

Die wirkl. Mitglieder Friedrich Hecht und Richard Pittioni legen für den Anzeiger folgende Arbeit vor:

„Beiträge zur Thermolumineszenz-Datierung urzeitlicher und frühgeschichtlicher Keramikfunde.“

I. Das Brandgräberfeld in Hohenau/March, Niederösterreich). Von E. Pernicka

Diese Arbeit stellt die ersten Ergebnisse des Projektes 2905 des österreichischen Fonds zur Förderung der wissenschaftlichen Forschung dar. Dieses Projekt, das über Antrag der Professoren Friedrich Hecht und Richard Pittioni im Institut für Strahlenschutz des Forschungszentrums Seibersdorf durchgeführt wird, hat die systematische Untersuchung der ur- und frühgeschichtlichen Keramikbestände im Hinblick auf ihr Absolutalter zum Ziel. Zur Zeit wird ein Testprogramm mit verschiedenen Keramiksorten bekannten Alters durchgeführt, um die Möglichkeiten und Grenzen der Altersbestimmung mit Hilfe der Thermolumineszenz aufzuzeigen.

Zusammenfassung

Für die Keramik aus dem Brandgräberfeld in Hohenau/March (Niederösterreich) wurde ein Thermolumineszenzalter von 2650 (± 40 , ± 200 , VieTL7702) Jahren ermittelt. Die Messung der natürlichen Thermolumineszenz erfolgte an verschiedenen aufbereiteten Mineralextrakten aus drei Keramikfragmenten. Zur Abschätzung der Jahresdosis wurden die Gehalte der Fragmente und des Bodens an K flammenphotometrisch und die U und Th-Konzentrationen mittels instrumenteller Aktivierungsanalyse bestimmt. Das auf diese Weise gemessene Alter stimmt gut mit dem archäologischen Befund überein, der die Keramik der Hallstatt-C-Periode (750—550 v. Chr.) zuordnet.

Abstract

A thermoluminescence age of 2650 (± 40 , ± 200 , VieTL7702) years was determined for pottery from an ancient graveyard in Hohenau/March (Lower Austria). The natural thermoluminescence was measured on different mineral extracts of three pottery fragments. The dose-rate per year was determined by flamephotometric analysis of K both in the fragments and the soil, while concentrations of U and Th were determined by instrumental neutron activation analysis. The calculated age agrees well with the archaeological evidence, which places the pottery in the Hallstatt-C-period (750—550 B. C.).

Einleitung

In den letzten 15 Jahren wurden bei der Datierung archäologischer Materialien mit Hilfe der Thermolumineszenz (im folgenden als TL bezeichnet) große Fortschritte gemacht (Aitken[1]). Vor allem bei Keramik ermöglicht die TL-Methode, die anfänglich

nur als relative Datierungsmethode angesehen wurde, absolute Altersbestimmungen mit einer Standardabweichung von weniger als $\pm 10\%$. Da Keramikfragmente die bei archäologischen Ausgrabungen bei weitem am häufigsten gefundenen Artefakte darstellen, ist diese Methode als wertvolle Ergänzung zur ^{14}C -Datierung anzusehen.

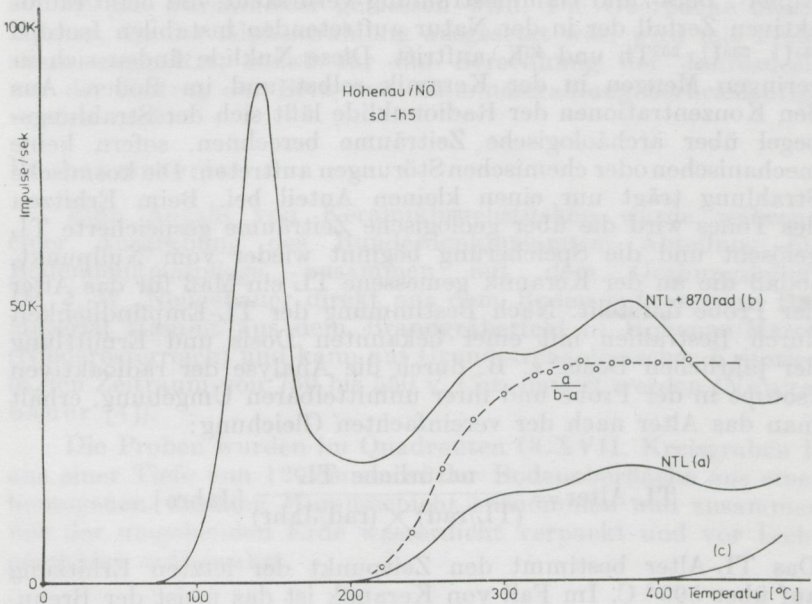


Abb. 1: Leuchtcurve eines Feinkornpräparates aus einer Keramikprobe von Hohenau/March. Kurve a zeigt die natürliche TL, Kurve b die gesamte TL nach einer Bestrahlung eines anderen Äquivalents mit 870 rad, Kurve c die thermische Strahlung. Aus dem Verhältnis $a/(b-a)$ wird der Temperaturbereich ermittelt, in dem die natürliche TL stabil war (ab etwa 350°C)

Prinzip der Methode

Thermolumineszenz ist eine Leuchterscheinung, die beim Erwärmen elektrisch nichtleitender Festkörper auftritt. Sie ist der thermischen Strahlung vor- und überlagert. Die Voraussetzung für das Auftreten von TL bildet die Bestrahlung mit ionisierenden Strahlen. Dabei werden Elektronen in metastabile Zustände angeregt, in denen sie zum Teil sehr lange verweilen können. Durch die thermische Aktivierung kehren diese metastabilen Elektronen unter Emission von Licht, eben der TL,

in den Grundzustand zurück. Die Intensität der TL als Funktion der Aufheiztemperatur nennt man Leuchtkurve (Abb. 1). Die Fläche unterhalb der Leuchtkurve ist ein Maß für die von der Probe aufgenommene Strahlendosis (absorbierte Energie pro Gramm Material).

Bei archäologischen Keramikproben wird die TL durch die Alpha-, Beta- und Gammastrahlung verursacht, die beim radioaktiven Zerfall der in der Natur auftretenden instabilen Isotope ^{235}U , ^{238}U , ^{232}Th und ^{40}K auftritt. Diese Nuklide finden sich in geringen Mengen in der Keramik selbst und im Boden. Aus den Konzentrationen der Radionuklide läßt sich der Strahlungspegel über archäologische Zeiträume berechnen, sofern keine mechanischen oder chemischen Störungen auftreten. Die kosmische Strahlung trägt nur einen kleinen Anteil bei. Beim Erhitzen des Tones wird die über geologische Zeiträume gespeicherte TL gelöscht und die Speicherung beginnt wieder vom Nullpunkt, sodaß die an der Keramik gemessene TL ein Maß für das Alter der Probe darstellt. Nach Bestimmung der TL-Empfindlichkeit durch Bestrahlen mit einer bekannten Dosis und Ermittlung der jährlichen Dosis, z. B. durch die Analyse der radioaktiven Isotope in der Probe und ihrer unmittelbaren Umgebung, erhält man das Alter nach der vereinfachten Gleichung:

$$\text{TL-Alter} = \frac{\text{natürliche TL}}{(\text{TL/rad}) \times (\text{rad/Jahr})} [\text{Jahre}]$$

Das TL-Alter bestimmt den Zeitpunkt der letzten Erhitzung auf über 500°C . Im Fall von Keramik ist das meist der Brennvorgang, bei dem üblicherweise Temperaturen von 800°C und darüber erreicht werden.

Bei der praktischen Durchführung einer TL-Datierung muß berücksichtigt werden, daß Keramik im allgemeinen ein inhomogenes Gemisch aus einer feinen Tonmatrix und verschiedenen, größeren Mineralkörnern (Quarz, Feldspäte u. a.) darstellt, die den größten Anteil zur TL-Intensität beitragen. Andererseits sind die radioaktiven Elementisotope vorwiegend in der Tonmatrix enthalten, sodaß die Gesamtdosis der kristallinen Einschlüsse wegen der geringen Reichweite der Alphateilchen im keramischen Material (etwa $0,025\text{ mm}$) eine Funktion ihrer Größe ist. Einschlüsse, deren Radius größer als die mittlere Reichweite der Alphateilchen ist, absorbieren eine wesentlich geringere Strahlungsdosis als kleine Mineralkörner, die völlig durchstrahlt werden. Diese Situation hat zur Entwicklung

verschiedener TL-Datierungstechniken geführt, die an unterschiedlichen Mineral- und Korngrößenextrakten aus der Keramik durchgeführt werden. Die wichtigsten davon sind die Feinkorn-technik (Zimmermann [2]), bei der nur Korngrößen von 1 bis $8 \mu\text{m}$ verwendet werden, und die Quarzeinschlußtechnik (Fleming [3]), bei der die TL an Quarzkörnern von mehr als $100 \mu\text{m}$ Durchmesser gemessen wird. Die Oberfläche dieser Körner, die der Alphastrahlung ausgesetzt war, wird mit Flußsäure weggeätzt, sodaß für die Berechnung der Jahresdosis nur der Beitrag der Beta- und Gammastrahlung berücksichtigt werden muß.

Probenmaterial

Eine Anzahl von Keramikbruchstücken wurde während einer Ausgrabung des Bundesdenkmalamtes, Abteilung für Bodendenkmalpflege, zusammen mit dem Grabungsleiter, Dr. J.-W. Neugebauer direkt aus dem Boden entnommen. Das Material stammt aus dem Brandgräberfeld in Hohenau/March (Niederösterreich) und kann auf Grund archäologischer Kriterien in den Zeitraum von 750 bis 550 v. Chr. datiert werden (Neugebauer [4]).

Die Proben wurden im Quadranten CCXVII, Kreisgraben I, aus einer Tiefe von 120 cm unter der Bodenoberfläche aus einer homogenen, dunklen Humusschicht entnommen und zusammen mit der umgebenden Erde wasserdicht verpackt und vor Licht geschützt aufbewahrt.

TL-Messung

Nach der Bestimmung des Wassergehaltes der Proben wurden die Keramikfragmente gereinigt und bei 50°C getrocknet. Anschließend wurde etwa 1 mm der Scherbenoberfläche abgeschliffen. Die seit der letzten Erhitzung gespeicherte, sogenannte natürliche TL wurde sowohl an Feinkornpräparaten, die nach der Methode von Zimmermann [2] aufbereitet wurden, als auch an Quarzextrakten gemessen, wobei im wesentlichen dem Verfahren von Fleming [3] gefolgt wurde. Dazu wurde die Siebfraktion von 125 bis $200 \mu\text{m}$ der zerdrückten Keramik 40 min in 40% HF-Lösung geätzt und anschließend mit Bromoform/Aceton-Gemischen die Dichtefraktion von 2,50 bis $2,70 \text{g/cm}^3$ aufbereitet.

Mit Hilfe des Plateautests (Aitken [5]) wurde der Temperaturbereich ermittelt, in dem die natürliche TL stabil war (Abb. 1).

Außerdem wurden die Feinkornproben auf temperaturunabhängige TL-Verluste (anomalous fading, Wintle [6]) untersucht, indem bestrahlte Proben vier Wochen dunkel gelagert wurden. Es traten keine meßbaren Verluste auf.

Zur Bestimmung der natürlichen Dosis wurde die TL-Empfindlichkeit jeder Probe gemessen. Dazu dienten Bestrahlungen mit einer ^{90}Sr - ^{90}Y -Betaquelle (Abb. 2), die selbst mittels einer ^{60}Co -Gammaquelle, deren Ionendosis sehr genau bekannt war, kalibriert worden war (Pernicka [7]). Die Korrektur für den nichtlinearen Anstieg der TL mit der Dosis (Abb. 2) wurde durchgeführt und ist zusammen mit den Ergebnissen der TL-Messung in Tabelle 1 zusammengestellt.

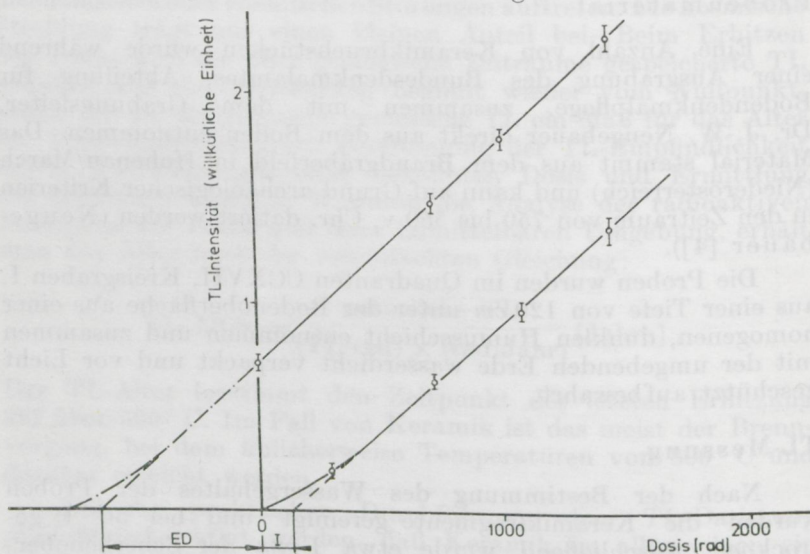


Abb. 2: TL-Intensität als Funktion der aufgebrachtten Dosis, gemessen an der gleichen Probe wie in Abb. 1. ED_3 ist die künstliche Betadosis, die ein TL-Signal gleicher Intensität wie die natürliche TL in der Probe erzeugt. Aus der zweiten Wachstumskurve wird die Größe I, die Korrektur für den nichtlinearen Anstieg der Wachstumskurven ermittelt. Dabei wird angenommen, daß sich durch das Ausheizen der natürlichen TL keine Veränderungen ergeben

Tabelle 1

Gemessene Dosiswerte in den Keramikfragmenten. ED_3 ist die künstliche Betadosis, die ein TL-Signal gleicher Intensität wie die natürliche TL in der Probe erzeugt, und I die Korrektur für den nichtlinearen Anstieg der Wachstumskurve (siehe Abb. 2.)

Referenz-Nr.	Methode	ED _β rad	I rad	ED _β + I rad
7702-1	Quarz	667	81	748
	Feinkorn	1653	∅	1653
7702-5	Feinkorn	1700	∅	1700
7702-6	Quarz	677	197	874
	Feinkorn	2155	∅	2155

Jährliche Dosis

Die jährliche Dosis in den Keramikfragmenten wurde aus den Gehalten an U, Th und K in der Keramik und im Boden mit Hilfe der Umrechnungsfaktoren von Bell [8] ermittelt. Dabei wurde berücksichtigt, daß der Anteil der Alpha- und Betastrahlung nur aus den Scherben selbst stammt, während zur Berechnung des Gammaanteils nur die Analyse der umgebenden Erde herangezogen wurde. Außerdem wurde davon ausgegangen, daß die radioaktiven Zerfallsreihen von ²³⁵U und ²³⁸U im Gleichgewicht sind. Für ²³²Th ist diese Bedingung wegen der relativ kurzen Halbwertszeiten seiner Tochterprodukte fast immer erfüllt. Messungen der natürlichen Gammaaktivitäten (Pernicka [9]) zeigten, daß bei den hier untersuchten Proben auch die Zerfallsketten des Urans im Gleichgewicht waren.

Die Kaliumgehalte wurden flammenphotometrisch und die Uran- und Thoriumgehalte mittels instrumenteller Aktivierungsanalyse (Kluger [10]) bestimmt. Die Wirkung der Alphateilchen, TL hervorzurufen, ist im allgemeinen geringer als die der Beta- und Gammastrahlen. Das Verhältnis der TL-Intensitäten pro Doseinheit von Alpha- und Betastrahlen wird üblicherweise k-Faktor genannt. Durch Bestrahlung mit kalibrierten ²⁴¹Am-Alphaquellen (durchgeführt im Research Laboratory for Archaeology and the History of Art in Oxford) wurden bei den Keramikproben von Hohenau Werte von 0,20 bis 0,23 für den k-Faktor gemessen. Diese Werte und die Korrekturen für den Wassergehalt der Keramik (5—13%) und des Bodens (13%) sind in den effektiven Dosisraten in Tabelle 2 berücksichtigt. Bei der Berechnung der jährlichen Betadosis für die Quarzeinschlußmethode wurde die Abschwächung der Betastrahlung im Quarzkorn berücksichtigt und die Werte um 9% gegenüber denen

der Feinkornmethode erniedrigt. Als Beitrag der kosmischen Strahlung wurden 0,014 rad/a (Aitken [11]) zu allen externen Dosisleistungswerten addiert.

Tabelle 2

Analysenwerte für K in Prozent und U und Th in ppm und die daraus errechneten effektiven Dosisleistungswerte, die Korrekturen für k-Faktor und Wassergehalt beinhalten.

Referenz-Nr.	K %	U ppm	Th ppm	Alpha Beta Gamma Gesamt rad/a
7702-1	1,82	2,9	10,1	0,320 0,209 0,093 0,622
7702-5	1,79	3,2	12,6	0,355 0,205 0,093 0,657
7702-6	1,77	5,7	13,7	0,469 0,245 0,093 0,807
7702-Boden	1,83	1,0	6,5	— — — —

TL-Alter

Tabelle 3 enthält die aus den oben diskutierten Parametern errechneten TL-Alter. Das Alter des Fundzusammenhanges kann nun in der von Aitken und Alldred [12] vorgeschlagenen Art angegeben werden:

Tabelle 3

Aus natürlicher Dosis und effektiver Dosisleistung errechnete TL-Alter

Referenz-Nr.	Methode	TL-Alter (Jahre)
7702-1	Quarz	2649
	Feinkorn	2658
7702-5	Feinkorn	2588
7702-6	Quarz	2766
	Feinkorn	2670

2650 Jahre (± 40 , ± 200 , VieTL 7702), 672 v. Chr. (3 Proben)

Die erste Zahl bezeichnet den Mittelwert der gemessenen absoluten Probenalter in Jahren vor heute. Die Abkürzung VieTL bezieht sich auf das TL-Labor in Wien und 7702 ist die Referenznummer des Labors für diesen Fundzusammenhang. Die erste Fehlerangabe (alle Werte beziehen sich auf den 68%-Vertrauensbereich) stellt die Reproduzierbarkeit der Altersbestimmung dar. Darin sind die zufälligen Fehler enthalten, die mit der Bestimmung der natürlichen Dosis, des k-Faktors und der chemischen Analyse zusammenhängen. Dieser Wert kann zum Vergleich von Proben aus einem Fundzusammenhang oder eines Ausgrabungsortes verwendet werden. Bedingt durch die geringe Probenanzahl täuscht im vorliegenden Fall die Standardabweichung (± 40 Jahre = $\pm 1,5\%$ des Alters) eine bessere Reproduzierbarkeit der Methode vor, als auf Grund der Fehler der einzelnen Parameter erwartet werden kann. Üblicherweise muß mit einer Reproduzierbarkeit von etwa 5% gerechnet werden.

Die Genauigkeit der Datierung wird durch die zweite Standardabweichung ausgedrückt. Sie setzt sich aus den zufälligen und systematischen Fehlern zusammen. Hier sind auch die Fehler bei der Quelleneichung und die Unsicherheit bezüglich des Wassergehaltes der Proben über den Lagerungszeitraum berücksichtigt. Für die Quelleneichung wurde mit einem Fehler von $\pm 5\%$ sowohl bei der Alpha- als auch bei der Betaquelle gerechnet, während der Fehler des Wassergehaltes nur geschätzt werden kann. Hier wurde er mit $\pm 25\%$ angenommen. Die größere Standardabweichung muß bei einem Vergleich des TL-Alters mit Werten aus anderen Datierungsmethoden herangezogen werden.

Danksagung

Dem Fonds zur Förderung der wissenschaftlichen Forschung wird für die finanzielle Unterstützung im Rahmen des Projektes 2905 gedankt. Herrn Dr. J.-W. Neugebauer danke ich für die bereitwillige Hilfe bei der Probenentnahme und für wertvolle Diskussion.

Literatur

- [1] Aitken, M. J.: *Physics and archaeology*: Clarendon Press, Oxford (1974)
 [2] Zimmermann, D. W.: *Thermoluminescent dating using fine grains from pottery*: *Archaeometry* 13 (1), 29—52 (1971).

[3] Fleming, S. J.: Thermoluminescence dating: Refinement of the quartz inclusion method: *Archaeometry* 12, 133—145 (1970).

[4] Neugebauer, J.-W.: Ein Hallstatt-C-zeitliches Brandgräberfeld in Hohenau/March, NÖ.: Ergänzungsheft zum Heimatbuch der Marktgemeinde Hohenau (1974).

[5] Aitken, M. J., Tite, M. S., Reid, J.: Thermoluminescent dating: Progress report: *Archaeometry* 6, 65—75 (1963).

[6] Wintle, A. G.: Anomalous fading of thermoluminescence in mineral samples: *Nature* 245, 143—144 (1973).

[7] Pernicka, E., Wagner, G. A.: Primary and interlaboratory calibration of beta sources using quartz as TL-phosphor: in Vorbereitung.

[8] Bell, W. T.: Thermoluminescence dating: Revised dose-rate data: *Archaeometry* 19, 99—100 (1977).

[9] Pernicka, E., Schindler, P.: Radiometric determination of the disequilibrium in the uranium decay chain: in Vorbereitung.

[10] Kluger, F., Weinke, H. H., Kiesl, W.: G-2, GSP-1, AGV-1 und BCR-1: Methode und Ergebnisse der Bestimmung von Spurenelementen durch zerstörungsfreie Analyse nach Aktivierung mit Reaktorneutronen: *Anz. math.-naturw. Kl. d. Österr. Akad. d. Wiss.* 8, 96—104 (1976).

[11] Aitken, M. J.: Thermoluminescence dosimetry of environmental radiation on archaeological sites: *Archaeometry* 11, 109—114, (1969).

[12] Aitken, M. J., Alldred, J. C.: The assessment of error limits in thermoluminescent dating: *Archaeometry* 14, 257—267 (1972).

Standardabweichung...
 und systematischen Fehl...
 bei der Quellenschätzung...
 Wasser...
 während der...
 kann hier...
 Standardabweichung...
 mit...
 Werten...

Dank...
 Dem...
 wird für die...
 2005...
 die...
 Diskussion...
 [1]...
 [2]...