumskurve zum linearen Modell von

$$r^2 \geq 0,9982$$

vorausgesetzt. Dies entspricht für vier Freiheitsgrade einer Konfidenzschwelle von 1‰. Bei einer von 1000 Wachstumskurven wird so zu Unrecht auf einen linearen funktionalen Zusammenhang zwischen Bestrahlungsdauer und OSL-Signal geschlossen. Weitere Filter wurden nicht angewandt.

Da die Kalibration der verwendeten Quellen z. Z. einen reinen Multiplikationsfaktor darstellt, wurde auf die Angabe der Dosis in Gy verzichtet. Stattdessen wird im Folgenden die Bestrahlungsdauer in Sekunden sowie die „Äquivalenz-Bestrahlungsdauer“ angegeben. Letztere findet sich auch bei weiteren Messungen als Bezeichnungen für Werte, die noch nicht in Gray umgerechnet wurden.

So gut wie alle Messpunkte auf der Probe erfüllten das angelegte Kriterium der Linearität der Wachstumskurve (Abb. 5.15, rechts oben). Das Fehlen einzelner Werte ist auf Einschläge kosmischer Teilchen in einer der Messungen zurückzuführen, die einen Ausreißer in der Wachstumskurve erzeugen. Dies sorgt für einen signifikant schlechteren Korrelationskoeffizienten und führt zum Ausschluss des Messpunktes von der Auswertung.

Die Ergebnisse in Tab. 5.6 (graphische Darstellung Abb. 5.15) zeigen, dass die ermittelten Äquivalenz-Bestrahlungsdauern für alle vier Fälle sehr gut mit den Werten der Laborbestrahlung bereits in den Fehlern für die Bestrahlungszeit übereinstimmen. Es ist auch zu erkennen, dass die Breite der Verteilung für die Einzel-Äquivalenzdosen im Bereich der Zählfehler liegt, womit dieser als der dominante statistische Prozess gelten kann. Der Fehler des Mittelwerts jedoch wird durch die große Zahl der betrachteten Flächen verschwindend gering, so dass die Auswirkungen der Temperatur-Drift am Kamerakopf zur entscheidenden Fehlerquelle werden. Die berechneten relativen Fehler der Einzelflächen (Abb. 5.16) werden vom Zählfehler dominiert, wie man vor allem an den dunkleren Stellen am Rand der Probe beobachten kann.

Bestrahlungsdauer [s]	1,0±0,1	2,0±0,1	3,0±0,1	4,0±0,1
Dosis [mGy]	15,0±1,5	30,0±1,6	45,0±1,7	60,0±1,8
Entsprechende Expositionszeit in Standard-Löss [a]	6,0	12,0	18,0	24,0
Entsprechende Expositionszeit auf Granit-Scheibe [a]	2,1	4,2	6,3	8,3
Äquivalenz-Bestrahlungsdauer [s]	0,960	2,015	3,017	4,009
1 σ -Breite Verteilung [s]	0,025	0,032	0,039	0,047
Zählereignisse im Mittel	1321±226	2712±456	4051±671	5377±887
Statistischer Zählfehler	36,3±3,2 2,74±0,24 %	52,1±4,6 1,92±0,17 %	63,7±5,6 1,57±0,14 %	73,3±6,3 1,36±0,12 %
Verwendete Flächen	3441	3395	3309	3230
Statistischer Fehler des Mittelwerts	4,2·10 ⁻⁴ 0,04 %	5,5·10 ⁻⁴ 0,03 %	6,8·10 ⁻⁴ 0,02 %	8,2·10 ⁻⁴ 0,02 %
Max. Drift [s]	(4,4±0,6)·10 ⁻³ 0,45±0,07 %	(6,3±0,4)·10 ⁻³ 0,31±0,02 %	(8,4±0,2)·10 ⁻³ 0,28±0,01 %	(1,07±0,03)·10 ⁻³ 0,27±0,01 %

Tabelle 5.6: Bestimmung von Äquivalenz-Bestrahlungsdauern an einem α -Al₂O₃:C-Pellet. Die korrespondierenden Expositionszeiten für einen Standard-Löss beruhen auf den Dosisleistungswerten des Standard-Materials „Nussi“ [Rieser, 1991], diejenigen für eine Granitscheibe auf Berechnungen von Habermann[2000].

Als Größe zum Vergleich der Sensitivitäten verschiedener Proben ist die Zahl der normierten Lumineszenz-Zählereignisse (CtsN) angegeben (Abb. 5.15, links oben). Sie wurde errechnet, indem die Photonenzahl des Lumineszenzsignals der hellsten Fläche auf der Probe durch die Messzeit, die Bestrahlungsdauer und die Zahl der zusammengefassten CCD-Bildpunkte dividiert wurde. Aufgrund der Nicht-Linearitäten kann diese Zahl natürlich nur als grober Schätzer genutzt werden.

In Tabelle 5.7 ist die Bestimmung der Äquivalenz-Bestrahlungsdauer in Abhängigkeit vom gewählten Ausleseoffset dargestellt. Aufgrund der hohen Intensitäten wirkt sich die Verschiebung im Falle der vorliegenden Messung nur gering aus – bei Proben mit nur wenigen Zählereignissen kann der Effekt jedoch erheblich sein. Es ist zu erkennen, dass der Wert, der der vorgegebenen Labordosis am nächsten liegt, auch die geringste Verteilungsschiefe und Standardabweichung aufweist.

$\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$

Helligkeit: 6200 mCtsN

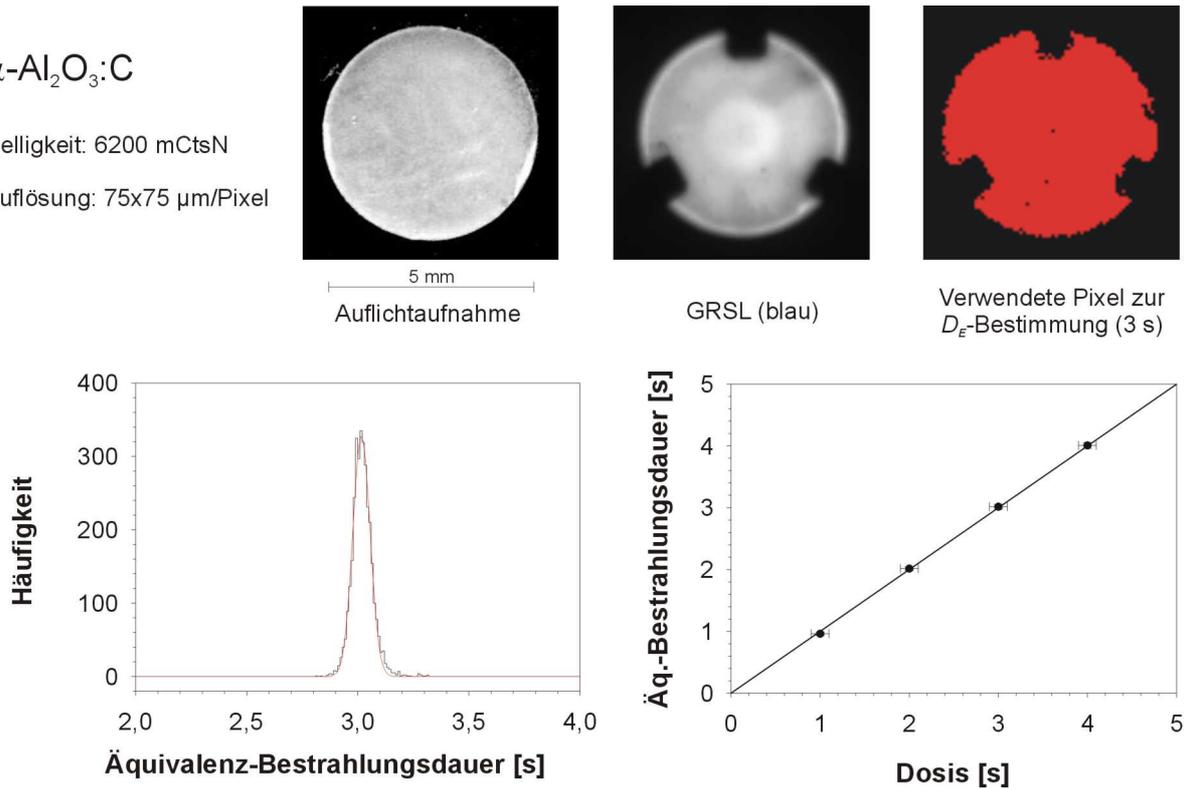
Auflösung: 75x75 $\mu\text{m}/\text{Pixel}$ 

Abbildung 5.15: Bestimmung der Äquivalenz-Bestrahlungsdauern an einem $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Pellet. Obere Reihe: Auflichtaufnahme, Lumineszenzbild und die in die Analyse eingeschlossenen Punkte (für die Bestimmung der 3 s-Laborbestrahlung, rot markiert). Links unten die Verteilung der Äquivalenz-Bestrahlungsdauern der Einzelflächen (wiederum für die 3 s-Laborbestrahlung). Rechts unten die für die Laborbestrahlungen ermittelten Äquivalenz-Bestrahlungsdauern.

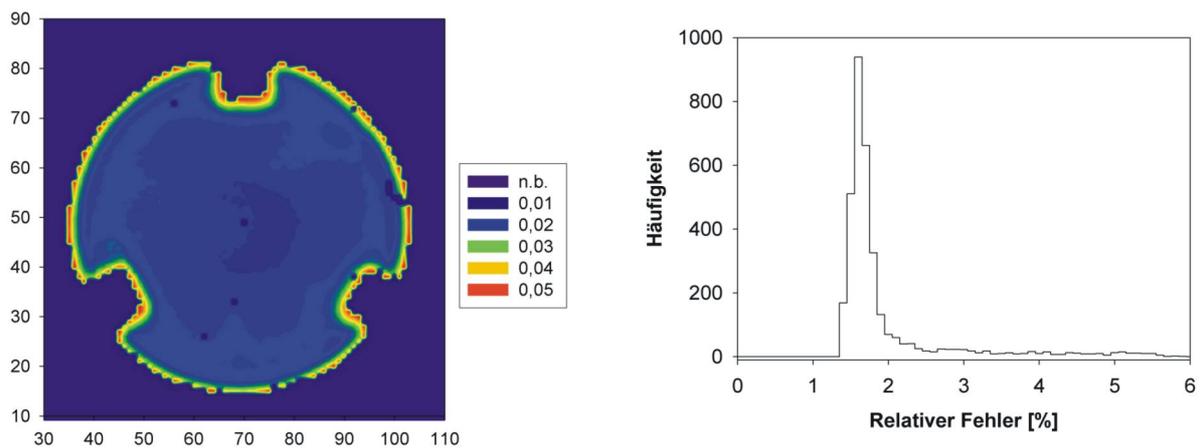


Abbildung 5.16: Relative Fehler der Äquivalenz-Bestrahlungsdauern der 3 s-Laborbestrahlung. Das Maximum der Verteilung liegt bei 1,6 % (s. a. Tab. 5.6).

Die Auswirkungen des Ausleseoffsets auf die Schiefe kann man sich wie folgt vergegenwärtigen: der statistische Zählfehler eines Punktes ist vor allem durch die Wurzel der Zählereignisse gegeben. Ist der abgezogene Betrag des Ausleseoffsets nun zu klein, so ist die Wurzel des Restbetrages größer als das eigentliche statistische Rauschen. Durch die Umrechnung von Intensität in Bestrahlungsdauer mit Hilfe der Wachstumskurve werden die Intensitäten nun normiert und die Verschiebung wird sichtbar, indem die Verteilung sich zu größeren Werten neigt. Der umgekehrte Effekt tritt auf, wenn ein zu großer Betrag subtrahiert wird. In beiden Fällen aber verbreitert sich die Verteilung.

Da nicht auszuschließen ist, dass bei der halbautomatischen Methode zur Ermittlung des Ausleseoffset durch die Auswertesoftware (4.4.1) auch Signalanteile mit eingeschlossen werden, kann die Aufnahme von Leerbildern, d. h. Aufnahmen, bei denen der Verschluss der Kamera geschlossen bleibt, unmittelbar im Anschluss an die OSL-Messung erfolgen. Aus diesen kann der Wert des Ausleseoffsets ohne Signaleinfluss ermittelt werden. Eine andere Methode ist die *late light*-Korrektur, bei der neben dem Restsignal auch der Ausleseoffset subtrahiert wird. Interessant wäre sicher auch die Anwendung ausgefeilterer Rauschreduktionsverfahren, die z. B. auf einer Fourier-Transformation beruhen, statt der bloßen Subtraktion des Mittelwerts.

In Tab. 5.7 werden auch mehrere Schätzer für die Äquivalenz-Bestrahlungsdauer verglichen. Neben dem Mittelwert kann auch der Median der Häufigkeitsverteilung, ihr Maximum oder der Zentralwert einer angepassten Gauß-Kurve dienen. Die Unterschiede sind im vorliegenden Fall gering. Gehen aber Bereiche unterschiedlicher Äquivalenzdosen in die Häufigkeitsverteilung ein, so müssen die Intervalle, für die Mittelwert bzw. Median berechnet werden, mit Bedacht gewählt werden. Das Maximum ist dann immer noch ein guter Schätzer, aber wird zunehmend unzuverlässig für geringe Anzahlen an Messwerten. Hier besitzt die Verwendung einer angepassten Gauß-Kurve Vorteile, da sie auf einen Bereich der Verteilung wie ein Tiefpassfilter wirkt. Alle diese Möglichkeiten sind in AGESGALORE implementiert.

Ausleseoffset	135	145	155	165	175	185
Schiefe k	0,4559	0,2928	0,1373	0,0209	-0,1790	-0,3434
Mittelwert x	3,0403	3,0314	3,0227	3,0138	3,0050	2,9962
St.-Abw. σ	0,0419	0,0411	0,0406	0,0406	0,0410	0,0417
Maximum x_m	3,0392	3,0072	3,0227	3,0156	2,9964	2,9424
x_c (Gauß)	3,0366	3,0287	3,0210	3,0131	3,0051	2,9971
σ (Gauß)	0,0309	0,0379	0,0377	3,7524	0,0373	0,0372

Tabelle 5.7: Veränderung der Ergebnisse der Äquivalenzdosis-Bestimmung (3 s-Bestrahlung) an einem α - Al_2O_3 :C-Pellet in Abhängigkeit vom Ausleseoffset.

OPF1S2

Granit Leuchtenburg

Helligkeit: 25,7 mCtsN

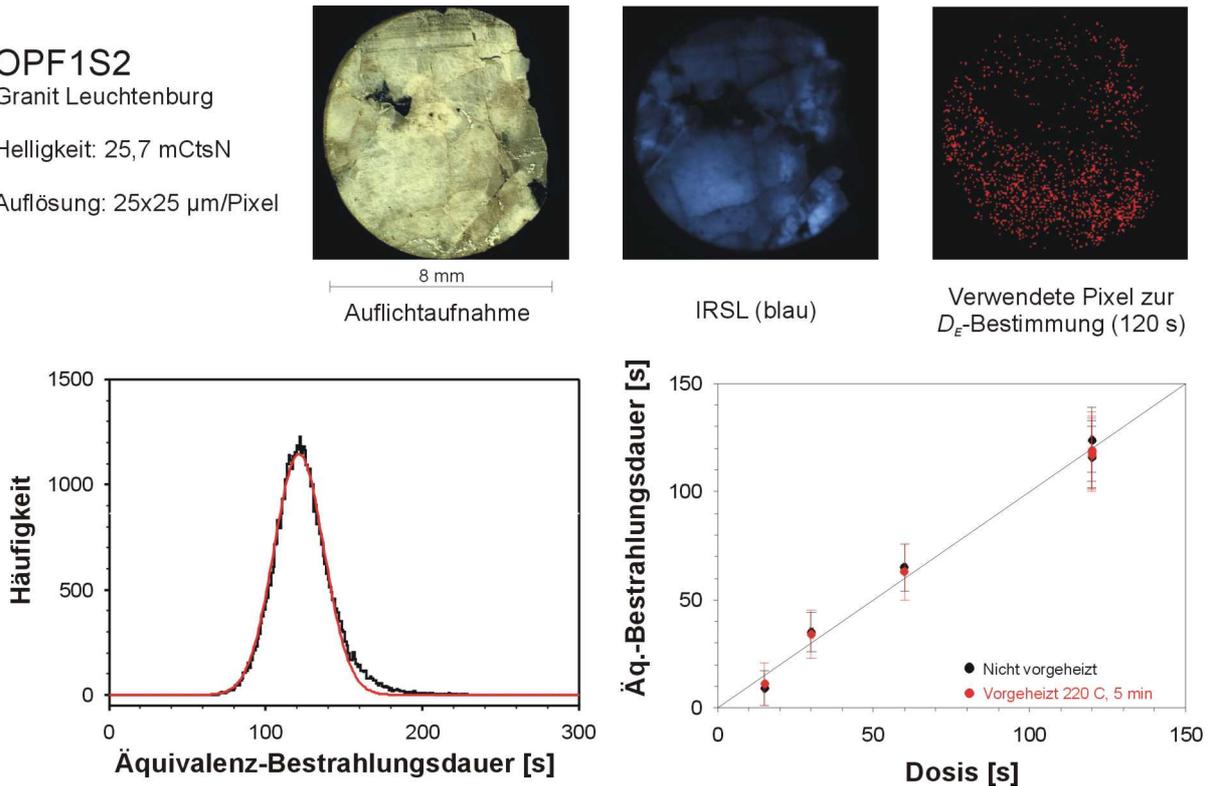
Auflösung: 25x25 $\mu\text{m}/\text{Pixel}$ 

Abbildung 5.17: Bestimmung der Äquivalenz-Bestrahlungsdauern für die Probe OPF1S2. Links unten ist die Verteilung der Äquivalenz-Bestrahlungsdauern für die Einzelflächen (120 s-Bestrahlung a) gezeigt. Rechts unten der Vergleich der Äquivalenz-Bestrahlungsdauern mit den Labordosen.

5.3.2 Bestimmung von Äquivalenzdosen an natürlichen Proben (blaue Emission)

Die in 5.1. beschriebenen feldspathhaltigen Proben OPF1S2, MED3S1 und MED1S1 wurden verwendet, um an natürlichen Proben die Bestimmung einer zuvor applizierten Labordosis zu testen. Die Dosen (ca. 1 – 15 Gy) lagen dabei in einem für archäologische Artefakte üblichen Bereich. Um den Sensitivitäten der Proben gerecht zu werden, wurde die Auflösung angepasst. Die sechs Labor-Bestrahlungszeiten betragen 0, 15, 30, 60, 120 und 240 s. Die 120 s-Bestrahlung wurde dreimal vorgenommen. Vor jeder Bestrahlung wurden die Proben 20 Minuten im SOL2-Sonnenlichtsimulator (mit UV-Filterglas) gebleicht und anschließend 5 Minuten bei 220 °C vorgeheizt, um ein eventuelles, durch kurzwellige Anteile des Bleichlichtes hervorgerufenen, kurzlebigen Signal auszuschließen [Habermann, 2000]. Die Proben waren bereits einige Mal zuvor im Labor strahlt und ausgelesen worden, weshalb davon auszugehen war, dass die Sensitivität annähernd unverändert blieb [Robertson, 1991]. Daher wurde auf Normierungsmessungen verzichtet.

MED3S1

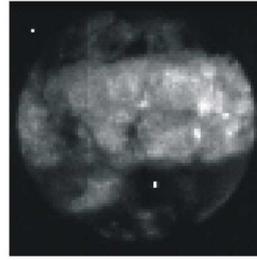
Syenit Assuan (Ägypten)

Helligkeit: 2,46 mCtsN

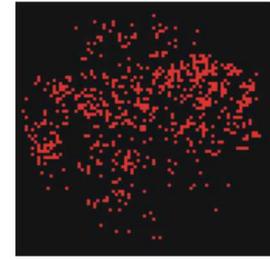
Auflösung: 100x100 $\mu\text{m}/\text{Pixel}$



8 mm
Auflichtaufnahme



IRSL (blau)



Verwendete Pixel zur D_E -Bestimmung (120 s)

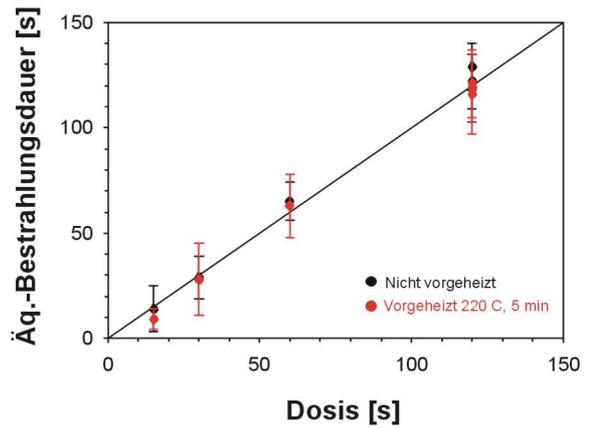
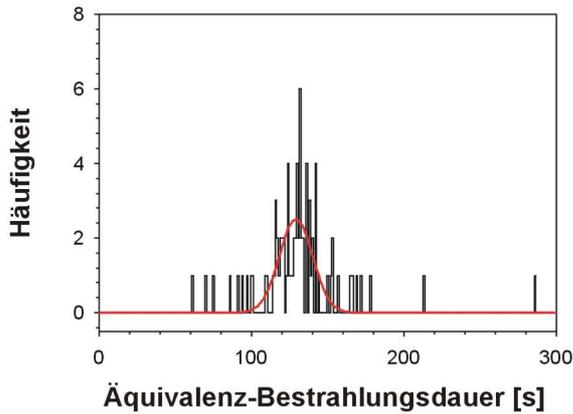


Abbildung 5.18: Bestimmung der Äquivalenz-Bestrahlungsdauern für die Probe MED3S1.

MED1S1

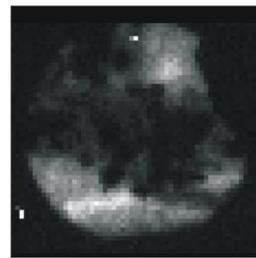
Granit Kestambul (Türkei)

Helligkeit: 0,334 mCtsN

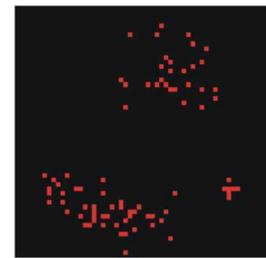
Auflösung: 150x150 $\mu\text{m}/\text{Pixel}$



8 mm
Auflichtaufnahme



IRSL (blau)



Verwendete Pixel zur D_E -Bestimmung (120 s)

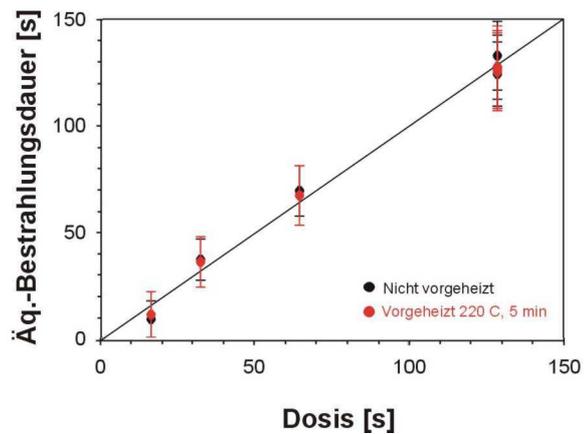
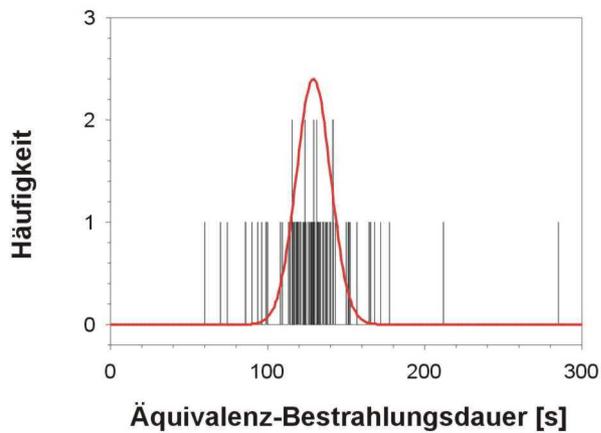


Abbildung 5.19: Bestimmung der Äquivalenz-Bestrahlungsdauern für die Probe MED1S1.

Laborbestrahlung [s]	15±0,1	30±0,1	60±0,1	120 ^a ±0,1	120 ^b ±0,1	120 ^c ±0,1
Entsprechendes K-Feldspat-Alter [a]	90	180	360	720	720	720
Entsprechendes Plagioklas-Alter [a]	1500	3000	6000	12000	12000	12000
<i>nicht vorgeheizt</i>						
Äq.-Bestrahlungsdauer [s]	9	35	65	124	116	119
1σ-Verteilungsbreite [s]	8	9	11	15	14	14
Zählereignisse im Mittel	12	26	50	90	90	90
Zählfehler	29 %	20 %	14 %	11 %	11 %	11 %
Verwendete Flächen	4105	4570	5540	5819	5819	5820
Statistischer Fehler des Mittelwerts [s]	0,13 1,4 %	0,13 0,4 %	0,15 0,2 %	0,20 0,2 %	0,18 0,2 %	0,18 0,2 %
Effekt Drift und Effizienzschwankung [s]	6 42 %	6 19 %	6 10 %	7 5,6 %	7 5,6 %	7 5,6 %
<i>vorgeheizt</i>						
Äq.-Bestrahlungsdauer [s]	11	34	63	119	117	118
1σ-Verteilungsbreite [s]	10	11	13	18	17	17
Zählereignisse	10	20	40	70	70	70
Zählfehler	32 %	22 %	16 %	12 %	12 %	12 %
Verwendete Flächen	2163	2471	3094	3716	3784	3784
Statistischer Fehler des Mittelwerts [s]	0,22 2,0 %	0,22 0,7 %	0,23 0,4 %	0,30 0,3 %	0,28 0,2 %	0,28 0,2 %
Effekt Drift und Effizienzschwankung [s]	6 50 %	9 25 %	8 13 %	9 7,2 %	9 7,2 %	9 7,2 %

Tabelle 5.8: Numerische Ergebnisse der Bestimmung der Äquivalenz-Bestrahlungsdauern für die Probe OPF1S2. Die Feldspat-Abdeckungsalter beruhen auf den Berechnungen von Habermann [2000].

Zunächst wurden die Proben nach den Laborbestrahlungen ohne ein weiteres Vorheizen gemessen. Eine komplette zweite Wachstumskurve wurde danach jeweils mit einem Vorheizen von 5 Minuten bei 220 °C nach der Bestrahlung aufgebaut. Als OSL-Intensitätswert wurde das erste von drei gemessenen 60 s-Intervallen der infrarot stimulierten Lumineszenz im blauen Wellenlängenbereich benutzt. Nicht durchgeführt wurde die Auswertung für die Endpunkte der Wachstumskurve, d. h. für die Bestrahlungen von 0 s und 240 s. Die drei 120 s-Messungen wurden getrennt ausgewertet, so dass sich insgesamt sechs Auswertungen für die nichtvorgeheizten und sechs Auswertungen für die vorgeheizten Proben ergaben.

Laborbestrahlung [s]	15±0,1	30±0,1	60±0,1	120 ^a ±0,1	120 ^b ±0,1	120 ^c ±0,1
	<i>nicht vorgeheizt</i>					
Äq.-Bestrahlungsdauer [s]	10±5	30±6	65±8	130±19	123±16	126±12
Verwendete Flächen	213	199	291	617	617	617
	<i>vorgeheizt</i>					
Äq.-Bestrahlungsdauer [s]	10±5	34±6	65±8	122±14	42±8	118±13
Verwendete Flächen	23	41	40	46	46	761

Tabelle 5.9: Numerische Ergebnisse der Bestimmung der Äquivalenz-Bestrahlungsdauern für die Probe MED3S1.

Laborbestrahlung [s]	15±0,1	30±0,1	60±0,1	120 ^a ±0,1	120 ^b ±0,1	120 ^c ±0,1
	<i>nicht vorgeheizt</i>					
Äq.-Bestrahlungsdauer [s]	14±11	29±10	65±9	129±11	119±16	122±13
Verwendete Flächen	36	44	45	80	80	80
	<i>vorgeheizt</i>					
Äq.-Bestrahlungsdauer [s]	9±5	28±17	63±15	119±16	116±19	121±16
Verwendete Flächen	23	41	40	46	46	46

Tabelle 5.10: Numerische Ergebnisse der Bestimmung der Äquivalenz-Bestrahlungsdauern für die Probe MED1S1.

Die Abbildungen 5.17, 5.18 und 5.19 zeigen die Ergebnisse für die ermittelten Äquivalenz-Bestrahlungsdauern der drei Proben, die Zahlenwerte finden sich in den Tabellen 5.8 bis 5.10. Neben dem Aufsicht- und dem Lumineszenzbild sind jeweils im Bild rechts oben auch die Flächen markiert, die dem Kriterium zum Einschluss in die Auswertung genügten.

Die ermittelten Äquivalenz-Bestrahlungsdauern sind in der Lage, die Labordosis innerhalb der Fehler abzuschätzen. Außer in der durch ein geringeres OSL-Signal begründeten schlechteren Zählstatistik sind keine Unterschiede zwischen den Versuchen mit nicht vorgeheizten und denen mit vorgeheizten Proben festzustellen. Abb. 5.20 zeigt die Verteilung der relativen Fehler für die erste der nicht vorgeheizten 120 s-Messungen auf der Probenoberfläche der Probe OPF1S2. Deutlich zu erkennen ist der reziproke Zusammenhang mit der Helligkeit des Lumineszenzbildes. Das Maximum der Häufigkeitsverteilung liegt mit ca. 15 % über dem relativen Zählfehler. Hier wird der größere relative Einfluss der Drift, sowie eventueller Sensitivitätsänderungen bemerkbar. Abbildung 5.21 zeigt für die Probe OPF1S2 die von der Häufigkeitsverteilung zu ihrem Ursprung auf der Probe zurückverfolgten Äquivalenzdosen. Es sind keine Zusammenballungen zu erkennen, was eine homogene, statistische Verteilung der Beiträge zur Häufigkeitsverteilung unabhängig von Ort, Mineral und Helligkeit impliziert.

Für die Proben MED3S1 und MED1S1 ergibt sich ein analoges Bild, wobei aber die durch die geringere Sensitivität bedingte kleinere Zahl der zur Auswertung verwendeten Flächen beachtet werden muss. Der Ausreißer der 120 s-Bestrahlung b (vorgeheizt) ist auf ein korrespondierendes OSL-Bild mit um einen Faktor drei verringerten Intensitäten, aber einer für die Probe regulären Verteilung zurückzuführen. Es liegt nahe, dass MED3S1 in diesem Fall versehentlich mit einer falschen Vorgabe für die Labordosis bestrahlt wurde.

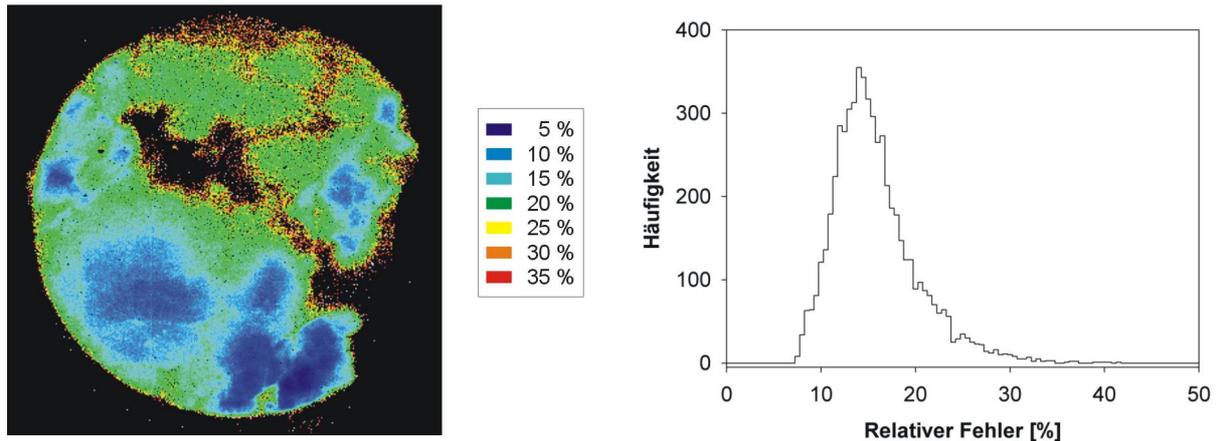


Abbildung 5.20: Räumliche (links) und Häufigkeits-Verteilung (rechts) der relativen Fehler der evaluierten Äquivalenzdosen für die Probe OPF1S2 (120 s-Bestrahlung a).

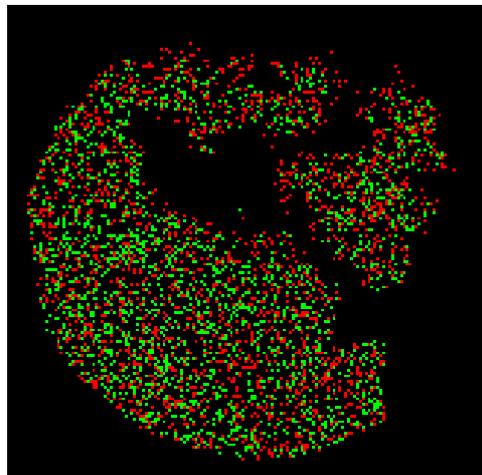


Abbildung 5.21: Zurückverfolgen der Einträge der Häufigkeitsverteilung zu ihrem Ursprung auf der Probenoberfläche (OPF1S2, 120 s-Bestrahlung a). Dabei sind Punkte, die Äquivalenz-Bestrahlungsdauern unter 120s repräsentieren, grün, solche für Bestrahlungsdauern über 120 s rot eingefärbt.

5.3.3 Bestimmung von Äquivalenzdosen an natürlichen Proben (gelbe Emission)

Für die Probe OPF1S2 wurde auch eine Wachstumskurve im gelben Detektionsbereich aufgenommen (Tab. 5.11). Durch die hohen Signal-Intensitäten bei gleichen Bestrahlungsdauern war wie im Falle des α -Al₂O₃:C-Pellets eine bessere statistische Aussagekraft gegeben. Nur für die 15 s-Laborbestrahlung stimmt die ermittelte Äquivalenz-Bestrahlungsdauer nicht mit der Vorgabe überein.

Laborbestrahlung [s]	15±0,1	30±0,1	60±0,1	120±0,1
Äq.-Bestrahlungsdauer [s]	12,3±1,6	28.0±2,1	60,1±3,1	126,0±7,5
Verwendete Flächen	28121	33168	36585	9769

Tabelle 5.11: Ergebnisse der Bestimmung der Äquivalenz-Bestrahlungsdauer der Probe OPF1S2 an der gelben IRSL-Emission. Man beachte die Zahl der verwendeten Flächen im Gegensatz zur analogen Messung der blauen Emission.

Offset	140	145	150	155	156	157	158	159	160	165	170
k	-0,180	-0,153	-0,116	-0,050	-0,032	-0,013	0,008	0,028	0,049	0,128	0,176
x_c	65,80	64,72	63,23	61,22	60,76	60,29	59,81	59,35	58,87	56,71	55,01
σ	5,63	5,38	5,094	4,79	4,74	4,68	4,68	4,68	4,68	4,93	5,22

Tabelle 5.12: Zentralwert und Breite der an die Häufigkeitsverteilung angepassten Gauß-Kurve in Abhängigkeit vom Ausleseoffset.

Nur für die 15 s-Laborbestrahlung stimmt die ermittelte Äquivalenz-Bestrahlungsdauer nicht mit der Vorgabe überein. Hier scheint sich wie schon bei den Messungen an der blauen IRSL-Emission bei geringen Zählraten ein zusätzlicher systematischer Einfluss bemerkbar zu machen, der aber noch nicht erklärt werden kann. Tab. 5.12 zeigt, dass auch bei dieser Probe die beste Bestimmung der Äquivalenz-Bestrahlungsdauer mit der geringsten Schiefe und kleinsten Breite der Häufigkeitsverteilung zusammenfallen.

5.3.4 Einfluss des Vorheizens auf die Signal-Verteilung einer natürlichen Probe

Die für die Ermittlung einer Labordosis durchgeführten Messungen erlauben noch weitere Untersuchungen, denn sie ermöglichen es, die Auswirkungen einer thermischen Behandlung der Probe ortsaufgelöst zu betrachten. Die OSL-Intensitätsverteilung einer vor- oder ausgeheizten Probe kann mit der Wachstumskurve, die ohne thermischen Einfluss gemessen wurden, verglichen werden. Bei diesem Vorgehen sind die ermittelten Äquivalenz-Bestrahlungsdauern nicht mehr als Schätzer für die Labordosis zu betrachten, sondern erlauben eine Quantifizierung des Signalverlustes durch thermische Einflüsse.

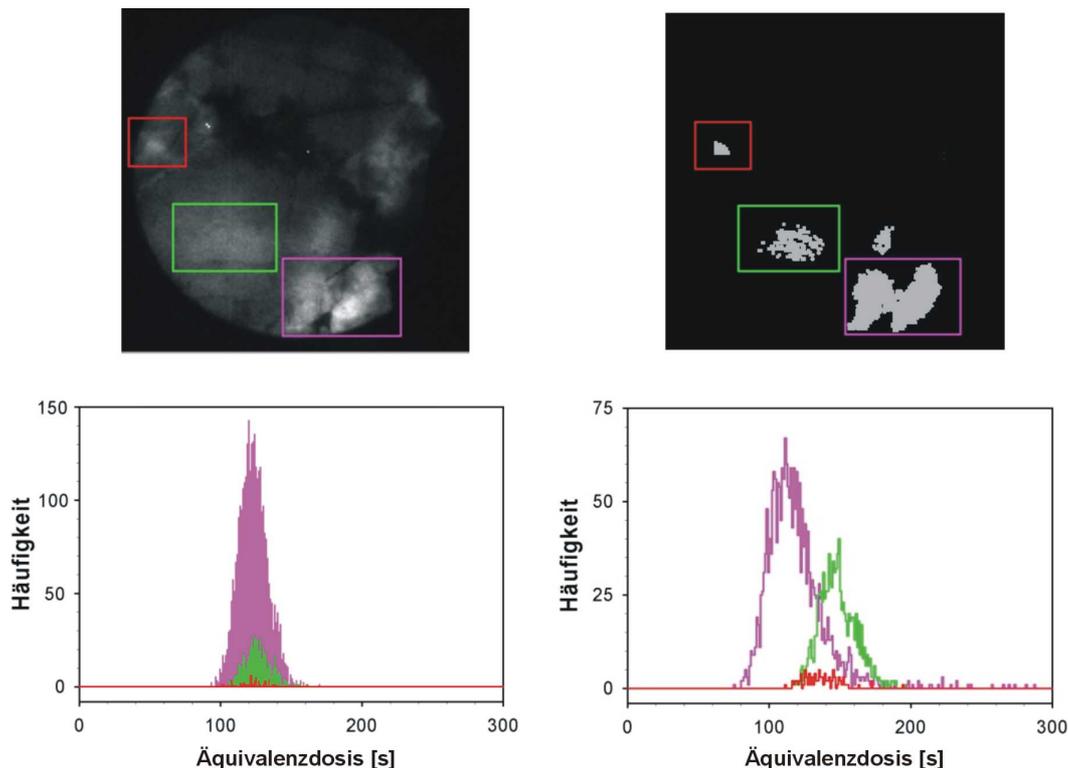


Abbildung 5.22: Einfluss des Vorheizens auf verschiedene Minerale der Probe OPFIS2. Die Daten wurden zunächst durch einen Korrelationsfilter mit sehr hohem Schwellenwert [$r^2 > 0,999$] isoliert (oben rechts) und anschließend drei Auswertungen für drei verschiedene ROIs durchgeführt. Beliebig geformte ROIs waren mit der damaligen AGESGALORE-Version noch nicht möglich.

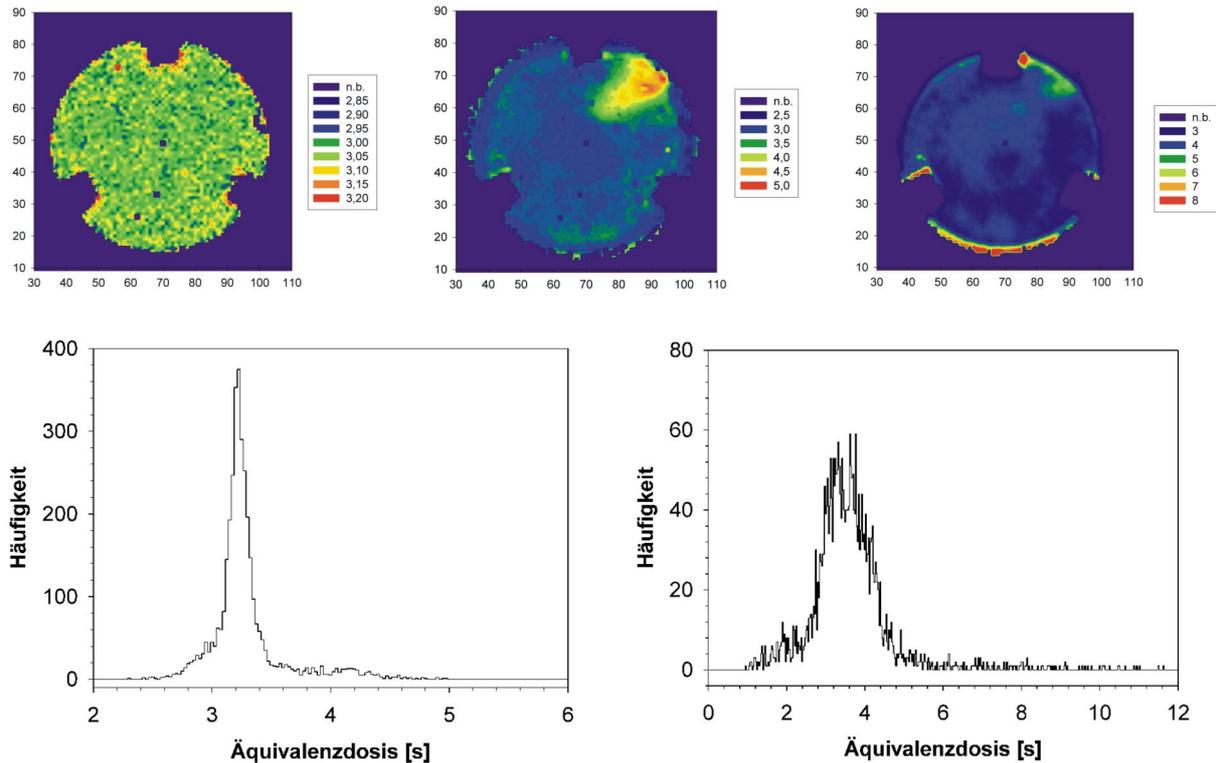


Abbildung 5.23: Einfluss des Ausheizens auf die Sensitivität eines $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Pellets. Links oben die Verteilung der Äquivalenz-Bestrahlungsdauern nach einer Laborbestrahlung von 3 s ohne Wärmebehandlung. In der Mitte das Ergebnis des gleichen Versuchs, wiederholt nach einer 30-minütigen Erwärmung auf 600 °C. Deutlich zu sehen ist, dass der Bereich links oben seine Sensitivität um ca. 70 % gesteigert hat. Das schlägt sich auch in der zugehörigen Verteilung (unten links) nieder. Bei einer weiteren Erwärmung über 14 h (Bild rechts oben) zeigt besonders der Rand starke Veränderungen. Die Häufigkeitsverteilung ist nun stark verbreitert (unten rechts).

Die Probe OPF1S2 wurde nach 20 min Bleichung (SOL2) mit 200 s bestrahlt (LM1) und daraufhin 5 Minuten lang auf 220 °C aufgeheizt. Nach Abkühlen auf Raumtemperatur wurde die infrarot stimulierte Lumineszenz im blauen Wellenlängenbereich gemessen. Die Auflösung betrug 25 x 25 μm , die Zeit einer Aufnahme 60 s.

Für die Auswertung wurden drei Bereiche definiert. Zunächst das Gebiet der Na-Ca-Feldspäte im rechten Teil der Probe (Abb. 5.22, violett markiert, s. a. Abb. 5.2), dann die Plagioklase im linken Teil (rot) und der untere Teil des zentralen Feldspates (grün). Gegenübergestellt sind die Ergebnisse für eine nicht vorgeheizte und die wärmebehandelte Probe. Während für erstere die applizierte Labordosis (120 s) für alle drei ROIs ermittelt wurde, weichen die Werte für die vorgeheizte Probe erheblich von der Labordosis (200 s) ab. Dabei unterscheidet sich das Verhalten in den einzelnen ROIs deutlich – während die Plagioklase im linken Teil nur wenig mehr Signalverlust aufweisen als der Kali-Feldspat, weicht für die rechten Na-Ca-Feldspäte der Mittelwert um ca. 80 – 90 s ab. Bei nicht orts aufgelösten Messungen wäre man auch in diesem Fall mit Mischsignalen konfrontiert. Die hochauflösende Technik aber ist in der Lage, auch Gradienten des thermischen Verhaltens zu erkennen und in den Äquivalenzdosis-Bestimmungen für jede betrachtete Fläche individuell zu berücksichtigen

5.3.5 . Einfluss des Ausheizens auf die Sensitivität eines α -Al₂O₃-Pellets

Der Effekt des Ausheizens auf die Sensitivität eines α -Al₂O₃:C-Pellet wurde räumlich dargestellt, indem zunächst eine Wachstumskurve (Dosen: 0 – 5 s in 1 s Schritten, Auflösung 100 x 100 μ m, 5 x 180 s Belichtungszeit) der Probe aufgenommen wurde und danach 3 s-Beirahlungen desselben Pellets nach unterschiedlichen Wärmebehandlungen gegen diese Wachstumskurve verglichen wurden. Das Ausheizen von Al₂O₃-Dosimetern auf 600° C und mehr wird routinemäßig zur vollständigen Rückstellung verwendet. Abbildung 5.23 zeigt die z. T. erheblichen Sensitivitätsänderungen der Probe. Es zeichnet sich zum einen ein Muster ab, das denen ähnelt, die in 5.2.3.1 bereits mit Unterschieden in der Defektdichte in Zusammenhang gebracht wurden. Zum anderen treten an den Rändern des Pellets starke Modifikationen auf. Aus bisherigen Messungen ist bekannt, dass die thermische Behandlung die Eigenschaften der Pellets verändert [Kalchgruber, 2002]. Die hier gezeigten Messungen aber weisen eine starke Ortsabhängigkeit dieser Änderungen nach. Über die Ursachen und den Grund für die Änderungen könnte hier aber nur spekuliert werden.

5.4 Bestimmung der natürlichen Dosis und Datierung

5.4.1 Burg Lindenfels

5.4.1.1 Äquivalenzdosis

Die Burg Lindenfels bei Bensheim im Odenwald (Abb. 5.24) wurde größtenteils aus dem in der Region anstehenden Granit errichtet. Weite Teile der Burg aus den zwei Phasen der Errichtung im 12. und 14. Jh. sind bis heute in ihrem Verbund ungestört [Hartnagel, Landesdenkmalamt Hessen, Außenstelle Bensheim, pers. Mitteilung]. Die in den Bausteinen darin enthaltenen großen Feldspäte sollten sich unter anderem aus Dosimetrie-Überlegungen [Habermann, 2000] für eine Oberflächendatierung besonders gut eignen. Durch Renovierungsmaßnahmen wurden Teile der in Abb. 5.24 grün markierten Mauern abgetragen, deren Steine noch mit dem Originalmörtel versehen waren. Einem dieser Steine wurden im Labor mehrere Bohrkerne entnommen. Nach Entfernen des Mörtels durch Salzsäure war ersichtlich, dass einer der Bohrkerne eine besonders wenig reliefierte Oberfläche aufwies, weshalb er zur Messung verwendet wurde.

Die Messung der grün stimulierten blauen Lumineszenz wurde in fünf 180 s-Intervallen durchgeführt. Zum Aufbau der Wachstumskurve wurde die Probe 60, 120, 240, 480, 960 und 1920 s im ELSEC 9022 (LM1) bestrahlt. Zwischen diesen Messungen fand jeweils eine Testmessung mit einer Bestrahlungszeit von 60 s statt, die der Normierung der OSL-Messungen dienen sollten. Das Abklingen des Signals war relativ langsam, so dass auch im letzten der fünf Messintervalle eine signifikante OSL-Intensität vorhanden war. Daher wurde für alle Messungen eine *late light*-Korrektur durchgeführt. Trotzdem zeichnete sich eine starke Abhängigkeit der 60 s-Testsignale von der vorangegangenen Bestrahlung ab. Dies zeigte sich besonders für Punkte mit hohem natürlichem Lumineszenzsignal (Abb. 5.25). Da mit diesen Ausnahmen die Faktoren alle nahe bei 1 lagen, konnte auf die Normierung der Wachstumskurve verzichtet werden, die andernfalls durch dieses Artefakt gestört worden wären.

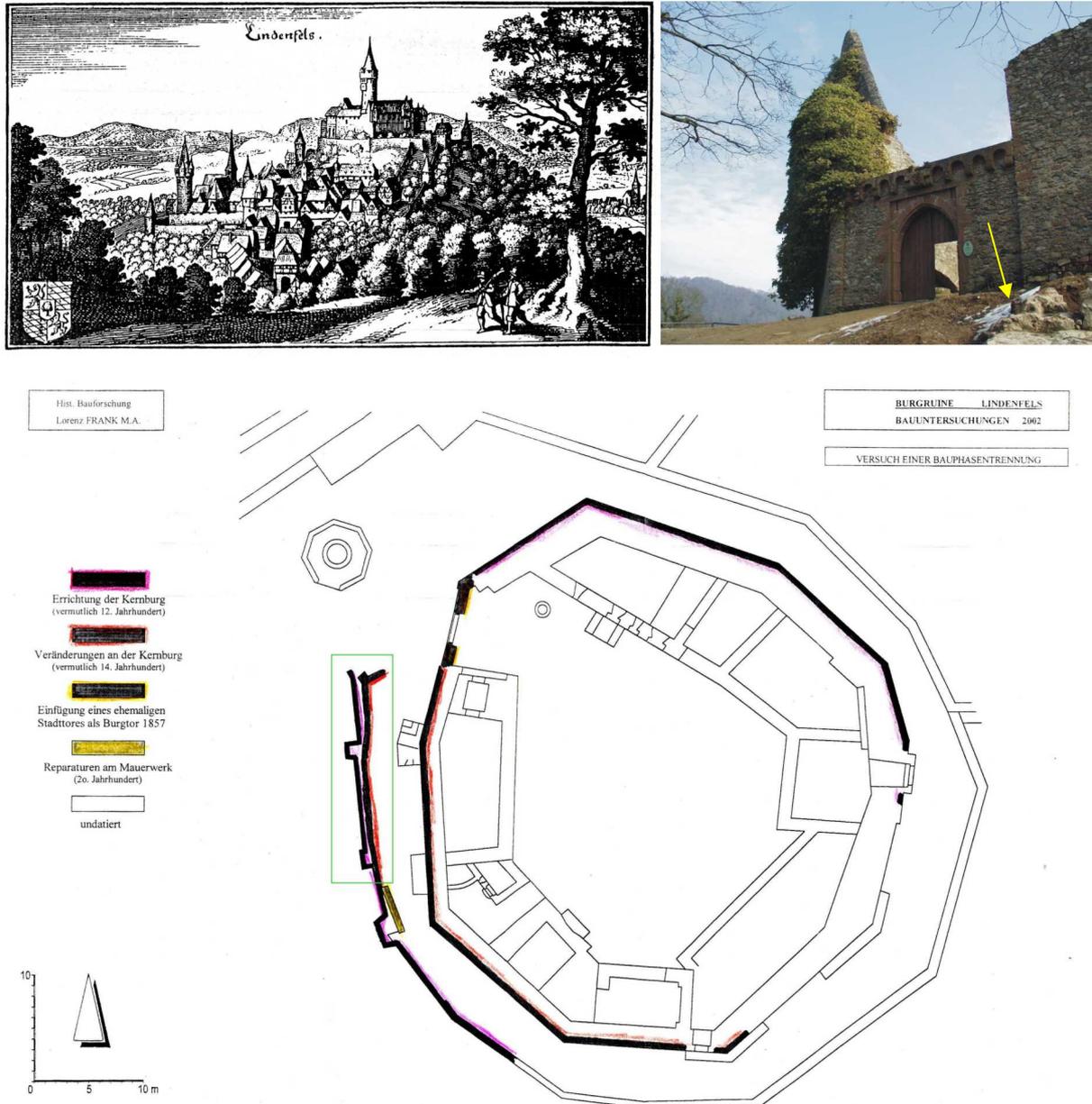


Abbildung 5.24: Der Plan der Burgruine (unten) zeigt den Bereich (grün umrandet) der vorgelagerten Mauern, aus dem die Proben stammen. Rechts oben ist das Burgtor mit Teilen der Mauern (Pfeil) zu sehen.

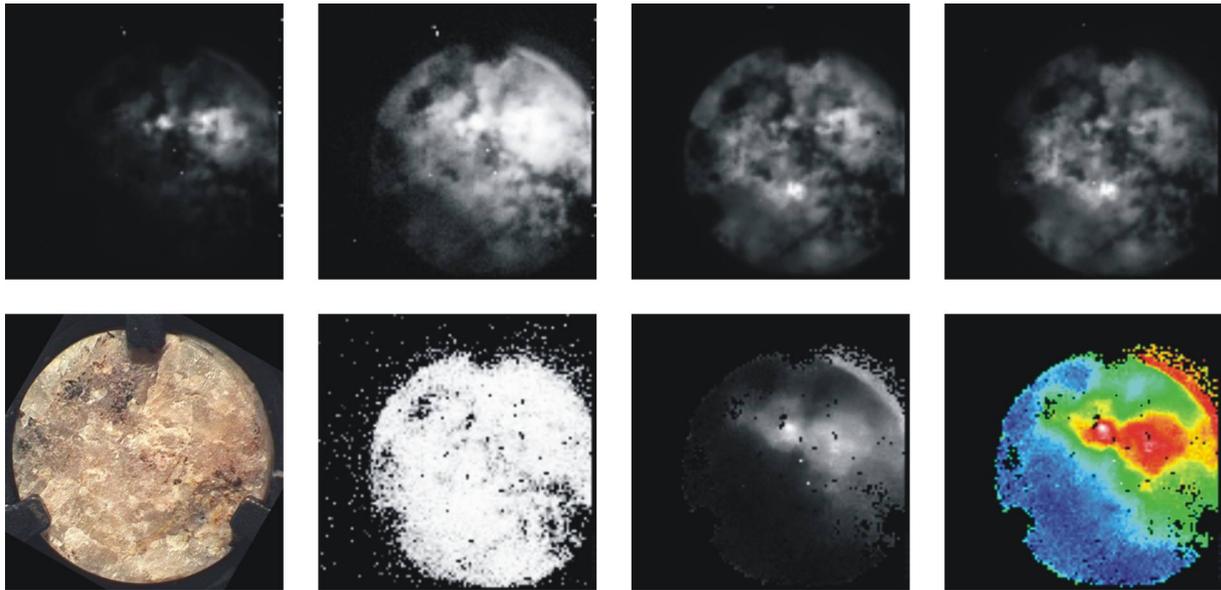


Abbildung 5.25: Bestimmung der Äquivalenzdosen der Oberflächenprobe LINIS1. Obere Reihe (von links): natürliche Lumineszenz (lineare Helligkeitsskala), natürliche Lumineszenz (logarithmische Darstellung), Lumineszenz nach Laborbestrahlung (960 s, GRSL), Lumineszenz nach Laborbestrahlung (960 s, IRSL). Untere Reihe (von links): Auflichtaufnahme, Korrelation zum linearen Wachstumskurven-Modell, Äquivalenzdosen (Grauwert- und Falschfarbendarstellung). Aus dem Vergleich von IRSL- und GRSL-Verteilung kann bereits auf Feldspat als die Oberfläche dominierende Mineral geschlossen werden.

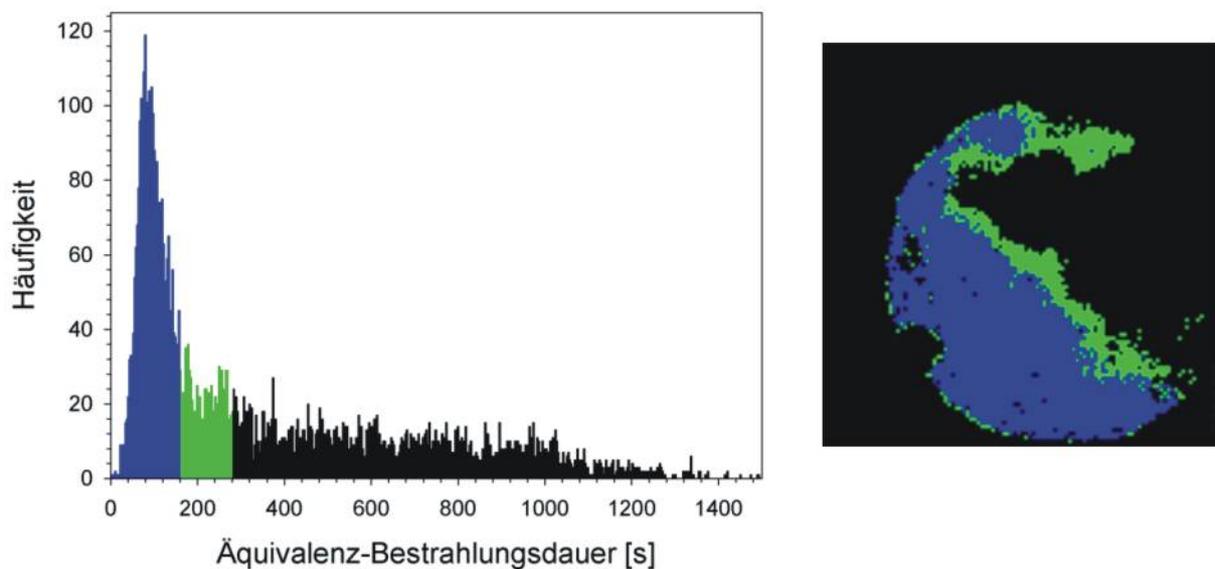


Abbildung 5.26: Häufigkeitsverteilung der Äquivalenz-Bestrahlungsdauern für die Probe LINIS2 (Korrelationsfilter $r^2 > 0,99$, Intensitätsfilter $i > 0,008$) und Rückverfolgung für zwei Intervalle.

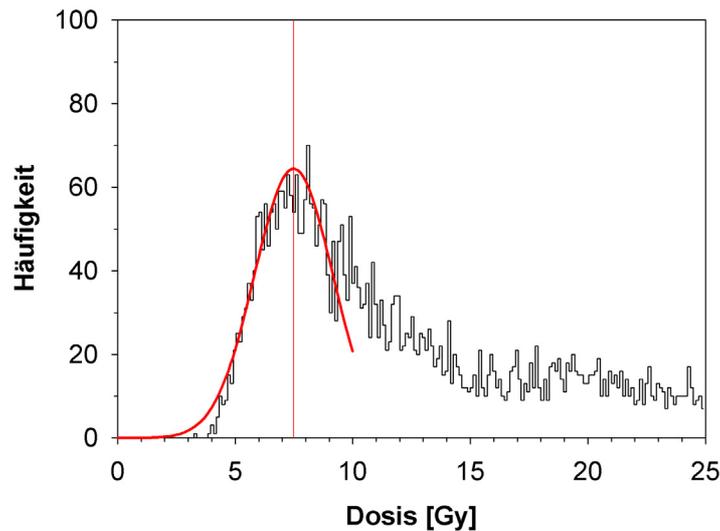


Abbildung 5.27: Ausschnitt der Äquivalenzdosen-Verteilung der Probe LINIS1 mit angepasster Gauß-Kurve.

Die Verteilung der Äquivalenzdosen zeigt eine große Variation über die Oberfläche. Ein homogener Bereich im südwestlichen Teil der Probe mit Werten von einigen Gray kann von zwei Punkten getrennt werden, die maximale Äquivalenzdosen von ca. 90 bzw. 100 Gy besitzen und von Halos mit geringeren Werten umgeben sind. Eine weitere Region am rechten oberen Rand zeigt ebenfalls hohe Äquivalenzdosen. Wie aus der Aufsichtphotographie der Probe zu erkennen, handelt es sich hierbei um ein Artefakt: durch den Winkel der Bohrachse zur Oberfläche ist bei der Aufsicht ein Teil der Seitenfläche über die gesamte Höhe der Probe zu sehen. Hier wird das Signal tiefer Schichten ausgelesen, die schlechter durch das archäologische Ereignis gebleicht wurden. Dies entspricht dem Phänomen, das Habermann [2000] durch Zerschneiden der Probe zeigen konnte¹⁹. Ein ähnlicher Effekt zeigt sich auch am Rand der Probe (grün markiert), der leicht höhere Äquivalenzdosen aufweist. Hier sind vermutlich beim Eindringen des Bohrers Teile der Probe abgetragen worden. Diese kritischen Bereiche können in der Auswertung durch die Software ausgeschlossen werden. Allerdings liegt bei dieser Probe der sehr günstige Fall vor, dass bereits die Häufigkeitsverteilung eine Trennung zwischen dem Bereich, auf dem eine Datierung stattfinden kann, einer Region unklarer Genese (Dosismaxima) und dem Artefakt des Randes ermöglicht (Abb. 5.26). Verfolgt man die Punkte um dieses Maximum zurück, so zeigt sich, dass sie aus dem relativ homogenen Bereich am linken, unteren Teil der Probe stammen (Abb. 5.26). Daneben findet sich ein kleiner *Peak*, der von den Werten aus der Umgebung der beiden Stellen mit sehr hohen Äquivalenzdosen und vom Rand der Probe gebildet wird.

A	b	x_c	<i>Drift Ausleseoffset</i>	<i>Drift Empfindlichkeit</i>
64,41±3,35	27,80±1,71 s	124,76±0,31 s	5,6 s	0,3 s
64,41±3,35	1,67±0,10 Gy	7,49±0,02 Gy	0,33 Gy	0,02 Gy

Tabelle 5.13: Äquivalenzdosis-Bestimmung für die Probe LINIS1. Links die Parameter der Kurvenanpassung, rechts die systematischen Fehler auf Grundlage der mittleren Sensitivität des betrachteten Bereiches von ca. 0,9 Cts/s.

¹⁹ Mit Hilfe der hochauflösenden Technik ist es auch möglich, Tiefenprofile der OSL direkt zu messen, indem die Probe seitwärts gelagert wird.

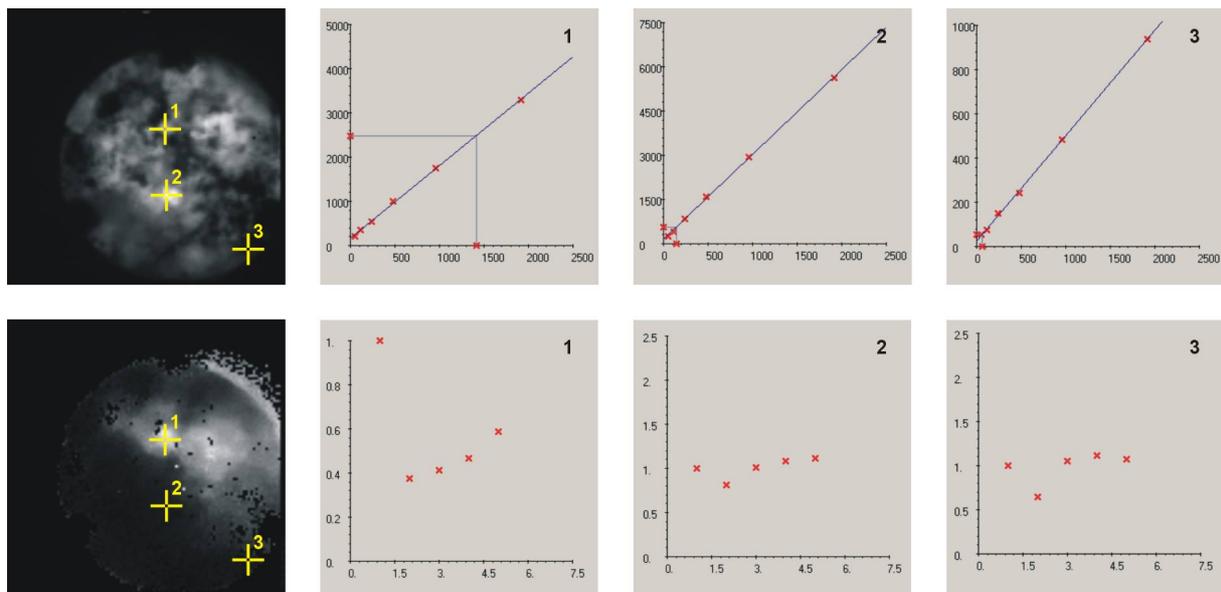


Abbildung 5.28: Wachstumskurven (Intensität über Bestrahlungsdauer) und relative Sensitivitäten auf der Probe LINIS2. Auf der x-Achse der unteren Plots ist die Nummer des Messzyklus aufgetragen.

An den blau gekennzeichneten Bereich wurde durch das Programm AGESGALORE zur Äquivalenzdosis-Bestimmung eine Gauß-Glockenkurve angepasst (Tab. 5.13).

Um den Fall einer Messung der Probe in einem konventionellen Gerät zu simulieren, wurden sämtliche Zählereignisse auf dem *Chip* (abzüglich des Untergrundes) zusammengefasst. Abb. 5.29 zeigt die korrespondierende Wachstumskurve. Die Äquivalenzdosis als Mittel über die Fläche betrüge ca. 24 Gy, ohne dass die unklaren Bereiche sehr hoher Werte oder das Artefakt durch die Schiefe des Bohrkerns zu identifizieren wären.

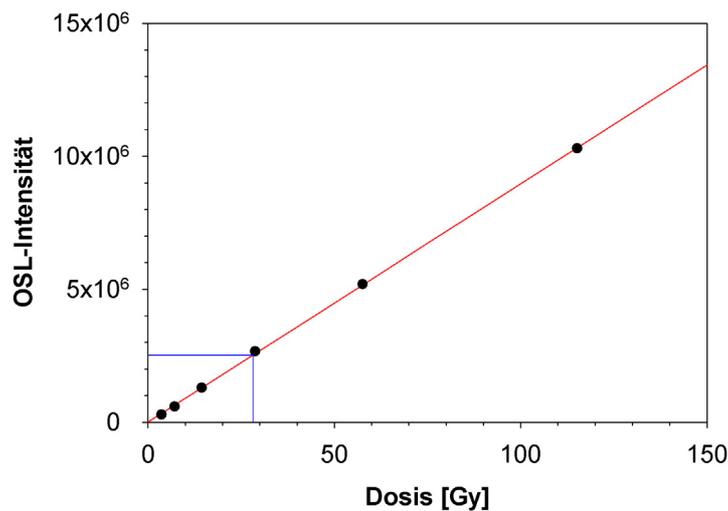


Abbildung 5.29: Simulierte integrale Bestimmung der Äquivalenzdosis.

5.4.1.2 Dosisleistung

Die EDX-Analyse der Oberfläche der Probe LINIS1 (Abb. 5.30) zeigt, dass das Material überwiegend aus kaliumhaltigen Feldspäten besteht. Die wenigen wenigen Plagioklase sind Na-dominiert. Neben Anteilen von Quarz finden sich weiterhin einige mafische Komponenten. Für die Dosisleistungsberechnung konnten demnach große homogene Kalifeldspatbereiche gewählt werden (s. Markierungen). Für sie ergab sich ein übereinstimmender Kaliumgehalt innerhalb der Messfehler (Tab. 5.14).

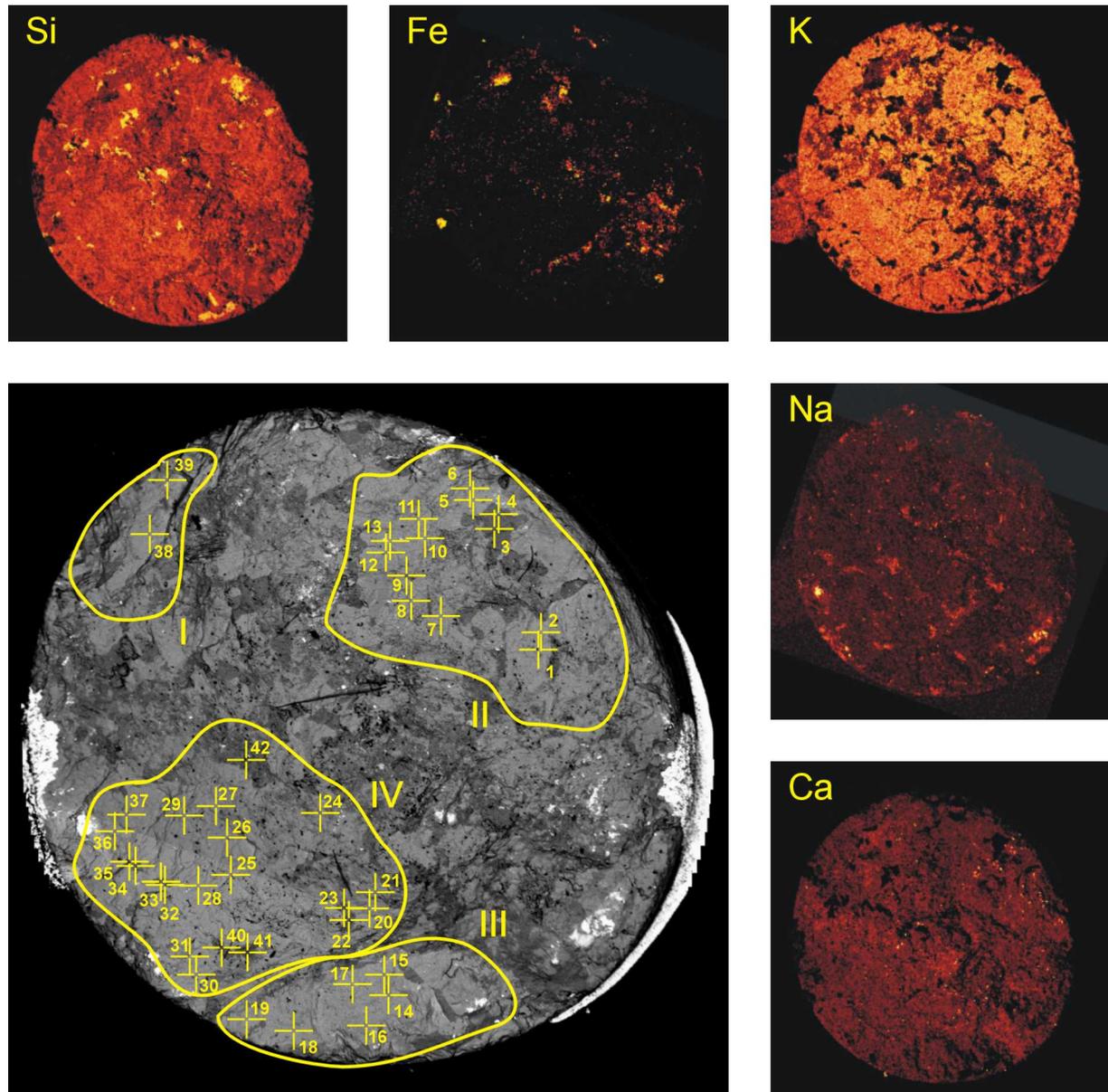


Abbildung 5.30: Verteilung der Hauptelemente auf der 8 mm großen Oberfläche der Probe LINIS1 (im Uhrzeigersinn: Si, Fe, K, Na, Ca) sowie die Messpunkte für die quantitativen Analysen (s. a. Tab. 5.14)

Messpunkt	Si [%]	Al [%]	O [%]	K [%]	Na [%]	Ca [%]	Mineral	
03	46,44	-0,01	53,15	0,00	0,23	0,03	Quarz	
04	46,49	-0,05	53,16	0,00	0,21	0,02		
32	43,55	1,30	52,05	2,01	0,31	0,31	Quarz	
34	44,18	1,30	52,19	0,74	0,88	0,39		
38	30,64	9,59	46,23	13,22	0,37	-0,01	Kali-Feldspat (I)	
39	29,39	9,03	45,04	15,82	0,54	0,01		
01	30,63	9,63	46,46	12,19	0,97	-0,02	Kali-Feldspat (II) mittlerer K-Gehalt: 13,0±2,7 %	
02	28,08	8,67	44,03	17,23	0,74	0,62		
05	30,55	9,56	46,25	13,24	0,33	-0,08		
06	29,99	9,42	45,71	14,20	0,35	0,08		
07	31,07	9,59	46,58	12,48	0,28	0,02		
08	30,96	9,83	46,87	9,93	2,23	0,04		
09	30,05	9,42	45,89	13,42	0,40	0,10		
10	28,32	8,65	43,95	18,31	0,64	-0,10		
11	31,08	9,84	46,93	10,37	1,77	-0,02		
12	30,69	10,02	46,71	11,60	0,29	0,05		
13	30,94	9,80	46,85	10,29	1,90	0,06		
14	29,58	9,26	45,69	11,97	0,57	0,39		Kali-Feldspat (III) mittlerer K-Gehalt: 12,5±0,6 %
15	30,67	9,52	46,32	12,38	0,88	0,02		
16	30,52	9,62	46,28	12,64	0,75	0,06		
17	29,60	9,27	45,73	11,83	0,61	0,58		
18	30,35	9,39	46,00	13,34	0,70	0,02		
19	30,48	9,58	46,22	12,76	0,82	0,06	Kali-Feldspat (IV) mittlerer K-Gehalt: 12,9±3,5 %	
20	30,74	9,83	46,62	11,61	1,06	0,06		
21	30,79	9,81	46,65	11,69	0,96	0,04		
24	30,36	9,67	46,15	12,75	0,74	0,04		
25	30,09	9,61	45,95	13,26	0,81	0,06		
26	26,49	7,97	42,06	23,54	0,14	-0,20		
27	31,01	9,16	46,37	13,01	0,29	-0,03		
28	30,89	9,71	46,63	11,70	1,04	0,04		
29	30,77	9,76	46,82	9,93	2,49	0,09		
30	30,92	9,67	46,75	10,48	2,08	0,04	Plagioklas	
31	30,73	9,71	46,53	11,88	1,16	-0,02		
36	30,89	9,68	46,61	12,05	0,78	-0,03		
37	30,66	9,49	46,25	12,94	0,46	0,08		
22	30,91	11,52	48,68	0,42	7,43	0,62		
23	30,54	10,79	48,06	2,71	5,75	0,58		
40	30,83	10,44	48,19	0,31	9,32	0,51		Plagioklas
41	32,82	9,22	48,91	0,39	7,77	0,46		
42	32,47	10,11	48,91	0,23	8,10	0,19		

Tabelle 5.14: EDX Punktanalysen der Probe LINISI aus der Burgmauer von Lindenfels. In der rechten Spalte sind für die in Abb. 5.30 markierten Regionen die mittleren Kalium-Gehalte angegeben.

Aufgrund der Verteilung der Äquivalenzdosen muss der Bereich II (s. Abb. 5.25) von der Datierung ausgeschlossen bleiben.

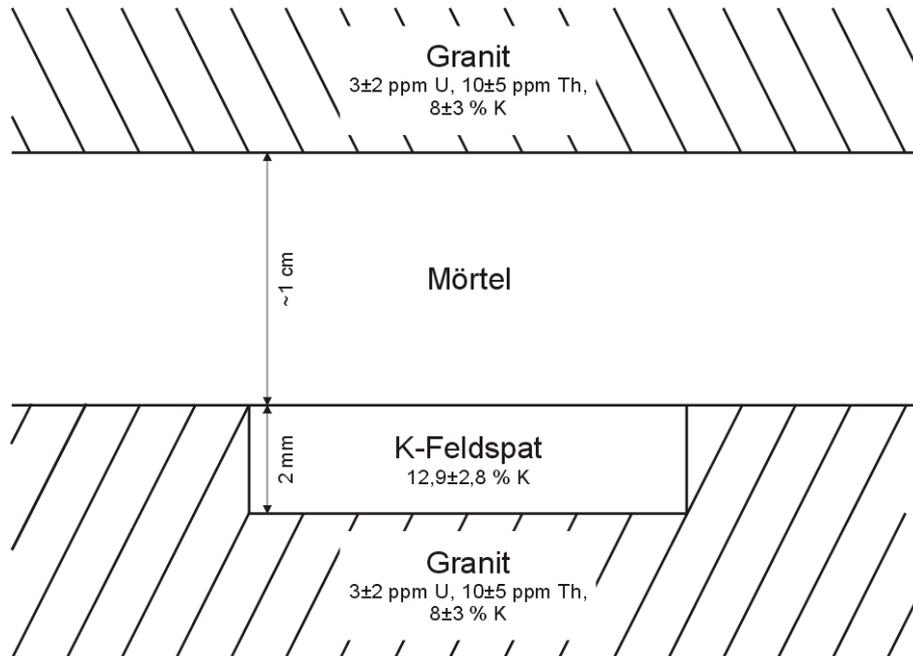


Abbildung 5.31: Dosisleistungsmodell für LINIS1. Die Uran-, Thoriumkonzentrationen beruhen auf Literaturwerten bzw. auf einer Extrapolation der EDX-Daten für die Gesamtprobenfläche.

Abb. 5.31 zeigt das verwendete Modell für die Dosisleistung des Bereiches, für den die Äquivalenzdosis ermittelt worden war. Es wird angenommen, dass der Mörtel einen vernachlässigbaren Gehalt an Kalium besitzt. Aufgrund der im Vergleich zur Reichweite geringen Dicke des Mörtels fällt der γ -Beitrag so klein aus, dass nur die γ -Komponente des umgebenden Granits berücksichtigt wird. Für die β -Dosisleistung des K-Feldspates wird eine 2π -Geometrie angenommen (Tab. 5.15).

Das ermittelte Alter überschätzt im Mittelwert das Baujahr der Burg Lindenfels, stimmt innerhalb der Fehler aber gut mit der ersten Bauphase der Burg im 12. Jahrhundert überein. Selbst bei Berücksichtigung einer zusätzlichen Unsicherheit von bis zu 10 % in der Äquivalenzdosis durch Transparenz-Effekte liegt der dominante Fehler für diese Probe in der Bestimmung der Dosisleistung.

Beitrag	
β -Dosisleistung im K-Feldspat (2π -Geometrie)	5,05 \pm 1,10 mGy/a
γ -Dosisleistung aus umgebenden Granit	2,76 \pm 1,19 mGy/a
Kosmische Dosisleistung	0,20 \pm 0,05 mGy/a
Gesamt-Dosisleistung	8,00\pm1,62 mGy/a
Äquivalenzdosis	7,49\pm0,33 Gy
Alter der Probe (bezogen auf 2002 n. Chr.)	936\pm193 a
Baujahr	1066\pm193 n. Chr.

Tabelle 5.15: Dosisleistungsbeiträge und Altersberechnung für die Probe LINIS1. Zur Umrechnung der Elementkonzentrationen in eine Dosisleistung wurden die Faktoren von Adamciak und Aitken [1998] benutzt.

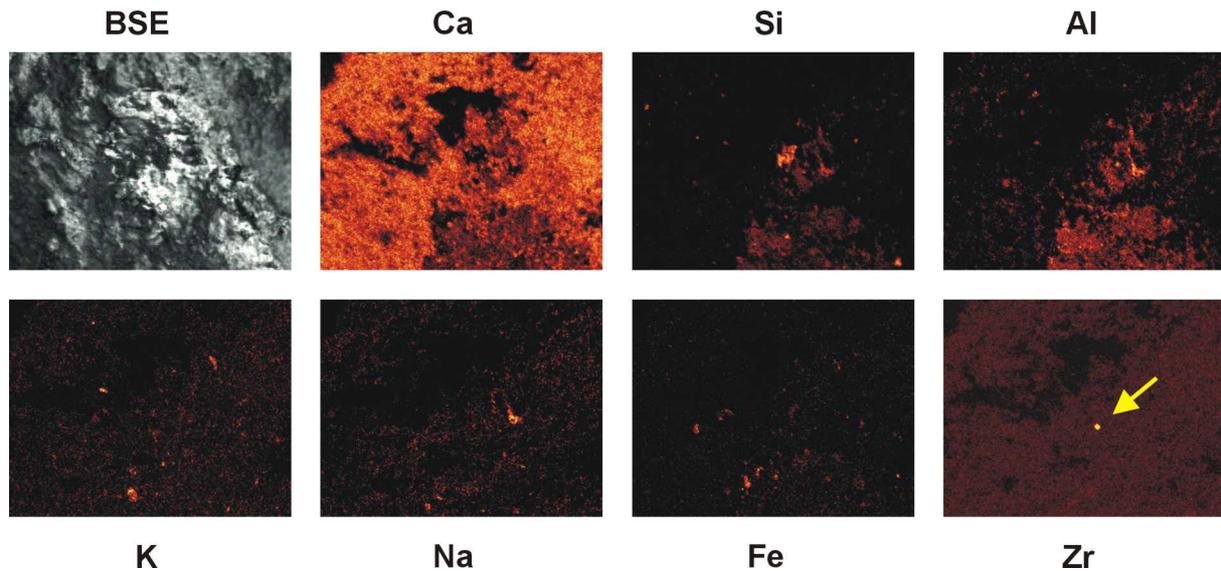


Abbildung 5.32: Untersuchungen an Mörtelstücken der Probe LIN1 (Ausschnitt $600 \times 800 \mu\text{m}$).

Die Herkunft der beiden Dosismaxima auf der Probe kann nicht durch das im Feldspat eingebaute ^{40}K erklärt werden. Eine unvollständige Bleichung, z. B. durch eine zufällige Abdeckung dieser Bereiche während der Erbauung, könnte eine Ursache sein, ebenso die Möglichkeit, dass Teile der gebleichten Oberfläche während der Probenpräparation, besonders während des Ätzens, abgesprengt wurden. Gegen letzteres spricht aber sowohl das Oberflächenbild der Probe im REM, als auch die Form der Bezirke mit hoher Dosisleistung, die nicht gezackt-kantig sind, sondern als Halos mit 1-2 mm Radius um die Maxima liegen. Die Größe des Radius könnte auf zwei Punktrahler mit hohem U und Th-Gehalten hinweisen, deren β -Anteile diese Struktur verursacht haben. Nach diesen Strahlern wurde mit Hilfe der REM-EDX auf der Probe gesucht, indem neben den Elementen Ca, Si, K, Na, Al, Fe auch Aufnahmen der Verteilungen von Zr, Th, Ce, Ti gemacht wurden, die als Hinweise auf uran- und thoriumhaltige Minerale dienen können. Die Untersuchung erbrachte aber keine Anhaltspunkte für derartige Minerale. Allerdings können sich die Strahler einige μm unter der Oberfläche oder sogar im angrenzenden Mörtel befinden, so dass sie mit dieser Methode nicht erreichbar sind. Der Versuch, zwei Strahlungsherde in der Probe LIN1S1 selbst mit Hilfe einer Autoradiographie-Platte ausfindig zu machen, brachte aber ebenfalls kein Ergebnis. Bei der EDX-Analyse eines Stücks Mörtels, der dem Baustein in unmittelbarer Nähe der Probe LIN1S1 entnommen wurde, fanden sich aber neben der Kalzium-Matrix, in der sich einige wenige Quarz- und Feldspatkörner befinden, mit einer Häufigkeit von ca. 1 Korn/cm² auch Zirkone ($\text{Zr}[\text{SiO}_4]$, s. Pfeil in Abb. 5.32). Die Analyse des gezeigten Korn ergab Elementgehalte von 44,8 % Zr, 14,7 % Si und 34,8 % O. Ein zusätzlicher Anteil von 3,5 % Ca zeigt, dass der Elektronenstrahl vermutlich noch angrenzende Bereiche erfasst hat und erklärt den stöchiometrisch etwas zu niedrigen Wert für Zirkonium. Zirkone können hohe Urangelhalte aufweisen. Wenn sich ein solcher Punktstrahler nahe der Probenoberfläche befunden hat, kann das die hohen gemessenen Äquivalenzdosen erklären.

5.4.2 Geoglyphen von Palpa

Im Rahmen eines NTG-Projektverbundes („Neue Technologien in den Geisteswissenschaften“) des Bundesministeriums für Bildung und Forschung zur Erforschung vorspanischer Kulturen in Südperu (Abb. 5.33) soll mit Hilfe chronometrischer Methoden erstmalig eine numerische Chronologie für diese Region erstellt werden. Dabei spielt auch die Datierung der Geoglyphen um Palpa eine wichtige Rolle (Abb. 3.1). Hier wurden bei einer Voruntersuchung

im September 2002 wurden vier und während einer Geländekampagne 2003 45 Oberflächenproben genommen, von denen insgesamt sechs im Rahmen dieser Arbeit bereits für Untersuchungen zur Verfügung standen.

Die Bohrkern wurden sowohl aus der abgedeckten Unterseite von Steinen entnommen, die aus den bei der Erstellung der Geoglyphen aufgehäuften Steinwällen (3 Proben) stammen, als auch aus Fundamentsteinen benachbarter Gebäude, die archäologisch mit den Geoglyphen in Verbindung gebracht werden. Alle Proben sind Diorite, enthalten im Gegensatz zum Granit der Burg Lindenfels also weniger Alkalifeldspäte, sondern überwiegend Plagioklas-Minerale.

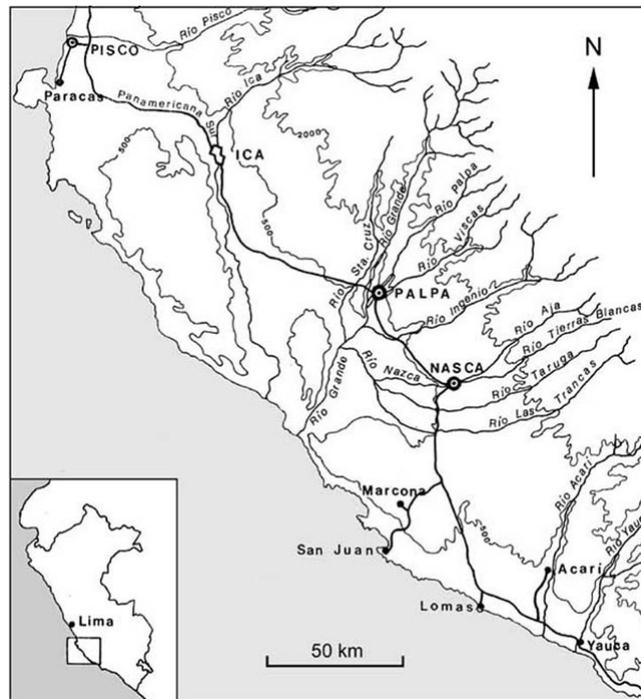


Abbildung 5.33: Arbeitsgebiet in Südperu.

Die Bohrkern wurden in Scheiben geschnitten, wobei neben der die eigentliche Datierungsinformation tragende oberste Scheibe (S1) eine weitere aus dem Inneren der Probe (S2) zu Voruntersuchungen zur Probensensitivität verwendet wurde. Die Messungen im LasLUM I nach Laborbestrahlung mit einer Dosis im Bereich der erwarteten natürlichen Dosis sowie aus Aufnahmen der IRSL-Spektren der hochbestrahlten Proben dienten dazu, Informationen zu Lage und Stärke der OSL-Emissionen zu erhalten. Abb. 5.34 zeigt, dass die Spanne der gefundenen IRSL-Intensitäten beinahe drei Größenordnungen umfasste, die blaue Emission aber bei allen Proben sehr schwach war, was mit den in 5.2 gemachten Beobachtungen zu den Emissionen der Na/Ca-Feldspäte übereinstimmt. Daher wurden fünf der sechs Messungen im gelben Wellenlängenbereich durchgeführt.

Es stellte sich heraus, dass die Sensitivität der Oberflächenprobe durch die Vormessungen zumeist überschätzt wurde. Dies kann z. T. von dem dunklen Wüstenlack herrühren. Da allerdings auch Proben betroffen waren, die keinen oder kaum Überzug zeigten, können auch oberflächliche Trübungen und Verwitterungen des Gesteins eine mögliche Ursache sein.

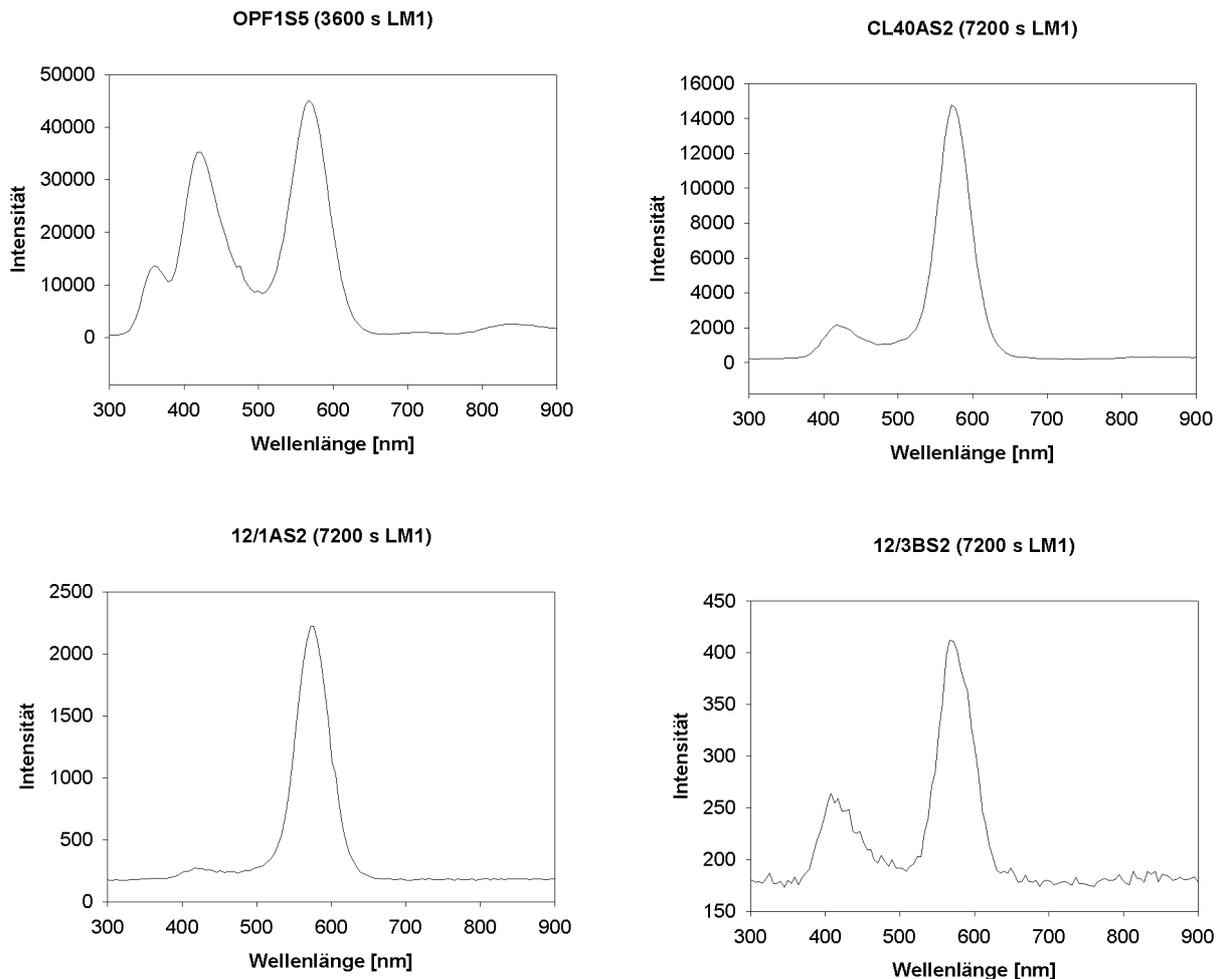


Abbildung 5.34: Spektren von drei Proben aus Palpa/Peru im Vergleich mit einer Messung des Leuchtenburger Granits (oben links).

Die im gelben Wellenlängenbereich gemessenen Proben zeigten starke Veränderungen der Sensitivität, die durch Normierungsmessungen ausgeglichen wurden (Abb. 5.35). Für alle Proben wurde ein linearer Verlauf der Wachstumskurven gefunden, mit Ausnahme der Probe CL40AS1, die sehr hohe Äquivalenzdosen aufwies und bei der bereits deutliche exponentielle Sättigungseffekte auftraten, denen durch ein entsprechendes Modell Rechnung getragen werden musste. Die Ergebnisse der Äquivalenzdosen-Bestimmungen sind graphisch in Abbildung 5.36 zusammen mit Auflichtaufnahmen und EDX-Messungen der Proben dargestellt. Markiert sind die zur Auswertung gewählten Bereiche (*ROIs*) homogener Äquivalenzdosen und hoher Korrelation zum Wachstumskurvenmodell. In Tabelle 5.17 finden sich die Werte für die Äquivalenzdosen. Tabelle 5.16 gibt eine Beschreibung der Bereiche. Auf einige Details in Abbildung 5.36 sei hingewiesen:

- Die Probe 12/1CS1 weist eine sehr geringe Äquivalenzdosis auf. Die für sie ermittelten Werte einzelner Flächen zeigen eine breite Normalverteilung mit einem Zentralwert nahe 0 auf. Die graphische Darstellung der Äquivalenzdosen ergibt ein sehr verrauschtes Bild, wobei schwarze Werte negative Äquivalenzdosen, weiße Werte positive Äquivalenzdosen anzeigen. Nur für den Bereich des zentralen, im OSL-Signal hellen Feldspates findet sich durch die kleinen relativen Fehler ein ruhigerer Bereich (rot markiert). Das Grau entspricht bei der gewählten Dynamik des Bildes ungefähr Nullwerten.
- Die Probe CL38AS1 zeigt Dosisvariationen vergleichbar der Probe LIN1S1 von Burg Lindenfels. Durch die Schiefe des Bohrkerns sind wieder ein Stück der Bohrkernseite

(südlicher Rand) und somit erhöhte Äquivalenzdosen sichtbar. Des Weiteren gruppieren sich hohe Äquivalenzdosen um ein Ce-haltiges Mineral. Dabei handelt es sich vermutlich um Monazit [Wagner, pers. Mitteilung]. Dieses Mineral kann hohe Thoriumgehalte aufweisen.

- Die Probe 12/4CS1 zeigt einen starken, schwarz-braunen Überzug von Wüstenlack. In den Elementanalysen spiegelt dieser mangan- und eisenhaltigen Bereich wider. Hierdurch sind für eine Datierung nur einige kleine Feldspäte am Rand der Probe zugänglich. Einen leichten Überzug zeigen auch die Proben 12/2 und 12/3, der das OSL-Signal aber nicht in gleicher Weise beeinträchtigt.
- Die Probe CL40AS1 weist aufgrund hoher Äquivalenzdosen (nicht aufgrund einer außergewöhnlich hohen Sensitivität, denn gemessen wurde die blaue GRSL-Emission) eine sehr gute Zählstatistik auf. Beinahe für die gesamte Probenfläche konnten Dosiswerte bestimmt werden. Dabei zeichnen sich deutlich die Grenzen zwischen relativ kaliumreichen Feldspäten mit höherer und Ca-Feldspäten mit niedrigerer Dosisleistung ab.

In Tabelle 5.18 sind das angenommene Dosisleistungsmodell, der Kaliumgehalt, die Gesamtdosisleistung sowie das errechnete Alter der Proben aufgeführt. Die Altersfehler sind bei den vorliegenden Proben – in Gegensatz zu LIN1S1 – zumeist durch die geringe Signalintensität, weniger in Unsicherheiten der Dosisleistung begründet. Für die Proben wird von einer 2π -Geometrie zwischen Gestein und darunter liegendem Sediment ausgegangen. Für das relativ homogene Sediment auf den Fußflächen um Palpa wurden die Mittelwerte von zehn γ -spektrometrischen Messungen verwendet [Kadereit, pers. Mitteilung]. Bei der α -Dosisleistung wird von einer Eindringtiefe von 20 μm in die Probe und einer relativen Effizienz gegenüber β - und γ -Strahlung von 6 % ausgegangen. Für die Uran- und Thoriumwerte der Gesteine wurde wiederum auf Literaturwerte zurückgegriffen. Aufgrund ihrer geringeren Größe wurde für die Proben 12/2, 12/3 und 12/4 nur von einem um die Hälfte reduzierten γ -Beitrag aus der Probe selbst ausgegangen.

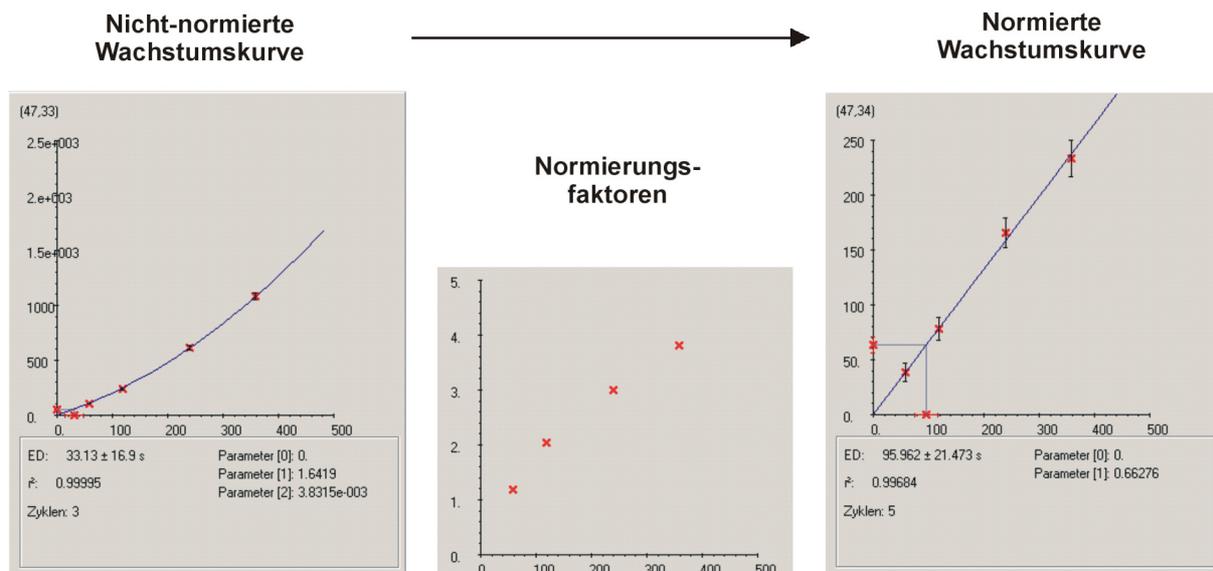


Abbildung 5.35: Normierung einer IRSL-Wachstumskurve der Probe CL38AS1, die im gelben Wellenlängenbereich aufgenommen wurde (s. a. Normierungsfaktoren für LIN1S1, Abb. 5.28).

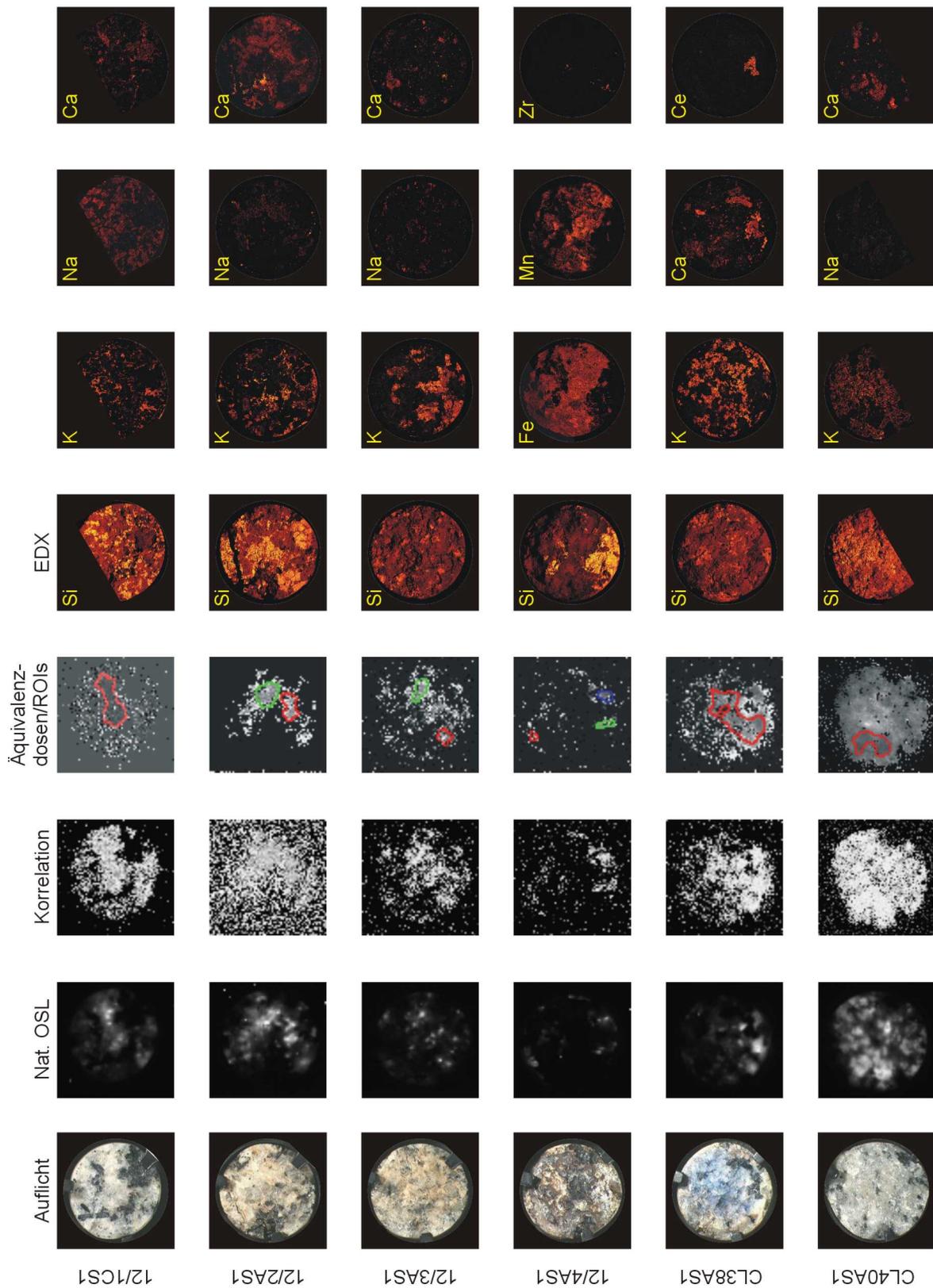


Abbildung 5.36: Äquivalenzdosis-Bestimmungen und EDX-Analysen für die Proben aus Palpa. Der dargestellte Bereich der Korrelation zum Wachstumskurvenmodell beträgt 0,7-1,0 (außer 12/1: 0,9-1,0 und 12/2: 0,3-0,7).

Probe	ROI	Beschreibung
12_1CS1	-	Gesamte Oberfläche
12_2AS1	1 (rot)	Na/Ca-Fsp mit homogenen Äquivalenzdosen
12_2AS1	2 (grün)	Na/Ca-Fsp mit homogenen Äquivalenzdosen [direkt benachbarter K-Fsp]
12_3AS1	1 (rot)	Na/Ca-Fsp mit homogenen Äquivalenzdosen [2 mm, umrahmt von K-Fsp]
12_3AS1	2 (grün)	K-Fsp mit homogenen Äquivalenzdosen [1,5 mm, umrahmt von Na/Ca-Fsp]
12_4AS1	1 (rot)	Mineral [K/Na/Ca-Fsp] mit wenig Wüstenlack
12_4AS1	2 (grün)	Wie ROI 1, direkt benachbart Zirkon [ca. 300 µm groß]
12_4AS1	3 (blau)	Mineral am Rand abgesplittert
CL38AS1	1 (rot)	Plg/K-Fsp mit homogenen Äquivalenzdosen [nicht nahe Monazit oder Rand]
CL40AS1	1 (rot)	Zwei Ca/Na-Fsp (1,25mm)

Tabelle 5.16: Definition der ROIs

Probe	ROI	Messung ¹	Protokoll ²	r ²	D _E [s]	σ [s]	Flächen	D _E [Gy]	ΔD _{E,Stat} [Gy]	s [Cts/Gy]	ΔD _{E,Syst} [Gy]	ΔD _E [Gy]
12_1CS1	1	Ig	P1	0,8	3,6	17,0	1314	0,2	0,0	0,50	0,6	0,6
12_2AS1	1	Ig	P1	0,5	116,3	45,8	156	7,0	0,2	0,21	1,4	1,4
12_2AS1	2	Ig	P1	0,5	135,7	51,4	115	8,1	0,3	0,21	1,4	1,5
12_3AS1	1	Ig	P1	0,8	108,9	45,5	73	6,5	0,3	0,35	0,9	0,9
12_3AS1	2	Ig	P1	0,8	103,4	64,6	49	6,2	0,6	0,35	0,9	1,0
12_4AS1	1	Ig	P1	0,8	145,8	65,5	37	8,7	0,6	0,15	2,0	2,1
12_4AS1	2	Ig	P1	0,8	207,6	89,5	24	12,5	1,1	0,15	2,0	2,3
12_4AS1	3	Ig	P1	0,8	319,7	94,1	9	19,2	1,9	0,15	2,0	2,7
CL38AS1	1	Ig	P1	0,8	165,7	48,9	413	9,9	0,1	1,50	0,2	0,2
CL40AS1	1	Gb	P2	0,95	3876,7	923,0	284	232,6	3,3	0,52	0,8	3,4

2 Messung

Ig: IRSL gelber Wellenlängenbereich
Gb: GRSL blauer Wellenlängenbereich

3 Protokoll

P1: Linear mit Nullpunktkorrektur, Normiert, *late light*-Korrektur Intervall 1 und 15
P2: Exponentiell (Sättigung), Normiert, *late light*-Korrektur Intervall 1 und 15

Tabelle 5.17: Bestimmung der Äquivalenzdosen für die Proben aus Palpa. Angegeben sind neben den ermittelten Äquivalenzdosen auch die Schwellenwerte für den Korrelations-Filter, die Zahl der ausgewerteten Flächen, die mittlere Sensitivität *s*, sowie statistische, systematische und Gesamtfehler.

Die Alter der Proben CL38AS1, 12/2, 12/3 und 12/4 (ROI 1) fallen allesamt in die Zeit der Nasca-Kultur. Die zeitliche Schichtung der Geoglyphen auf der Cresta de Sacramento (eine jüngere Linie verläuft über einer zweiten, älteren) kann korrekt wiedergegeben werden. Allerdings liegen die Mittelwerte der Alter für 12/2 und 12/3 (zwei Proben derselben Linie) weit auseinander. Die Genauigkeit der Messung lässt aber noch keine Entscheidung zu, ob hier eine eventuelle spätere Einwirkung von Licht auf die Probe vorliegt. Für die Bereiche ROI 2 und ROI 3 der Probe 12/4 wurden sehr hohe Alter bestimmt. Abgesehen von der Tatsache, dass sich die Probe aufgrund des starken Wüstenlacküberzuges ohnehin als problematisch darstellte (s. Fehlerbereiche), sind diese vermutlich auf Absplittierungen am Rand der Probe (Auflichtbild) und den Einfluss tiefer liegender Mineralschichten zurückzuführen.

Für die Probe 12/1 wurde ein sehr junges Alter bestimmt, das innerhalb der Fehler mit einer rezenten Belichtung vereinbar ist. Dieses Ergebnis deutet darauf hin, dass der Fundamentstein während früherer Ausgrabungsarbeiten dem Licht ausgesetzt war.

Probe	ROI	Modell ¹	K [%]	ΔK [%]	Dosisleistung [mGy/a]	Fehler [mGy/a]	Alter	Fehler
12_1CS1	1	M1b	1,96	0,13	4,01	0,25	50	150
12_2AS1	1	M1a	1,44	0,05	3,45	0,28	2021	446
12_2AS1	2	M1a	1,44	0,05	3,45	0,28	2358	457
12_3AS1	1	M1a	2,84	0,51	4,08	0,45	1600	275
12_3AS1	2	M1a	2,84	0,51	4,08	0,45	1519	269
12_4AS1	1	M1a	1,31	0,32	3,39	0,38	2578	657
12_4AS1	2	M1a	2,84	0,51	3,39	0,38	3670	720
12_4AS1	3	M1a	2,84	0,51	3,39	0,38	5652	867
CL38AS1	1	M1b	3,51	0,28	4,80	0,43	2069	191
CL40AS1	1	M2	2,93	0,35	4,51	0,46	51600	5260
Sediment:		2,14±0,17 % K, 3,78±0,24 ppm U, 11,58±0,38 ppm Th						
Probe:		3,0±2,0 ppm U, 10,0±5,0 ppm Th						
Kosm. Dosisleistung:		0,200±0,05 mGy/a						
Modell								
M1a: 2 π -Halbraum Sediment (α -Effizienz 6 %, α -Eindringtiefe 20 μ m/500 μ m), 2 π -Halbraum Probe (homogene β -Dosisleistung, 50 % effektive γ - Dosisleistung aufgrund Probengröße)								
M1b: wie M1a, aber 100 % effektive γ -Dosisleistung in Probe								
M2: 2 π -Halbraum Sediment (α -Effizienz 6 %, α -Eindringtiefe 20 μ m/500 μ m), 2 π -Halbraum Probe (β -Dosisleistung auf Korngröße korrigiert, % effektive γ -Dosisleistung)								

Tabelle 5.18: Dosisleistung und berechnetes Alter der Proben aus Palpa

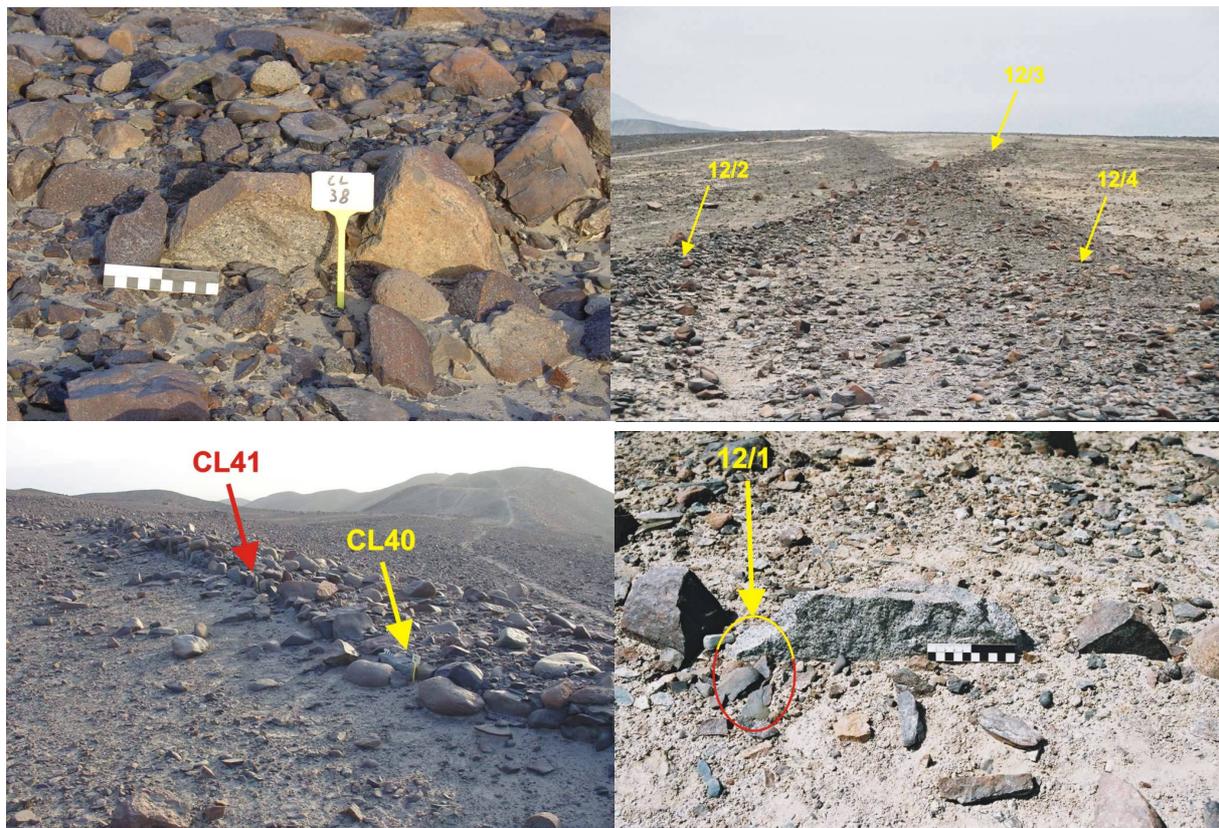


Abbildung 5.37: Fundlokalitäten der datierten Proben. CL38 und CL40 wurden Mauersteinen im Südwesten der Hochfläche Cerro Llipata entnommen. Die Probe 12/1 einem Stein einer Gebäudestruktur auf der Hochfläche Cresta de Sacramento. Von derselben Hochfläche stammen die drei Geoglyphen-Proben 12/2, 12/3 und 12/4.

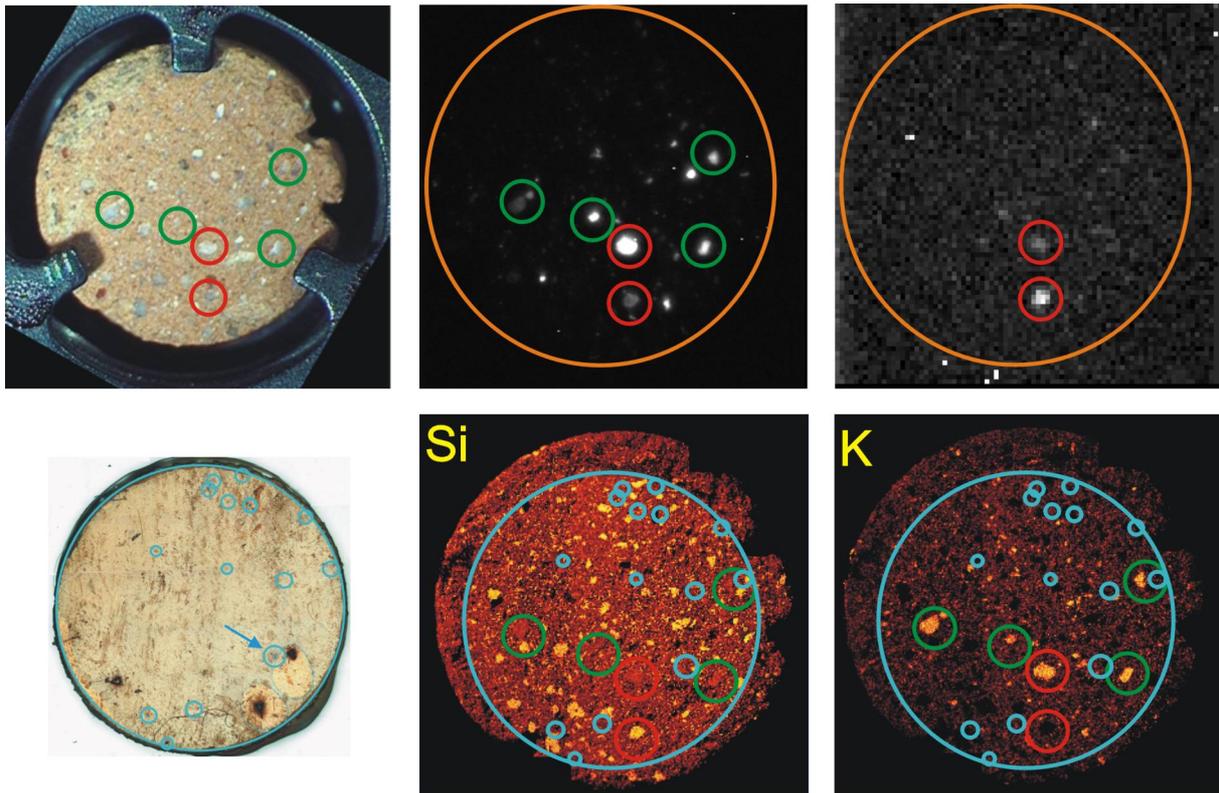


Abbildung 5.38: Altersbestimmung der Keramikprobe K866S3. Links oben eine Auflichtaufnahme, daneben das OSL-Signal einer Laborbestrahlung und rechts das natürliche Lumineszenzsignal. Unten links die als Spaltspurdetektor auf der Probe verwendete KAPTON-Folie und die EDX-Elementverteilung von Si und K. Zentren mit hohen Uran-Konzentrationen sind blau, zur Datierung verwendete Körner rot und einige weitere Körner zur Orientierung grün umkreist.

Das Alter der Probe CL40AS1 schließt dagegen eine anthropogene Einwirkung eindeutig aus. Vielmehr deutet der Wert in den Zeitbereich des Bildungsprozesses (ca. 40 – 100 ka) der Fußflächen [Eitel, Geographisches Institut der Universität Heidelberg, pers. Mitteilung], so dass hier ein geologisches Bedeckungsalter bestimmt werden konnte. Offenbar wurde der Stein wie vorgefunden für eine Mauer verwendet, ohne noch einmal bewegt und damit dem Licht ausgesetzt zu werden.

5.4.3 Innere Oberflächen – ortsauflösende Keramikdatierung

5.4.3.1 Römische Ziegel K866S3

Von der Ziegelprobe aus dem römischen Lopodunum, heute Ladenburg bei Heidelberg, lagen bereits TL- und OSL-Datierungen von Busse [2002] vor. Die Feldspat-Grobkornfraktion hatte bei diesen Messungen eine Äquivalenzdosis von $9,73 \pm 0,48$ Gy und eine Dosisleistung von $4,53 \pm 0,32$ mGy/a aufgezeigt. Das Alter der Probe wurde so mit 2150 ± 190 Jahren bestimmt, was gut mit der archäologischen Datierung (2. Hälfte 1. Jh. n. Chr.) übereinstimmt. Die im Rahmen dieser Arbeit zur Messung der natürlichen Äquivalenzdosen verwendete Probe trägt die Nummer K866S3, eine parallele Probe (K866S1) wurde zur EDX- und Lumineszenzanalyse (s. 5.2.2), eine weitere (K866S2) zu Versuchen zur hochauflösenden Dosisleistungsbestimmung mittels α - Al_2O_3 verwendet (5.5.1).

Korn	Mineral	D_E [s]	σ [s]	Flächen	Sensitivität [Cts/s]	Max. Drift [s]	D_E [Gy]
1	Quarz	72,9	15,3	15	0,27	24,3	4,4±0,2±1,5
2	K-Feldspat	97,2	16,8	10	0,41	9,1	5,8±0,3±0,6

Tabelle 5.19: Äquivalenzdosis-Bestimmungen für zwei Körner der Probe K866S3. Der Fehler ist getrennt nach statistischen und systematischen Einflüssen.

Korn	Größe [μm]	K [%]	β -DL Korn	Effektive β -DL Korn	Effektive β -DL Probe	D_{ges} [mGy/a]	Alter [a]
1	370	0,0	0,0	0,0	2,31±0,25	2,95±0,25	1490±520
2	440	13,2±1,4	11,0±1,1	1,4±0,1	2,25±0,24	4,29±0,26	1350±180
Gesamtprobe (Busse [2002]):							
[K] = 2,79±0,08 %							
[U] = 4,33±0,10 ppm							
[Th] = 12,98±0,23 ppm							
β -Dosisleistung [feucht]: 2,77±0,30							
γ -Dosisleistung [extern]: 0,45±0,03							
Kosmische Dosisleistung: 0,19±0,01							

Tabelle 5.20: Dosisleistungsbestimmung für zwei Körner der Probe K866S3. Alle Dosisleistungs-Angaben in mGy/a.

Die Lumineszenz wurde unter grüner Stimulation im blauen Wellenlängenbereich aufgenommen, wobei das erste von fünf 60 s-Intervallen zur Auswertung verwendet wurde. Vor jeder Messung wurde die Probe 2,5 Minuten bei 220 °C vorgeheizt. Eine Sensitivitätskorrektur durch Normierungsmessungen wurde nicht durchgeführt. Um einen starken Einfluss der Testbestrahlungen selbst auf die Probe zu vermeiden, werden diese mit möglichst kleinen Dosen durchgeführt (z. B. ca. 25 % der erwarteten Äquivalenzdosis). Durch die geringe Sensitivität der Probe K866 waren daher schwache OSL-Intensitäten und große statistische Fehler für die Normierungsfaktoren abzusehen.

Das Bild der natürlichen Lumineszenz (Auflösung 100 μm) zeigt, dass nur wenige große Körner (einige 100 μm) aus der Magerung der Grenzfläche ein detektierbares OSL-Signal aufweisen (Abb. 5.39). Sie stellen auch in der hochbestrahlten, besser aufgelösten späteren OSL-Aufnahme die dominanten Körner dar. Zwei Körner der Probe konnten für eine Äquivalenzdosis-Bestimmung verwendet werden (rot markiert in Abb. 5.30, Tab. 5.19). Die EDX-Daten zeigen, dass es sich hierbei um ein Quarz- und ein K-Feldspat-Korn handelt. Sowohl Äquivalenzdosen als auch die Dosisleistung der Körner unterscheiden sich deutlich.

Zur Modellierung der Dosisleistung wurde dabei angenommen, dass neben der externen Umgebung- γ -Dosisleistung und der kosmischen Strahlung auf die Mineralkörner die β -Komponente des umgebenden Keramikmaterials und die Korn-interne β -Dosisleistung einwirken. Die aus der Keramik stammende γ -Dosisleistung kann aufgrund des Verhältnisses von Probengröße und Reichweite (in der 3. Potenz) vernachlässigt werden. Die Abschwächung der von außen einwirkenden β -Strahlung innerhalb der Körner und der Anteil der korn-internen Dosisleistung, die im Korn selbst absorbiert wird, wurden mit Hilfe der Korrekturen von Mejdahl [1979] ermittelt (Tab. 5.20, Spalten 5 und 6). Zusätzlich wurde die Feuchtekorrektur von Busse [2000] übernommen.

Für beide Körner konnte aufgrund der Spaltspur-Verteilungen (Abb. 5.39, 5.40) ein starker α -Strahler in der direkten Umgebung ausgeschlossen werden, für die β -Beiträge der markierten Strahlungszentren wurde aufgrund ihrer Dichte eine ausreichende Homogenität angenommen (dabei ist zu beachten, dass der Spaltspurdetektor nur die Schnittfläche abdeckt, während die Strahler im dreidimensionalen Probenvolumen verteilt sind).

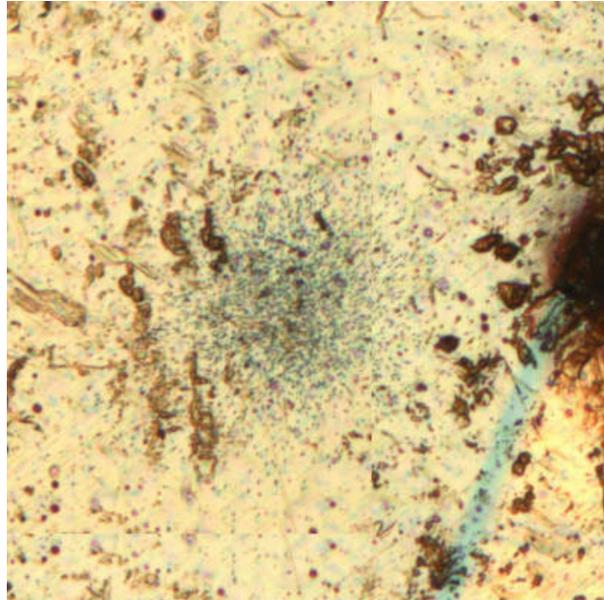


Abbildung 5.39: Spaltspuren auf KAPTON-Folie (Größe des Ausschnitts ca. $450 \mu\text{m}$). Gut zu erkennen ist die sternförmige Orientierung. Die Folie weist deutliche Artefakte durch Kratzer aber auch durch interne Strukturen auf.

Die Alter beider Körner stimmen innerhalb der Fehler überein, wobei der hohe Fehlerbereich des Quarzkorns auf die geringen OSL-Intensitäten und somit auf einen starken Einfluss der Temperaturdrift zurückzuführen ist. Beide ermittelten Alter aber unterschätzen das archäologische Alter der Keramik. Mögliche Faktoren dafür sind:

- Eine Unterschätzung der Korngröße. Sie kann zustande kommen, wenn beim Sägen nicht die Kornmitte, sondern ein Randbereich durchtrennt wurde. Ein größerer Wert für den Korndurchmesser würde im Falle des Quarzes zur Berechnung einer geringeren Dosisleistung (und damit ein höheres Alters), im Falle des Feldspats zur Berechnung einer höheren Dosisleistung und eines geringeren Alters führen.
- Ein nicht-thermischer Signalverlust. Dieser würde allerdings nur das Feldspatkorn betreffen. Busse [2002] konnte bei ihren Messungen kein Fading an der Feldspatfraktion der Keramik K866 feststellen.
- Sensitivitätserhöhungen im Laufe der Messungen. Durch sie wird der Verlauf der Wachstumskurve steiler, und die Äquivalenzdosen unterschätzt.

5.4.3.2 Prähistorische chinesische Keramik HC-17

Die zweite untersuchte Keramikprobe stammt aus der Grabung einer früh-neolithischen Siedlung bei Jia-Hu (Provinz Henan/China). Die Probe entstammt der obersten Fundschicht (III, späte Periode) [Yang, pers. Mitteilung], für die IRSL-Alter 4890 ± 530 Jahren bzw. 5850 ± 540 Jahren ermittelt wurden. Keramikfunde aus dieser Schicht zeigten TL-Alter von 6800 ± 450 Jahren und 8220 ± 590 Jahren [Yang et al., eingereicht bei *Journal of East Asian Studies*].

Die Messungen wurden unter grüner Stimulation durchgeführt. Zur Auswertung wurde das erste von fünf 60 s-Intervallen im blauen Wellenlängenbereich verwendet. Die etwas höhere Sensitivität (ca. 0,37 Cts/s) und die aufgrund des Alters der Probe höheren natürlichen OSL-Signale erlaubten die Detektion einer größeren Anzahl von Körnern als bei der Probe K866 (Abb. 5.41). Für zehn Körner (grün markiert) konnten Äquivalenzdosen bestimmt werden – bei Ausschluss von Messpunkten mit einer Korrelation zum linearen Wachstumskurvenmodell von weniger 0,95 und einem relativen Fehler kleiner als 0,30.

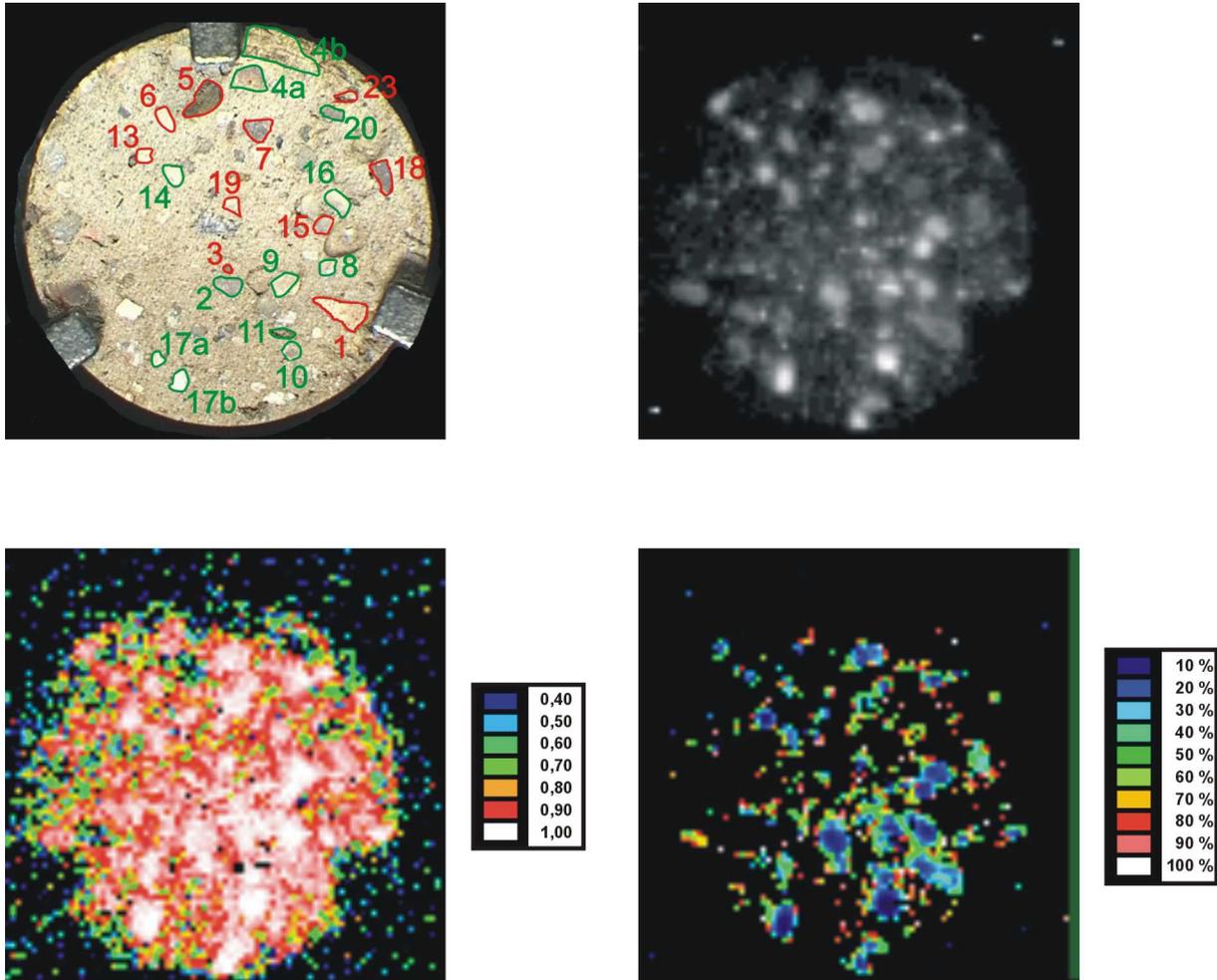


Abbildung 5.40: Äquivalenzdosen-Bestimmung der Probe HC-17. Oben links die Auflichtaufnahme mit Nummerierung markanter Körner sowie das natürliche Lumineszenzsignal (oben rechts). Untere Reihe: Korrelation zum Wachstumskurvenmodell und relative Fehler der Äquivalenzdosen.

Da diese Körner sowohl Quarze als auch Feldspäte mit unterschiedlichen Kaliumgehalten umfassen (Abb. 5.42), konnte neben einer konventionellen Bestimmung des Probenalters (analog K866S3) das Verfahren des *subtraction dating* (3.4) angewandt werden. Zur Bestimmung der Korn-internen β -Dosisleistungen wurden die Kaliumgehalte mit Hilfe von EDX-Punktanalysen bestimmt. Für die β -Komponente aus der Umgebung des Kornes wurden Mittelwerte aus den Analysen benachbarter Keramikfunde verwendet, ebenso für die Werte der Feuchtekorrektur. Die Dosisleistung wurde wie schon bei der Probe K866S3 auf die Korngrößen korrigiert. Um dieses Verfahren im Programm MICROSOFT EXCEL zu automatisieren, wurden für die Korrekturfaktoren von Mejdahl [1979] für den Bereich von 0,1 und 1,0 mm eine Kurvenanpassung vorgenommen (Abb. 5.43).

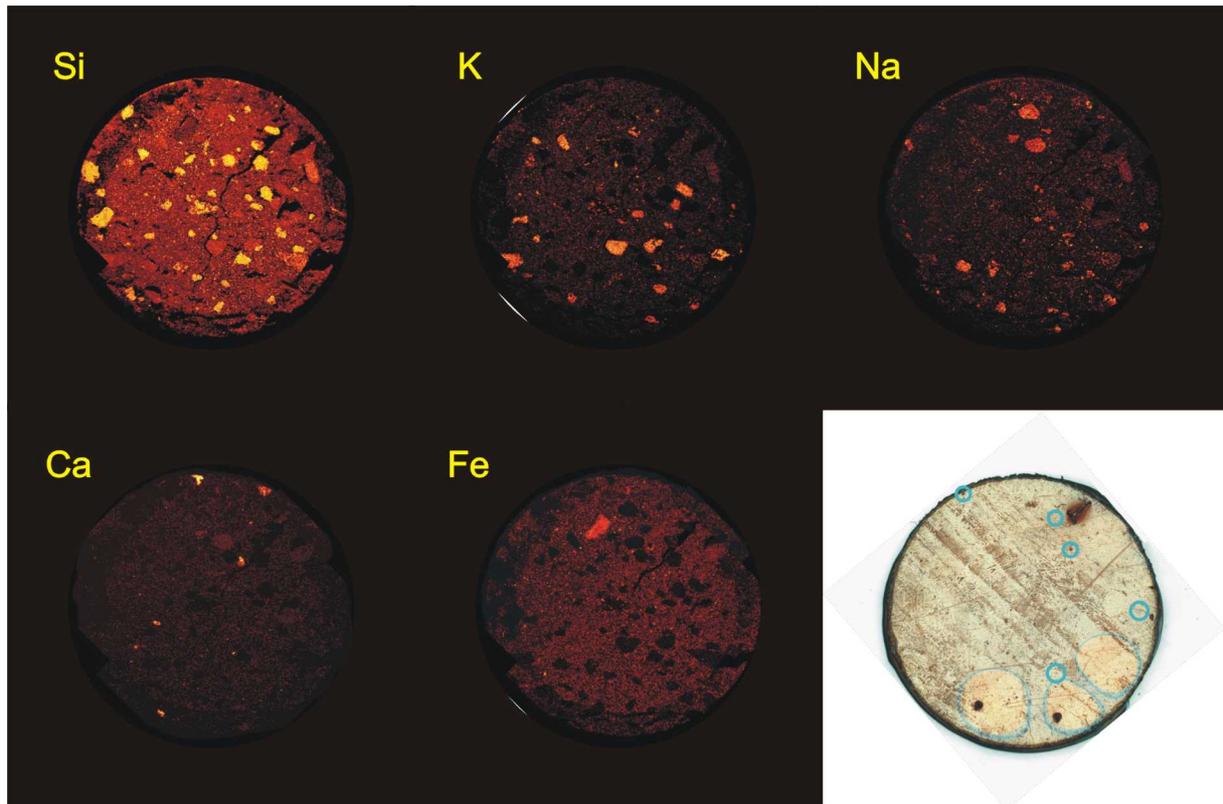


Abbildung 5.41: Elementverteilung und Spaltspur-Detektor für die Probe HC-17 (Zentren hoher Uran-Gehalte sind blau markiert).

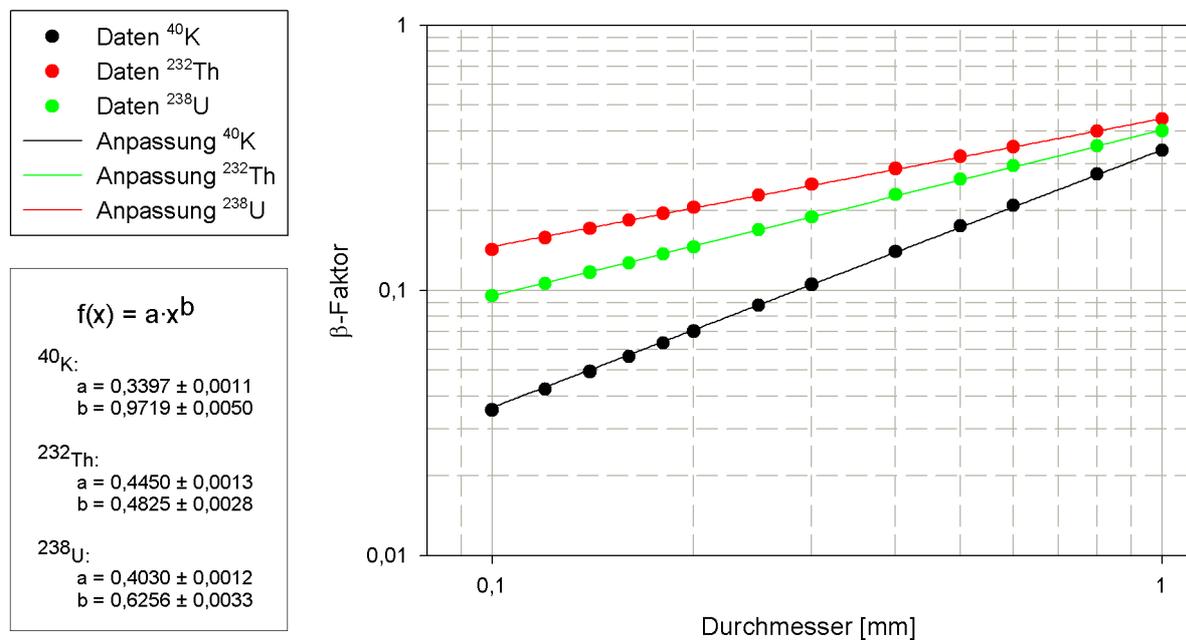


Abbildung 5.42: Extrapolation der Korrekturfaktoren für β -Strahlung in Abhängigkeit von der Korngröße, Daten nach Mejdahl [1979].

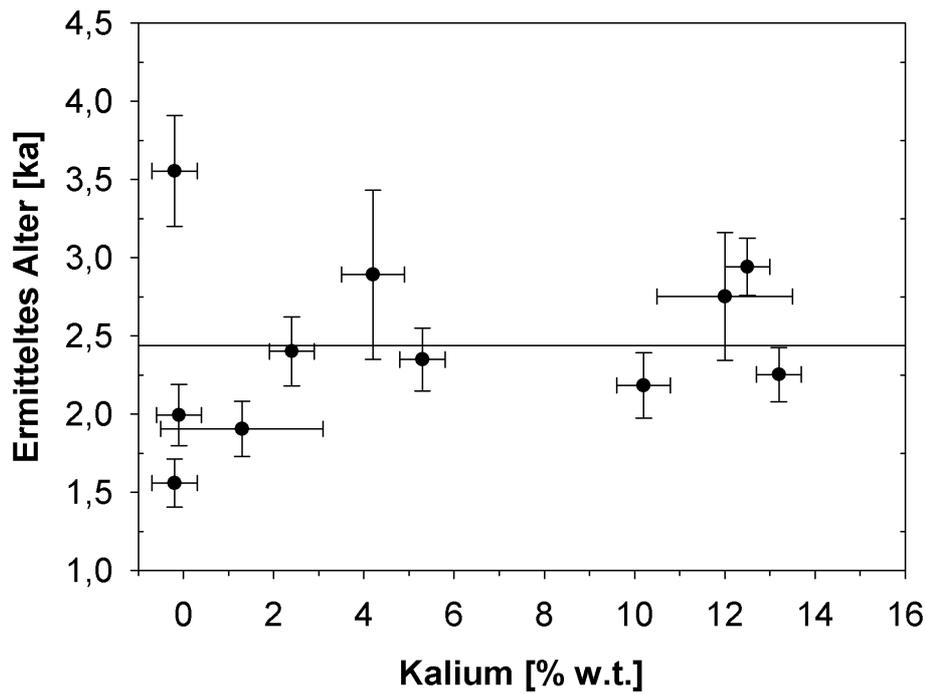
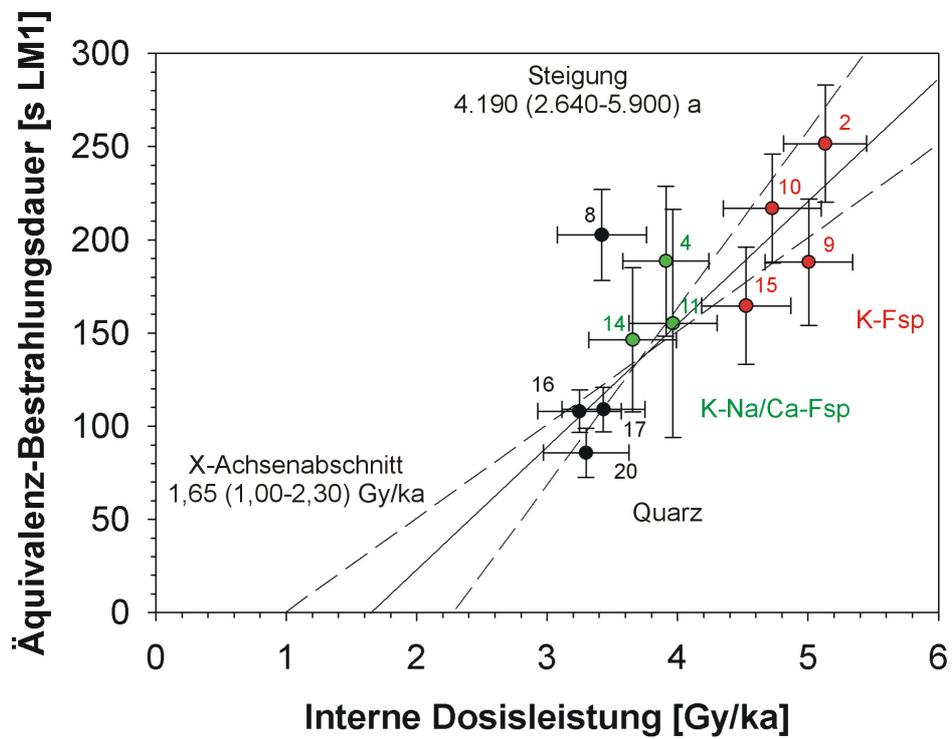


Abbildung 5.43: Konventionell berechnete Alter für die Körner der Probe HC-17.



Korn	Mineral	Größe [μm]	K [%]	D_E [s]	Flächen	β -DL Korn [Gy/ka]	β -DL Probe [Gy/ka]	Einzelkorn- alter [ka]
2	K-Fsp	505	12,5 \pm 0,5	251 \pm 32	3	1,89 \pm 0,08	2,09 \pm 0,29	2,94 \pm 0,18
4	K/Na-Fsp	750	4,2 \pm 0,7	189 \pm 40	5	0,89 \pm 0,15	1,87 \pm 0,26	2,89 \pm 0,54
8	Q	310	-0,2 \pm 0,5	203 \pm 25	8	-0,02 \pm 0,05	2,29 \pm 0,31	3,55 \pm 0,35
9	K-Fsp	415	13,2 \pm 0,5	188 \pm 34	9	1,68 \pm 0,06	2,18 \pm 0,30	2,25 \pm 0,15
10	K-Fsp	360	12,0 \pm 0,5	217 \pm 29	13	1,34 \pm 0,17	2,24 \pm 0,30	2,75 \pm 0,41
11	K/Na-Fsp	330	5,3 \pm 0,5	155 \pm 61	3	0,55 \pm 0,05	2,27 \pm 0,31	2,35 \pm 0,20
14	K/Na-Fsp	355	2,4 \pm 0,5	146 \pm 40	4	0,26 \pm 0,06	2,24 \pm 0,31	2,40 \pm 0,22
15	K-Fsp	360	10,2 \pm 0,6	165 \pm 30	10	1,14 \pm 0,07	2,24 \pm 0,31	2,18 \pm 0,21
16	Q	480	-0,1 \pm 0,5	108 \pm 11	9	-0,01 \pm 0,07	2,11 \pm 0,29	1,99 \pm 0,20
17	Q (?)	510	1,3 \pm 0,5	109 \pm 11	10	0,20 \pm 0,08	2,08 \pm 0,29	1,91 \pm 0,18
20	Q	420	0,2 \pm 0,5	86 \pm 13	3	-0,03 \pm 0,06	2,17 \pm 0,30	1,56 \pm 0,16

Mittelwerte benachbarter Proben (Yang et al. [eingereicht bei *Journal of East Asian Studies*]):
 [K] = 2,7 \pm 0,5 %
 [U] = 3,7 \pm 1,0 ppm
 [Th] = 16,0 \pm 1,7 ppm
 Porosität 0,18 / Mittlere Feuchte 0,75
 Externe Dosisleistung [extern]: 1,15 \pm 0,14 Gy/ka (γ -Dosisleistung Sediment und kosm. Dosisleistung)

Tabelle 5.21: Altersbestimmung für die Körner der Probe HC-17. Die angegebenen internen β -Dosisleistungen (Körner) und die β -Dosisleistung der Probe sind bereits auf die Korngröße korrigiert.

Abb. 5.44 zeigt die für die Einzelkörner konventionell ermittelten Alter (s. a. Tab. 5.21). Sie streuen stark um einen Mittelwert von 2.440 a. Mit zunehmendem Kaliumgehalt verringert sich die Streuung. Der erwartete Altersbereich für die Probe wird aber deutlich unterschätzt. Bei Anwendung der Subtraktionsmethode (Abb. 5.45) erhält man ein weitaus höheres Alter aus der Steigung der an die Daten angepassten linearen Regressionskurve. Die Einzelwerte gruppieren sich nach Mineralarten und zeigen eine deutliche Korrelation zwischen der berechneten internen Dosisleistung und der Äquivalenzdosis. Ein Quarzkorn liegt dabei allerdings weit außerhalb der angepassten Geraden. Dies könnte durch die Nähe zu einem Punktstrahler begründet sein, der allerdings in der Spaltspur-Verteilung der KAPTON-Folie nicht erkennbar ist. Das ermittelte Alter von 4.190 a unterschätzt aber wiederum den erwarteten Wert, ebenso ergibt sich eine durch den X-Achsenabschnitt bestimmte negative externe Dosisleistung.

- Eine eventuelle Unterschätzung der Korndurchmesser (s. o.) würde zu einem flacheren Verlauf der Geraden und höheren Werten in der ermittelten externen Dosisleistung führen, aber auch zu einem flacheren Verlauf der Geraden und somit zu einem jüngeren Alter.
- Die Korrektur eines eventuellen nicht-thermischen Ausheilens der Feldspäte dagegen hätte einen steileren Verlauf, einen geringeren Wert für die externe Dosisleistung aber eine höhere Abschätzung des Alters zur Folge. Vergleichbare Keramiken des Fundplatzes zeigten z. Z. deutliche Fadingeffekte von in einem Fall bis zu 28,7 %.
- Sensitivitätsänderungen könnten, je nachdem wie sie sich für die einzelnen betrachteten Minerale gestalten, sowohl die Lage als auch die Steigung der Kurve beeinflussen.

Aus dem Vergleich der Einzelkornalter mit dem Ergebnis der Subtraktionsmethode kann man darauf schließen, dass ein eventueller nicht-thermischer Signalverlust nur eine begrenzte Auswirkung hat, da ansonsten die Alter der K-Feldspäte in Abb. 5.44 höher würden und die Verteilung im Gegenuhrzeigersinn kippen würde. Für weitere Keramikmessung sollten daher unbedingt Normierungsmessungen und Fadingtests durchgeführt werden. Da erstere aber hö-

here OSL-Signale erfordern, müssen für diese Untersuchungen entweder Stücke mit einer höheren Sensitivität verwendet oder aber auf eine intensivere Emissionswellenlänge ausgewichen werden.

Losgelöst von der Datierung bietet die orts aufgelöste Bestimmung der Äquivalenzdosen auch das Potential für einen neuartigen Test der Echtheit von Keramiken. Echtheitstests werden üblicherweise durch TL-Messungen an geringen Mengen erbohrten Probenmaterials durchgeführt. Durch eine Bestrahlung der Artefakte z. B. durch γ -Quellen kann aber für diese Tests ein hohes Alter der Probe vorgetäuscht werden. Die homogene Einwirkung von Strahlung erzeugt allerdings eine gänzlich andere OSL-Verteilung in der Keramik, als das natürliche Mikrodosimetriefeld. Durch hoch aufgelöste Messungen könnte dieser Unterschied (oder sein Fehlen) sichtbar gemacht werden – ohne das eine Möglichkeit bestünde, diesen „Fingerabdruck“ durch eine künstliche Bestrahlung des Artefakts zu erzeugen [Aitken, 1985]. Mit herkömmlichen Messungen bestünde dabei aber ein sehr großer, für ein wertvolles Stück zu großer Materialbedarf. Die hochauflösende Technik erlaubt die Anwendung dieses Verfahrens an einer kleinen Probenscheibe.

5.5 Expositionsverfahren zur orts aufgelösten Bestimmung der Dosisleistung

5.5.1 Dosisleistungsbestimmung mittels α -Al₂O₃:C

Kalchgruber [2002] beschreibt den erfolgreichen Einsatz von α -Al₂O₃:C-Tabletten zur in-situ (β/γ -) Dosisleistungsbestimmung in Sedimenten. Bereits Habermann [2000] zeigte, dass auch integrale Messungen der Dosisleistung an polierten Gesteinsoberflächen möglich sind. Eine Versuchsreihe sollte prüfen, ob die Technik der hochauflösenden Lumineszenz mit Hilfe des LasLUM I sich auch auf α -Al₂O₃:C-Pellets, die auf Grenz- oder Oberflächen exponiert worden waren, anwenden lässt, und ob sich so eine Möglichkeit zur orts aufgelösten Dosisleistungsmessung ergibt.

Auf sieben Probenscheiben (8 mm Durchmesser, 2 mm Dicke) wurden α -Al₂O₃:C-Tabletten fixiert und in lichtdichten Filmdosen im Labor gelagert. Nach einer Expositionszeit zwischen 196 und 220 Tagen wurde die grün stimulierte blaue Lumineszenz der *Pellets* auf dem LasLUM I mit einer Auflösung von 75x75 μm bzw. 100x100 μm gemessen und die Äquivalenzdosen-Verteilung bestimmt.

Abbildung 5.46 zeigt die Ergebnisse für die mittels der Expositionszeit und eines Geometriefaktors (2π) berechneten jährlichen Dosisleistungen der sieben *Pellets*. Daneben sind jeweils eine Auflichtaufnahme sowie EDX-Elementanalysen der Probe dargestellt. Die Intensitäten der „natürlichen“ OSL-Signale lag für alle Messreihen zwischen ca. 100 und 1000 Zählereignissen (Abb. 5.47). Diese Zählstatistik schränkt die Möglichkeit, feine Unterschiede aufzulösen, ein. Somit liegt die effektive Auflösung der Messungen unter der physikalischen. Die Dosisleistungs-Bilder in Abb. 5.46 wurden zur besseren Darstellung mit einem Tiefpassfilter²⁰ im Programm AGESGALORE geglättet.

²⁰ 3x3-Koeffizientenmatrix [(0,0625/0,1250/0,0625)/(0,1250/0,2500/0,1250)/(0,0625/0,1250/0,0625)]

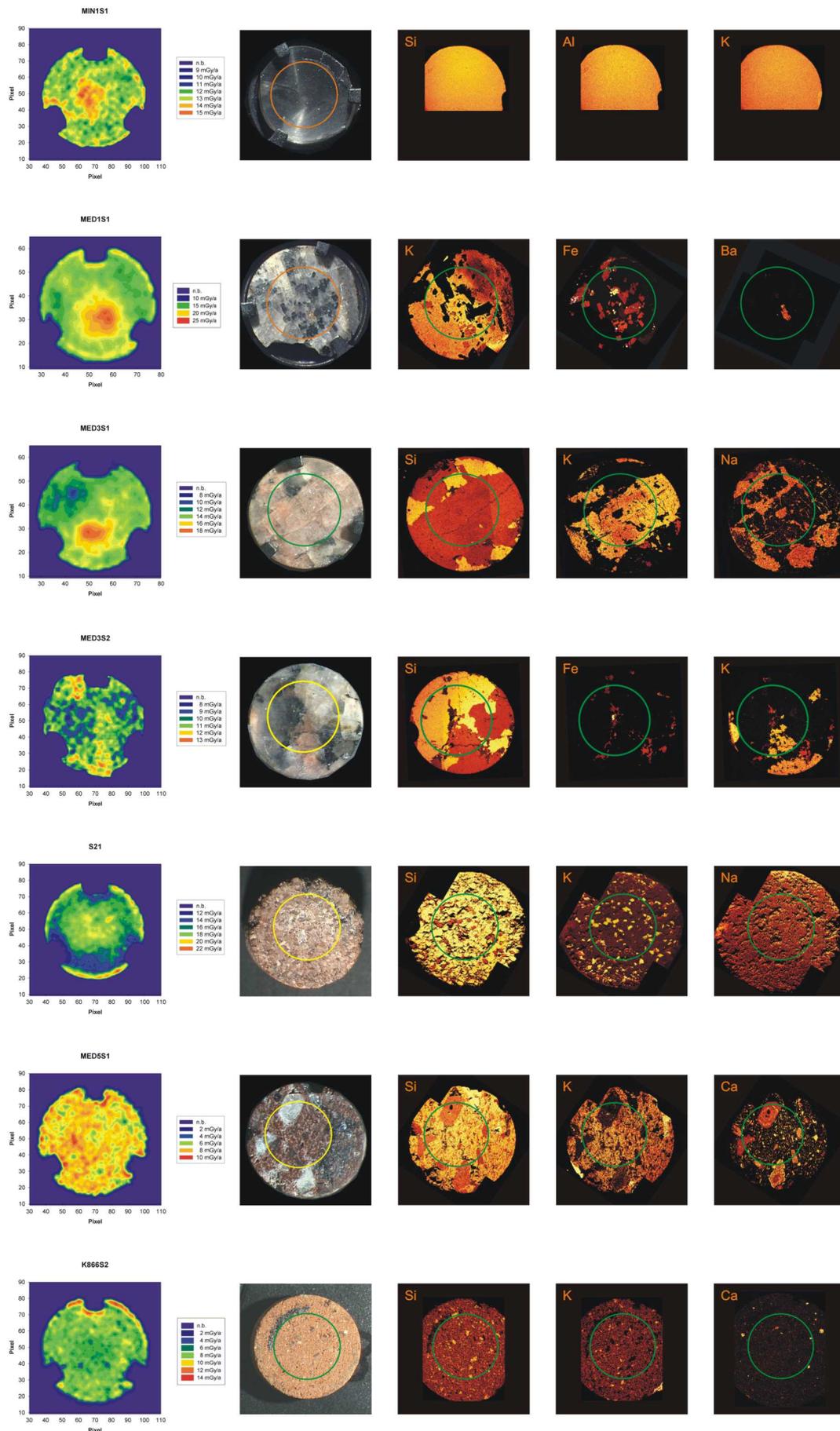


Abbildung 5.45: Hochauflösende Messungen an $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Dosimetern.

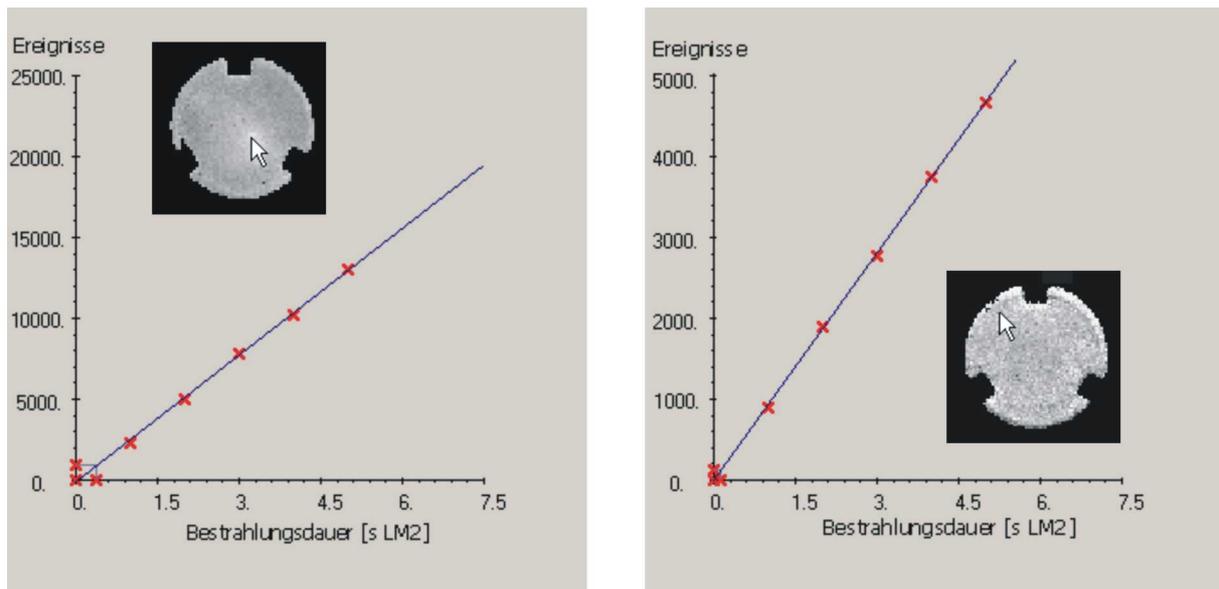


Abbildung 5.46: Zwei Wachstumskurven an $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ -Tabletten zur Dosisleistungsbestimmung. Links eines der stärksten Signale der Messreihe (der Mauszeiger deutet auf die entsprechende Messfläche), rechts ein unterdurchschnittlicher Fall.

Die Probe MIN1S1 ist einem Sanidin aus der Eifel (Vogelsberg) entnommen, der über eine sehr homogene Elementverteilung verfügt. Den Hauptanteil der Dosisleistung trägt bei dieser Probe das Kalium, dessen Gehalt durch Punktanalysen auf $13,1 \pm 0,1\%$ festgestellt worden war. Dies entspricht einer β -Dosisleistung von $10,24 \pm 0,08$ mGy/a und einer γ -Dosisleistung von $3,18 \pm 0,02$ mGy/a. Letztere kann aufgrund der geringen Ausdehnung der Probe vernachlässigt werden, ebenso wie die kosmische Strahlung, da das Labor sich im Kellergeschoss befindet. Die überwiegende Fläche des *Pellets* zeigt jährliche Dosisleistungen von ca. 12 mGy/a, was (unter Berücksichtigung eventueller Umgebungsstrahlung) im Bereich der Erwartung liegt. In der Mitte des Dosimeters befindet sich ein Areal mit höherer Dosisleistung bis zu 15 mGy/a auf. Ein t-Test (t -Wert: 31,42, $p \ll 1$) zeigt, dass der Unterschied der Bereiche signifikant ist und nicht auf statistische Ursachen zurückgeführt werden kann. Es ist denkbar, dass sich durch die begrenzte räumliche Ausdehnung der Probenscheibe, auf der das *Pellet* liegt, und die kurzreichweitige Strahlung eine Abschwächung der Dosisleistung zu Rand hin ausgebildet hat. Der Effekt ist aber nicht konsequent bei allen Proben zu finden. So kann auch ein Punktstrahler verantwortlich sein, denn Form und Größe erinnern deutlich an die Areale hoher Dosen auf der Probe LIN1S1. Bei den Proben MED1S1 und MED3S1 sind vergleichbare Strukturen zu erkennen. Nur im Falle von MED1S1 ist der Effekt eindeutig mit einer Erscheinung im EDX-Bild (Ba) zu korrelieren. Weitere Untersuchungen könnten zeigen, ob derartige Auffälligkeiten durch Inhomogenitäten in der β -Mikrodosimetrie ausgelöst werden können.

Die beiden Proben MED3S1 und MED3S2 repräsentieren dasselbe Gestein, S1 enthält allerdings weitaus größere Quarzanteile, während S2 von Kalifeldspat und Plagioklas dominiert ist. In beiden Fällen bildet sich die Mineralstruktur deutlich in der Dosisleistung ab, und zwar in erwarteter Weise: mit niedrigeren Werten in Quarz- und Plagioklas-Regionen. Die K-Feldspat-Bereiche besitzen in beiden Messungen Werte um die 13 mGy/a.

Bei der Probe MED1S1 spiegelt sich die ausgedehnte K-Verteilung in der regelmäßigen Dosisleistung mit hohen Werten um die 17 mGy/a wieder. Darauf sitzt die bereits erwähnte Struktur auf. Das Verhältnis der Dosisleistungen zwischen MED1 und MED3 findet seine Bestätigung in den unterschiedlichen Kaliumgehalten der Proben (9,5 % bzw. 6,5 %).

Im Sandstein S21 findet sich die in der Auflichtaufnahme sichtbare weißliche Struktur auch in der Dosisleistung wider, allerdings nicht in den EDX-Aufnahmen. Es bleibt also unklar, ob sich hier ein radionuklidreicheres Material befindet oder ob die leichte Häufung von K-Feldspäten für das Verhalten des Dosimeters verantwortlich ist.

Eine sehr gleichmäßige Verteilung der Dosisleistung zeigt die Probe MED5S1. Aufgrund eines geringen Kaliumgehaltes ist die Dosisleistung insgesamt recht niedrig. Bei dieser Probe tritt deutlich das angesprochene Problem der Zählstatistik zutage: zwar zeigen sich gekräuselte Strukturen, aber es ist nicht zu entscheiden, ob diese durch das Rauschen des OSL-Signals zustande kommen oder die Verhältnisse auf der Probe repräsentieren.

Die durchschnittliche Dosisleistung der Probe K866S2 liegt mit ca. 8 mGy/a um einen Faktor zwei höher als die Messungen von Busse [2002], die für die Feldspat-Grobkornfraktion eine Gesamtdosisleistung von 4,53 mGy/a bestimmt hatte (s. a. 5.4.3.1). Es zeigen sich aber auch Bereiche niedrigerer Dosisleistung (4-6 mGy/a), die aber nicht einzelnen Körnern der Magerung zugeordnet werden können, da auch hier die effektive Auflösung unter der physikalisch erreichten liegt.

Die Ausführungen zeigen, dass mit Hilfe des LasLUM I α -Al₂O₃:C als mit hoher räumlicher Auflösung ausgelesen werden kann. Für eine Verwendung als Dosimeter bleiben aber folgende Hindernisse bestehen:

- Bedingt durch die hohe Ortsauflösung müssen die Dosimeter trotz ihrer sehr hohen Sensitivität erheblich länger auf der Probe verbleiben als die sonst üblichen wenigen Tage, um ein ausreichendes OSL-Signal aufzuweisen.
- Die radioaktiven Quellen der Forschungsstelle sind nicht auf das hochempfindliche Material ausgelegt. Dieses Problem wird von Kalchgruber et al. [2002] durch die Verwendung einer Nebenposition statt der eigentlichen Bestrahlungsposition im RISØ-Lumineszenzgerät gelöst. Da dieses Vorgehen aber keine homogene Bestrahlung der Probe ermöglicht, sondern einen starken Gradienten der aufgebrachten Dosis aufweist, ist es für ortsaufgelöste Messungen nicht anwendbar (es sei denn, es bestünde die Möglichkeit einer ortsabhängigen Kalibration des inhomogenen Dosisleistungsfeldes). In Abb. 5.45 ist zu erkennen, dass die Expositions-Lumineszenz²¹ der *Pellets* weit unter dem Signal der kürzesten Bestrahlungszeit von einer Sekunde in der schwächeren der beiden verwendbaren Quellen (LM2) liegt. Trotz der hohen Linearität in der Dosis-Antwort von α -Al₂O₃:C resultieren hieraus Unsicherheiten.
- Das Verhalten der *Pellets* in verschiedenen mikrodosimetrischen Umgebungen muss zunächst besser verstanden werden. Dies könnte durch Versuche mit künstlichen Probenscheiben geschehen, die definierte Eigenschaften aufweisen (aus Standardgläsern oder Kombinationen von Standardgläsern) und so die unterschiedlichen Einflüsse der Strahlungskomponenten aufzeigen können.

5.5.2 Dosisleistungsbestimmung mittels Autoradiographie

Das Potential von BaBrF:Eu²⁺ für ortsaufgelöste Dosisleistungsbestimmungen wird in 2.5.5 beschrieben. Im Rahmen dieser Arbeit waren allerdings nur Tests mit älteren Bildplatten möglich, deren Sensitivität und thermische Stabilität niedriger als die von Hareyama [2000] verwendeten waren. Trotzdem konnten nach einwöchiger Lagerung²² einer ca. 5x10 cm großen und 5 mm dicke Scheibe der Probe ODW1 (Gneis, Fundamentstein der *villa rustica* Ha-

²¹ Die der sog. „natürlichen“ Lumineszenz bei archäologischen Proben entspricht.

²² Bedingt durch den hohen thermischen Signalverlust von 25 % sind bereits nach sieben Tagen 80 % der maximalen Speicherkapazität erreicht. Diese maximale Kapazität entspricht der Speicherfähigkeit einer nicht-fadenden Platte innerhalb von nur 3,5 Tagen.

selburg/Odenwald) deutliche Signaleinträge auf der Bildplatte erkannt werden (Abb. 5.48). Für eine quantitative Analyse sind die Zählraten bei weitem zu gering, doch lässt sich das Muster auf der Autoradiographieplatte gut mit den Strukturen der Probe in Verbindung bringen. Die dunklen Kreise sind blinde Flecken der Bildplatte. Daneben aber sind drei sehr helle kleine Punkte zu sehen, bei denen es sich um α -Strahler handeln könnte.

Eine künftige Anwendung für Bildplatten könnte somit in der Darstellung der β -Gradienten an einer Oberfläche (in der x-y-Ebene) und der gleichzeitigen Detektion von starken α -Strahlern liegen.

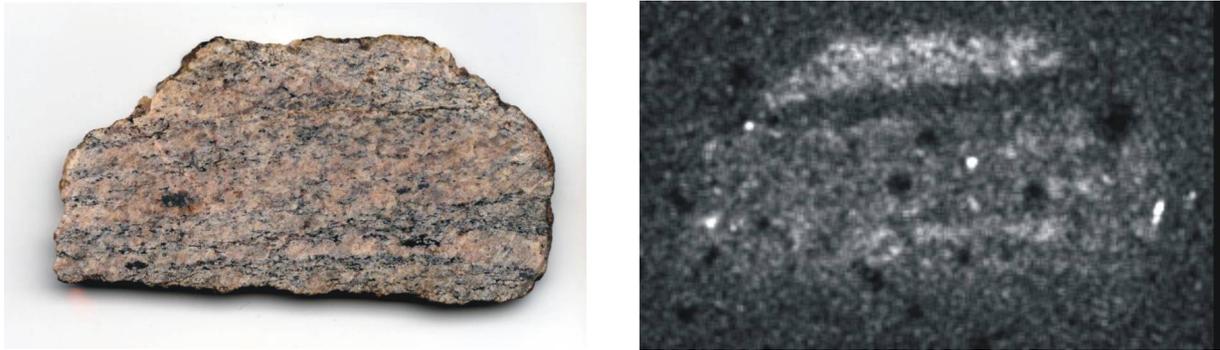


Abbildung 5.47: Autoradiographie-Bild einer Probenscheibe aus der Probe ODW1 (rechts), links eine Auflichtaufnahme.

6 Entwicklung eines konfokalen Lumineszenz-Mikroskops

6.1 LasLUM II

Neben dem LasLUM I sollte ein konfokales Lasermikroskop entwickelt werden, das den speziellen Anforderungen der orts aufgelösten Lumineszenzdatierung gerecht wird, indem im Gegensatz zu herkömmlichen Geräten

- seine Belichtungszeiten im Bereich von Millisekunden bis zu einigen Sekunden pro Messpunkt variiert werden können,
- die Detektion auf ein Höchstmaß an Lichtsammlung abgestimmt wird und Filter, die zur Unterdrückung längerwelliger Stimulationslichter optimiert sind, verwendet werden können,
- das OSL-Signale auf rauen Oberflächen ohne Störung der umgebenden Bereiche erfasst werden kann

Das konfokale Verfahren ermöglicht im Gegensatz zur abbildenden Methodik die sehr effektive Einschränkung der Detektion²³ auf eine begrenzte Tiefenschicht in der Probe (*optical sectioning*). Somit ist es möglich, die Größe des Volumens, in dem das OSL-Signal gemessen wird, zu definieren. Im Gegensatz zum LasLUM I weiterhin auch möglich, eine Spektralinformation der OSL zu erhalten, da ein nichtabbildendes Verfahren genutzt wird. In den Probenformaten ist das LasLUM II kompatibel mit dem LasLUM I sein, um Vergleichsmessungen auf beiden Geräten durchführen zu können.

Wie bei der Konfokalmikroskopie üblich, wird die Sammelwirkung der Objektivlinse ausgenutzt werden, um einen Laserstrahl in der Fokalebene des Mikroskops zu bündeln. Dabei ist durch die hohe numerische Apertur besonders der stark vergrößernden Mikroskopobjektive eine sehr gute Lichtsammlung möglich (z. B. 50x / NA 0,5 / I = 13,4 % oder 100x / NA 0,8 / I = 40 % [!]), der natürlich ein entsprechend kleinerer Messpunkt gegenübersteht. Das im Fokus entstehende OSL-Signal wird wiederum durch das Objektiv auf einen Detektor abgebildet. Durch Korrelation von im Stimulations- und Detektionsstrahlengang verwendeten Blenden kann nur Licht aus einem eng begrenzten Fokalbereich zum Detektor gelangen. Die Trennung zwischen dem Strahlengang des Stimulationslichtes und dem OSL-Signal findet, wie schon beim LasLUM I, durch einen Strahlteiler statt. Statt des Lichtstrahls wird die Probe von einem in alle drei Raumrichtungen beweglichen Tisch unter dem Objektiv bewegt. Diese Vorgehensweise lässt beinahe beliebige Belichtungszeiten zu. Die einzelnen Messungen werden dann von einem Computer zu einem (Pseudo-)Bild zusammengesetzt.

Um eine Probe auf ihrer rauen Oberfläche (oder in einem definierten Abstand zu dieser) abtasten zu können, wurde eine Fokussiereinrichtung konzipiert. An einem Punkt der Probe sucht sie zunächst mit einem sehr schwachen roten Laser die Lage der Grenzfläche. Ist der Laser fokussiert, d. h. liegt die Oberfläche in der Brennebene, so erreicht die Intensität des reflektierten roten Lichts ein Maximum. Da das System ohnehin auf den Nachweis von ein-

²³ Dies gilt nicht bzw. nur eingeschränkt für die Stimulation.

zelen Photonen ausgelegt ist, kann diese Abtastung mit sehr geringer Laserleistung erfolgen, so dass das OSL-Signal der Probe minimal beeinflusst wird. Erst dann wird auf den sehr viel stärkeren Stimulationslaser umgeschaltet und die OSL-Messung vorgenommen. Ist sie beendet, fährt der Tisch zum nächsten Messpunkt und die Fokussierung beginnt von neuem. So erhält man am Ende nicht nur das OSL-Bild, sondern auch eine Aufnahme im reflektierten roten Licht und eine Topographie der Probenoberfläche. Beide könnten genutzt werden, um die Ergebnisse einer zweiter Messung (oder auch durch andere Verfahren gewonnene Daten) sehr genau mit denen des ersten Laufes zu korrelieren.

6.1.1 Lasereinheit (A)

Als Stimulationslaser werden ein blauer (488 nm, Abb. 6.1 und Abb. 6.3, 1), ein grüner (532 nm, 4) und ein IR-Laser (830 nm, 7) verwendet werden. Da die Leistung des Lasers auf der Probe durch die Fokussierung um Größenordnungen stärker ist, als bei der flächigen Ausleuchtung im LasLUM I, sind sehr viel schnellere OSL-Auslesevorgänge bereits mit mW-Lasern realisierbar. Diese schnellen Messungen sind auch deshalb wünschenswert, weil die Probe Punkt für Punkt abgerastert werden muss. Das An- und Abschalten der Laser – im LasLUM I durch einen mechanischen Verschluss realisiert – muss mit adäquater Geschwindigkeit und vor allem gut synchronisiert für die verschiedenen Laser erfolgen.

Statt mechanischer Verschlüsse („*shutter*“) werden in der Lasereinheit des LasLUM II akustooptische Elemente („*acousto-optical tunable filters*“, *AOTFs*) eingesetzt. Die hier verwendeten TeO₂-Prismen besitzen die Eigenschaft, ihren Brechungsindex $n(\lambda)$ in Abhängigkeit von in den Kristall eingekoppelten Radiowellen (MHz-Bereich) zu verändern. So kann der Anteil des Lichtes, das in die erste Ordnung gebrochen wird, über einen weiten Bereich von beinahe 0 % bis zu ca. 50 % der Gesamtleistung und für jede eingesetzte Laserwellenlänge individuell variiert werden. Die verwendeten *AOTF*-Kristalle besitzen Anstiegszeiten von weniger als 5 $\mu\text{s}/\text{mm}$ (*VIS-AOTF*) bzw. sogar 160 ns/mm (*IR-AOTF*), so dass der ca. 2-3 mm messende Laserstrahl innerhalb von max. als 15 μs abgeschaltet werden kann. Ein vollständiges Unterdrücken des Lasers ist nicht möglich, die maximale Dämpfung beträgt 45 dB. Diese Kristalle erlauben neben schnellen Um- und Abschaltvorgängen auch das Pulsen normaler cw-Lasern oder die Messung der so genannter linear-modulierten OSL (LM-OSL), bei der die Laserleistung auf der Probe von null bis zu einem Maximalwert gesteigert wird.

Da für sichtbares Licht ein anderer Kristalltyp verwendet werden muss, als für IR-Laser, sind im LasLUM II zwei *AOTFs* (8) eingebaut. Die zugehörigen Radiofrequenzgeneratoren modulieren nach Zuordnen einer Frequenz bis zu acht Laserlinien in Abhängigkeit von angelegten Gleichspannungen (0-5V). Diese Spannungen werden von einer D/A-Karte im Steuer-PC erzeugt, welche wiederum von der LasLUM II-Steuersoftware angesprochen wird.

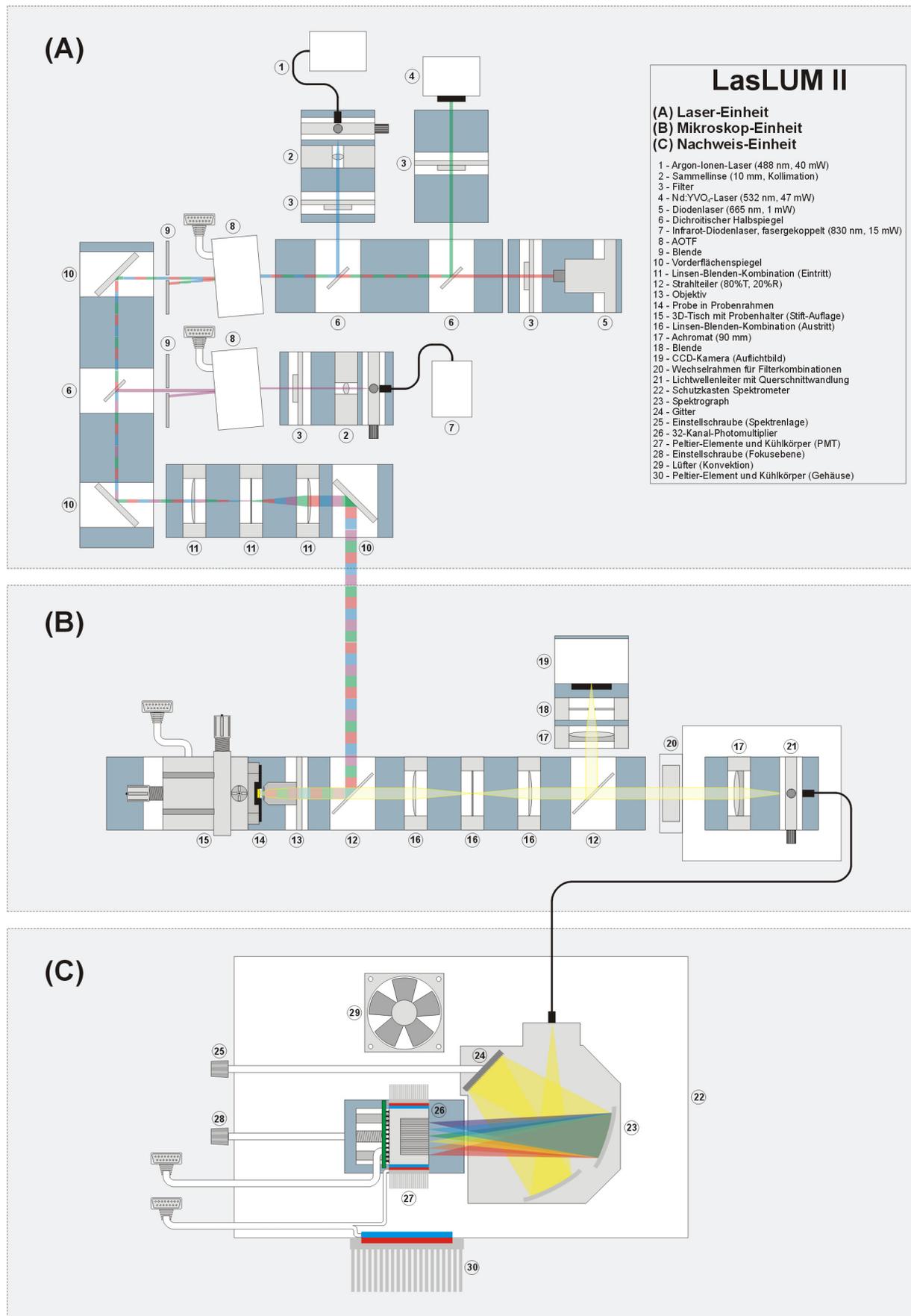


Abbildung 6.1: Funktionsskizze des LasLUM II.

6.1.2 Zentraler Strahlengang (B)

6.1.2.1 Optik

Alle im LasLUM II verwendeten Mikroskop-Objektive sind so konstruiert, dass sie zunächst den Gegenstand auf ein unendlich entferntes Zwischenbild abbilden. So kann auf eine Definition der Tubuslänge verzichtet werden und dem Objektiv diverse Einrichtungen wie Halbspiegel, Filter oder weitere Optiken nachgeschaltet werden. Eine Tubuslinse mit einer fest definierten Brennweite von 180 mm erzeugt dann ein weiteres Zwischenbild, das mit dem Okular betrachtet werden kann. Die für die Objektive angegebene Vergrößerung bezieht die Tubuslinse mit ein und berechnet sich aus dem Verhältnis der Brennweite des Objektivs zu dem der Tubuslinse. Ein 10x-Objektiv besitzt somit eine Brennweite von 18 mm, ein 100x-Objektiv von 1,8 mm.

Der jeweilig aktive Laser beleuchtet eine erste (Eintritts-)Blende, auf die er mit Hilfe einer plankonvexen Linse fokussiert wird (11). Die Brennweite ($f = 50$ mm) ist so gewählt, dass Blenden bis ca. 50 μm bei den üblichen Laser-Emitter-Größen oder Faserkopplungen komplett ausgeleuchtet werden. Dieses leuchtende Objekt wird dann durch eine zweite plankonvexe Linse zunächst ins Unendliche und anschließend mit Hilfe des Objektivs (13) auf die Probe (14) abgebildet (Abb. 6.2). Die Größe des Laserflecks, des Bildes der Blende auf der Probe, wird durch die Größe der Blende und wiederum durch das Verhältnis der Brennweiten der zweiten Linse und des Objektivs bestimmt (Tab. 6.1). Der Laserfleck selbst und die an seiner Stelle entstehende Lumineszenz wird – durch den Strahlteiler (12) vom Stimulationslicht entkoppelt – durch eine weitere plankonvexe Linse auf eine zweite (Ausgangs-)Blende abgebildet (16). Der Strahlteiler ist im Gegensatz zum LasLUM I kein dichroitischer Spiegel, sondern besitzt vom UV bis ins IR ein nahezu konstantes Verhältnis von 80 % Transmission und 20 % Reflexion. Dies ermöglicht den spektralen Nachweis der Lumineszenz, von dem auf diese Weise ein großer Teil des Spektrums zum Detektor gelangt. Ein großer Nachteil durch den Verlust der Laserleistung entsteht nicht, da durch die Fokussierung ohnehin sehr viel Leistung zur Verfügung steht.

Objektiv \ Blende	100 μm	50 μm	20 μm
1,25x	288 μm	144 μm	58 μm
5x	72 μm	36 μm	14,4 μm
10x	36 μm	18 μm	7,2 μm
50x	7,2 μm	3,6 μm	3,6 μm
100x	3,6 μm	1,8 μm	720 nm

Tabelle 6.1: Abhängigkeit der rechnerischen Größe des Laserflecks vom gewählten Objektiv ohne Berücksichtigung von Beugungseffekten. Die Tiefenausdehnung des Fokus muss mit Hilfe so genannter ‚point spread functions‘ ermittelt werden [Jonkman et al., 2003], liegt bei vollständiger Ausleuchtung der Objektives aber in der Größenordnung der lateralen Ausdehnung.

Die zweite Blende wird nur von Licht passiert, das vom Laserfleck aus der Fokalebene stammt. Die Anordnung und Spezifikation der zwei plankonvexen Linsen um die Austrittsblende entspricht denjenigen der Eintrittsgruppe, um die Öffnungs- und Abbildungsverhältnisse anzupassen. OSL-Signal und Laserlicht verlassen die Gruppe als kollimierter Strahl in Richtung Detektor.

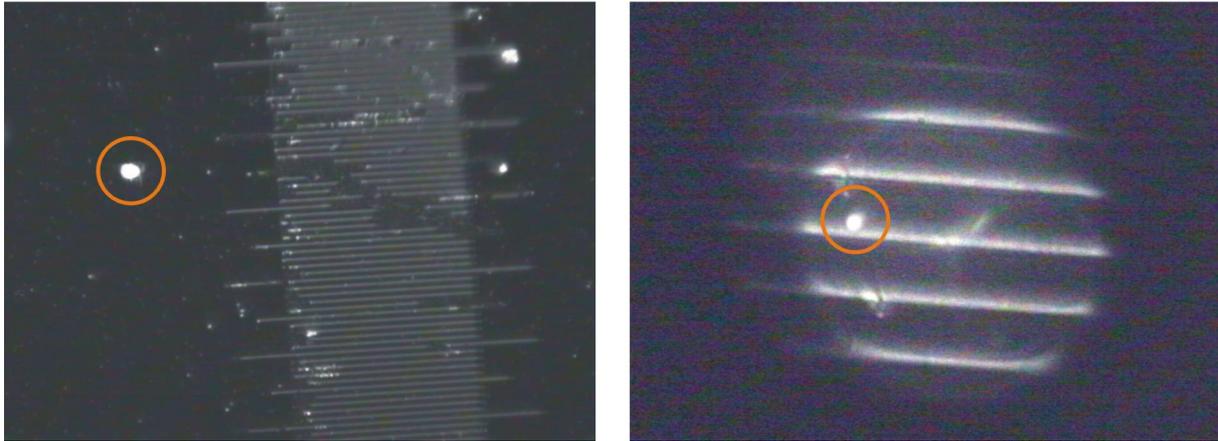


Abbildung 6.2: Laserspot des LasLUM II auf einem geätzten Glasmaßstab. Beide Male wurde eine 50 µm-Blende verwendet. Links ein 10x-, rechts ein 100x-Objektiv. Der Abstand zwischen zwei Teilstrichen beträgt 10 µm.

6.1.2.2 Probenstisch

Zum Verschieben der Probe (14) wird ein x-y-z-Tisch mit Schrittmotoren der Firma OWIS benutzt, der zum verwendeten Schienensystem SYS65 passt (15). Ein Drei-Stifthalter ähnlich dem LasLUM I ist aufgebracht, wobei allerdings auf eine leichtere Ausführung geachtet werden musste, da bei zu hoher Last die Schrittmotoren Schlupf aufweisen können. Dies ist umso kritischer, als dass die Positionsbestimmung nicht über ein unabhängiges externes System – z. B. von Glasmaßstäben – erfolgt, sondern über das Zählen der Motorschritte, unabhängig davon, ob auch wirklich eine Bewegung des Tisches erfolgte. Die Reproduzierbarkeit wird von der Herstellerfirma mit unter 10 µm angegeben. Durch Aufnahmen mit einer Aufrichtkamera konnte dies bestätigt werden. Ein Hängen des Tisches bei Bewegungsumkehr kann festgestellt werden, wenn sich eines der Spindellager gelockert hat. Vor Inbetriebnahme musste der Tisch mit Mikro-Endschaltern und externen Motoren-Sicherungen ausgerüstet werden. Diese sind nicht ab Werk montiert. Der Tisch wird über eine Schnittstellenkarte vom Steuer-PC angesprochen.

6.1.3 Detektionseinheit (C)

Durch ein Fenster in einer lichtdichten Box tritt der Strahl in die Einkopplungseinheit (17, 21, s. a. Abb. 6.5). So kann kein Streulicht in dem zum Detektor führenden Lichtleiter gelangen. In das Fenster wurde dasselbe Gewinde wie in die Frontplatte der CCD-Kamera des LasLUM I geschnitten. So können die bereits vorhandenen Filterhalter und -kombinationen auch im LasLUM II verwendet werden (20). Durch die Parallelität des Strahls sind aber Interferenzfilter besser einsetzbar.

Gleichzeitig kann ein Teil des Strahls durch einen weiteren halbdurchlässigen (T80/R20) Spiegel auf eine CCD-Kamera geworfen werden (17-19). Zusammen mit dem Objektiv bildet der Achromat (18) ein konventionelles Mikroskop. So können die Vorgänge in der Fokalebene, z. B. die Bewegung des Tisches, die Form des Laserspots oder der Ablauf der Fokussierung visualisiert werden. Die CCD-Kamera ist auch empfindlich für infrarotes Licht, so dass der IR-Laser ebenfalls beobachtet werden kann.

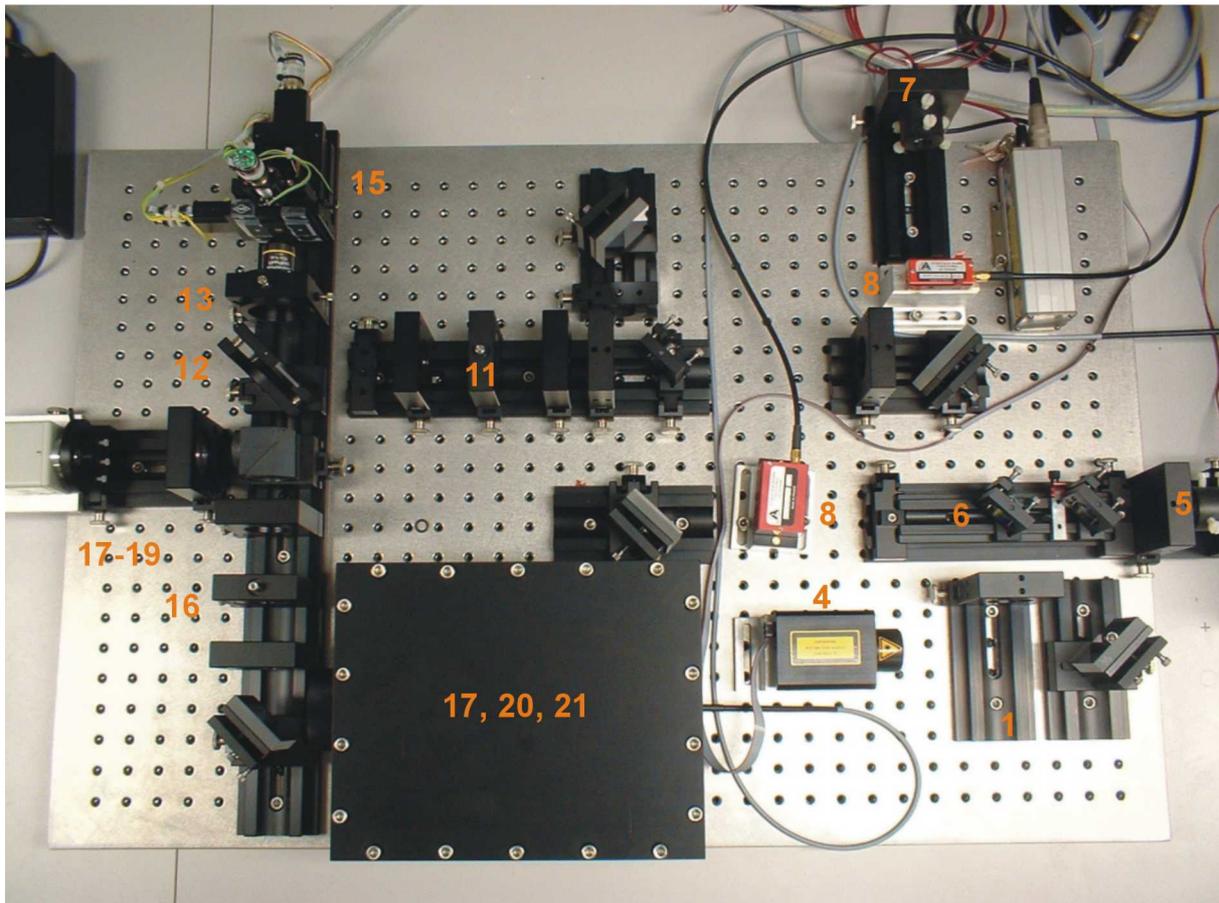


Abbildung 6.3: Aufbau des LasLUM II (Lasereinheit und zentrale Optik) auf einer 90x60 cm großen Rasterplatte. Das Spektrometer befindet sich rechts vom Aufbau und ist auf dieser Aufnahme nicht zu sehen.

Im Gegensatz zum LasLUM I dienen die Filter (20) des LasLUM II nur noch zur Unterdrückung des Laserlichtes, da eine Auswahl der OSL-Emissions-Wellenlängen aufgrund der spektralen Detektion obsolet wird. Zu den Filterkombinationen gehören ein Breitbandfilter der Firma AHF/CHROMA, der den gesamten Spektralbereich von 410 bis 740 nm passieren lassen, dagegen IR-Licht bei 830 nm mit einem Verhältnis von 10^{-6} unterdrücken kann. Er wird in dreifacher Ausführung bei IRSL-Messungen eingesetzt. Für die GRSL können Dualpassfilter verwendet werden, die die Laserlinie bei 532 nm unterdrücken, den Fokussierlaser bei 665 nm aber transmittieren (Abb. 6.4).

Durch einen Achromaten (17) wird der Strahl schließlich in einen Faserlichtleiter zum Spektrometer eingekoppelt (21). Das Bild der zweiten Blende wird auf die 600 μm große Faserendfläche geworfen. Die Brennweite ($f = 90 \text{ mm}$) des Achromaten wurde entsprechend der numerischen Apertur der Faser (0,22 bzw. ein Öffnungswinkel von $12,7^\circ$) gewählt, um bei der Einkopplung den Lichtverlust zu minimieren. Eine kürzere Brennweite würde den Akzeptanzwinkel der Faser überschreiten. Bei der Einstellung wurde darauf geachtet, dass ein ausreichend großer Teil der Faserendfläche beleuchtet wird. Dies geschieht durch eine leichte Defokussierung. Andernfalls können zu große Anteile des stark gebündelten Lichtstrahls auf die blinden Stellen zwischen den Einzelfasern fallen, was zu Lichtverlust und Signalinstabilität führte.

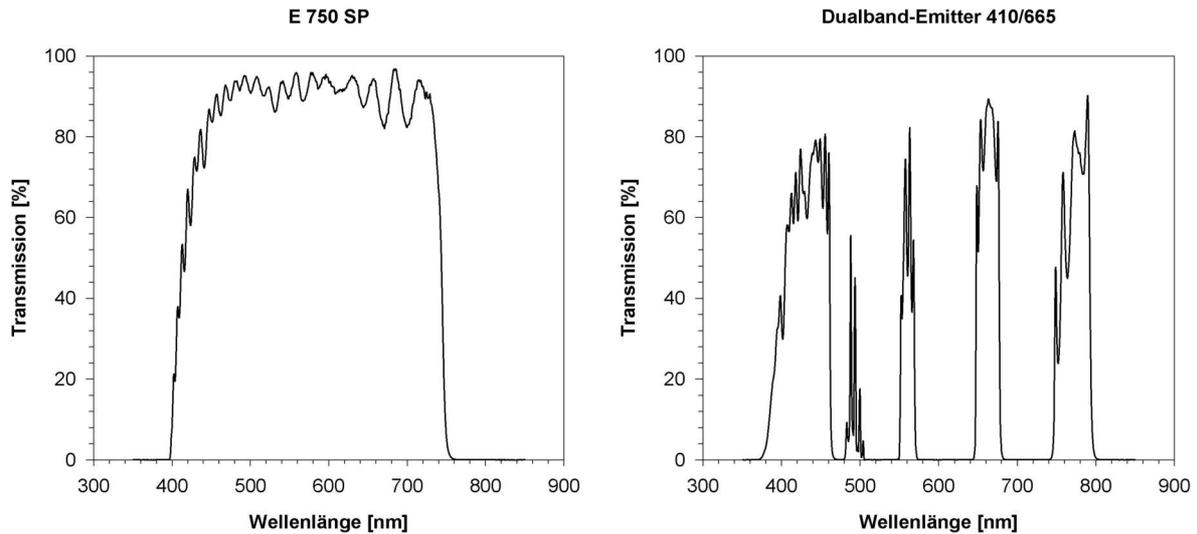


Abbildung 6.4: Transmissionsverhalten der IRSL- (links) und GRSL-Filter (rechts) des Las-LUM II.

Zur Vermeidung von Lichtverlusten dient auch der querschnittswandelnde Lichtleiter. Die Fasern bilden an dem dem Spektrographen zugewandten Ende eine Schlitzform, so dass kein Eintrittsspalt verwendet werden muss. Der Spektrograph (23) selbst kann durch Austauschen des eingesetzten Gitters (24) auf den gewünschten Spektralbereich eingestellt werden. Die Faserendfläche wird nach Spektralfarben aufgefächert auf eine Ebene ca. 1 cm außerhalb des Spektrographen abgebildet, wo sich ein *Photomultiplier* (26) mit 32 Kanälen befindet (Einzel-PMTs mit gemeinsamer Hochspannungsversorgung, Typ HAMAMATSU H7260). Jeder Kanal besitzt ein 0,8 mm breites und 6 mm hohes Eintrittsfenster. Der PMT wird mit -900 V betrieben.

Die 32 Signalkabel sind mit vier Acht-Kanal-Zählerkarten zur Einzelphotonenzählung verbunden (ISA-Bus). Die große Anzahl von Schnittstellenkarten ist auch der Grund dafür, dass ein so genannter Industrie-PC zur Steuerung genutzt wird. Er unterscheidet sich von einem gewöhnlichen PC vor allem durch seine Konstruktion. Während üblicherweise auf einem *motherboard* der Prozessor, Peripherie und Speicher sowie einige (ca. 5 Steckplätze, so genannte *slots*, aktuell meist 4 PCI und 1 AGP-Steckplatz, keine ISA-slots mehr) untergebracht sind, finden sich beim Industrie-PC eine große Zahl (>10) von PCI- und ISA-Steckplätzen auf einer passiven *backplane*. Eine Einheit, die dem *motherboard* entspricht, wird ebenfalls als Karte auf einen der *slots* untergebracht. Die Bauform ist großzügiger, um die große Zahl von Schnittstellenkarten unterbringen zu können.

Der Spektrograph ist von einem weiteren lichtdichten Gehäuse (22) umgeben, das durch ein Peltier-Element (30) gekühlt werden kann. Um den *Photomultiplier* liegen weitere Peltier-Elemente sowie Kühlrippen (27). Durch sie soll in Zukunft ein Absenken der Temperatur auf ca. 10 °C erreicht werden, um das thermische Rauschen zu minimieren. Eine 25-polige Sub-D-Schnittstelle ist zur Versorgung der Peltier-Elemente (der hohe Strom macht die Verwendung mehrerer Pins pro Element notwendig) und für die Signalleitung zweier Temperaturfühler (PT100) vorgesehen. Zwei lichtdichte Wellendurchführungen dienen der Einstellung der Fokalebene (28, Verschieben des PMT über eine Spindel) und zum Verkippen des Gitters (25, Einstellung der Spektrenlage).

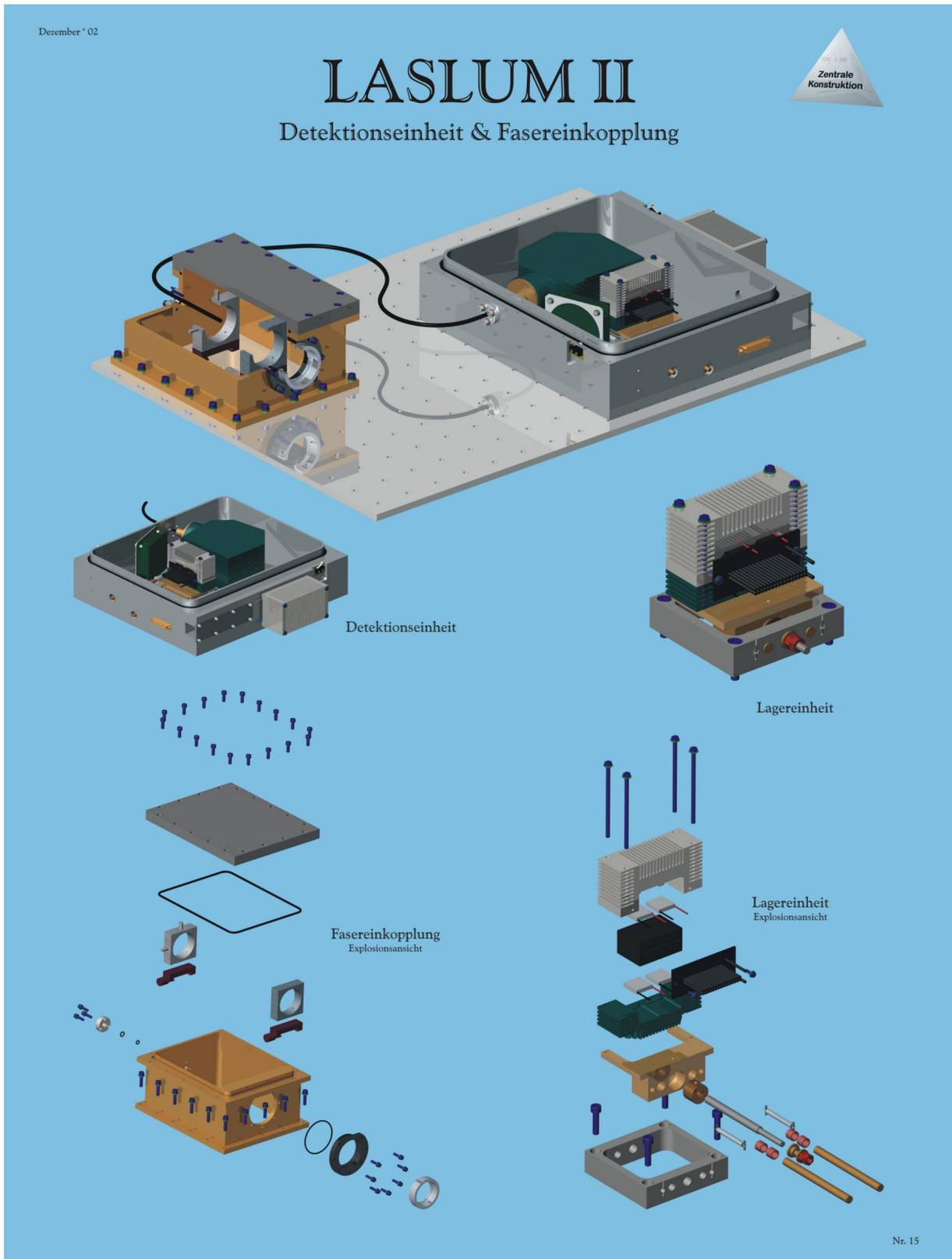


Abbildung 6.5: Konstruktionszeichnungen der Detektionseinheit (P. Gahn).

Zum Schutz des PMTs (und des Benutzers) sind zwei Schalter in das Gehäuse eingelassen, die das Abschalten der Hochspannung bei Öffnen der Spektrometereinheit über ein Relais veranlassen. Dieses Relais ist auch verbunden mit einer Photozelle, die den PMT abschaltet, wenn das Raumlicht oder eine andere starke Lichtquelle eingeschaltet wird

Die Entscheidung, im Gegensatz zum LasLUM I einen *Photomultiplier* als Detektor zu nutzen, fiel aufgrund der schnellen Auslesezeiten (minimal 250 ns). CCD-Bausteine²⁴ erreichen noch keine derartigen Zeitaufösungen, die – wenn genügend OSL-Photonen zur Verfügung stehen – z. B. zur Untersuchung der zeitlichen Entwicklung der Ausleuchtcurven dienen.

6.1.4 Steuersoftware für das LasLUM II

Die Software dient zur Steuerung der unterschiedlichen Komponenten des LasLUM II, die über Funktionsbibliotheken (DLLs) von einem selbst entwickelten Visual C⁺⁺-Programm vorgenommen wird. Die DLLs werden meist von den Herstellern für ihr jeweiliges Produkt angeboten. Das Schalten der *AOTFs*, die Bewegungen des Tisches und die Datenakquisition werden so synchronisiert.

Das Programm ist als MDI-Anwendung (*multiple document interface*) konzipiert. Das heißt, dass ähnlich wie z. B. in der Textverarbeitung MICROSOFT WORD, mehrere Dokumente innerhalb der Anwendung geöffnet werden können. In der Steuersoftware sollen diese Dokumente später unterschiedlichen Konfigurationen (Größe des Messbereiches, Schrittgröße, verwendete Laser etc.) des LasLUM II entsprechen.

Die Messdaten werden in einem fünfdimensionalen Feld abgelegt, das die Form

```
Photonenzahl[Rel. Position in X][...Y][...Z][Zeit nach Beginn der Messung][Farbkanal]
```

besitzt, weiterhin können Daten wie die Spektrometer-Kalibration unter anderem mitgespeichert werden. Eine Schnittstelle, die zwei-dimensionale Flächen aus den Daten extrahiert und der Auswertesoftware AGESGALORE direkt übergeben kann, existiert noch nicht. Die in dieser Arbeit vorgestellten Daten wurden über die ASCII-Schnittstelle des Programms ausgegeben und in den Programmen MICROSOFT EXCEL und SPSS SIGMAPLOT weiterbearbeitet.

6.2 LasLUM III

In Zukunft sollen die Messvorgänge des LasLUM II weitgehend automatisiert ablaufen. Dazu wird derzeit die zentrale optische Einheit auf ein herkömmliches OLYMPUS-Mikroskop übertragen, an das die Ein- und Auskoppereinheit an Standard-Anschlüssen angeflanscht werden kann (LasLUM III, Abb. 6.6). Laser- und Detektionseinheit werden an diese Anschlüsse über Lichtwellenleiter angeschlossen. Sie können bei Bedarf durch andere Einheiten (z. B. einen herkömmlichen Ein-Kanal-*Photomultiplier* mit Filter) ersetzt werden. Des Weiteren sollen in das LasLUM III funktionelle Einheiten zur Bestrahlung der Probe mit einer ⁹⁰Sr/⁹⁰Y- β -Quelle, zum Vorheizen und zum Bleichen eingepasst werden.

Der langsame und bei hohen Auflösungen überforderte Tisch des LasLUM II wird durch einen unabhängigen 3D-Mikroskopiertisch (Firma AUTOSCAN, Melbourne/Australien) ersetzt. Er besitzt zusätzlich ein Probenkarussell, das bis zu sechs Proben aufnehmen und die Proben zu den funktionellen Einheiten fahren kann. Die Arbeitsweise des LasLUM II und III sowie der Aufbau des LasLUM III wurden zum Patent angemeldet (Deutsche Patentanmeldung Nr. 103 55 276.6).

²⁴ Hier im Gegensatz zum LasLUM I nicht als bildgebende Detektoren, sondern um ein auf die Bildfläche verteiltes Spektrum aufzuzeichnen.

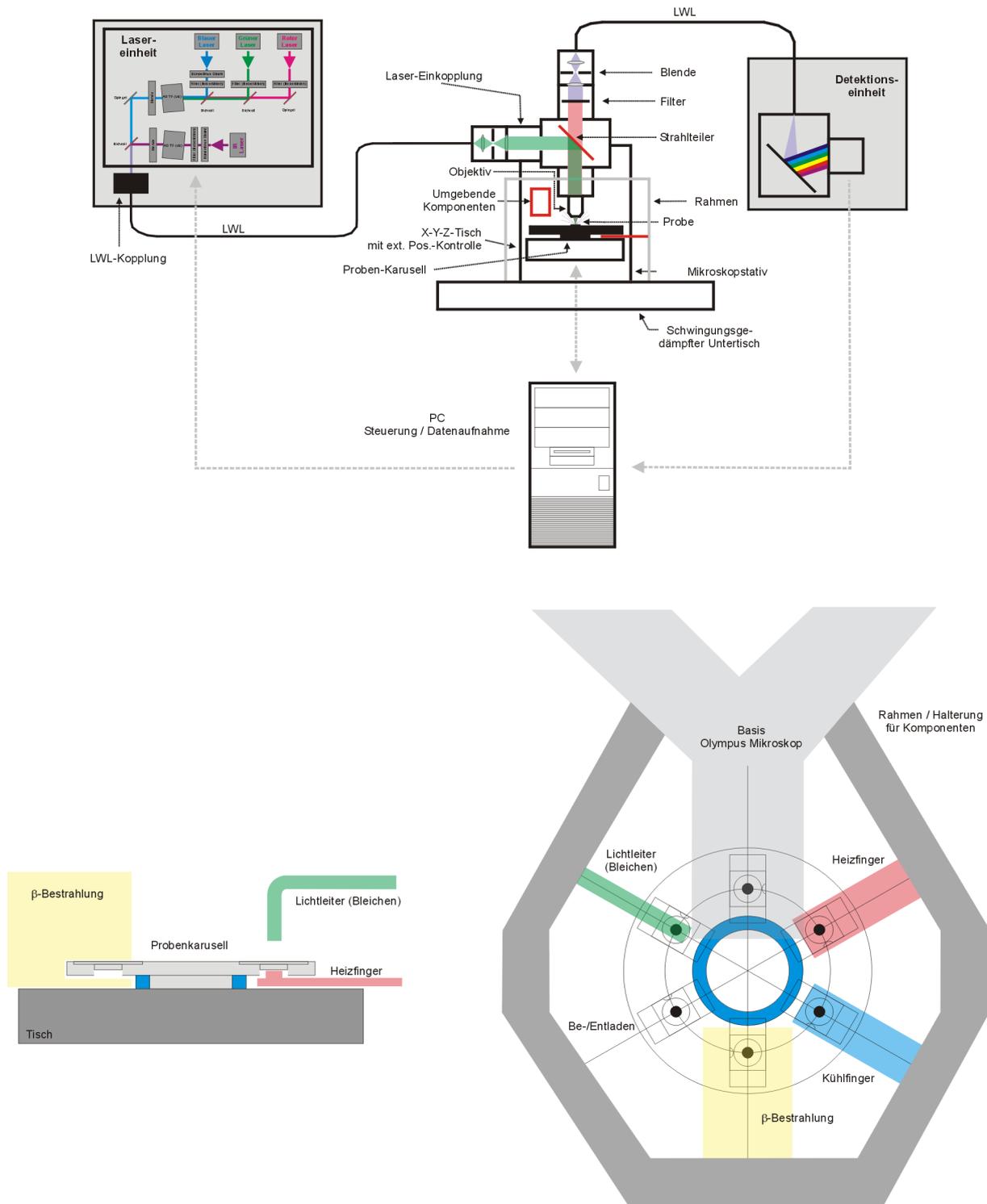


Abbildung 6.6: Entwurf LasLUM III.

Erweiterungen wie z. B. ein Kühltisch zur Messung der OSL bei sehr tiefen Temperaturen oder eine angeflanschte, fokussierte und mit dem Messspot synchronisierte Röntgenstrahl-Anlage²⁵, die nicht nur zur EDX-Analyse der Probe, sondern auch als Radiolumineszenz-Einheit oder zur Bestrahlung dienen könnte, ist ebenfalls denkbar.

²⁵ Offene, d.h. nicht im Vakuum arbeitende EDX-Anlagen werden unter anderem zur Untersuchung von Kunstobjekten angeboten (z. B. artTAX, Fa. INTAX), s. a. Kanngießer et al. [2003].

6.3 Messungen

6.3.1 Konfokalmikroskopie-Aufnahmen der OSL

Zwei Messreihen zur prinzipiellen Verwendbarkeit für OSL-Messungen konnten an Konfokal-Mikroskopen des Instituts für Anatomie der Universität Heidelberg und am EMBL Heidelberg durchgeführt werden.

Probenscheiben (8 mm Durchmesser, 2 mm Dicke) des Leuchtenburger Granits (OPF1) wurden dafür mit hohen Dosen (~500 Gy) bestrahlt. Abb. 6.7 zeigt das mit zwei Filterkombinationen um 400 nm und 540 nm unter Stimulation mit einem 5 W-Infrarot-Laser (835 nm) aufgenommene Signal.

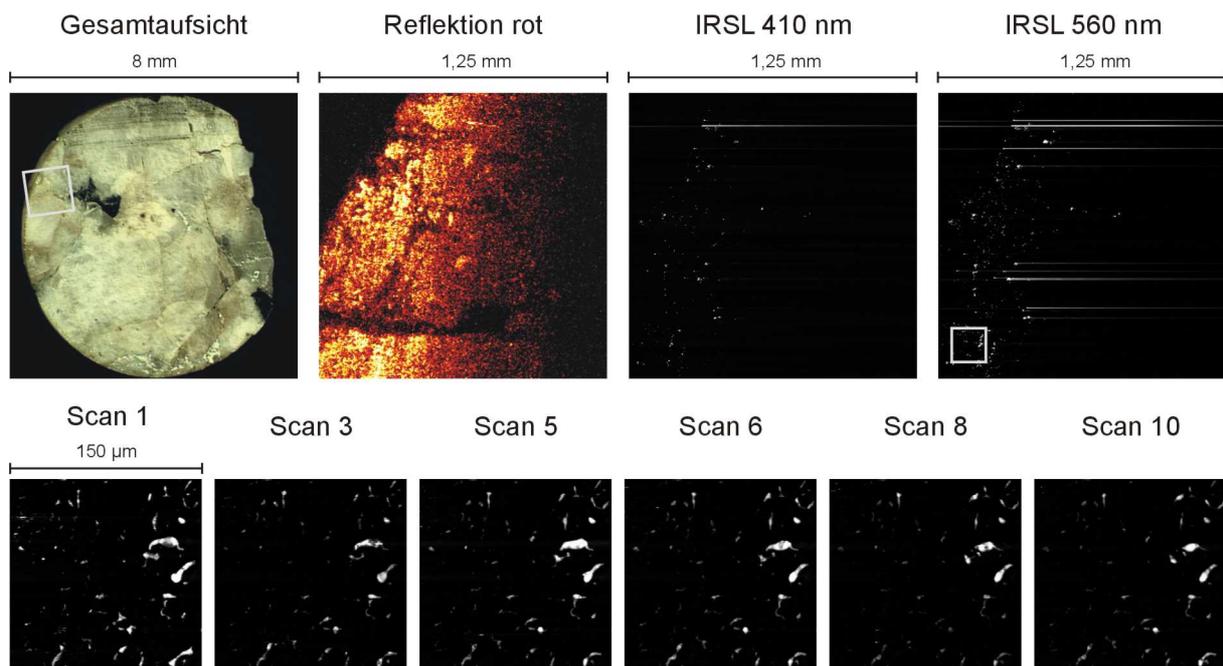


Abbildung 6.7: Konfokal-Aufnahmen der Probe OPF1S2. In der unteren Reihe ein Tiefenscan hoher Auflösung (Region weißes Quadrat in Bild rechts oben), der dreidimensionale Strukturen widerspiegelt, die deutlich an die in 5.2 gezeigten Lamellen erinnern.

In den Messreihen erwiesen sich die handelsüblichen Konfokal-Mikroskope aus den bereits genannten Gründen als ungeeignet für OSL-Messungen.

6.3.2 OSL-Messungen auf dem LasLUM II

Abbildung 6.8 zeigt eine Oberflächenprobe (ODW4, Reichenbacher Felsenmeer / Odenwald), deren Topographie durch die Fokussierung des roten Testlasers abgetastet worden war. Innerhalb eines 500 x 500 µm großen Feldes wurde die Probe in 25 µm-Schritten abgerastert. Die Aufnahmen wurden mit einem 10x-Objektiv und 50 µm-Blenden durchgeführt, so dass die Größe des Messflecks unterhalb der Schrittweite lag. Die gemessene Rauigkeit betrug dabei ca. 800 µm.

Die Bestimmung der infrarot stimulierten Lumineszenz am LasLUM II wurde ebenfalls mit einer Schrittweite von 25 µm auf einem Bereich von 500 x 500 µm durchgeführt. Der Messpunkt entsprach dem der Topographie-Messung. Als Probe wurde eine Scheibe des Leuchtenburger Granits (OPF1S4) verwendet, die 10 h im LM1 bestrahlt worden war (entsprechend ca. 2100 Gy). Aufgrund der gesägten Oberfläche fand nur eine einmalige manuelle Fokussierung statt. Ein weiteres Abtasten der Topographie wurde nicht durchgeführt. Mit Hilfe einer Hg-

Ar-Lampe war zuvor eine Wellenlängeneichung der Kanäle des *Photomultipliers* durchgeführt worden. Die Messzeit pro Punkt betrug 5 s. Danach war aufgrund der hohen Laserleistung das OSL-Signal bereits stark reduziert. Die Kanäle 1 bis 10, 11 bis 20 und 21 bis 32 wurden zu einem blauen, grünen und roten Gesamtsignal zusammengefasst. Die räumliche Verteilung der Signale sowie ein daraus zusammengesetztes Farbbild sind in Abbildung 6.9 zu sehen. Für vier Messpunkte (orange markiert) sind darunter Spektren gezeigt, auf denen die Feldspatmissionen zu erkennen sind. Trotz des hohen Signals ist die rote Emission im gezeigten Bereich wenig strukturiert. Im blauen und grünen Bereich zeichnen sich dagegen deutlich Formationen ab. Diese Messung zeigt zum ersten Mal den gleichzeitigen hochauflösten und spektralen Nachweis von OSL-Signalen. Durch die zusätzliche Diskriminierung in der Tiefendimension und die Verteilung der Intensität über 32 Nachweiskanäle ist die Signalstärke selbst bei einer hochsensitiven und stark bestrahlten Probe recht gering. Für dunklere Proben oder gar Datierungsmessungen ist eine Reduktion der Auflösung (die sich in diesem Falle in der dritten Potenz auswirkt) bzw. eine Beschränkung der spektralen Information unumgänglich. Es bleibt allerdings abzuwarten, wie viel an Lichtintensität noch durch Verbesserungen am Gerät selbst gewonnen werden kann.

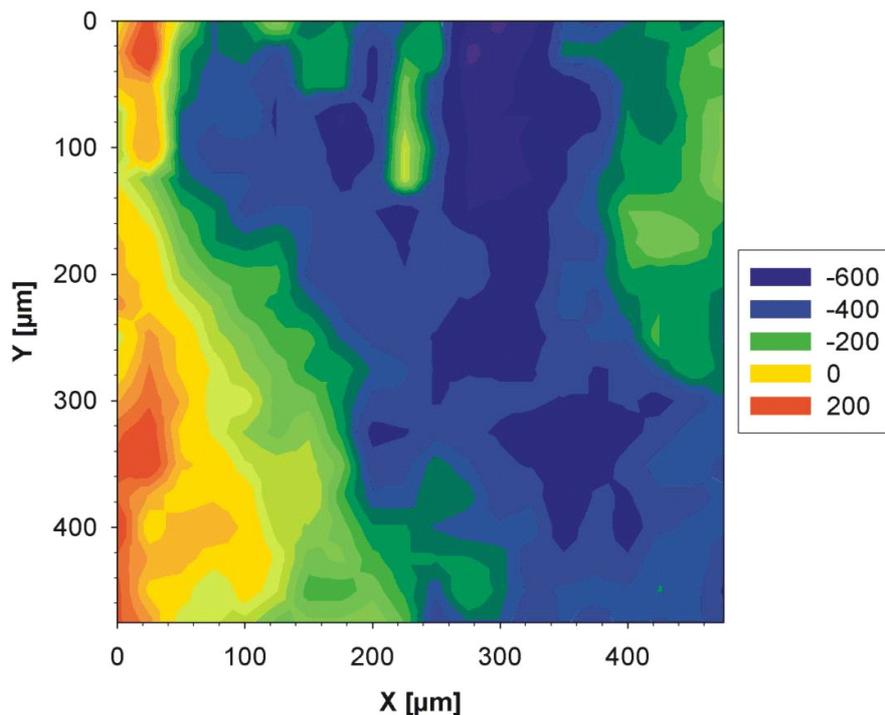


Abbildung 6.8: Messung der Oberflächentopographie der Probe ODW4. Höhenangaben in μm relativ zum Startpunkt.

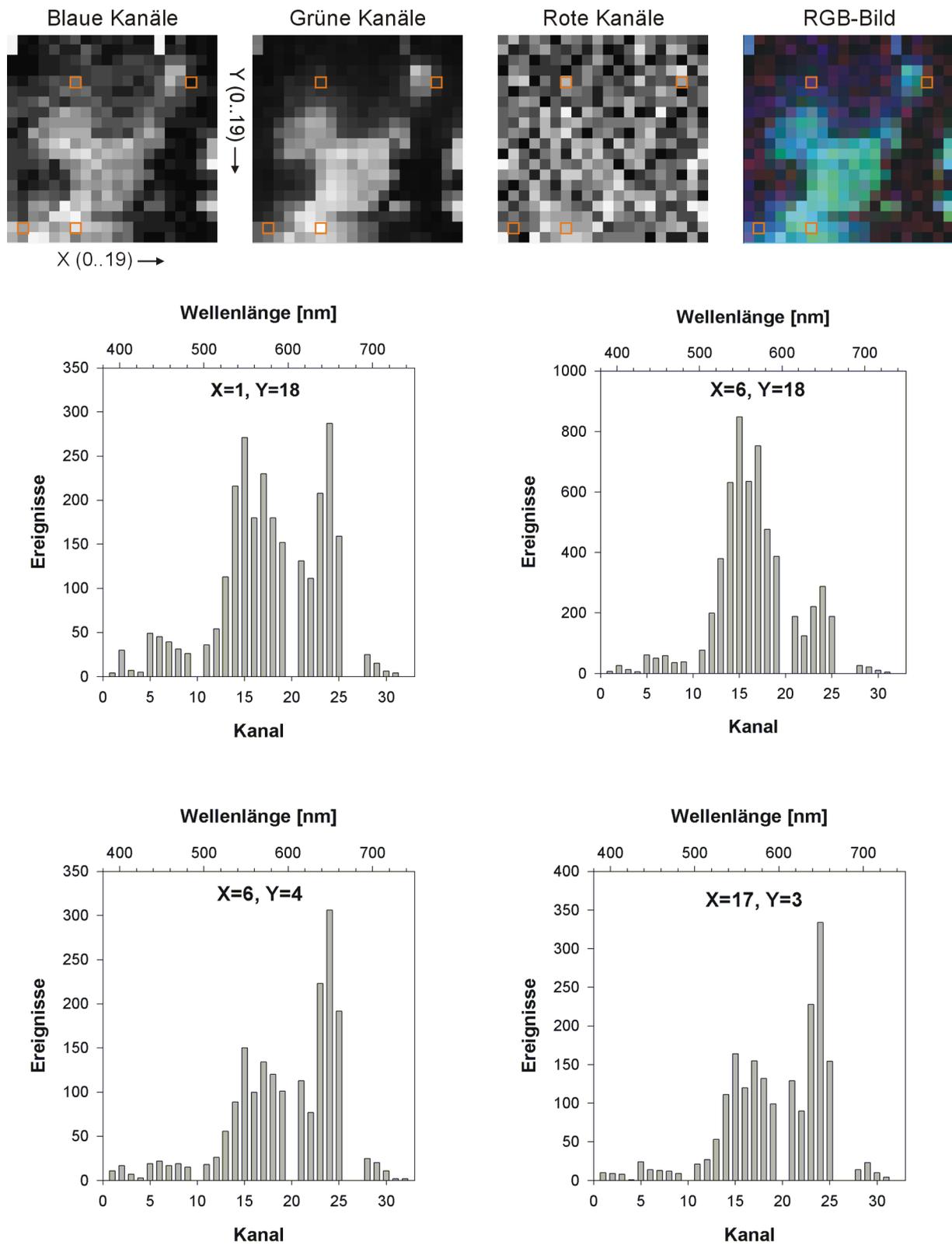


Abbildung 6.9: IRSL-Messung der Probe OPF1S4 im LasLUM II.

7 Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit konnte eine Methode zur orts aufgelösten Datierung der letzten Lichtexposition von Gesteinsoberflächen entwickelt werden. Sie umfasst eine neue, den Bedingungen angepasste Probennahme und Präparation, einen Messaufbau zum hochauflösenden Nachweis der optisch stimulierten Lumineszenz (OSL) sowie ein Softwareprogramm zur Auswertung und Analyse der gewonnenen Daten.

Eine Probennahme mit Hilfe von Miniatur-Kernbohrern und ein anschließendes Zersägen der Bohrkerne zu Probenscheiben von 8 mm Durchmesser und 2 mm Dicke erwies sich als praktikabel. Das Probenformat erlaubte nicht nur die Halterung der Proben in kleinen Metallrahmen, die eine für hochaufgelöste Messungen essentielle hohe Repositionierbarkeit garantieren. Die Proben können auf diese Weise auch in bereits vorhandenen Geräten der Forschungsstelle Archäometrie bestrahlt oder aufgeheizt werden, ohne dass diese Geräte modifiziert werden mussten.

Die vorgestellten Messungen zeigen, dass durch das Messgerät LasLUM I das räumliche, spektrale und zeitliche Verhalten der Lumineszenz mit einer Auflösung von bis zu $25 \times 25 \mu\text{m}$ quantitativ erfasst werden kann. Damit steht ein neues Werkzeug für Grundlagenuntersuchungen an Proben – in ihrem originalen Kontext und gleichzeitig geringerem Präparationsaufwand – zur Verfügung. Die Ortsinformation ermöglicht die direkte Korrelation mit anderen bildgebenden Analyseverfahren. Beispielsweise können Untersuchungen der Zusammenhänge von OSL- und Mineraleigenschaften (wie von Rieser [1999]) so detaillierter weiterverfolgt werden.

Die Eignung des Gerätes, zusammen mit dem Auswerteprogramm AGESGALORE, Äquivalenzdosen mit hoher Auflösung und auf Grundlage einer großen Zahl von parallelen Einzelmessungen auf einer einzigen Probenscheibe zu ermitteln, konnte an im Labor bestrahlten $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ und Granitproben gezeigt werden [Greilich et al., 2002]. Die Vielzahl von Messpunkten eröffnet neue Möglichkeiten in der statistischen Analyse und Qualitätskontrolle.

Durch die Bestimmung natürlicher Dosen und die Verknüpfung mit Daten zur Dosisleistung gelang erstmals die Datierung von Oberflächenproben mit Hilfe der hochaufgelösten, optisch stimulierten Lumineszenz (HR-OSL). Die dabei ermittelten Alter lagen größtenteils in Übereinstimmung mit Vergleichswerten, für Abweichungen konnten befriedigende Erklärungen gefunden werden. Doch sind die Altersfehler mit ungefähr 20 % noch relativ groß und die Zahl an Messungen bisher gering. Systematische Probleme und eine verlässliche Beurteilung der Methodik können erst auf einer größeren Datenbasis erfolgen. Hier ist sicherlich die künftige Automatisierung der Messabläufe für die Äquivalenzdosis-Bestimmung sehr hilfreich. Während die statistischen und systematischen Fehlerquellen für die OSL-Messung gut quantifiziert werden konnten, bestehen noch Unsicherheiten für Messungen an natürlichen Proben sowie und für die Bestimmung der Dosisleistung.

So ergibt sich ein dringender Forschungsbedarf zu der Frage des Einflusses von Schichten unter der eigentlichen Oberfläche auf die Messung und des aufgrund der Transparenz der Proben effektiv betrachteten Probenvolumens. Das auf einer abbildenden Optik beruhende Gerät LasLUM I kann keine Diskriminierung der Daten in der Tiefendimension bieten. Ob hier eine weiterentwickelte Analyse der Daten (Plateautest) Fortschritte bringt, muss abgewartet werden. Die fehlende direkte Tiefenauflösung war Antrieb für die Entwicklung eines konfokalen Rastermikroskops für den Nachweis der optisch stimulierten Lumineszenz in defi-

nierten Schichtdicken erlaubt (LasLUM II). Darüber hinaus ist ein solches Gerät in der Lage, Proben mit rauen Oberflächen abzutasten und eine Spektralinformation für jeden Messpunkt zu liefern. Es konnte erste, sowohl räumlich also auch spektral aufgelöste Aufnahmen der OSL liefern.

Das Problem der Tiefenbeiträge ist eng verknüpft mit der Frage nach der Vergleichbarkeit von β -Labordosen und natürlicher Dosisleistung. Auswirkungen unterschiedlicher Gradienten und Möglichkeiten der Begrenzung des Einflusses auf das Messergebnis müssen im Sinne einer soliden Methodik weiter untersucht werden, z. B. unter Einsatz von γ - oder Röntgenquellen.

Wenige Erfahrungen liegen bisher auch für die Anwendung orts aufgelöster Radionuklidbestimmungen und die Modellierung der Dosisleistung für Bereiche an einer Oberfläche vor. Im Falle von Graniten und ähnlichen Festgesteinen kann hier in Zukunft die Bestimmung von Gesteinsparametern durch ergänzende mineralogische Methoden an einer der Oberflächenprobe benachbarten Scheibe durch höhere Genauigkeiten Fortschritte bringen [Altherr, pers. Mitteilung].

Die grundsätzliche Eignung der Methodik für orts aufgelöste Datierungen von Keramiken konnte in dieser Arbeit ebenfalls aufgezeigt werden, wobei die Alter zweier Proben aber um ca. 30-50 % unterschätzt wurden. Zur Erforschung der Ursachen dieser Unterschätzung sollten weitere Messungen an Keramiken mit höherer Sensitivität erfolgen, die die Normierung der Wachstumskurven erlauben. Des Weiteren müssen bei der Betrachtung von Feldspäten zukünftig auch Fadingtests durchgeführt werden (dies gilt im Übrigen auch für die Oberflächenproben!). Doch stellt die Möglichkeit, Keramikproben mit einem recht geringen Präparationsaufwand und durch Anwendung eines Isochronenverfahrens ohne Kenntnis der externen Dosisleistungskomponenten vielleicht sogar mit einer höheren Genauigkeit als mit der bisherigen Technik datieren zu können, einen Antrieb dar, diesen Weg weiter zu verfolgen. Ebenso konnte die Möglichkeit für einen relativ fälschungssicheren Echtheitstest für Keramiken aufgezeigt werden.

Die geringe Intensität der Lumineszenz ist ein generelles Problem für die HR-OSL-Technik, wenn die Auswirkungen bei Festgesteinsproben auch im Allgemeinen durch einen Volumeneffekt gemildert sind. Denn die schwache Emission muss auf viele Messpunkte verteilt werden. Eine Optik, die eine Bildinformation erhalten muss, ist aber dem reinen Sammeln von Licht immer unterlegen. Daher bleibt zu überlegen, welche technischen Möglichkeiten für eine bessere Lichtstärke der Messaufbauten ausgeschöpft werden können. Denkbar ist z. B. die Verwendung eines parabolischen Hohlspiegels zur Abbildung [Akselrod et al., 2000].

Bei den angesprochenen methodischen Problemen muss berücksichtigt werden, dass die Bemühungen um eine Datierung von Gesteinsoberflächen in der Forschungsstelle Archäometrie bisher nur einige wenige Jahre zurückreichen. Es darf davon ausgegangen werden, dass das betrachtete System das der Radiokohlenstoffdatierung in der Komplexität noch übertrifft. Für die ^{14}C -Technik aber liegen inzwischen gute 50 Jahre Erfahrung in einem breit erforschten Gebiet vor.

Deutlich wird trotz aller noch offenen Fragen, dass durch die vorgestellte Methodik eine Vielzahl neuer Informationsquellen erschlossen werden können. Dabei bewegen sich die verwendeten technischen Mittel keinesfalls an der Grenze des heute Machbaren. Vielmehr fand eine konsequente Anwendung inzwischen durchaus gebräuchlicher apparativer Möglichkeiten in einem Bereich statt, der sehr oft noch in einem traditionellen Vorgehen beharrt. Insofern ist dieser Ansatz Produkt der Interdisziplinarität der Heidelberger Forschungsstelle [Wagner et al., 2003], die sich sowohl der Entwicklung wie auch der Applikation chronometrischer Methoden widmet, aber auch Teil einer Entwicklung in der Lumineszenzdatierung insgesamt, die Grundlagen und physikalischen Prozesse, auf der die OSL und ihre Anwendung in der Datierung beruht, besser zu verstehen [Schilles, 2002, Baril, 2004]. Zu diesem Verständnis soll die vorliegende Arbeit einen Beitrag leisten.

Literatur

- Adamiec, G. und Aitken, M. J. [1998]. Dose-rate conversion factors: update. *Ancient TL* **16**(2): 37-50.
- Aitken, M. J. [1985]. *Thermoluminescence Dating*. Academic Press, London.
- Aitken, M. J. und Valladas, H. [1992]. Luminescence Dating Relevant to Human Origins. *Philosophical Transactions: Biological Sciences* **337**(1280): 139-144.
- Aitken, M. J. [1998]. *An introduction to optical dating: the dating of Quaternary sediments by the use of photon-stimulated luminescence*. Oxford University Press, Oxford.
- Akselrod, M. S., Larsen, N. A. und McKeever, S. W. S. [2000]. A procedure for the distinction between static and dynamic radiation exposures of personal radiation badges using pulsed optically stimulated luminescence. *Radiation Measurements* **32**(3): 215-225.
- Bailiff, I. K. und Barnett, S. M. [1994]. Characteristics of infrared-stimulated luminescence from a feldspar at low temperatures. *Radiation Measurements* **23**: 541-545.
- Bailiff, I. K., Clark, R. J. und Barnett, S. M. [1996]. *A high resolution scanning system for measurement spatially resolved optically stimulated luminescence*. 8th International Conference on Luminescence and Electron Spin Resonance Dating, Canberra/Australia.
- Bailiff, I. K. und Mikhailik, V. B. [2003]. Spatially-resolved measurements of optically stimulated luminescence and time-resolved luminescence. *Radiation Measurements* **37**: 151-159.
- Baril, M. R. [2002]. Spectral Investigations Of Luminescence In Feldspars. *PhD thesis*, Simon Fraser University, Burnaby (B.C.), Kanada.
- Baril, M. R. [2004]. CCD imaging of the infra-red stimulated luminescence of feldspars. *Radiation Measurements* **38**: 81-86.
- Bøtter-Jensen, L., Duller, G. A. T. und Poolton, N. R. J. [1994]. Excitation and emission spectrometry of stimulated luminescence from quartz and feldspars. *Radiation Measurements* **23**: 613-616.
- Busse, C. [2002]. Entwicklung einer Methode zur Datierung archäologischer Keramik mittels optisch stimulierter Lumineszenz. *Diplomarbeit*, Universität Regensburg.
- Butson, M. J., Yu, P. K. N., Cheung, T. und Metcalfe, P. [2003]. Radiochromic film for medical dosimetry. *Material Sciences and Engineering R* **41**: 61-120.
- Cabrera, B., Clark, R. M., Colling, P., Miller, A. J. und Nam, S. W. [1998]. Detection of single infrared, optical, and ultraviolet photons using superconducting transition edge sensors. *Applied Physics Letters* **73**: 735-737.
- Chen, R. und McKeever, S. W. S. [1997]. *Theory of thermoluminescence and related phenomena*. World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd., Singapore.
- Daniels, F., Boyd, C. A. und Saunders, D. F. [1953]. Thermoluminescence as a Research Tool. *Science* **117**(3040): 343-349.
- Debenham, N. C. und Aitken, M. J. [1984]. Thermolumineszenz Dating Of Stalagmitic Calcite. *Archaeometry* **26**(2): 155-170.

- den Hartog, H. W. [2001]. Thermoluminescence dating of zircon: A new dating method. Groningen, University of Groningen.
- Duller, G. A. T., Bøtter-Jensen, L. und Murray, A. S. [2000]. Optical dating of single sand-sized grains of quartz: sources of variability. *Radiation Measurements* **32**: 453-457.
- Elitzsch, C., Pernicka, E. und Wagner, G. A. [1983]. Thermoluminescence dating of archaeometallurgical slags. *PACT* **9**(2): 271-286.
- Fleming, S. J. [1966]. Study of thermoluminescence of crystalline extracts from pottery. *Archaeometry* **9**: 170-173.
- Gerthsen, C. und Vogel, H. [1993]. *Physik*. Springer, Berlin.
- Gottwald, W. [2000]. *Statistik für Anwender*. Wiley-VCH, Weinheim.
- Greilich, S., Glasmacher, U. A. und Wagner, G. A. [2002]. Spatially resolved detection of luminescence: a unique tool for archaeochronometry. *Naturwissenschaften* **89**: 371-375.
- Grögler, N., Houtermans, F. G. und Stauffer, H. [1960]. Über die Datierung von Keramik und Ziegel durch Thermolumineszenz. *Helvetica Physica Acta* **33**: 595-596.
- Habermann, J., Schilles, T., Kalchgruber, R. und Wagner, G. A. [2000]. Steps towards surface dating using luminescence. *Radiation Measurements* **32**: 847-851.
- Habermann, J. [2000]. Untersuchungen zur Lumineszenzdatierung von Gesteinsoberflächen. *Dissertation*, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg.
- Hareyama, M., Tsuchiya, N., Takebe, M. und Chida, T. [2000]. Two-dimensional measurement of natural radioactivity of granitic rocks by photostimulated luminescence technique. *Geochemical Journal* **34**: 1-9.
- Harvey, E. N. [1957]. A history of luminescence. *Memoirs of the American Philosophical Society* **44**: 692.
- Hashimoto, T., Kimura, K., Koyanagi, A., Takahashi, H. und Sotobayashi, T. [1983]. New Color-photographic Observation of Thermoluminescence from Sliced Rock Samples. *Radioisotopes* **32**(11): 525-532.
- Hashimoto, T., Ojima, T., Takahashi, E., Konishi, M. und Kanemaki, M. [1995a]. Comparison of Radiation-Induced Colouration Images, Thermoluminescence, and After-Glow Colour Images with Aluminium Impurity Distribution in Japanese Twin Quartzes. *Radioisotopes* **44**: 379-388.
- Hashimoto, T., Notoya, S., Ojima, T. und Hoteida, M. [1995b]. Optically Stimulated Luminescence (OSL) And Some Other Luminescence Images From Granite Slices Exposed With Radiations. *Radiation Measurements* **24**(3): 227-237.
- Hashimoto, T., Notoya, S., Arimura, T. und Konishi, M. [1996]. Changes In Luminescence Colour Images From Quartz Slices With Thermal Annealing Treatments. *Radiation Measurements* **26**(2): 233-242.
- Hashimoto, T., Yasuda, K., Sato, K., Sakaue, H. und Katayama, H. [1998]. Radiation-Induced Luminescence Images And TL-Properties Changes With Thermal Annealing Treatment On Japanese Twin Quartz. *Radiation Measurements* **29**(5): 493-502.
- Hashimoto, T., Nishiyama, E. und Mitsuji, T. [2000]. Thermoluminescence and afterglow color images from ancient pottery pieces. *Ancient TL* **18**(1): 5-10.
- Haustein, M., Roewer, G., Krbetschek, M. R. und Pernicka, E. [2003]. Dating Archaeometallurgical Slags Using Thermoluminescence. *Archaeometry* **45**(3): 519-530.

- Hecht, E. [1994]. *Optik*. Addison-Wesley Deutschland, Bonn.
- Houtermans, F. G., Jäger, E., Schön, M. und Stauffer, H. [1957]. Messungen der Thermolumineszenz als Mittel zur Untersuchung der thermischen und der Strahlungsgeschichte von natürlichen Mineralen und Gesteinen. *Annalen der Physik* **20**: 283-292.
- Huntley, D. J. und Kirkey, J. J. [1985]. The use of an image intensifier to study the TL intensity variability of individual grains. *Ancient TL* **3**(3): 1-4.
- Huntley, D. J., Godfrey-Smith, D. I. und Haskell, E. H. [1991]. Light-induced Emission Spectra From Some Quartz And Feldspars. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research D* **18**: 127-131.
- Huntley, D. J. und Richards, M. [1997]. The age of the Diring Quriakh archaeological site. *Ancient TL* **15**(2-3): 48-51.
- Hütt, G., Jaek, I. und Tchonka, J. [1988]. Optical Dating: K-Feldspars Optical Response Stimulation Spectra. *Quaternary Science Reviews* **7**: 381-385.
- Iwabuchi, Y., Mori, N., Takahashi, K., Matsuda, T. und Shionoya, S. [1994]. Mechanism of Photostimulated Luminescence Process in BaFBr:Eu²⁺ Phosphors. *Japanese Journal of Applied Physics* **33**: 178-185.
- Jonkman, J. E. N., Swoger, J., Kress, H., Rohrbach, A. und Stelzer, E. H. K. [2003]. Resolution in Optical Microscopy. In *Biophotonics*. Hrsg. Marriott, G. und Parker, I. (Methods in Enzymology, **360**), Academic Press, Amsterdam.
- Kadereit, A. [2000]. IR-OSL-datierte Kolluvien als Archive zur Rekonstruktion anthropogen bedingter Landschaftsänderungen. *Dissertation*, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg.
- Kalchgruber, R. [2002]. α -Al₂O₃:C als Dosimeter zur Bestimmung der Dosisleistung bei der Lumineszenzdatierung. *Dissertation*, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg.
- Kalchgruber, R., Göksu, H. Y., Hochhäuser, E. und Wagner, G. A. [2002]. Monitoring environmental dose rate using Risø TL/OSL readers with built-in sources: recommendations for users. *Radiation Measurements* **35**: 585-590.
- Kanngießer, B., Malzer, W. und Reiche, I. [2003]. A new 3D micro X-ray fluorescence analysis set-up - First archaeometric applications. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **211**: 259-264.
- Kittel, C. [1966]. *Introduction to Solid State Physics*. John Wiley & Sons, Inc., New York.
- Krbetschek, M. R., Götze, J., Dietrich, A. und Trautmann, T. [1997]. Spectral Information From Minerals Relevant For Luminescence Dating. *Radiation Measurements* **27**(5/6): 695-748.
- Lang, A., Rieser, U., Habermann, J. und Wagner, G. A. [1998]. Luminescence Dating of Sediments. *Naturwissenschaften* **85**: 515-523.
- Lazzarini, L. [1992]. Des pierres pour l'éternité - les granits utilisés dans l'antiquité classique. *Les dossiers d'archéologie* **173**: 58-67.
- Liritzis, I. und Galloway, R. B. [1999]. Dating implications from solar bleaching of thermoluminescence of ancient marble. *Journal of Radioanalytic and Nuclear Chemistry* **241**(2): 361-368.
- Marshall, D. J. [1988]. *Cathodoluminescence Of Geological Materials*. Unwin Hyman, Boston.

- McKeever, S. W. S. [1985]. *Thermoluminescence of Solids*. Cambridge University Press, Cambridge.
- Mejdahl, V. [1979]. Thermoluminescence Dating: Beta-dose Attenuation In Quartz Grains. *Archaeometry* **21**(1): 61-72.
- Miller, A. J., Cabrera, B., Romani, R. W., Figueroa-Feliciano, E., Nam, S. W. und Clark, R. M. [2000]. Development of wide-band, time and energy resolving, optical photon detectors with application to imaging astronomy. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* **444**: 445-448.
- Minsky, M. [1988]. Memoir on inventing the confocal scanning microscope. *Scanning* **10**: 128-138.
- Murray, A. S. und Wintle, A. G. [2000]. Luminescence dating of quartz using an improved single-aliquot regenerative-dose protocol. *Radiation Measurements* **32**: 57-73.
- Pawley, J. B. [1999]. *Handbook of biological confocal microscopy*. Plenum, New York.
- Poolton, N. R. J., Bøtter-Jensen, L. und Johnson, N. [1995]. Thermo-optical properties of optically stimulated luminescence in feldspars. *Radiation Measurements* **24**: 513-524.
- Press, W. H. [1992]. *Numerical recipes in C : the art of scientific computing*. Cambridge University Press, Cambridge.
- Price, P. B. und Walker, R. M. [1963]. Fossil Tracks Of Charged Particles In Mica And The Age Of Minerals. *Journal of Geophysical Research* **68**: 4747-4862.
- Richards, M. [1994]. Luminescence Dating of Quartzite from the Diring Yuriakh Site. *PhD Thesis*, Simon Fraser University, Burnaby (B.C.), Kanada.
- Rieser, U. [1991]. Low-Level Gamma-Spektrometrie zum Zwecke der Dosisleistungsbestimmung bei der Lumineszenz-Datierung. *Diplomarbeit*, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg.
- Rieser, U. [1999]. Spektrometrie an Feldspäten als Beitrag zur Aufklärung physikalischer Grundlagen der Lumineszenz-Datierungstechnik. *Dissertation*, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg.
- Robertson, G. B., Prescott, J. R. und Hutton, J. T. [1991]. Bleaching Of The Thermoluminescence Of Feldspars By Sunlight. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements* **18**(1/2): 101-107.
- RRZN [1998]. *C++ für C-Programmierer*. Regionales Rechenzentrum für Niedersachsen / Universität Hannover, Hannover.
- Schilles, T. [2002]. Die Infrarot-Radiolumineszenz von Feldspäten und ihr Einsatz in der Lumineszenzdatierung. *Dissertation*, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg.
- Spooner, N. A. [2000]. A photon-counting imaging system (PCIS) for luminescence applications. *Radiation Measurements* **32**: 513-521.
- Takebe, M. und Abe, K. [1994]. A novel particle identification with an imaging plate. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* **345**: 606-608.
- Thiede, C. P. und Masuch, G. [1997]. Neue mikroskopische Verfahren zum Lesen und zur Schadensbestimmung von Papyrushandschriften. *Archive für Papyrusforschung und verwandte Gebiete Beiheft* **3**: 1102-1112.
- Tsuruta, T. [1999]. Characteristics Of Diallyl Phthalate Resin As A Fission Track Detector. *Radiation Measurements* **31**: 99-102.

- Vaz, J. E. [1983]. The effect of insolation on the thermoluminescence of an archaeological stone sculpture. *PACT* **9**(2): 335-342.
- Wagner, G. A. [1976]. *Dose rate evaluation for thermoluminescence dating by fission track counting*. 16th International Symposium on Archaeometry and Archaeological Prospection, Edinburgh, The National Museum of Antiquities.
- Wagner, G. A. [1998]. *Age Determination of Young Rocks and Artifacts*. Springer, Heidelberg.
- Wagner, G. A., Greilich, S. und Kadereit, A. [2003]. Kaltes Leuchten erhellt die Vergangenheit. *Physik in unserer Zeit* **34**(4): 160-166.
- Walton, A. und Debenham, N. C. [1980]. Spatial distribution studies of thermoluminescence using a high-gain image intensifier. *Nature* **284**: 42-44.
- Wedepohl, K. H. [1967]. *Geochemie*. De Gruyter, Berlin.
- Wiedemann, E. [1888]. Ueber Fluorescenz und Phosphorescenz. *Annalen der Physik und Chemie* **34** (Neue Folge): 446-463.
- Wiedemann, E. und Schmidt, G. C. [1895]. Ueber Luminescenz. *Annalen der Physik und Chemie* **54** (Neue Folge): 604-625.
- Wintle, A. G. und Aitken, M. J. [1977]. Absorbed dose from a beta source as shown by thermoluminescence dosimetry. *International Journal Of Applied Radioisotopes* **28**: 625-627.
- Zimmerman, D. W. [1971]. Thermoluminescence dating using fine grains from pottery. *Archaeometry* **13**: 237-244.

Danksagung

Herrn Prof. Dr. G. A. Wagner möchte ich dafür danken, dass er mir die Möglichkeit gegeben hat, das vorliegende Thema zu bearbeiten. Er ließ mir große Freiheiten bei der Ausgestaltung der Arbeit und unterstützte mit Enthusiasmus die Neuentwicklungen. In Zeiten einer manchmal verwirrenden Fülle von technischen Problemen bewahrte er stets Gelassenheit und seinen besonderen Blick für das wissenschaftlich Wesentliche.

Prof. Dr. K. Roth danke ich für sein Interesse an meiner Arbeit und seine Bereitschaft, die Betreuung von Seiten der Universität zu übernehmen und das Zweitgutachten zu erstellen.

Mein Dank gilt der Heidelberger Akademie der Wissenschaften und dem BMBF für die großzügige finanzielle Unterstützung meiner Arbeit. Dem Direktorium des Max-Planck-Instituts für Kernphysik sei gedankt für die Gastfreundschaft und die Möglichkeit zur Nutzung der exzellenten technischen und fachlichen Einrichtungen des Institutes.

In diesem Zusammenhang möchte ich den feinmechanischen Werkstätten des MPI-K danken, besonders Herrn R. Mallinger, Herrn N. Schlicksupp und Herrn S. Flicker, die auch meine nicht immer ganz formgerechten Zeichnungen in kürzester Zeit umsetzen und dabei noch vieles verbessern konnten. Gedankt sei ebenfalls Herrn T. Weber (Konstruktionsabteilung) für seine wertvollen Ratschläge und Herrn P. Gahn, der sich eingehend mit der Detektionseinheit des LasLUM II beschäftigte. Herrn G. Vogt (Bibliothek) war mir bei der Recherche auch ausgefallener Veröffentlichungen stets eine große Hilfe.

Herrn Prof. Dr. R. Altherr vom Mineralogischen Institut der Universität Heidelberg möchte ich für seine Anteilnahme am Fortschritt meiner Arbeit und die herzliche Unterstützung meinen Dank aussprechen. Seine fachlichen Ratschläge und die Möglichkeit, die Einrichtungen des Mineralogischen Institutes benutzen zu können, waren mir eine große Hilfe. Seine Ausführungen zur Gesteinsbildung und die Exkursion nach Griechenland werden mir im Gedächtnis bleiben. Herrn Dr. Dominik Hetzel sei dabei für die sofortige Umsetzung der Kenntnisse im Gelände gedankt, sowie Herrn Dr. H.-P. Meyer und Frau I. Glass, die mir bei meinen REM-Messungen immer hilfsbereit zu Seite standen.

Frau Dr. I. Steinmetz von der Firma Leica und Dr. E. Stelzer vom EMBL in Heidelberg danke ich für die Möglichkeit, ihre Geräte für konfokale Mikroskopieaufnahmen zu nutzen und für hilfreiche Hinweise bezüglich Vorgehensweise und Technik.

Herr PD Dr. Ulrich A. Glasmacher danke ich für die vielfältigen Anregungen und die tatkräftige Unterstützung.

Allen Kolleginnen und Kollegen der Forschungsstelle Archäometrie möchte ich für Rat und Tat bei vielen Fragen, ihre Geduld und Unterstützung während meiner Dissertation und viele fruchtbare Diskussionen danken. Emiko war eine nie versiegende Motivations- und Sushi-Quelle. Sanne und Christina danke ich für ihre Hilfe. Regina war mir bei den Messungen zur Dosisleistung und der Keramik eine große Unterstützung. Für die Durchsicht und Korrektur meiner Arbeit und viele anregende Diskussionen während des Mittagessens danke ich Annette, Regina, Ralf, Clemens und Kevin.

Meinen Eltern danke für die vielfältige Unterstützung und Förderung während meiner Ausbildung.

Danke Anja.