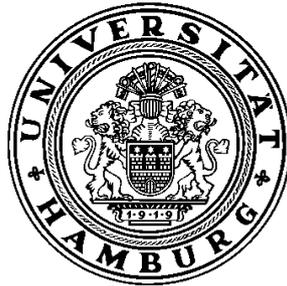


Gammapektroskopie zum Nachweis von Cs-137 Aktivitäten und deren vertikale Verteilung in Bodenprofilen

von

Paul Ferdinand Kaiser



Bachelorarbeit im Studiengang Physik

Universität Hamburg

Februar 2016

1. Gutachter: Prof. Dr. Gerald Kirchner
2. Gutachter: Dr. Markus Kohler

Abstract

Long-lasting, radioactive isotopes pose a health risk. Such particles are distributed throughout the atmosphere after a nuclear incident like in Chernobyl or the explosion of a nuclear weapon. In order to assess the potential risks accompanying such incidents knowledge about the distribution of the residues in soil is necessary. This paper investigates the depth distribution of Cs-137 in a sandy soil sample. To measure the activities a gamma spectrometer is used. The convective-dispersive model is then fitted to the data in order to test its usefulness to predict depth distributions. This paper shows that today a distinction between different sources for Cs-137 is difficult. The examined sources were the residues of the Chernobyl accident in 1986 and of the fallout of nuclear weapons tests. In order to differentiate between those sources prior knowledge is necessary. A sole observation of the data from Chernobyl could confirm a study from 1992. However, the model underestimates the activities in lower layers.

Zusammenfassung

Langlebige, radioaktive Isotope stellen eine Gesundheitsgefahr dar. Solche Partikel werden nach Kernreaktorunfällen oder Kernwaffenexplosionen in der Atmosphäre verteilt und stellen, auch Jahre nach dem eigentlichen Ereignis, eine Gefahr dar. Um diese besser einschätzen zu können, ist es nötig zu wissen, wie schnell sich die Partikel in Erdschichten bewegen, um mögliche Oberflächen- oder Grundwasserkontaminationen vorherzusagen. In dieser Arbeit wurde mittels eines Gammadetektors die Cs-137 Tiefenverteilung in einem Sandboden untersucht. Das Konvektions-Dispersions-Modell wurde anschließend auf seine Vorhersagekraft der Cäsium-Aktivitäten geprüft. Es wurde deutlich, dass heute eine Unterscheidung zwischen Aktivitäten aus Tschernobyl und aus Kernwaffentests aus den 60er Jahren nicht mehr ohne Voruntersuchungen aus den 80er und 90er Jahren möglich ist. Eine reine Betrachtung der Ablagerungen aus Tschernobyl konnte die Daten einer Untersuchung von 1992 reproduzieren. Die vorhandenen Aktivitäten in tieferen Schichten werden von dem Modell unterschätzt.

Inhaltsverzeichnis

1	Einführung	1
2	Gammapektroskopie	3
2.1	Radioaktivität	3
2.2	Cäsium-137	5
2.3	Detektion von Gammastrahlen	6
2.3.1	Wechselwirkungen der Gammastrahlen mit Materie	7
2.3.2	Germanium-Halbleiterdetektor	10
2.3.3	Theoretisches Spektrum	12
3	Konvektions-Dispersions-Modell	14
4	Vorgehensweise	15
4.1	Genie 2000	15
4.2	Hintergrund	16
4.3	Aktivität	17
4.4	Kalibrierung	18
4.4.1	Energiekalibrierung	18
4.4.2	Effizienzkalibrierung	18
4.5	Modellanpassung	20
5	Ergebnisse	21
6	Zusammenfassung und Ausblick	28
	Literatur	30
A	Aufgenommene Spektren	31
B	Daten zur Tiefendarstellung	38
C	R-Skript	40

Abbildungsverzeichnis

1.1	Neutroneninduzierte Kernspaltung	1
2.1	Nuklidkarte	4
2.2	Zerfallsschema Cs-137	6
2.3	Photoeffekt	7
2.4	Energieabhängigkeit des Absorptionskoeffizient von Photo-, Compton- und Paarbildungseffekt	8
2.5	Comptoneffekt	9
2.6	Paarbildung	9
2.7	Leiter, Halbleiter und Isolator	10
2.8	Dotierte Halbleiter	11
2.9	Messaufbau	12
2.10	Theoretisches Gammaspektrum	13
4.1	Spektrum der 2-4 cm Schicht	15
4.2	Cs-137 Linie	16
4.3	Marinelli-Becher Schema	20
5.1	Verteilung der Gesamtaktivität	21
5.2	An die Gesamtaktivität angepasstes Modell und vorhergesagte Aktivitäten für Tschernobyl und Waffenfallout	23
5.3	Waffenfallout aus Kirchner (1998)	24
5.4	Tschernobylfallout aus Kirchner (1998)	24
5.5	Gesamtaktivität und vorhergesagte Aktivität des Waffenfallouts	26
5.6	Gesamtaktivität und an die Aktivität aus Tschernobyl angepasstes Modell	27
A.1	Spektrum der 0-2 cm Schicht	31
A.2	Spektrum der 4-6 cm Schicht	31
A.3	Spektrum der 6-8 cm Schicht	32
A.4	Spektrum der 8-10 cm Schicht	32
A.5	Spektrum der 10-12 cm Schicht	33
A.6	Spektrum der 12-14 cm Schicht	33
A.7	Spektrum der 14-16 cm Schicht	34
A.8	Spektrum der 16-18 cm Schicht	34
A.9	Spektrum der 18-20 cm Schicht	35
A.10	Spektrum der 20-22 cm Schicht	35
A.11	Spektrum der 22-24 cm Schicht	36
A.12	Spektrum der 24-26 cm Schicht	36
A.13	Spektrum der 26-28 cm Schicht	37
A.14	Spektrum der 28-30 cm Schicht	37

Tabellenverzeichnis

5.1	Ergebnisse der Anpassung an die Gesamtaktivität für Cs-137	22
5.2	Ergebnisse der Anpassung an die Tschernobylaktivität	25
B.1	Werte für die Tiefenverteilung	38
B.2	Startaktivitäten für das Modell	38
B.3	Werte für den vorhergesagten Waffenfallout	39
B.4	Werte für den Tschernobylanteil	40

1 Einführung

Seit der Entdeckung der neutroneninduzierten Kernspaltung von Uran 1938 durch Otto Hahn und Fritz Straßmann hat deren Nutzung Einzug in das menschliche Leben gehalten. Innerhalb weniger Jahre wurden die ersten Kernkraftwerke in Betrieb genommen und stellen heute in vielen Ländern eine wichtige Stütze der Energieversorgung dar. Neben der friedlichen Nutzung der Kernenergie wurde jedoch auch ihre destruktive Kraft in Form von Kernwaffen aus der Büchse der Pandora entlassen. Bis zum heutigen Tag stellen diese Waffen eine ständige Gefahr für Mensch und Natur dar.

Neben der reinen Sprengkraft haben diese Waffen, durch die radioaktive Verseuchung ganzer Landstriche, auch Jahrzehnte nach ihrem Einsatz verheerende Folgewirkungen. Im Falle einer Kernwaffenexplosion oder auch eines Reaktorunfalls würde eine große Anzahl radioaktiver Isotope frei gesetzt, die durch die jeweilige Wetterlage in der Atmosphäre verteilt werden. Diese Partikel sind wegen der von ihnen abgegebenen ionisierenden Strahlung eine große Gefahr für die Umwelt, da sie zu Zellmutationen führen kann.

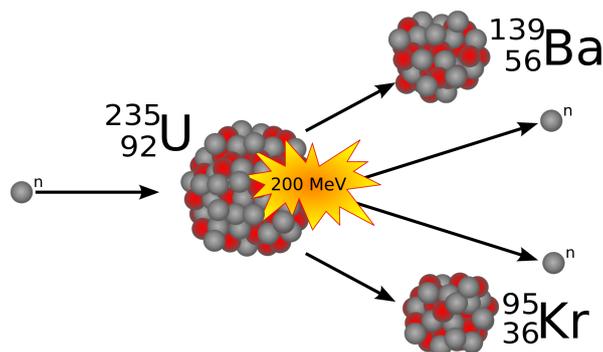


Abbildung 1.1: Schematische Darstellung einer neutroneninduzierten Kernspaltung von ${}^{235}_{92}\text{U}$ (Wikimedia Commons, 2009b).

Bei der Spaltung von ${}^{235}_{92}\text{U}$ können zum Beispiel ${}^{139}_{56}\text{Ba}$ und ${}^{95}_{36}\text{Kr}$ entstehen, wie in Abbildung 1.1 gezeigt. Dies ist nur einer von vielen möglichen Prozessen, wobei die Spaltprodukte weiter in andere Isotope zerfallen. Von besonderer Bedeutung für den Menschen sind die Spaltprodukte I-131 und Sr-90. Beide Isotope lagern sich im menschlichen Körper ab, Strontium in den Knochen und Iod in der Schilddrüse (Bundesamt für Strahlenschutz, 2016b). Strontium verbleibt wegen seiner Halbwertszeit von ca. 29 Jahren ein Leben lang im Körper. Iod hingegen zerfällt mit einer kurzen Halbwertszeit von nur 8 Tagen, es ist allerdings sehr mobil und wird daher auch besonders leicht frei gesetzt, verteilt und schlussendlich vom Körper absorbiert (Bundesamt für Strahlenschutz, 2016a).

Von weiterem Interesse sind Cäsium- und Kryptonisotope. Cs-137, das durch Neutroneneinfang aus dem Cs-134 Isotop entsteht, ist der dominierende Teil des Strahlungsrückstands. Durch seine Halbwertszeit von ca. 30 Jahren strahlt Cs-137 noch über Jahrzehnte weiter, auch nachdem die kurzlebigen Isotope zerfallen sind (Bundesamt für Strahlenschutz, 2016a). Krypton-85 wird

zum Beispiel am Carl Friedrich von Weizsäcker Zentrum für Naturwissenschaft und Friedensforschung (ZNF) dazu verwendet, um geheime Plutoniumproduktion aufzudecken.

Diese Arbeit soll einen Beitrag zur Einschätzung der langfristigen Auswirkungen von radioaktiven Kontaminationen leisten. Um die möglichen Auswirkungen einschätzen zu können, sind Kenntnisse über die Verteilung und Ausbreitung radioaktiver Isotope notwendig. Unter anderem ist es von entscheidender Bedeutung zu wissen, wie mobil diese in verschiedenen Bodenprofilen sind. Die Gefahr von Strahlenschäden ist besonders hoch, wenn die Stoffe lange an der Oberfläche verbleiben oder schnell ins Grundwasser gelangen, noch bevor ein Großteil zerfallen ist.

Um die Mobilität zu untersuchen, werden in dieser Arbeit fünfzehn 2 cm Schichten aus einem Sandboden in der Nähe von Bremen auf ihren jeweiligen Cs-137 Gehalt untersucht. Hierfür wird die weit verbreitete und etablierte Methode der Gammaskopie zur Bestimmung der Aktivität in den einzelnen Schichten verwendet. Diese Methode misst die beim Zerfall entstehende Strahlung und ordnet diese über spezifische Energien bestimmten Isotopen zu. Die Gammaskopie ist eine Spektroskopieart, die zum Beispiel zur Untersuchung von Nahrungsmitteln, Umweltproben, aber auch von radioaktiven Abfällen herangezogen wird. Am ZNF wird auch daran geforscht, Gammaskopie bei der Abrüstungsverifizierung von nuklearen Sprengköpfen einzusetzen.

Im Anschluss an die Aktivitätsbestimmung wird das Konvektions-Dispersions-Modell daraufhin überprüft, inwieweit es die gemessenen Aktivitäten vorhersagen kann. Das Modell wurde bereits in der Vergangenheit für ähnliche Untersuchungen verwendet (vgl. Kirchner (1998) und Bossew und Kirchner (2004)). Es kann gegebenenfalls herangezogen werden, um im Katastrophenfall Vorhersagen über die Mobilität gefährlicher Stoffe im Boden zu treffen, damit geeignete Maßnahmen ergriffen werden können. Das nicht-lineare Modell wird zur Überprüfung mit der Methode der kleinsten Quadrate an die gemessenen Werte angepasst. Dabei kann davon ausgegangen werden, dass die dominierenden Quellen in der Reaktorkatastrophe von Tschernobyl und im Fallout der Kernwaffentests in den 60er Jahren zu finden sind. Kirchner (1998) hat bereits an selber Stelle eine Untersuchung vorgenommen, die Grundlage für diese Arbeit ist.

Im Folgenden wird zunächst das allgemeine Verfahren der Gammaskopie umrissen, inklusive eines kurzen Überblicks über Radioaktivität. Im Weiteren werden das Konvektions-Dispersions-Modell und die spezielle Vorgehensweise im Rahmen dieser Arbeit dargestellt. Die Arbeit schließt mit der Darstellung der Messergebnisse und einem Ausblick.

2 Gammaspektroskopie

Gammaspektroskopie basiert auf der Aussendung charakteristischer γ -Strahlen von angeregten Atomen. Die Energie eines solchen Quants ist diskret und kann daher sehr genau einem spezifischen Isotop zugeordnet werden. Als Isotope werden Atome bezeichnet, die gleich viele Protonen, aber unterschiedlich viele Neutronen besitzen. Die Isotope eines Elements X werden mit A_ZX_N bezeichnet, wobei Z die Protonenzahl, N die Neutronenzahl und $A = Z + N$ die Massenzahl ist.

Im Folgenden werden der Begriff der Radioaktivität, die Eigenschaften des Cs-137 Isotops sowie die Grundlagen der Gammaspektroskopie dargelegt. Darüber hinaus wird auf den verwendeten Detektor und seine Eigenschaften eingegangen.

2.1 Radioaktivität

Radioaktive Atome sind instabil und senden beim Zerfall spontan ionisierende Strahlung aus, die nach dem sie verursachenden Zerfallsprozess benannt ist. Instabile Kerne gehen vorrangig über α -, β - oder γ -Zerfälle in neue und letztlich stabile Zustände über. Die entstehenden neuen Kerne nennt man Tochterkerne oder Tochternuklide, die ursprünglich zerfallenden Mutterkerne. Die folgenden Ausführungen beruhen hauptsächlich auf Gilmore (2008, Kap. 1 und 2).

Radioaktivität ist eine natürliche Eigenschaft von Elementen, die aber auch künstlich erzeugt werden kann. Der natürliche Strahlungshintergrund stammt vor allem vom Kaliumisotop ${}^{40}_{19}\text{K}$ sowie den Zerfallsreihen der Uranisotope ${}^{235}_{92}\text{U}$, ${}^{238}_{92}\text{U}$ und dem Thoriumisotop ${}^{232}_{90}\text{Th}$ (Gilmore, 2008, Kap. 16). Abbildung 2.1 zeigt alle bekannten Isotope, deren Protonen und Neutronenzahl sowie deren Zerfallsarten.

Beim α -Zerfall wird ein ganzer Heliumkern ${}^4_2\text{He}_2$ ausgesandt und wandelt A_ZX_N in das Tochternuklid ${}^{A-4}_{Z-2}Y_{N-2}$ um. Dieser Prozess ist besonders bei schweren Elementen mit Protonenzahlen jenseits von $Z = 83$ häufig (Gilmore, 2008, S. 7).



Beim β -Zerfall gibt es zwei Arten, den β^+ - und den β^- -Zerfall. Im Falle eines β^- -Zerfalls wird ein Neutron in ein Proton, ein Elektron und ein Anti-Elektronneutrino umgewandelt. Dieser Prozess tritt besonders bei Atomen mit Neutronenüberschuss auf.



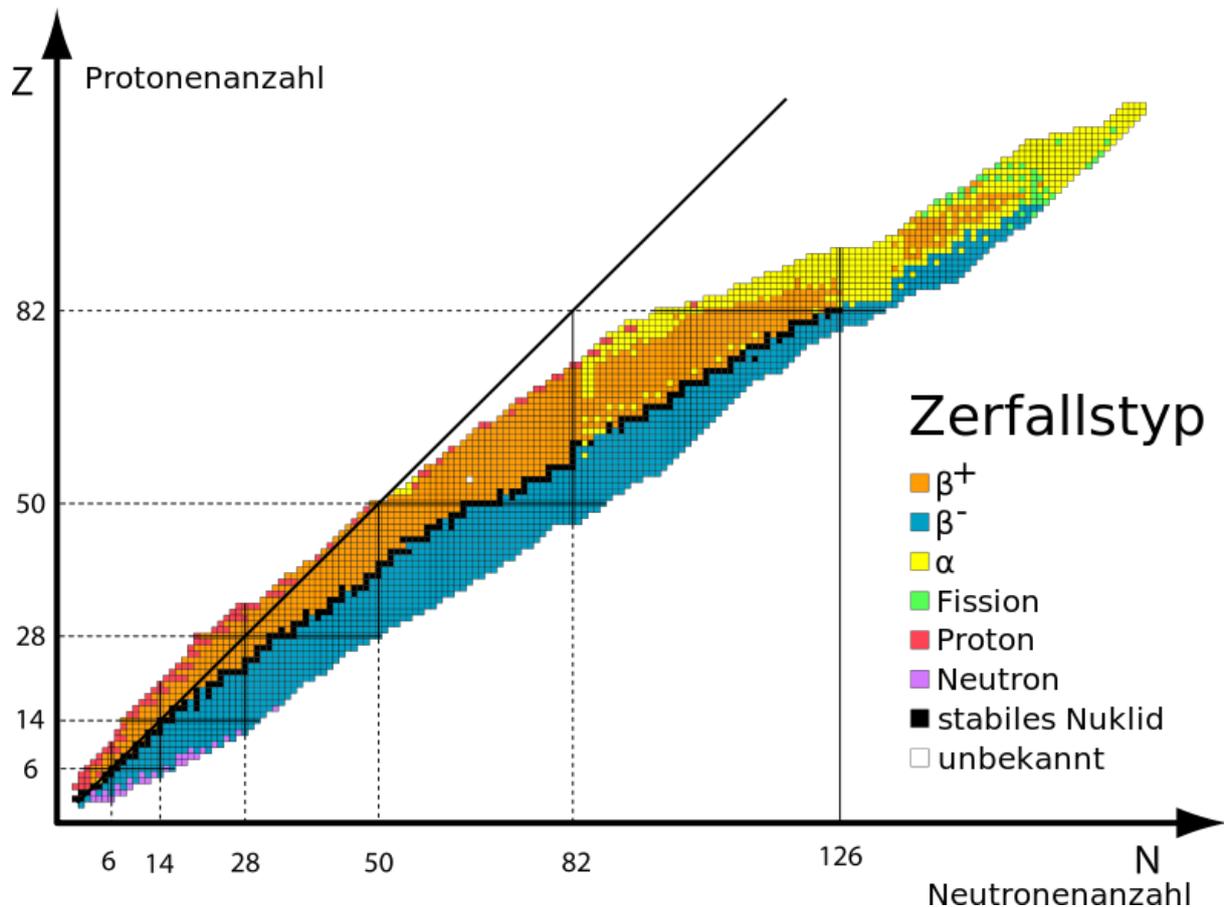


Abbildung 2.1: Nuklidkarte aller bekannten Nuklide und ihrer Zerfallsarten (Wikimedia Commons, 2010).

Beim β^+ -Zerfall wird im Gegensatz dazu ein Proton in ein Neutron, ein Positron, das Antiteilchen zum Elektron, und ein Elektronenneutrino umgewandelt. Der Prozess tritt vor allem bei protonenlastigen Kernen auf. Die frei werdende Energie wird jeweils zwischen den neu entstandenen Teilchen verteilt.



Der β^+ -Zerfall tritt nur auf, wenn die Energiedifferenz zwischen Mutter- und Tochternuklid mindestens 1022 keV beträgt, die benötigt wird, um das Positron für die Ladungserhaltung zu erzeugen. Alternativ kann es auch zum sogenannten Elektroneneinfang kommen. Ein Elektron aus der Atomhülle wird im Kern gefangen und rekombiniert mit einem Proton. Das eingefangene Elektron hinterlässt ein Loch, das durch ein Elektron aus einer höheren Schale gefüllt wird, wobei es zu Röntgenemissionen oder Auger-Elektronen-Emission kommt, die für die Gamma-

spektroskopie jedoch nur eine Rolle im niederenergetischen Bereich spielen (Gilmore, 2008, S. 27f.).



α - und β -Zerfälle können Kerne in angeregten Zuständen hinterlassen und werden daher oft von γ -Strahlung begleitet. Wenn nicht sofort die gesamte Energie freigesetzt wird, befinden sich die Tochterkerne in einem angeregten Zustand. Beim Übergang in Zwischenzustände oder direkt zum Grundzustand werden diskrete γ -Photonen ausgesandt. Aufgrund der hohen Lebensdauer τ von Gammaübergängen ist deren Linienbreite $\Gamma = \frac{\hbar}{\tau}$ relativ klein, weswegen die auftretenden Linien für die verschiedenen γ -Energien scharf getrennt sind. Die Lebensdauer steht dabei mit der Halbwertszeit in Verbindung über: $\tau \ln(2) = T_{1/2}$ (Bethge et al., 2008, S. 223). Jegliche Photonen mit einer Energie über 200 keV werden als Gammaquanten bezeichnet.



Auch zu der Abgabe von γ -Quanten gibt es einen Alternativprozess, die sogenannte innere Konversion. Die überschüssige Energie wird dabei an ein Hüllenelektron übertragen, das aus dem Atom ausgestoßen wird.

Die verschiedenen Zerfallswege und deren jeweiligen Energien werden für jedes Isotop in einem Zerfallsschema dargestellt.

2.2 Cäsium-137

Abbildung 2.2 zeigt das Zerfallsschema von Cs-137. Das Isotop zerfällt zu 95 % über einen β^{-} -Zerfall in den metastabilen Zwischenzustand ${}^{137m}_{56}\text{Ba}$ mit einer Halbwertszeit von ca. 153 Sekunden und anschließend über einen charakteristischen Gammazerfall von 661,7 keV (im Bild gerundet) in ${}^{137}_{56}\text{Ba}$. Es ist diese Energie, die im Gammaspektrum zur Identifizierung von Cs-137 genutzt wird. Alternativ kann Cs-137 auch direkt über einen β^{-} -Zerfall zu ${}^{137}_{56}\text{Ba}$ umgewandelt werden (Gilmore, 2008).

Cäsium-137 ist ein künstliches, radioaktives Isotop von Cäsium, das bei Kernspaltungsprozessen von Uran und Plutonium entsteht. Cs-137 hat mit 30,17 Jahren eine Halbwertszeit, die dazu führt, dass immer noch große Teile der Emissionen von Nuklearwaffentests und Reaktorunfällen, wie in Tschernobyl und Fukushima, in der Umwelt vorhanden sind. Es stellt, wenn

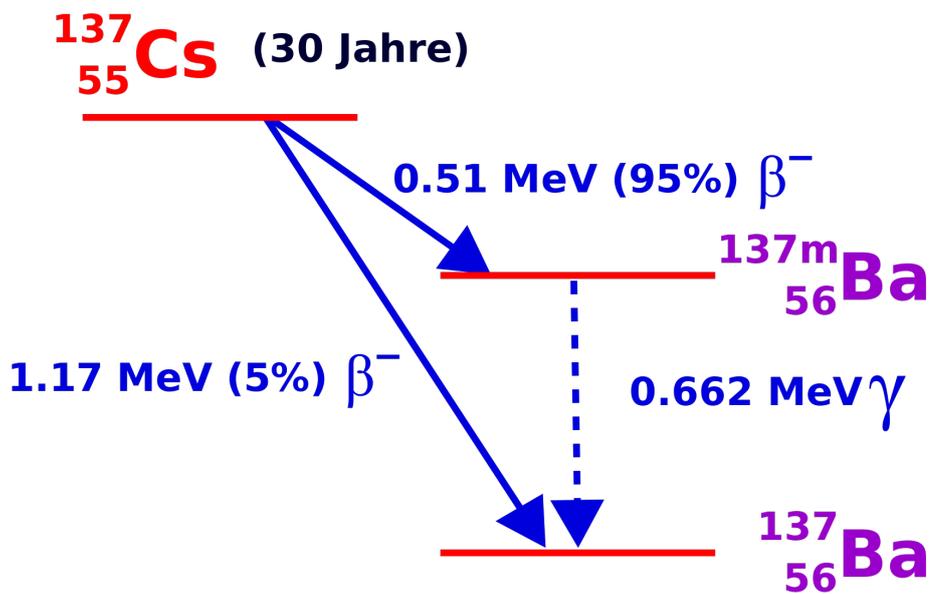


Abbildung 2.2: Zerfallsschema von Cs-137 (Hünninger, 2006).

in die Umwelt entlassen, eine Gefahr da, insbesondere da es sich in Form von Salzen und deren guter Wasserlöslichkeit schnell verbreiten kann. Durch seine Eigenschaft als Alkalimetall wird es vom Körper für Kalium gehalten, daher wird es leicht aufgenommen und in Muskeln und Nerven angelagert und erhöht dadurch das Krebsrisiko. Als Behandlung ist lediglich der Einsatz von *Berliner Blau* bekannt. Dieser Farbstoff bindet das Isotop an sich und kann dadurch zu einer schnelleren Ausscheidung des Stoffes führen (Centers for Disease Control and Prevention, 2016). Umso bedeutender ist eine effektive Einschätzung der Mobilität von Cs-137 in Bodenprofilen, um etwaige Grundwasserkontaminationen vorhersehen zu können.

Eine Studie der Organisation für wirtschaftliche Zusammenarbeit und Entwicklung (OECD) zum Reaktorunglück in Tschernobyl beschreibt die Ausbreitung von Cs-137 besonders ausführlich, da Cs-137 neben I-131 die größte Gefahr für die Allgemeinbevölkerung darstellt. 1986 wurden ca. 85 PBq an Cs-137 freigesetzt, die über die gesamte Erde verteilt wurden, besonders stark in der Ukraine und in Weißrussland (Nuclear Energy Agency, 2002, S. 34f.).

Neben ungewollten Freisetzungen wird Cs-137 auch gezielt zur medizinischen Bestrahlung von Krebszellen sowie zur Nachverfolgung von Flüssigkeitsströmen in industriellen Anlagen eingesetzt.

2.3 Detektion von Gammastrahlen

Zur Detektion der Gammastrahlen wird ein Germanium-Halbleiterdetektor verwendet. In diesem Kapitel werden zunächst die Wechselwirkungen der Gammaquanten mit Materie beschrie-

ben, bevor die Funktionsweise des Halbleiterdetektors und der weiteren Auswerteelektronik erläutert wird.

2.3.1 Wechselwirkungen der Gammastrahlen mit Materie

Die bei radioaktiven Zerfällen entstehende Strahlung interagiert mit Materie vor allem über Streuprozesse und Ionisation. Für die Detektion von Gammaenergien sind insbesondere drei Prozesse von entscheidender Bedeutung: Photoeffekt, Comptoneffekt und Paarbildung.

Beim Photoeffekt wird die Energie des γ -Quants an ein Hüllennatom übertragen, das aus dem Atom herausgeschlagen wird und das Atom so ionisiert (vgl. 2.3). Das Atom wird dabei in einen angeregten Zustand versetzt, was entweder dazu führt, dass die Energie auf die verbleibenden Elektronen übertragen wird oder es zur Aussendung eines Röntgenquants kommt. Im ersten Fall können weitere Elektronen als Auger-Elektronen das Atom verlassen. Im zweiten Fall besetzt ein Elektron aus einer höheren Schale die Leerstelle des herausgeschlagenen Elektrons und ein Röntgenphoton mit der korrespondierenden Wellenlänge wird emittiert.



Die auf das Elektron übertragene Energie E_e , also die Energie, die im Detektor gemessen wird, setzt sich zusammen aus der Energie des Gammaquants E_γ und der Bindungsenergie des Elektrons E_b .

$$E_e = E_\gamma - E_b \quad (2.10)$$

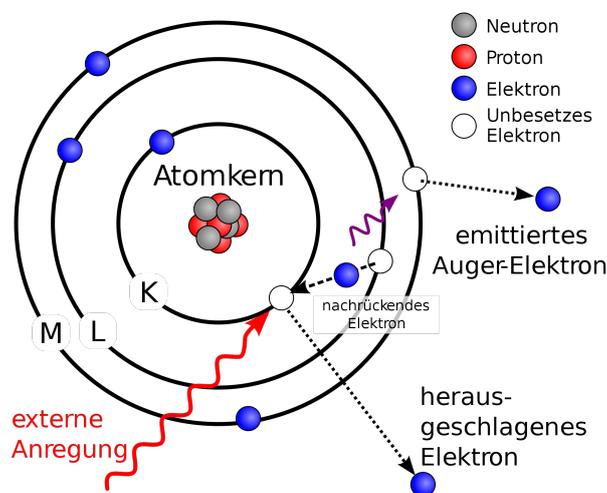


Abbildung 2.3: Darstellung des Photoeffekts (Wikimedia Commons, 2009a).

Der Photoeffekt ist der dominierende Prozess bei niedrigen Energien, wie in Abbildung 2.4 dargestellt. Der Wirkungsquerschnitt des Effekts ist proportional zur Kernladungszahl Z^5 , weswegen Detektormaterialien mit hohem Z bevorzugt werden (Gilmore, 2008, S. 27).

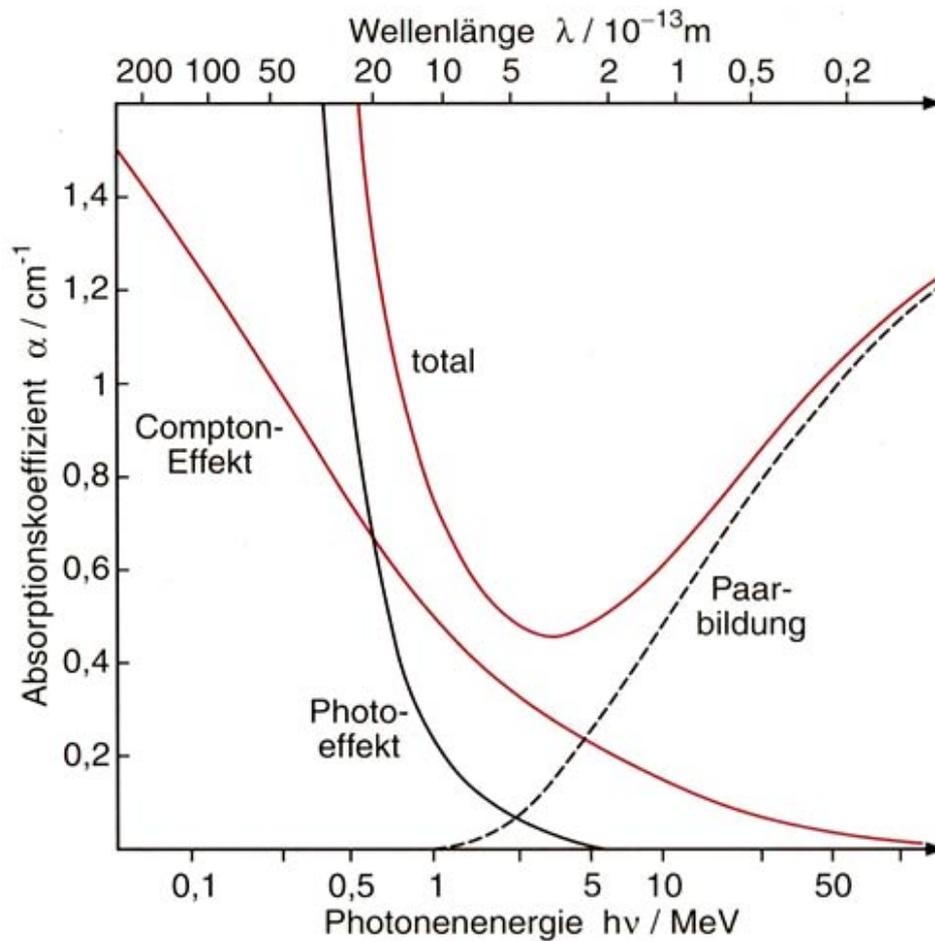


Abbildung 2.4: Energieabhängigkeit des Absorptionskoeffizienten für den Photo-, Compton- und Paarbildungseffekt (Winter, 2011).

Bei mittleren Photonenenergien tritt vermehrt der Compton-Effekt auf. Bei der Comptonstreuung gibt das Photon einen Teil seiner Energie durch elastische Streuung an ein freies Elektron ab. Das Photon kann danach gegebenenfalls wieder Compton-gestreut werden oder unterliegt dem Photoeffekt.



Der Energieübertrag wird beschrieben durch:

$$E_e = E_\gamma \left(1 - \frac{1}{1 + E_\gamma(1 - \cos(\varphi))/m_0c^2} \right) \quad (2.12)$$

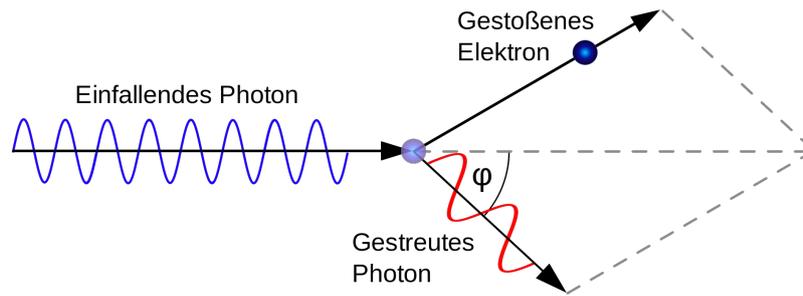


Abbildung 2.5: Interaktion zwischen einem Photon und einem Elektron (Wikimedia Commons, 2006).

Bei einem Winkel $\varphi = 0$ ist die auf das Elektron übertragene Energie $E_e = 0$ und es wird keine Energie im Detektor gemessen. Bei einer 180° -Grad Rückstreuung erfolgt der maximale Energieübertrag, was aber immer noch nur einem Teil der Energie des γ -Quants entspricht. Dies bedeutet auch, dass nie die gesamte Energie im Detektor absorbiert wird.

Bei hohen Energien, ab $E_\gamma > 2m_e$, kann es auch zu Paarbildung kommen. Der Prozess ist bei höheren Energien aber deutlich wahrscheinlicher. Bei Paarbildung wird aus einem Photon im Coulombfeld eines Kerns X ein Elektron und ein Positron gebildet, der Kern dient dabei als Rückstoßpartner. Die Energie und der Impuls des Photons werden auf die beiden Reaktionsteilchen aufgeteilt.

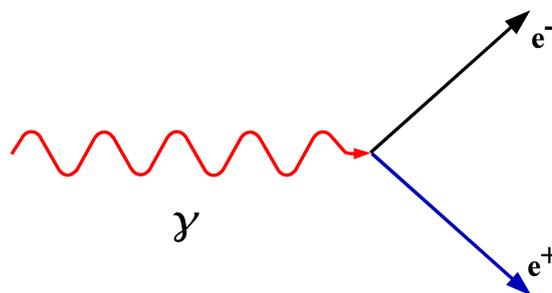


Abbildung 2.6: Darstellung der Paarerzeugung aus einem Gammaquant (Nölleke, 2006).



$$E_{e^+} + E_{e^-} = E_\gamma - 1022 \text{ keV} \quad (2.14)$$

Das Elektron wird nach kurzer Zeit von einem Atom aufgenommen, während das Positron nach etwa 1 ns soweit abgebremst ist, so dass es mit einem Elektron rekombiniert und aufgrund der Energie- und Impulserhaltung zwei Photonen mit jeweils 511 keV in entgegengesetzte Richtung aussendet. Dies nennt man Annihilationsprozess (Gilmore, 2008, S. 29).

2.3.2 Germanium-Halbleiterdetektor

Als Detektor wurde ein hochreiner Germanium-Halbleiterdetektor verwendet. Halbleiterdetektoren eignen sich zur Messung durch die hohe Wechselwirkungswahrscheinlichkeit von Festkörpern und die kleinen Bandlücken von Halbleitern (Gilmore, 2008, Kap. 3). Die Bandlücke ist ein materialspezifisches Merkmal von Festkörpern, die durch das periodische, elektrische Potential in einem Kristallgitter entsteht und dessen Energiezustände von Elektronen nicht angenommen werden können. Es bilden sich Valenz- und Leitungsband, in denen Elektronen vorhanden sein können. Im Falle eines Isolators oder Nichtleiters sind die Zustände im Valenzband von Elektronen besetzt, die im höher liegenden Leitungsband jedoch nicht. In einem Leiter sind auch Zustände im Leitungsband besetzt und elektrischer Strom kann geleitet werden. Halbleiter sind im Prinzip Isolatoren, deren Bandlücke aber klein genug ($< 4 \text{ eV}$) ist, um durch ionisierende Strahlung oder thermische Anregung überwunden zu werden (Gilmore, 2008, Kap. 3). Abbildung 2.7 gibt einen schematischen Überblick.

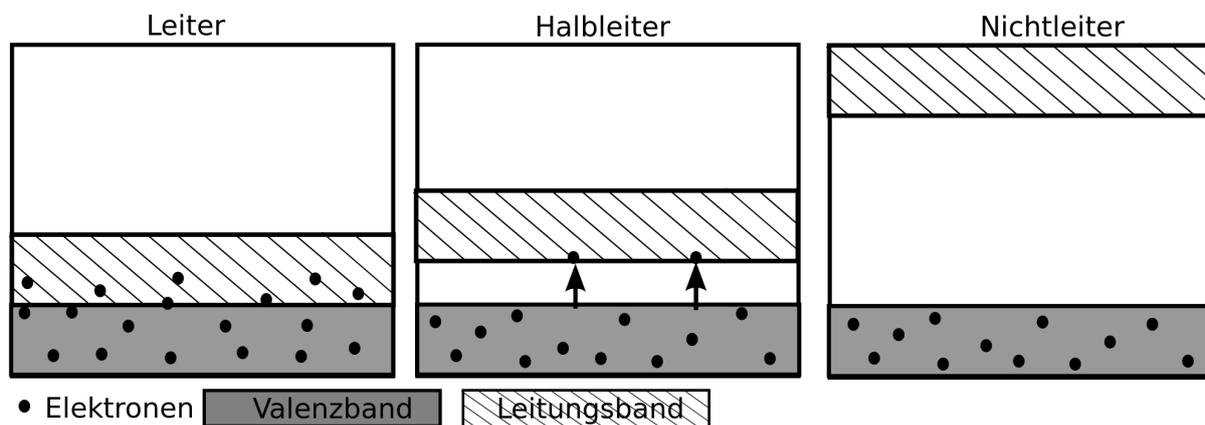


Abbildung 2.7: Schematische Darstellung der Bandstruktur von Leiter, Halbleiter und Nichtleiter. Die Punkte verdeutlichen Elektronen (Wikimedia Commons, 2008).

Halbleiter können dotiert werden, d.h. Fremdatome, die mehr oder weniger Elektronen als das Hauptmaterial haben, werden eingebracht. Ersteres nennt man n-Dotierung, bei der sogenannte Donatoren eingebracht werden, letzteres p-Dotierung, bei der Akzeptoren eingebaut werden. Bei n-dotierten Halbleitern stehen mehr Elektronen zur Signalleitung zur Verfügung, bei p-dotierten mehr Elektronen-Leerstellen, sogenannte Löcher. Durch Dotierung wird die Energie, die zur Erzeugung eines Elektron-Loch-Paares benötigt wird, verringert. Abbildung 2.7 zeigt beide Typen. Bei beiden Dotierarten ist die Energielücke zwischen Akzeptoren bzw. Donatoren und Valenz- bzw. Leitungsband geringer als die zwischen Valenz- und Leitungsband selbst. Bei p-dotierten Halbleitern können daher Elektronen aus dem Valenzband im Akzeptorband aufgenommen werden und es kommt zur Leitung. Bei n-dotierten werden stattdessen Elektronen aus dem Donatorband ins Leitungsband gehoben. In intrinsischen Halbleitern herrscht ein Gleichgewicht der beiden Ladungsträgerarten (Gross und Marx, 2012, Kap. 10).

Ein Detektor besteht aus einer p-dotierten Schicht, einer n-dotierten Schicht und einer Grenzschicht dazwischen. Durch die Differenz der Ladungsträger fließen Elektronen in den p-Bereich

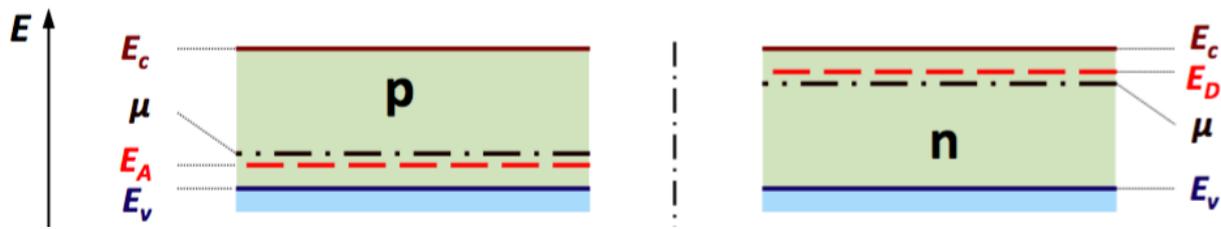


Abbildung 2.8: Schematische Darstellung der Bandstruktur von p- und n-dotierten Halbleitern. E_c bezeichnet die Energie des Leitungsbandes, E_v , die des Valenzbandes, E_A bzw. E_D , die Energie der Akzeptoren bzw. Donatoren, μ bezeichnet das chemische Potential (Gross und Marx, 2012, S. 515).

und rekombinieren dort mit Löchern, umgekehrt rekombinieren Löcher mit Elektronen in der n-Schicht. Hierdurch kommt es zur sogenannten Sperrschicht, einer Ladungsträger freien Zone. Wird nun eine Spannung so angelegt, dass sie weiter Ladungsträger aus dieser Schicht abzieht, vergrößert sich der Bereich, in dem kein Strom übertragen wird. Die Größe der Sperrschicht ist gleichzeitig die Größe des aktiven Bereichs des Detektors. Trifft ionisierende Strahlung auf das aktive Medium, erzeugt sie durch die oben beschriebenen Effekte Ladungsträger, die zu den Elektroden hin beschleunigt werden. Der Spannungsabfall in der Sperrspannung kann dann als Signal gemessen werden und über die Stärke des Signals kann Aufschluss über die Energie der Strahlung erhalten werden (Gross und Marx, 2012, Kap. 10).

Bei Germanium entstehen im Vergleich zu anderen Detektormaterialien mehr Ladungsträger, was die statistischen Fehler reduziert und damit das Auflösungsvermögen verbessert. Im Germanium werden nur 2,96 keV zur Erzeugung eines Elektron-Loch-Paares benötigt, während in Silizium 3,62 keV benötigt werden. Dafür muss der Germaniumdetektor aber mit flüssigem Stickstoff auf 77 K gekühlt werden, denn bei Raumtemperatur kommt es bereits zur thermischen Anregung der Ladungsträger aufgrund der geringen Bandlücke. Ein weiterer Vorteil von Germanium gegenüber Silizium ist seine Protonenzahl $Z = 32$ (im Vergleich zu $Z = 14$ für Silizium), da dies die Wechselwirkungswahrscheinlichkeit erhöht (Gilmore, 2008, S. 42).

Das Detektormaterial sollte möglichst groß sein, da dies die Wechselwirkungswahrscheinlichkeit erhöht, außerdem vergrößert dies auch die Wahrscheinlichkeit zur vollen Energieabsorption. Allerdings verlängert dies auch die Zeit, die benötigt wird, die Signale zu messen, wodurch die Energieauflösung abnimmt. Neben der Zeit, die zur Signalmessung benötigt wird, ist ein unvermeidbares elektronisches Rauschen hauptsächlich für die Verbreiterung der Spektrallinien verantwortlich (Gilmore, 2008, Kap. 4).

Um die Signale des Halbleiters zu verarbeiten, wird eine entsprechende Elektronik eingesetzt. Insbesondere enthält diese einen Verstärker und einen Vielkanalanalysator. Der Vielkanalanalysator weist jeder gemessenen Spannung einen Kanal zu, der dann proportional zur deponierten Energie ist und sortiert die Anzahl der Ereignisse zu jedem Kanal. Der verwendete Analysator verfügt über 4096 Kanäle, die benutzt wurden, um ein Spektrum über 2048 keV aufzunehmen. Das verwendete System von Canberra im Isotopenlabor des Fachbereichs Chemie an der Universität Hamburg ist in Bild 2.9 zu sehen.



Abbildung 2.9: Abbildung des verwendeten Gammadetektors.

Erkennbar sind die Bleiburg, die den Detektor gegen die Umwelt abschirmt, der Stickstofftank, ein sogenannter Dewar unterhalb des Detektors, der Detektorkopf (Pfeil) innerhalb der Bleiabschirmung und der Computer, auf dem die Spektren gespeichert und analysiert werden können.

2.3.3 Theoretisches Spektrum

Bei der Messung werden über einen großen Energiebereich hinweg die Signale der Probe gesammelt. Befindet sich ein radioaktives Element in der Probe, so misst man bei dessen spezifischer Energie eine hohe Anzahl von Ereignissen. Abbildung 2.10 zeigt ein theoretisches Spektrum, das durch die Prozesse, die in 2.3.1 beschrieben wurden, erzeugt wird.

Die Photolinie liegt an der spezifischen Energie für das jeweilige Isotop und wird zu dessen Identifizierung verwendet. Sie tritt auf, wenn die gesamte Energie des Photons im Detektor absorbiert wird. Wäre der Detektor sehr groß, würde die gesamte Energie in ihm deponiert werden, und man erhält Linien der vollen Energieabsorption sowie Summationslinien als Signal. Summationslinien treten vermehrt bei großen Detektoren auf und bezeichnen die gleichzeitige Messung von mehreren Signalen aus verschiedenen Zerfallskanälen. Ein Beispiel bietet Eu-152, das eine zusätzliche Linie bei 161,62 keV aufweist, die durch die gleichzeitige Messung der 121,78 keV und der 39,91 keV Linie gemessen wird (Gilmore, 2008, S. 166f.). Für Cs-137 tritt dies nicht auf, da es nur einen Zerfallskanal gibt. Der verwendete Detektor hat endliche Ausdehnung und ist auch von anderem Material umgeben, zum Beispiel Halterung und Abschirmung, daher werden auch andere Signale gemessen.

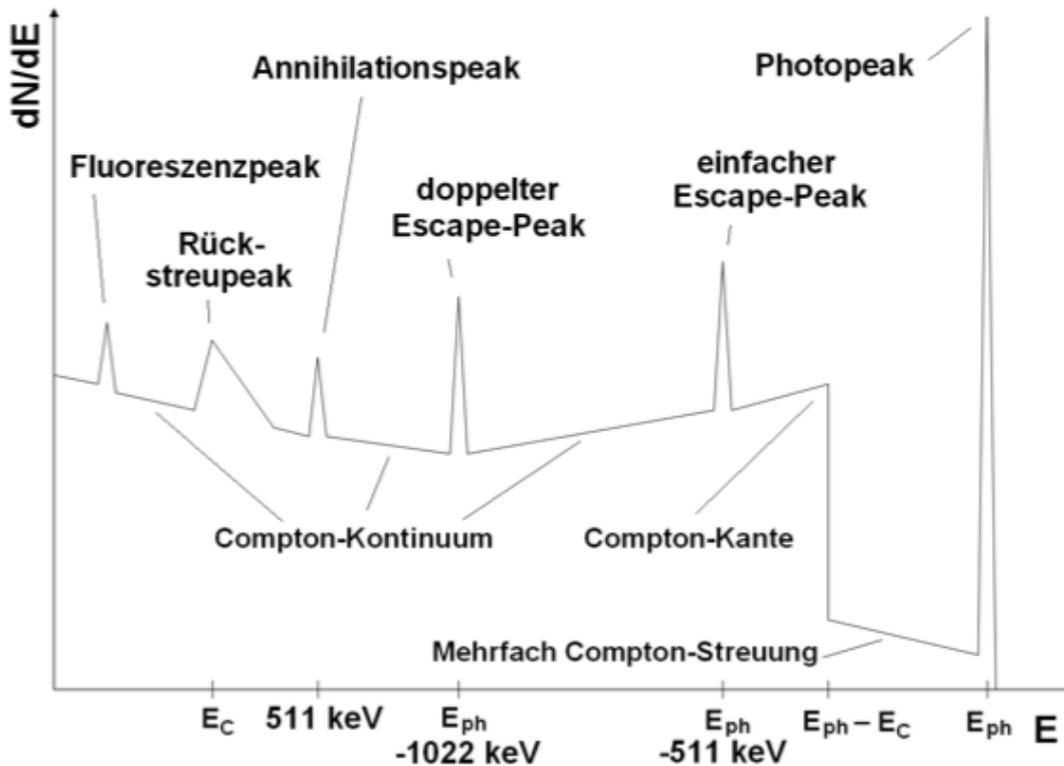


Abbildung 2.10: Darstellung eines theoretischen Gammaskpektrums (Timm, 2014, S. 20).

Sekundäre Photonen aus Comptonstreuung und Annihilation können bei kleinen Detektoren leicht aus dem Detektor entkommen, sodass nicht die komplette Photoenergie gemessen werden kann. Kommt es im Detektor zur Annihilation eines Positrons und eines Elektrons, entstehen zwei Photonen, von denen entweder eines oder beide den Detektor wieder verlassen können. Ist dies der Fall, fehlen entweder 511 keV oder 1022 keV im Spektrum und die einfache bzw. doppelte Escape-Linie treten auf (Gilmore, 2008, S. 32).

Aus der Comptonstreuung ergibt sich das sogenannte Compton-Kontinuum, wobei sich die Compton-Kante beim maximalen Energieübertrag ausbildet. An dieser Stelle ergibt sich gemäß des Klein-Nishina-Wirkungsquerschnitts eine höhere Zählrate als im Compton-Kontinuum. Für sekundäre Photonen, die auch nach einer Comptonstreuung noch ausreichend Energie haben, kann es zur mehrfachen Comptonstreuung kommen.

Trifft ein Gammastrahl direkt auf das Material um den Detektor, kommt es zu für das Material typischen Fluoreszenzlinien. In diesem Material kann es auch zur Annihilation kommen, wodurch eines der dabei entstehenden Photonen in den Detektor gesandt werden kann und die 511 keV Annihilationslinie verursacht. Es wird nur ein Photon im Detektor gemessen, da die Photonen im 180° -Winkel auseinander fliegen. Darüber hinaus können Compton-gestreute Photonen aus dem Umgebungsmaterial in den Detektor zurück gestreut werden und ein Rückstreusignal erzeugen (Gilmore, 2008, S. 35).

3 Konvektions-Dispersions-Modell

Das Konvektions-Dispersions-Modell ist ein Modell, das die Migration gelöster Stoffe in Bodenprofilen beschreiben kann. Es verbindet Dispersion und Konvektion, den Transport von Stoffen durch strömende Flüssigkeiten, z.B. Regenwasser. Dispersion ist ein diffusionsähnlicher Prozess, bei welchem durch die Porendicke im Boden Geschwindigkeitsunterschiede hervorgerufen werden, wodurch ein Teil der Lösung schneller als ein anderer im Boden transportiert wird. Der Prozess wird dadurch hervorgerufen, dass Wasser in weiten Poren schneller als in engen Poren bzw. in der Mitte einer Pore schneller als an deren Rändern transportiert wird. Diffusion hingegen basiert auf dem Konzentrationsunterschied zwischen verschiedenen Bereichen und auf ungerichteten Zufallsbewegungen (Brownsche Bewegung), die die Stoffe vermischen, dabei bewegen sich mehr Teilchen in Gebiete mit geringerer Teilchenkonzentration als umgekehrt (Hillel, 2004, Kap. 9). Das Modell beruht auf der Konvektions-Dispersion-Gleichung:

$$\frac{\partial C(z, t)}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C(z, t)}{\partial z^2} - u \frac{\partial C(z, t)}{\partial z} \quad (3.1)$$

Diese partielle Differentialgleichung enthält die Konzentration eines Stoffes $C(z, t)$ in Abhängigkeit von der Tiefe z und Migrationszeit t , den Dispersions-Koeffizienten D und die mittlere Fließgeschwindigkeit bzw. Migrationsrate der betrachteten Lösung u .

Geht man von impulsartigen Einspeisungen ($C^{ein}(0, t) = \sum_i C_{0i} \delta(z) \delta(t)$) von Radionukliden an der Oberfläche aus, so ergibt sich durch zweifache Laplace Transformation (Bossew und Kirchner, 2004) eine Lösung für die Konzentration zu:

$$C(z, t_i) = \sum_i C_{0i} e^{-\lambda t_i} \left[\frac{e^{-(z-ut_i)^2/(4Dt_i)}}{\sqrt{\pi Dt_i}} - \frac{u}{2D} e^{zu/D} \operatorname{erfc} \left(\frac{z + ut_i}{2\sqrt{Dt_i}} \right) \right] \quad (3.2)$$

C_{0i} gibt die Anfangskonzentration zum Zeitpunkt $t = 0$ an. Die Zerfallskonstante λ berücksichtigt den radioaktiven Zerfall.

4 Vorgehensweise

Im folgenden Kapitel wird erläutert, wie die Daten des Gammaskpektrometers ausgewertet wurden. Insbesondere wird dabei auf die Effizienzkalibrierung des Detektors in Hamburg eingegangen. In Hamburg standen keine bekannten Proben, die zur Kalibrierung geeignet waren, bereit. Daher wurden zwei Proben an der Landesmessstelle für Radioaktivität in Bremen vermessen und deren Messwerte zur Kalibrierung des Hamburger Detektors verwendet. Im kalibrierten Detektor wurden anschließend die fünfzehn Proben vermessen.

4.1 Genie 2000

Zur Auswertung der Rohdaten des Detektors wurde das Programm Genie 2000 von Canberra verwendet, mit dem das Spektrum dargestellt und analysiert werden kann. In Genie werden die Linien mittels des Mariscotti Algorithmus lokalisiert, der die Unterschiede zwischen den Signalen verschiedener Kanäle benutzt, um die Linienposition zu bestimmen. Dafür werden mehrere benachbarte Kanäle berücksichtigt (Gilmore, 2008, S. 185f.).

Abbildung 4.1 zeigt das aufgenommene Spektrum der 2-4 cm Schicht. Deutlich sichtbar sind die Übergänge, die zur Energiekalibrierung verwendet werden.

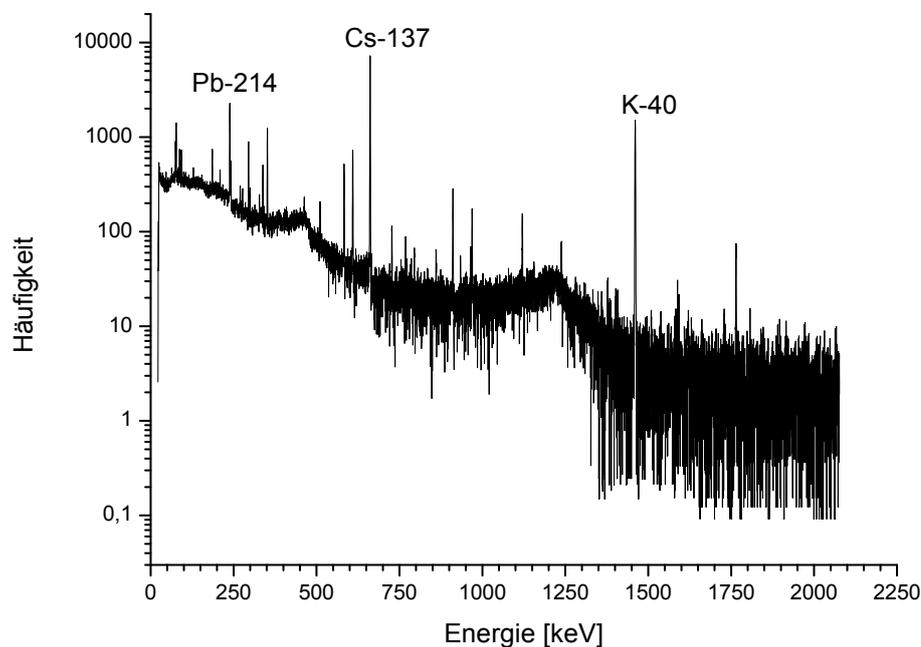


Abbildung 4.1: Darstellung des Spektrums für die 2-4 cm Schicht.

Abbildung 4.2 zeigt eine Vergrößerung der Cs-137 Linie, die deutlich aus dem Untergrund hervorgehoben ist.

Abbildungen der anderen Spektren finden sich in Anhang A.

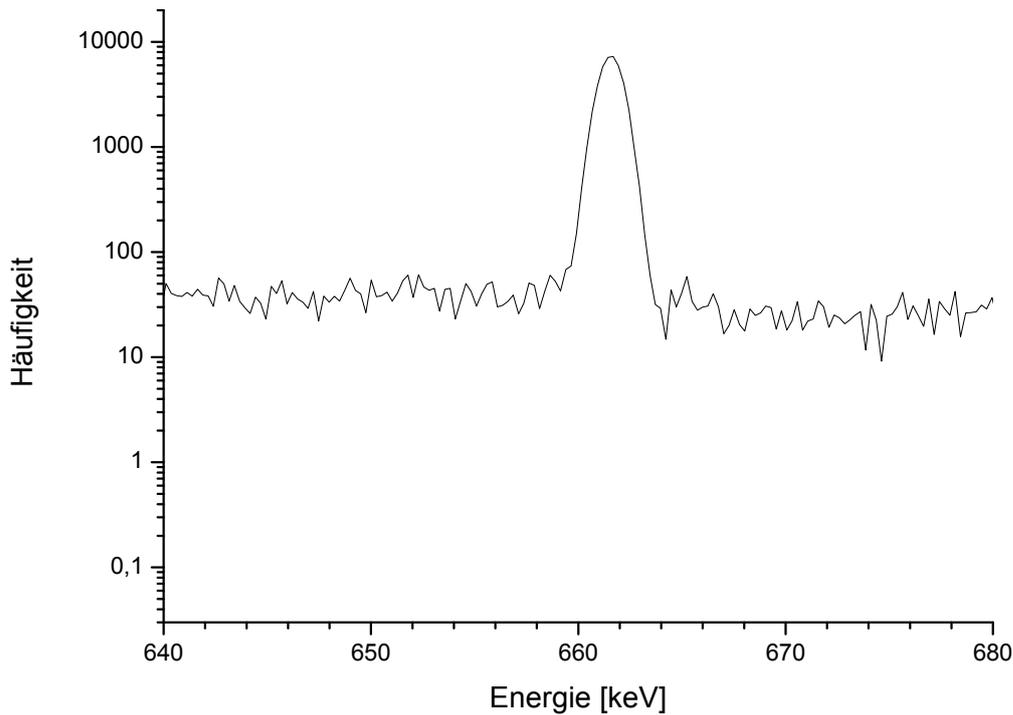


Abbildung 4.2: Vergrößerung der Cs-137 Linie bei 661,7 keV im Spektrum der 2-4 cm Schicht.

4.2 Hintergrund

Um nur die Signale der Probe selbst zu analysieren, muss zunächst der natürliche Untergrund im Detektor berücksichtigt werden. Dazu wurde dieser im Detektor über fünf Tage hinweg gemessen. Im Weiteren bezeichnet $N = \sum_i n_i$ die Anzahl von gemessenen Ereignissen in einem bestimmten Bereich und n_i die Ereignisse in einem Kanal i . Der Untergrund wurde zunächst für die jeweilige Probenmesszeit angepasst:

$$n_{\text{Untergrund}} = n_{\text{Untergrund, unkorrigiert}} \cdot \frac{t_{\text{Probe}}}{t_{\text{Untergrund}}} \quad (4.1)$$

Dabei bezeichnet $n_{\text{Untergrund, unkorrigiert}}$ die originale Untergrundmessung, t_{Probe} die Messzeit der jeweiligen Probe und $t_{\text{Untergrund}}$ die Messdauer für den Untergrund. Anschließend wurden die Ereignisse des Untergrunds von den Messdaten der Proben abgezogen:

$$n = n_{\text{Probe}} - n_{\text{Untergrund}} \quad (4.2)$$

4.3 Aktivität

Die Aktivität A einer radioaktiven Probe gibt die Anzahl der Kernzerfälle pro Zeiteinheit an und ist proportional zu der Anzahl der Atome des radioaktiven Elements, wie im Zerfallsgesetz beschrieben (Gilmore, 2008, S. 15f):

$$A = -\frac{dN_a}{dt} = \lambda \cdot N_a \quad (4.3)$$

λ ist die Zerfallskonstante des jeweiligen Nuklids und N_a die Zahl der vorhandenen Atome. λ hängt dabei von der Halbwertszeit $T_{1/2}$ ab. Die Aktivität wird in Becquerel (1 Bq = 1 Zerfall/s) angegeben. Gemessen wurde die auf die Masse normierte Aktivität $A_{mass} = A \cdot m^{-1}$ in $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$, um einen Vergleich zu erleichtern.

Zur Anwendung des Konvektions-Dispersions-Modells wird jedoch im Weiteren die spezifische Aktivität A_{spez} verwendet, die in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2}$ angegeben wird und damit als Anfangskonzentration C_{0i} verwendet werden kann. Mit einer Normierung auf $d = 1 \text{ cm}$ und mit der Probendichte ρ ergibt sich eine Normierung mit der Fläche Ω :

$$A_{spez} = \frac{A\rho d}{m} = \frac{A\rho d}{\rho V} = \frac{A}{\Omega} \quad (4.4)$$

Da die Anzahl der Atome nicht bekannt ist, muss die Aktivität über die Daten aus der Gamma-spektroskopie ermittelt werden. Dazu werden die Ereignisse in einer bestimmten Gammalinie gezählt. Dafür werden zunächst die untere Grenze U und die obere Grenze V des Übergangs bestimmt, die k Kanäle enthalten, und anschließend die Ereignisse n_i zu N_{tot} aufsummiert. Da der Übergang zum Teil in dem ihn umgebenden Kontinuum verborgen sein kann, werden die Ereignisse in den k Kanälen links und rechts der Linie abgezogen (Gilmore, 2008, S. 109ff). Das Kontinuum entsteht hauptsächlich durch Sekundäreffekte im Detektor, insbesondere durch Comptonstreuung. Es ergibt sich dann die Anzahl der Ereignisse in einer Gammalinie zu:

$$N = N_{tot} - N_{kon} \quad (4.5)$$

Mit

$$N_{tot} = \sum_{i=U}^V n_i \quad \text{und} \quad N_{kon} = \frac{\left(\sum_{i=U-l}^{U-1} n_i + \sum_{i=V+1}^{V+l} n_i \right)}{k} \quad (4.6)$$

Mit dem Mittelwert \bar{n}_i des jeweiligen Intervalls ergibt sich die Standardabweichung zu:

$$s_N = \sqrt{s_{N_{tot}}^2 + s_{N_{kon}}^2} = \sqrt{\frac{\sum_{i=U}^V (n_i - \bar{n}_i)^2}{i} + \frac{\sum_{i=U-l}^{U-1} (n_i - \bar{n}_i)^2 + \sum_{i=V+1}^{V+l} (n_i - \bar{n}_i)^2}{ki}} \quad (4.7)$$

Mit der Messzeit t , der Effizienz ϵ für die jeweilige Energie, der Wahrscheinlichkeit f , dass ein γ -Photon von der Probe ausgesandt wird, und der Fläche Ω , um die Aktivität in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2}$ anzugeben, ergibt sich nun die Zählrate Z wie folgt:

$$Z = \frac{N}{t \cdot f \cdot \epsilon \cdot \Omega} \quad (4.8)$$

Die Zählrate ergibt sich als Produkt aus Aktivität und Effizienz: $Z = A \cdot \epsilon$. Die Standardabweichung wird durch die statistischen Fehler der Anzahl der Ereignisse sowie der Detektoreffizienz dominiert und ergibt sich zu:

$$s_Z = \sqrt{\left(\frac{s_N}{t_H f \epsilon_H \Omega}\right)^2 + \left(\frac{N}{t_H f \epsilon_H^2 \Omega} \cdot s_{\epsilon_H}\right)^2} \quad (4.9)$$

Alle Aktivitäten wurden auf den Tag der Probenahme (22.09.2014) zurückgerechnet.

4.4 Kalibrierung

4.4.1 Energiekalibrierung

Um die Kanäle K den richtigen Energien E zuzuordnen, wurde eine Drei-Punkt-Energiekalibrierung vorgenommen. Dabei wurden die 238,4 keV Linie von Pb-214, die 661,7 keV Linie von Cs-137 und die 1460,8 keV Linie von K-40 verwendet. Alle drei Elemente sind in den Proben vorhanden und deren Energien wohl bekannt. Die Kalibrierung wurde für jede Probe einzeln vorgenommen und ergibt sich mittels Regression nach:

$$E = a + b \cdot K + c^2 \cdot K \quad (4.10)$$

4.4.2 Effizienzkalibrierung

Es werden nicht alle γ -Strahlen im Detektor registriert, sondern viele durchfliegen diesen auf Grund ihrer hohen Energie undetektiert. Die Nachweiswahrscheinlichkeit der γ -Quanten ist dabei abhängig von deren Energie. Daher muss eine Effizienzkalibrierung vorgenommen werden,

um anschließend von der Anzahl der Ereignisse auf die vorhandene Aktivität zu schließen. Die Effizienz ϵ verbindet den Linienbereich mit der Anzahl der von der Quelle ausgesandten γ -Strahlen. Bei bekannter Zählrate lässt sich die Effizienz über Formel 4.8 berechnen (Gilmore, 2008, S. 120):

$$\epsilon = \frac{N}{t \cdot f \cdot Z \cdot \Omega} \quad (4.11)$$

Da jedoch unbekannte Proben auf deren Aktivitäten hin untersucht werden sollen, muss die Effizienz alternativ berechnet werden. Für diese Arbeit wurden zwei verschiedene Geometrien, deren Effizienzen bekannt sind, zunächst an einem Detektor in Bremen analysiert. Um die Effizienz nach Hamburg zu übertragen, wurden dieselben Proben innerhalb weniger Tage in Hamburg erneut vermessen. Die Aktivität in den Proben kann daher als identisch angenommen werden und Gleichung 4.8 lässt sich umstellen zu:

$$\epsilon_H = \frac{N_H}{t_H \cdot f \cdot Z_B \cdot \Omega} \quad (4.12)$$

Der Index H steht hierbei - und im Folgenden - für eine Messgröße des Detektors an der Universität Hamburg und B für eine Messgröße aus der Landesmessstelle für Radioaktivität in Bremen. Dabei wird die Unsicherheit der Effizienz durch die Unsicherheit von N_H und Z_B dominiert. Mittels Gaußscher Fehlerfortpflanzung ergibt sich die Standardabweichung für die Effizienz zu:

$$s_{\epsilon_H} = \sqrt{\left(\frac{s_{N_H}}{t_H f Z_B}\right)^2 + \left(\frac{N_H}{t_H f Z_B^2} \cdot s_{Z_B}\right)^2} \quad (4.13)$$

Bei den verwendeten Geometrien handelt es sich zum einen um eine zylinderförmige Plastikflasche und zum anderen um einen so genannten Marinelli-Becher. Ein solcher Becher, siehe Abbildung 4.3, wird auf den Detektor gesetzt und umschließt diesen, so dass der Detektor möglichst gleichmäßig bestrahlt wird. Der verwendete Becher ist auf 0,5 l normiert und wurde dementsprechend befüllt. Um Proben zu untersuchen, deren Material nicht zur Befüllung des Bechers ausreicht, wurde die Plastikflasche auf eine Höhe von 3 cm befüllt. Wie oben beschrieben wurden die Effizienzen für beide Geometrien bestimmt und für die Auswertung in Hamburg verwendet.

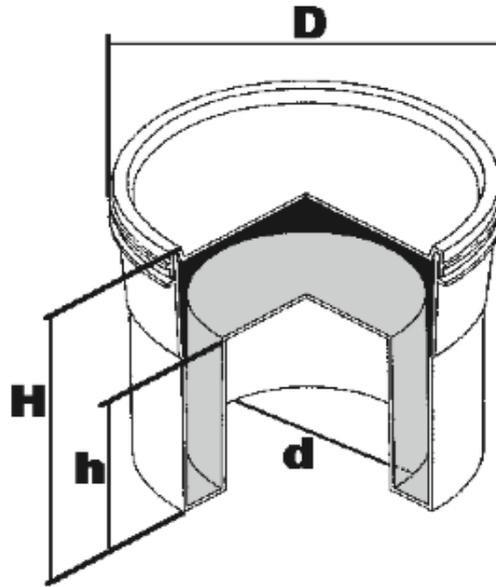


Abbildung 4.3: Schematische Darstellung eines 0,5 l Marinelli-Behlers (Gammaspectacular, 2016).

4.5 Modellanpassung

Um das Konvektions-Dispersions-Modell an die Messdaten anzupassen, werden u und D als Parameter verwendet. Die Berechnung erfolgt mit dem Statistikprogramm R, das verwendete Skript befindet sich im Anhang C. Für die nicht-lineare Regression wurde der Gauß-Newton-Algorithmus verwendet, vergleiche Draper und Smith (1967, Kap. 1 und 10). Um die Güte der Anpassung zu bestimmen, wird die Methode der kleinsten Quadrate für nicht-lineare Modelle angewandt und die Quadratsumme der Residuen (RSS) als Abweichung der Modellkurve von den Daten angegeben. Die Parameter werden bei der Anpassung so lange variiert, bis der RSS-Wert möglichst gering ist. Die Quadratsumme ergibt sich dabei aus dem Wert y_i der gemessenen Variablen, x_i dem Wert der unabhängigen Variablen und $f(x_i)$ der vom Modell vorhergesagte Wert:

$$\text{RSS} = \sum_{i=1}^n (y_i - f(x_i))^2 \quad (4.14)$$

5 Ergebnisse

Grafik 5.1 zeigt den Verlauf der gesamten Aktivitätsverteilung im Bodenprofil. Es wird deutlich, dass die Aktivitäten mit der Tiefe abnehmen, also ein Transport der Anfangsaktivität in die tieferen Schichten stattgefunden hat. Es ist aber überraschend, dass der Großteil des Cs-137 noch immer in den höheren Schichten verblieben ist.

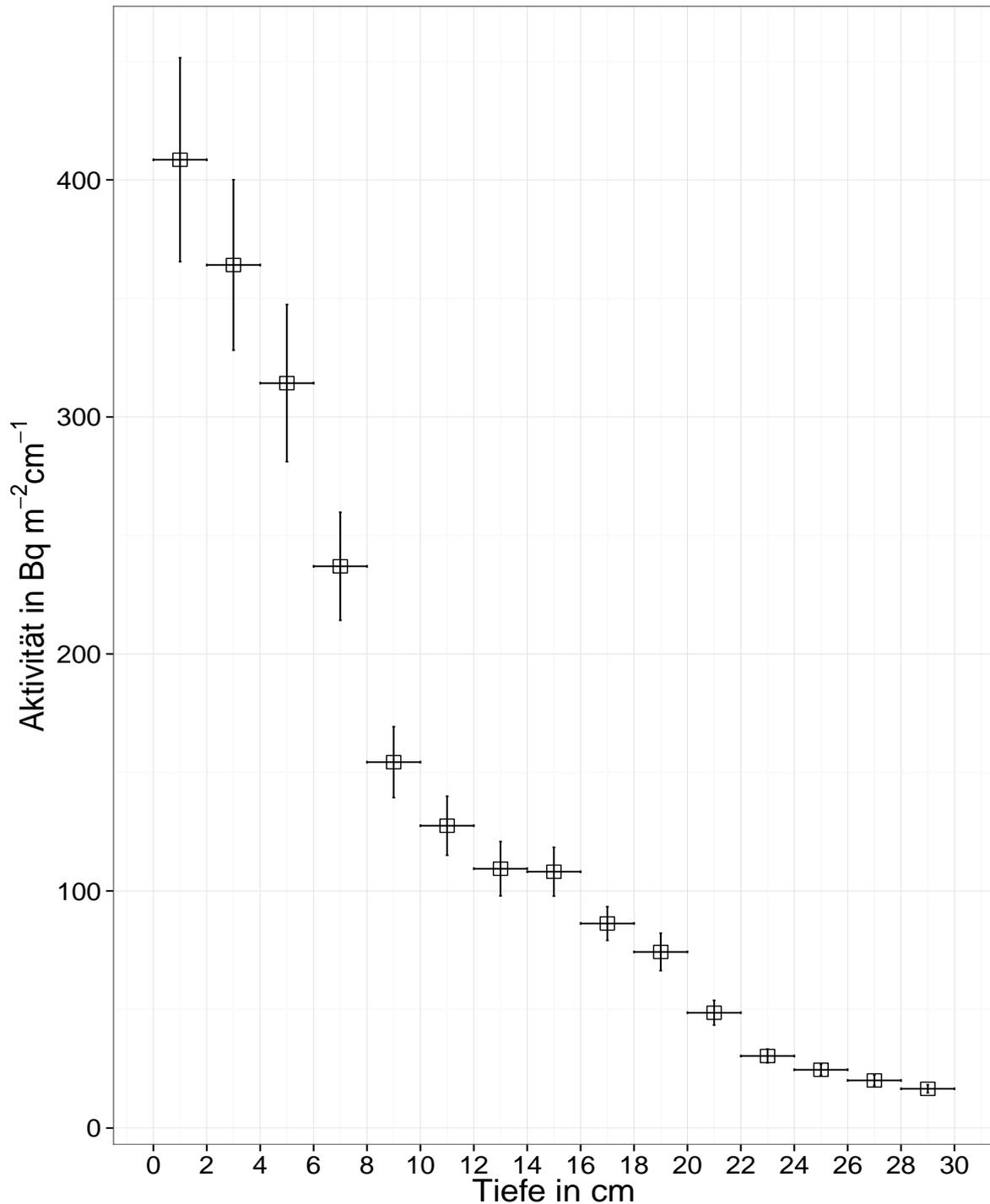


Abbildung 5.1: Verteilung der Gesamtaktivität von Cs-137 über fünfzehn 2 cm Schichten hinweg. Die horizontalen Balken geben die Dicke der einzelnen Schichten an, die vertikalen Balken die Standardabweichung resultierend aus Kalibrierung und Zählstatistik.

Im Vorfeld der Untersuchung ist davon ausgegangen worden, dass sich das Maximum der Cäsium-Verteilung in tiefere Schichten verschoben hat. Die gemessene Verteilung spricht für eine geringe Mobilität der Cs-137 Isotope. Die Daten zur Erstellung der Grafiken finden sich in Anhang B.

Die zwei Hauptquellen der Aktivität waren das Tschernobyl-Unglück 1986 und der Fallout von Atomwaffentests, der 1964 seinen Höhepunkt hatte. Mittels Daten von Kirchner (1998) konnte zwischen der Aktivität beider Quellen unterschieden werden. In den 1992 untersuchten Daten war noch genügend Cs-134 vorhanden, um über das Cs-134:Cs-137 Verhältnis zu bestimmen, welcher Anteil der Aktivität dem Reaktorunfall zuzuordnen war.

In einem ersten Ansatz wurde das so ermittelte Verhältnis (60,16 % Tschernobyl und 39,84% Waffenfallout am 01.11.1992) angewandt, indem die gemessene Gesamtaktivität auf 1992 hochgerechnet und aufgeteilt wurde. Die entsprechenden Anteile wurden dann auf die Höhepunkte der Einlagerungen von Tschernobyl (01.05.1986) und des Kernwaffenfallouts (01.01.1964) zurückgerechnet, um als Anfangskonzentration C_0 verwendet zu werden.

Mit diesen Daten wurde das Konvektions-Dispersions-Modell an die Messdaten angepasst. Die erhaltenen Parameter finden sich in Tabelle 5.1. Abbildung 5.2 zeigt die Gesamtaktivität 2014 sowie das daran angepasste Modell. Zusätzlich eingetragen sind die vom angepassten Modell vorhergesagten Aktivitäten aus Tschernobyl- und aus Waffenfallout-Rückständen.

Tabelle 5.1: Ergebnisse der Anpassung an die Gesamtaktivität für Cs-137

	D (cm ² y ⁻¹)	u (cm y ⁻¹)	RSS
Cs-137	0,20 ± 0,04	0,10 ± 0,01	59688
Cs-137 (Tschernobyl, 1992)	0,59 ± 0,19	0,12 ± 0,08	20552
Cs-137 (Waffen, 1992)	0,99 ± 0,29	0,73 ± 0,04	16716

Das Ergebnis für die Fließgeschwindigkeit u mit $0,10 \pm 0,01$ cm y⁻¹ macht deutlich, dass die Radionuklide nur langsam in tiefere Schichten transportiert werden. Der Dispersions-Koeffizient D liegt mit $0,20 \pm 0,04$ cm² y⁻¹ im Vergleich zu den Ergebnissen von Kirchner (1998) niedriger.

Aus einem Vergleich der vorhergesagten Werte mit den Daten von Kirchner (1998) wird klar, dass der Waffenanteil mit dem Modell nicht bestimmt werden konnte. Abbildungen 5.3 und 5.4 zeigen die Daten von Kirchner (1998) für Waffenfallout und Tschernobylunglück. Grafik 5.3 macht deutlich, dass bereits bei der Messung von 1992 der Cs-137 Anteil des Waffenfallouts in einer Tiefe von 22 cm sein Maximum hat. In heutigen Messungen sollten die Rückstände daher in noch tiefere Schichten transportiert und die Verteilung verbreitert worden sein. Diese tieferen Schichten wurden allerdings nicht untersucht. Da die vom Modell angenommenen Aktivitäten für den Waffenfallout in höheren Schichten im Tschernobylanteil fehlen, sind auch dessen vorhergesagten Werte nicht korrekt. Die in Abbildung 5.2 abgebildeten Daten für die einzelnen Quellen sind daher nicht als die tatsächliche Verteilung zu verstehen.

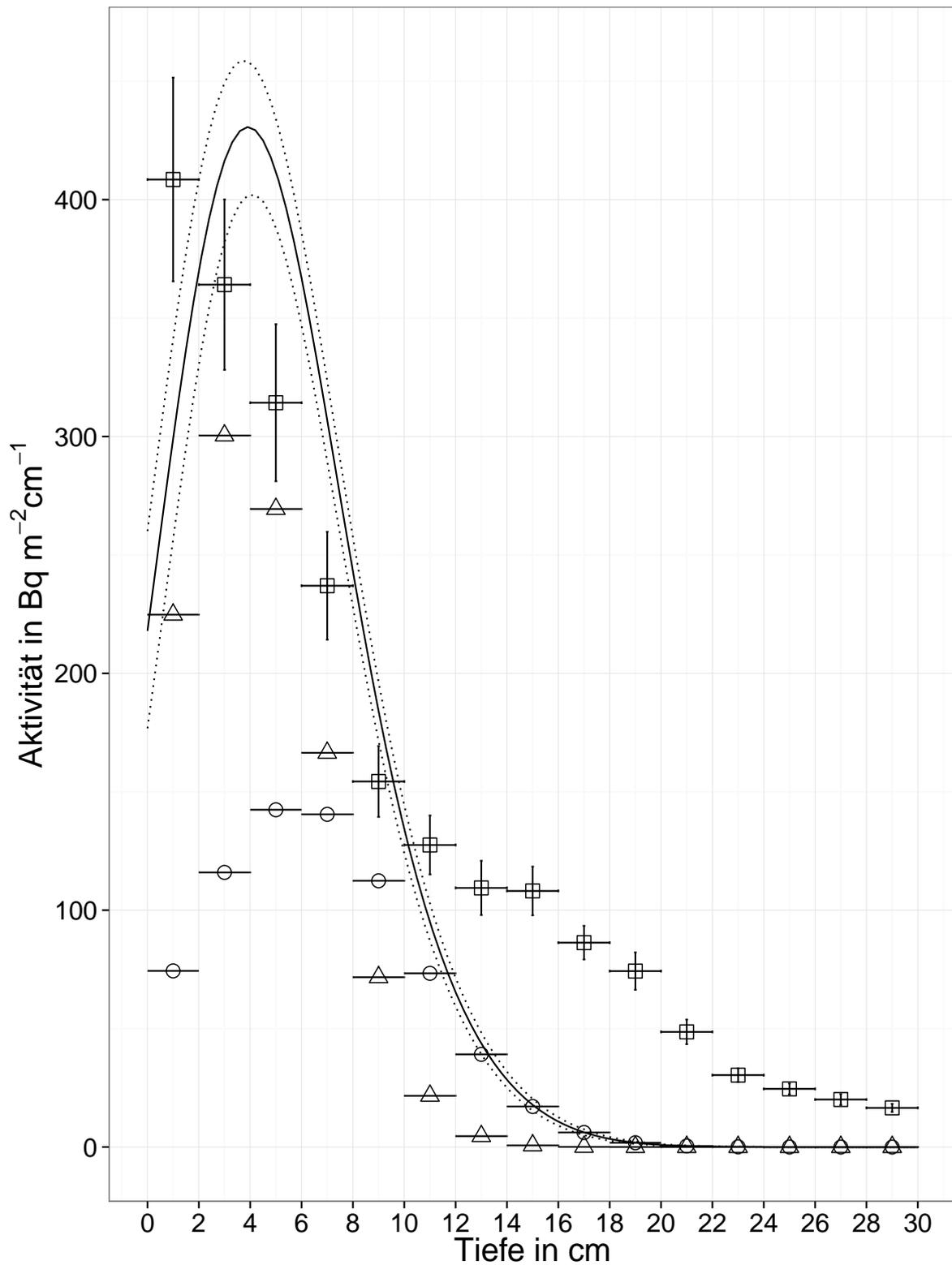


Abbildung 5.2: Verteilung der Gesamtaktivität (Vierecke), sowie Aufteilung der vorhergesagten Aktivitäten für Tschernobyl (Dreiecke) und Waffenfallout (Kreise). Die eingezeichnete Linie beschreibt das angepasste Modell mit 95%-Konfidenzintervall. Fehlerbalken wie in Abbildung 5.1.

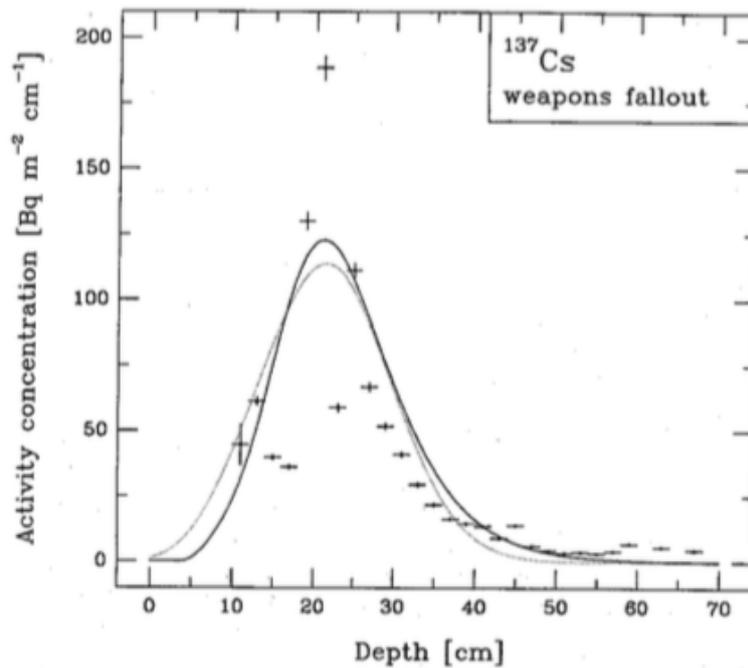


Abbildung 5.3: Gezeigt wird die Anpassung des Konvektions-Dispersions- (gepunktete Linie), sowie des Konvektions-Stochastik-Modells (durchgezogene Linie) an die Aktivitäten aus dem Waffenfallout, wie von Kirchner (1998, S.82) 1992 gemessen. Die Horizontalen Balken geben die Dicke der einzelnen Schichten an, die vertikalen Balken die Standardabweichung, resultierend aus Kalibrierung, Zählstatistik und Trennung der Cäsium-Anteile nach Waffen- und Tschernobylfallout.

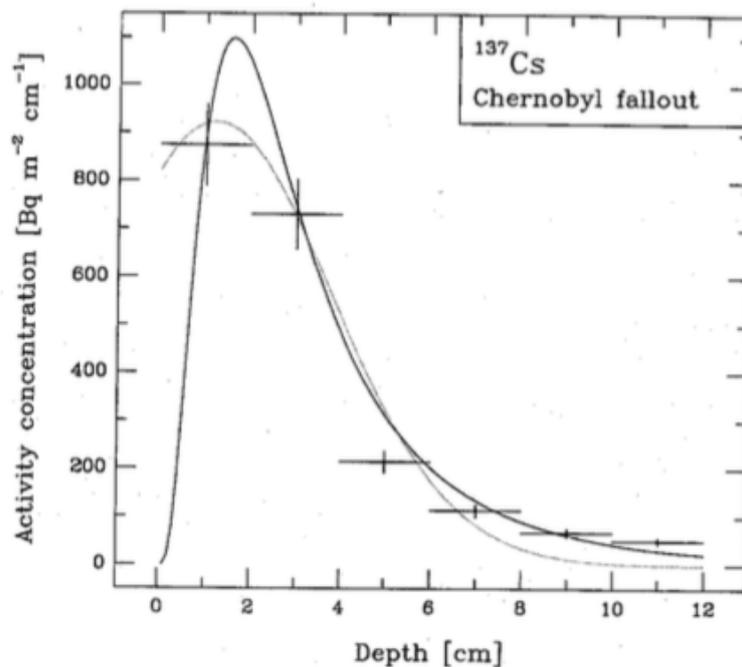


Abbildung 5.4: Gezeigt wird die Anpassung des Konvektions-Dispersions- (gepunktete Linie), sowie des Konvektions-Stochastik-Modells (durchgezogene Linie) an die Aktivitäten aus dem Tschernobylfallout, wie von Kirchner (1998, S.82) 1992 gemessen. Fehlerbalken wie in 5.3.

Um die tatsächliche Verteilung für Cäsium aus Tschernobyl und aus Kernwaffentests zu erhalten, wurde in einem zweiten Ansatz mit den Daten von Kirchner (1998) und dem Modell die heutige vermutete Aktivität aus Waffentests vorhergesagt und von der Gesamtaktivität abgezogen. Kirchner (1998) fand für den Transport von Cs-137 aus Waffentests die Parameter $D = 0,99 \pm 0,29 \text{ cm}^2 \text{ y}^{-1}$ und $u = 0,73 \pm 0,04 \text{ cm y}^{-1}$ und eine Anfangsaktivität für den Waffenfallout von $5231,20 \text{ Bq/m}^{-2}\text{cm}^{-1}$. Der Rest wurde als aus Tschernobyl stammend angenommen und das Modell an diese Werte angepasst. Die vorhergesagte Waffenaktivität ist in Abbildung 5.5 dargestellt. Die Verteilung ist in die tieferen Bereiche verschoben, die nicht mehr vermessen wurden. Eine weitere Messung der tieferen Bereiche wäre daher notwendig.

Tabelle 5.2: Ergebnisse der Anpassung an die Tschernobylaktivität und Vergleich mit den Daten von Kirchner (1998)

	$D \text{ (cm}^2 \text{ y}^{-1}\text{)}$	$u \text{ (cm y}^{-1}\text{)}$	RSS
Cs-137 (Tschernobyl, 2014)	$0,54 \pm 0,09$	$0,09 \pm 0,01$	24971
Cs-137 (Tschernobyl, 1992)	$0,59 \pm 0,19$	$0,12 \pm 0,08$	20552

Abbildung 5.6 zeigt die für Tschernobyl angenommenen Aktivitäten, die bis auf die unteren Schichten mit den gemessenen Aktivitäten praktisch identisch sind. An diese Daten wurde das Modell erneut angepasst, wobei die Parameter mit denen aus der Untersuchung von Kirchner (1998) übereinstimmten, wie in Tabelle 5.2 dargestellt. Dies bestätigt die Annahme, dass die gemessenen Aktivitäten aus Tschernobyl stammen, und bestätigt gleichzeitig die Anwendung des Modells durch Kirchner (1998). Im Vergleich zu Kirchner (1998) scheinen die Daten in tieferen Schichten noch deutlicher unterschätzt zu werden. Es erscheint so, als wäre ein Teil der Aktivität in eine Tiefe von 14 - 18 cm transportiert worden, während ein anderer Teil an der Oberfläche verblieben ist. Dies könnte gegebenenfalls auf verschiedene Bindungen von Cs-137 und deren Mobilität in Sandböden hinweisen. Eine Aussage über verschiedene Transportmechanismen lässt sich aber ohne eine genauere Untersuchung insbesondere auch der tieferen Schichten nicht treffen.

Bei allen Modellanpassungen wird deutlich, dass das Modell die Verteilung in tieferen Schichten unterschätzt. Außerdem ist es schwierig mit dem Modell Verteilungen vorherzusagen, die aus verschiedenen nicht mehr unterscheidbaren Quellen stammen. In solchen Fällen ist Vorwissen nötig, um die einzelnen Verteilungen voneinander zu trennen.

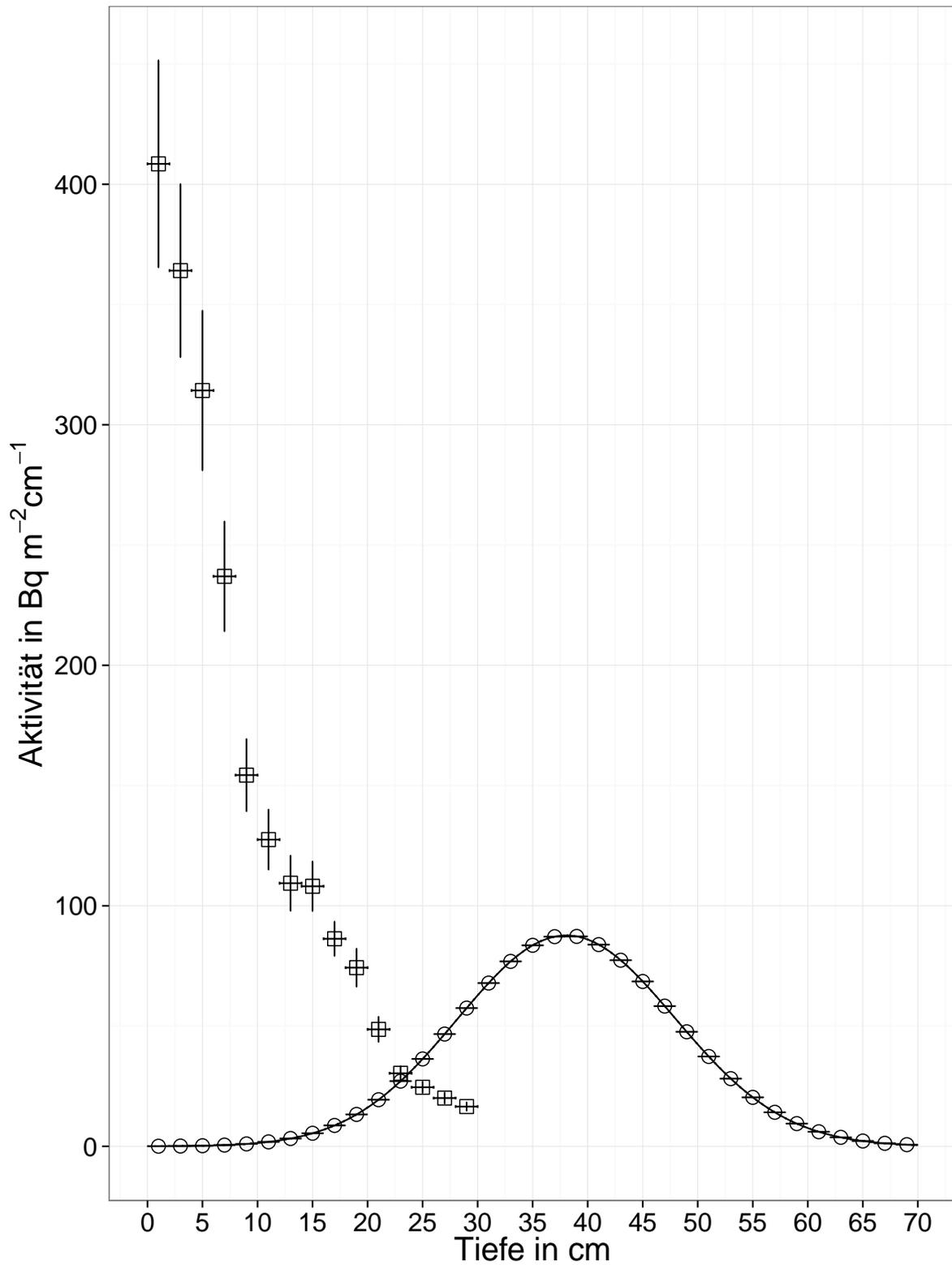


Abbildung 5.5: Verteilung der gemessenen Gesamtaktivität (Vierecke) sowie der Aktivitäten aus dem Waffenfallout (Kreise), der mit den Daten von Kirchner (1998) bis zu einer Tiefe von 70 cm vorhergesagt wurden. Das Maximum der Waffenfalloutrückstände liegt im nicht mehr vermessenen Bereich. Fehlerbalken wie in Abbildung 5.1.

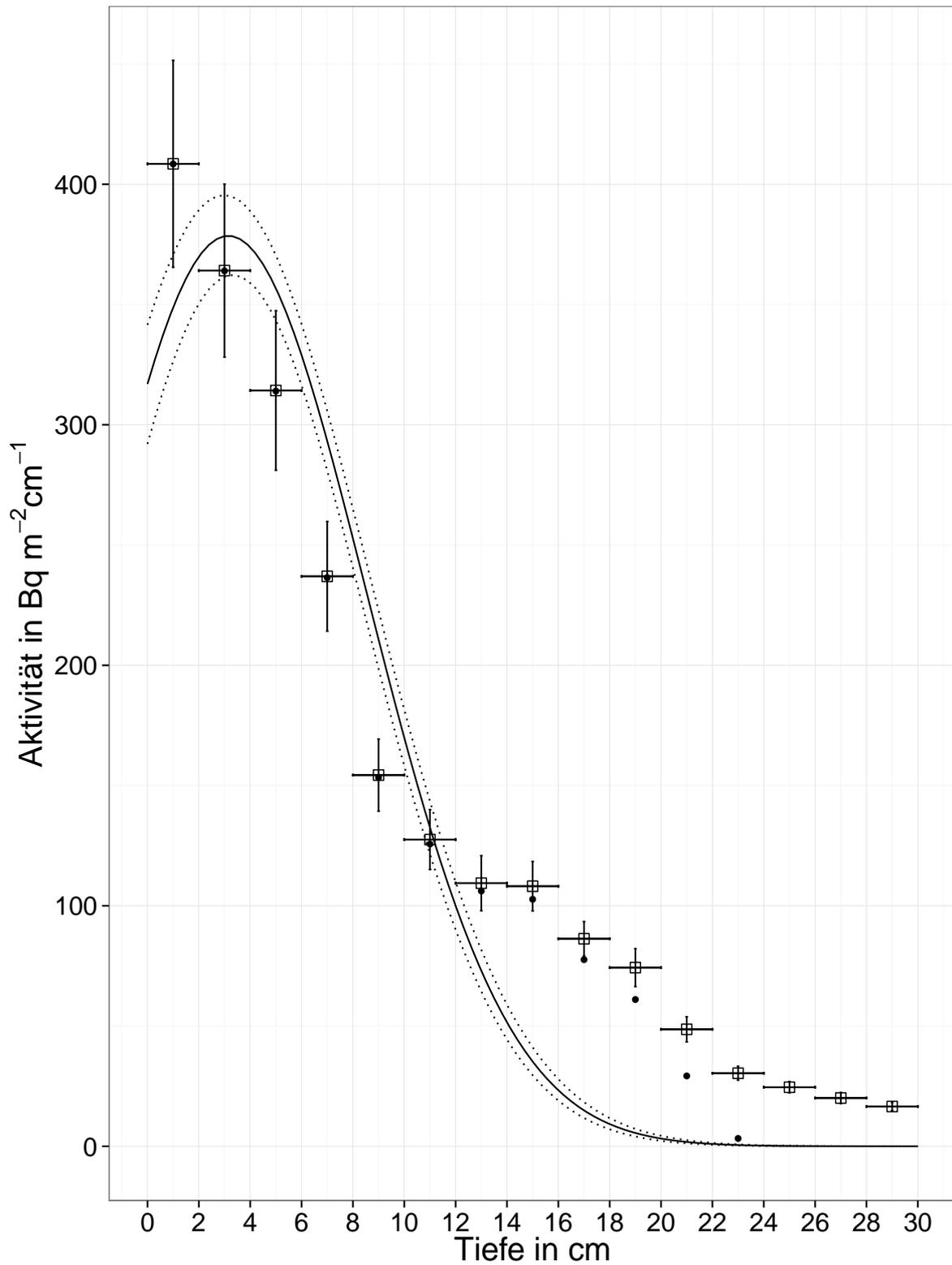


Abbildung 5.6: Verteilung der Gesamtaktivität (Vierecke) sowie der Aktivität aus Tschernobyl (Punkte), für welche die mit den Daten von Kirchner (1998) errechnete Waffenaktivität von der Gesamtaktivität abgezogen wurde. Die eingezeichnete Linie beschreibt das angepasste Modell an die Tschernobyl-Werte mit 95%-Konfidenzintervall. Fehlerbalken wie in Abbildung 5.1.

6 Zusammenfassung und Ausblick

Die Methode der Gammaskopie hat sich als gut geeignet erwiesen, um Cs-137 Aktivitäten in Bodenprofilen zu messen. Deren Möglichkeit nicht nur zwischen Elementen, sondern auch zwischen Isotopen unterscheiden zu können, ist für eine solche Untersuchung entscheidend. Mittels eines Gammadetektors an der Universität Hamburg konnten fünfzehn 2 cm Schichten analysiert werden.

Überraschenderweise wurde bei der Untersuchung festgestellt, dass der Großteil der gemessenen Cs-137 Aktivität nach einer Halbwertszeit fast noch komplett an der Oberfläche verbleibt. Erwartet worden war eine Verschiebung des Aktivitätsmaximums in tiefere Schichten, wie es zum Beispiel in den Daten zum Waffenfallout von Kirchner (1998) zu sehen ist. Sollten sich die geringen Fließgeschwindigkeiten in zukünftigen Untersuchungen bestätigen, kann davon ausgegangen werden, dass Cs-137 deutlich länger eine Gefahr an der Oberfläche darstellt. Je nach Initialaktivität sollte die Cs-137 Aktivität beim Erreichen des Grundwasserspiegels jedoch niedrig genug sein, um dort keine Gefahr mehr darzustellen.

Das Konvektions-Dispersions-Modell wurde herangezogen, um die Aktivitätsverteilung im Boden zu modellieren. In einem ersten Ansatz wurde klar, dass es heute nicht mehr möglich ist zwischen zwei verschiedenen Quellen von Cs-137 zu unterscheiden. Vorwissen in Form der Arbeit von Kirchner (1998) war nötig, um zwischen Tschernobyl- und Waffenfallout zu unterscheiden. Bei dieser Untersuchung fiel auf, dass insbesondere der Waffenfallout vom Modell in zu hohen Schichten verortet wurde. In einem Nachfolgeprojekt sollten auch tiefere Schichten untersucht werden, um das Maximum der Cs-137 Rückstände aus dem Waffenfallout zu detektieren.

Mittels der Originaldaten von Kirchner (1998) wurde in einem zweiten Ansatz die heute erwarteten Werte für den Waffenfallout bestimmt. Dabei wurde festgestellt, dass dessen Maximum in tieferen Schichten (ca. 38 cm) vermutet werden kann. Die in dieser Arbeit vermessenen Schichten enthalten daher fast ausschließlich Cs-137 aus dem Tschernobylunglück. Eine erneute Anpassung an die Tschernobylrückstände konnte die Werte von Kirchner (1998) bestätigen.

Die Modellanpassungen unterschätzten die Aktivität in den tieferen Schichten, dies scheint die Ergebnisse in Kirchner (1998) zu bestätigen. Bei weiteren Untersuchungen würde es sich anbieten, auch tiefere Schichten zu vermessen, um die Verteilung des Waffenfallouts zu untersuchen. Außerdem könnten statt des Konvektions-Dispersions-Modell weitere Modelle zur Vorhersage herangezogen werden. Kirchner (1998) hat bereits das Konvektions-Stochastik-Modell vorgestellt, das besser als das Konvektions-Dispersions-Modell abschneidet.

Literatur

- Bethge, Klaus; Gertrud Walter und Bernhard Wiedemann (2008): *Kernphysik - Eine Einführung*. Springer, Berlin, 3. Aufl.
- Bossew, Peter und Gerald Kirchner (2004): Modelling the vertical distribution of radionuclides in soil. Part 1: the convection-dispersion equation revisited. *Journal of Environmental Radioactivity*, 73:127–150.
- Bundesamt für Strahlenschutz (2016a): Nukleare Unfälle: Tschernobyl. http://www.bfs.de/DE/themen/kt/unfaelle/tschernobyl/tschernobyl_node.html (Zuletzt abgerufen am 29.01.2016).
- Bundesamt für Strahlenschutz (2016b): Radioaktivität und Strahlung. http://www.bfs.de/Konrad/DE/themen/abfaelle/radioaktivitaet-strahlung/radioaktivitaet-strahlung_node.html (Zuletzt abgerufen am 29.01.2016).
- Centers for Disease Control and Prevention (2016): Radioisotope Brief: Cesium-137 (Cs-137). <http://emergency.cdc.gov/radiation/isotopes/cesium.asp> (Zuletzt abgerufen am 19.01.2016).
- Draper, Norman und Harry Smith (1967): *Applied Regression Analysis*. John Wiley & Sons, New York.
- Gammaspectacular (2016): Marinellibecher. <http://www.gammaspectacular.com/image/data/gsm-15-dim.png> (Zuletzt abgerufen am 14.01.2016).
- Gilmore, Gordon (2008): *Practical Gamma-ray Spectrometry*. John Wiley & Sons, Chichester, 2. Aufl.
- Gross, Rudolf und Achim Marx (2012): *Festkörperphysik*. Oldenbourg Verlag, München.
- Hillel, Daniel (2004): *Introduction to Environmental Soil Physics*. Elsevier Academic Press, Amsterdam.
- Hünninger, Dirk (2006): Caesium-137 Decay Scheme. https://commons.wikimedia.org/wiki/File:Caesium-137_Decay_Scheme-de.svg (Zuletzt abgerufen am 28.01.2016).
- Kirchner, Gerald (1998): Modeling the migration of fallout radionuclides in soil using a transfer function model. *Health Physics*, 74(1):78–85.
- Nölleke, Christian (2006): Pair Production. https://commons.wikimedia.org/wiki/File:Pair_Production.png (Zuletzt abgerufen am 28.01.2016).

- Nuclear Energy Agency (2002): *Chernobyl - Assessment of Radiological and Health Impacts*. Organisation for Economic Co-operation and Development, Paris. <https://www.oecd-nea.org/rp/reports/2003/nea3508-chernobyl.pdf> (Abgerufen am 28.01.2016).
- Timm, Jan (Januar 2014): Anleitung zum Versuch Gammaskopie mit einem HPGe-Detektor im Fortgeschrittenenpraktikum an der Universität Hamburg.
- Wikimedia Commons (2006): Compton scattering. https://commons.wikimedia.org/wiki/File:Compton_scattering-de.svg (Zuletzt abgerufen am 28.01.2016).
- Wikimedia Commons (2008): Bändermodell. <https://commons.wikimedia.org/wiki/File:B%C3%A4ndermodell.svg> (Zuletzt abgerufen am 28.01.2016).
- Wikimedia Commons (2009a): Atom model for Auger process. https://commons.wikimedia.org/wiki/File:Atom_model_for_Auger_process_DE.svg (Zuletzt abgerufen am 28.01.2016).
- Wikimedia Commons (2009b): Kernspaltung. <https://commons.wikimedia.org/wiki/File:Kernspaltung.svg> (Zuletzt abgerufen am 28.01.2016).
- Wikimedia Commons (2010): Isotopentabelle Segre. https://commons.wikimedia.org/wiki/File:Isotopentabelle_Segre.svg (Zuletzt abgerufen am 28.01.2016).
- Winter, Helmut (2011): Absorption von Strahlung. *Vorlesung: Einführung in die Quantenphysik, Sommersemester 2011 an der Humboldt-Universität zu Berlin*. <http://pgd5.physik.hu-berlin.de/bilder/absorption.jpg> (Zuletzt abgerufen am 15.02.2016).

A Aufgenommene Spektren

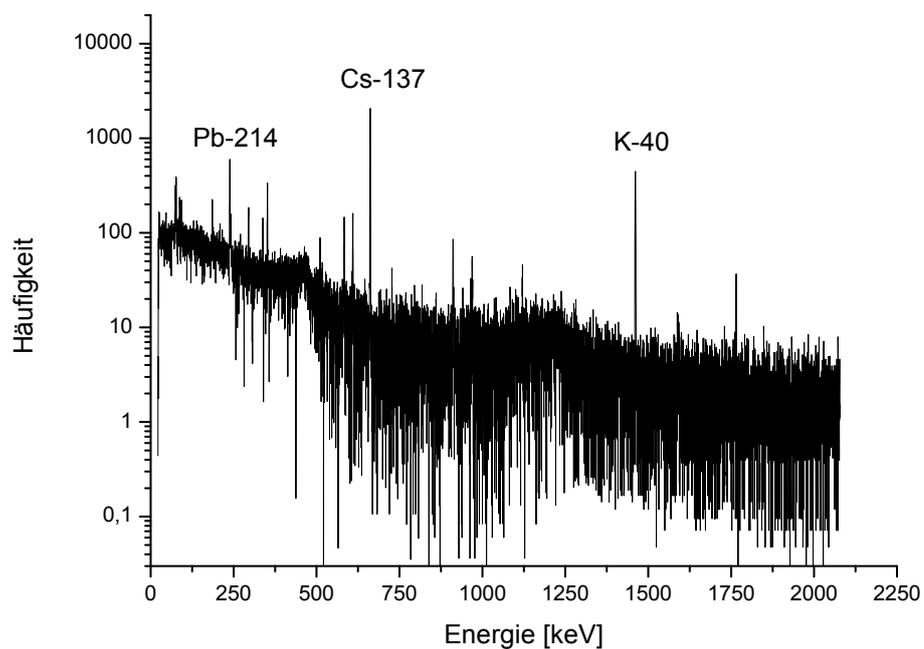


Abbildung A.1: Spektrum der 0-2 cm Schicht

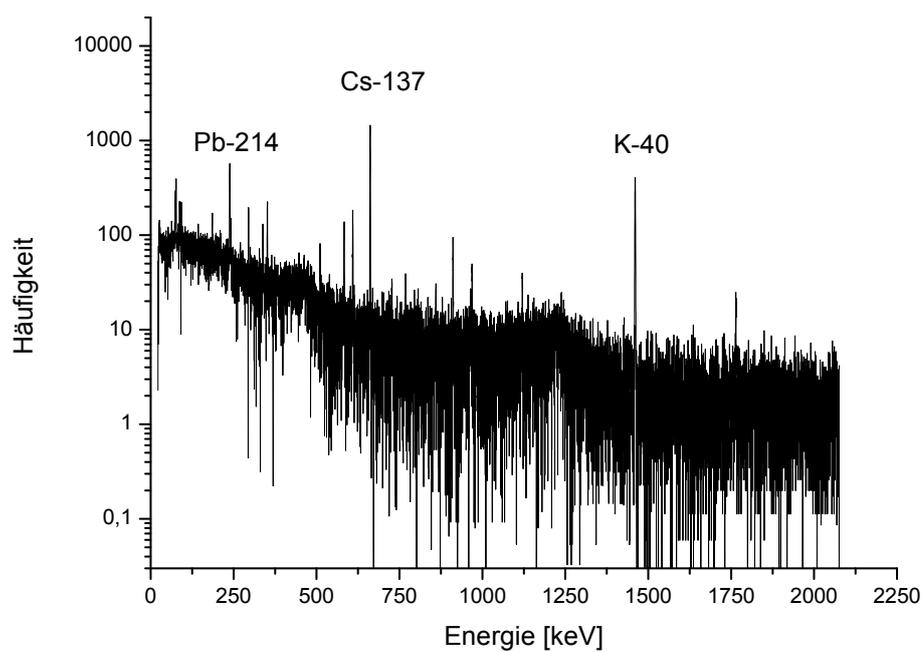


Abbildung A.2: Spektrum der 4-6 cm Schicht

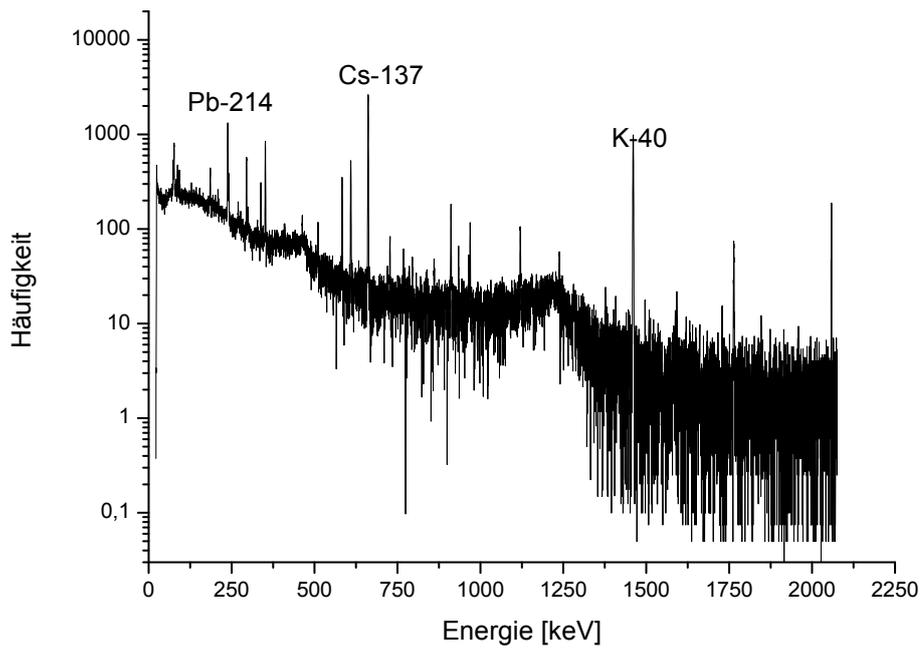


Abbildung A.3: Spektrum der 6-8 cm Schicht

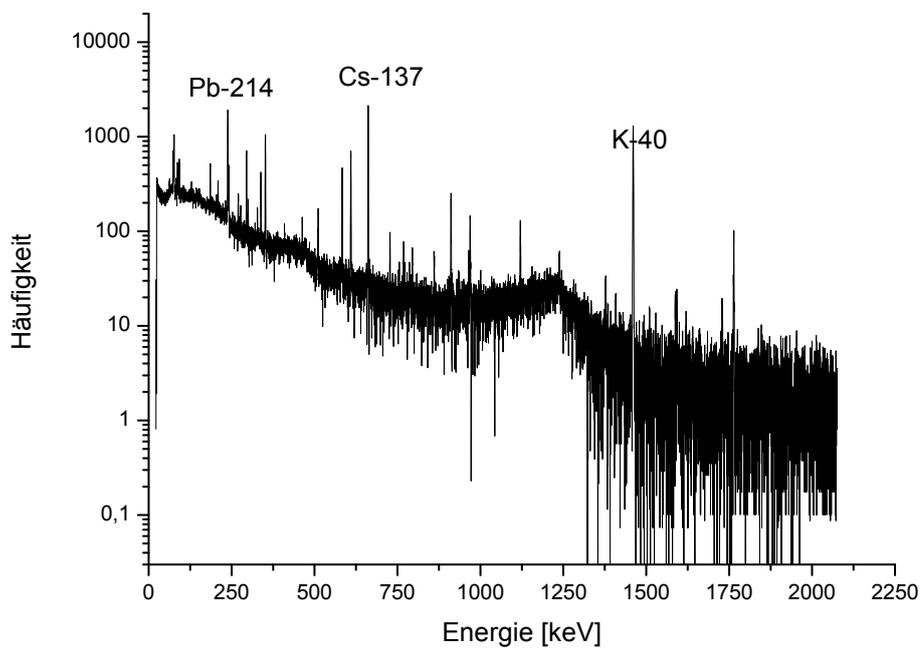


Abbildung A.4: Spektrum der 8-10 cm Schicht

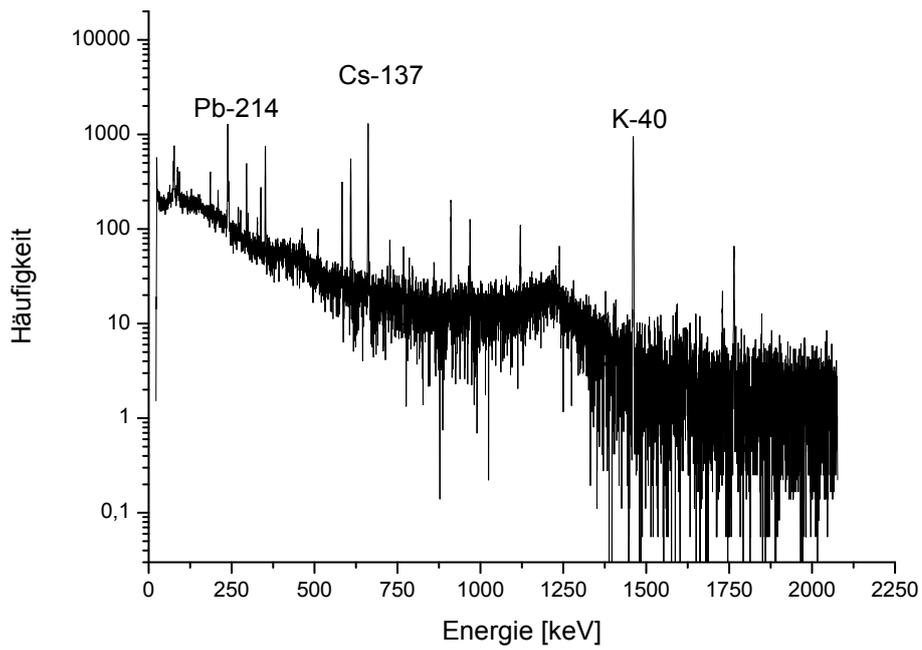


Abbildung A.5: Spektrum der 10-12 cm Schicht

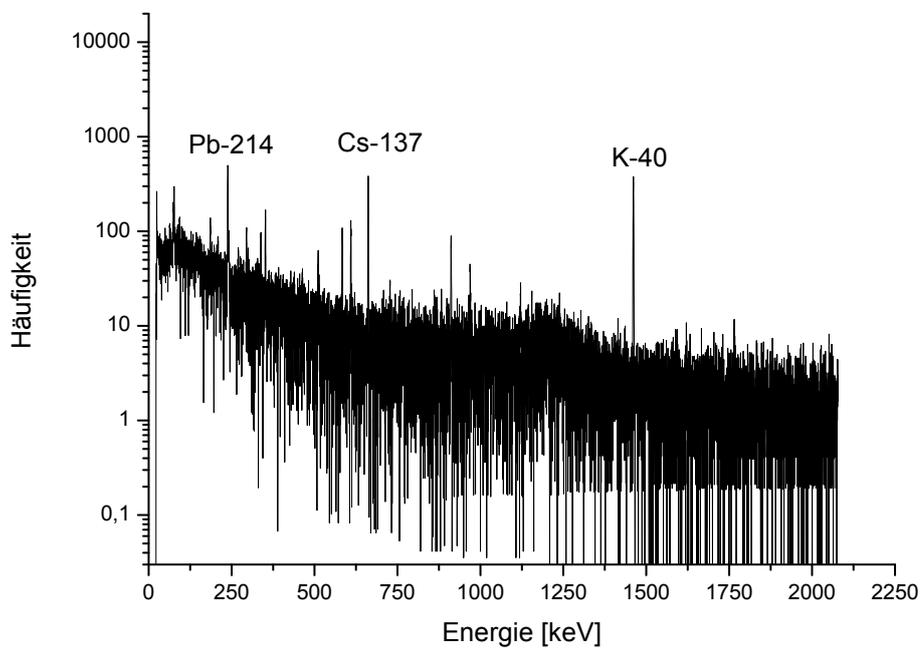


Abbildung A.6: Spektrum der 12-14 cm Schicht

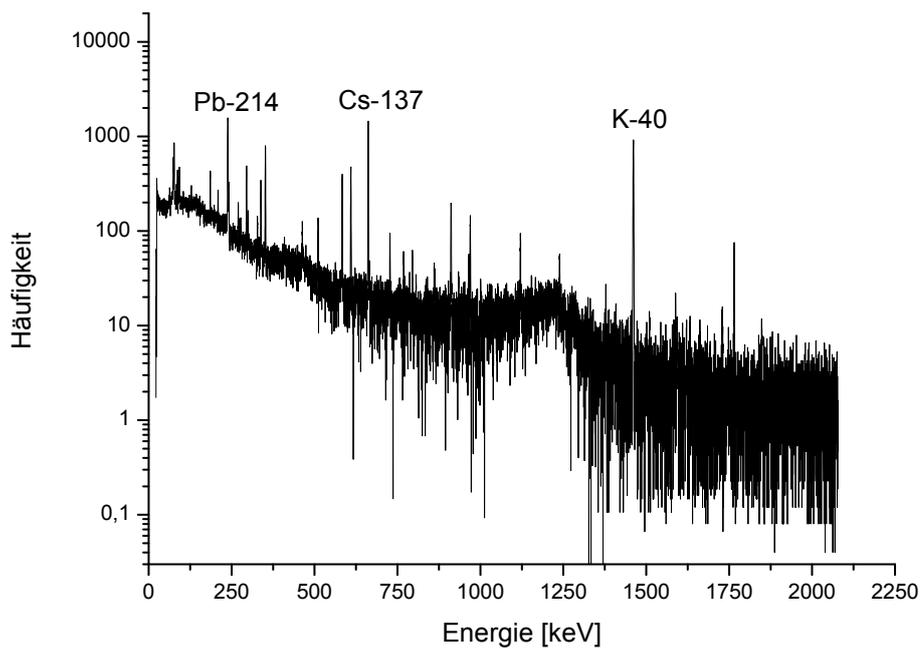


Abbildung A.7: Spektrum der 14-16 cm Schicht

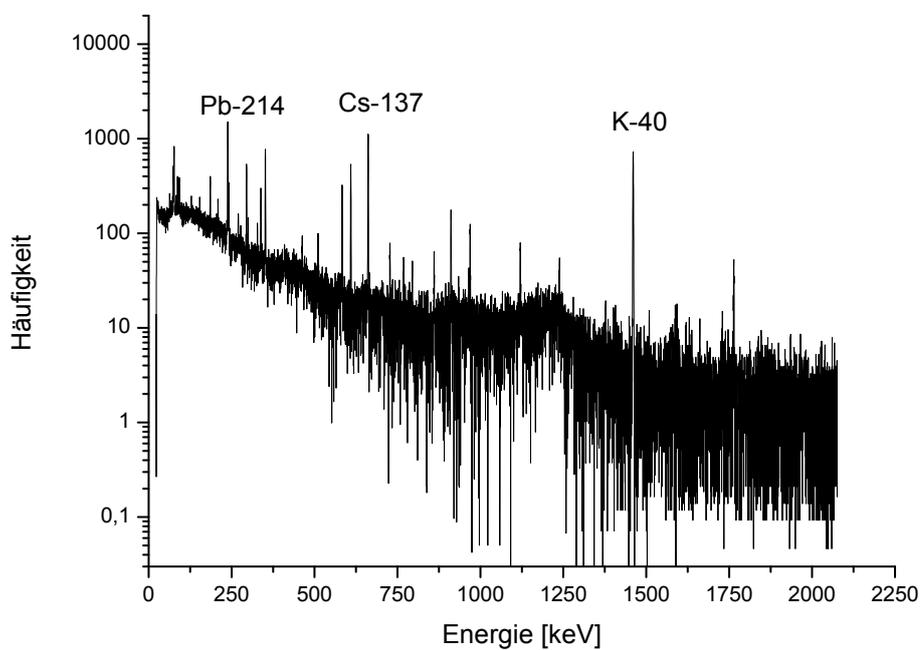


Abbildung A.8: Spektrum der 16-18 cm Schicht

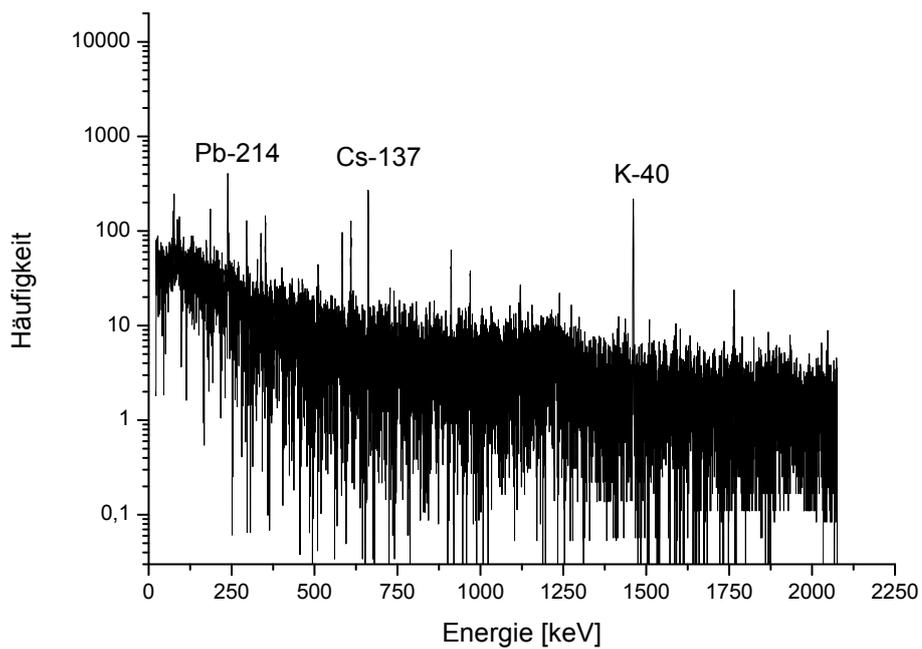


Abbildung A.9: Spektrum der 18-20 cm Schicht

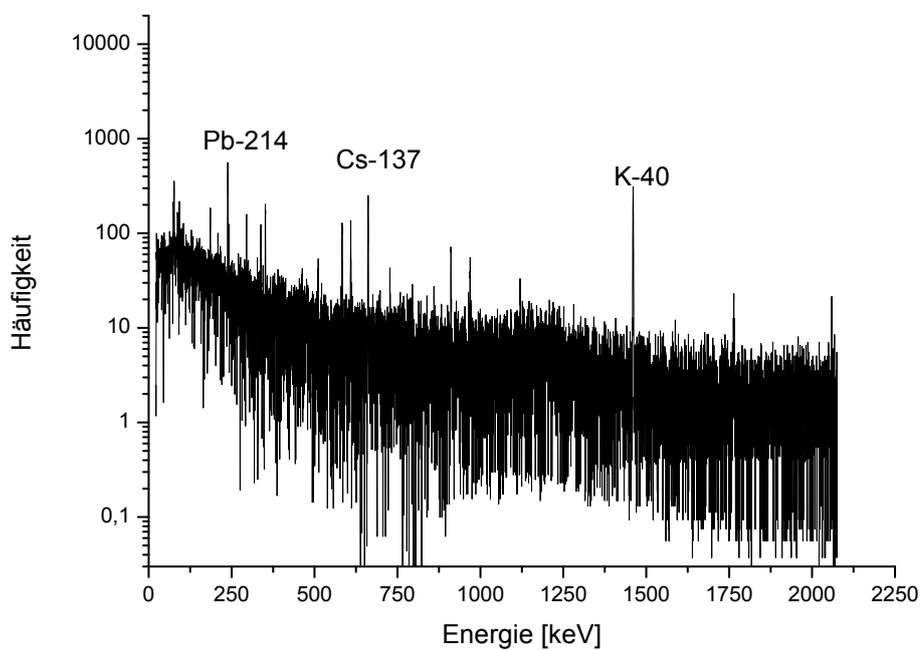


Abbildung A.10: Spektrum der 20-22 cm Schicht

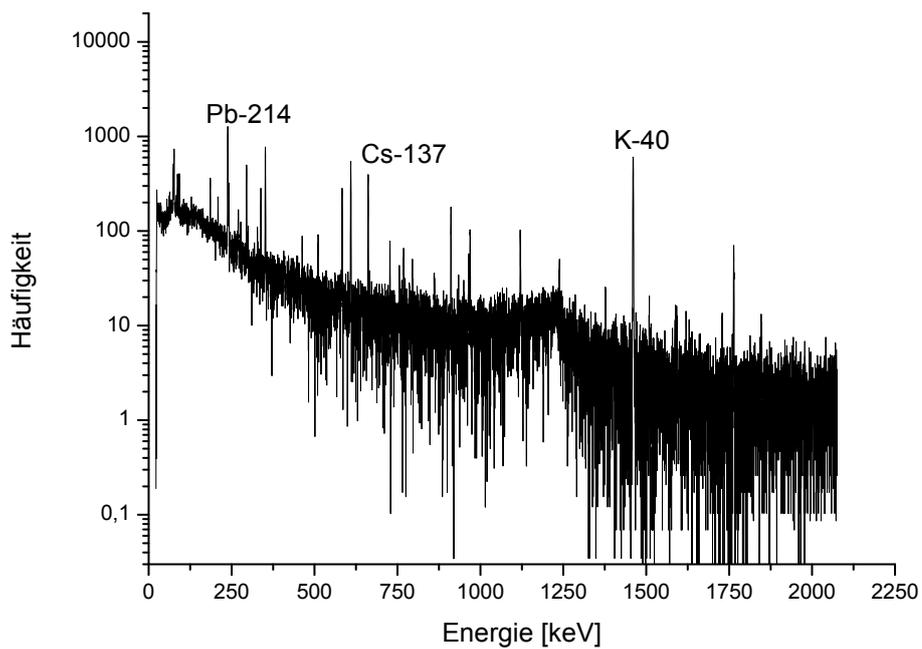


Abbildung A.11: Spektrum der 22-24 cm Schicht

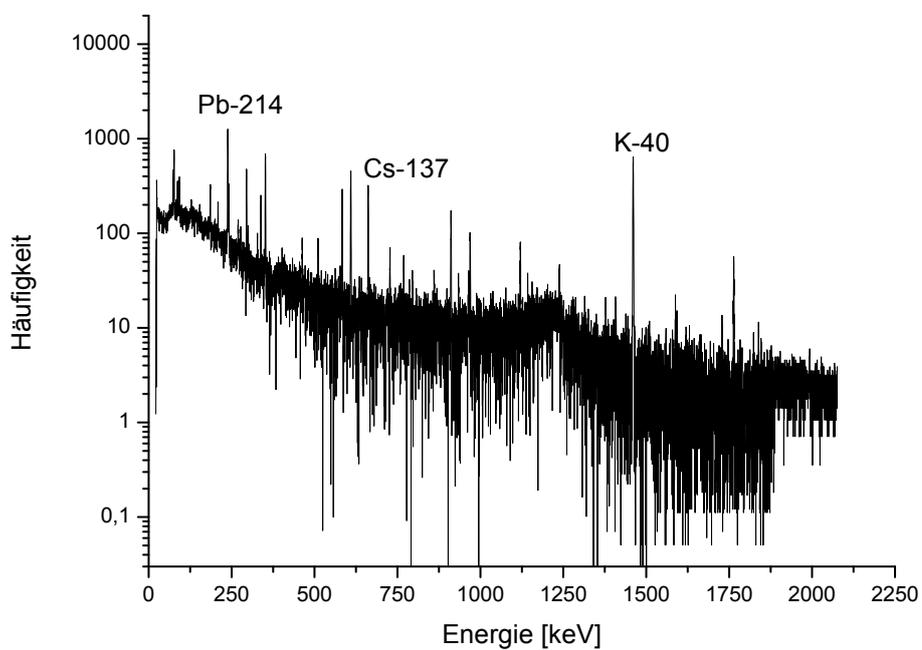


Abbildung A.12: Spektrum der 24-26 cm Schicht

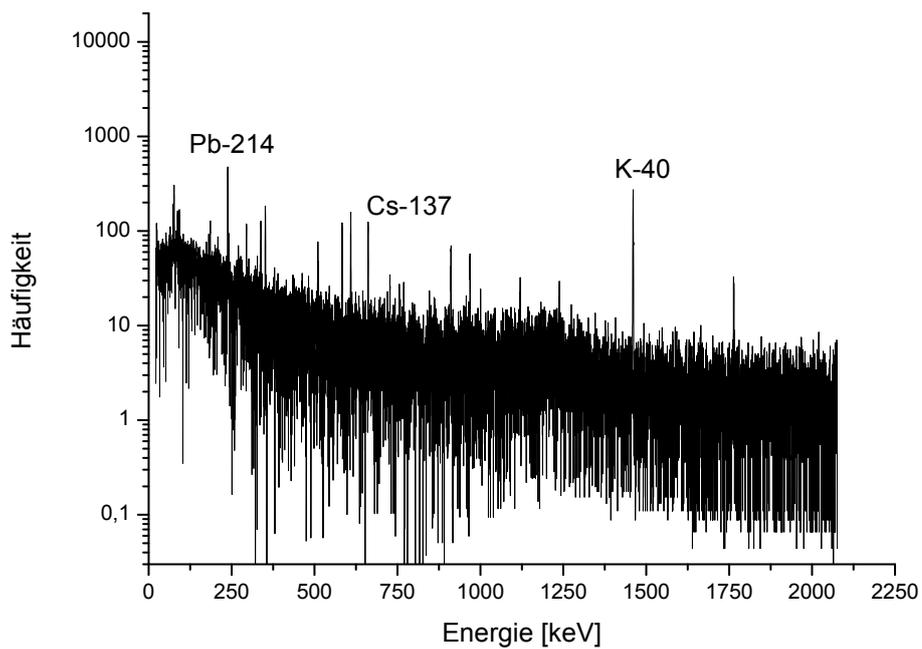


Abbildung A.13: Spektrum der 26-28 cm Schicht

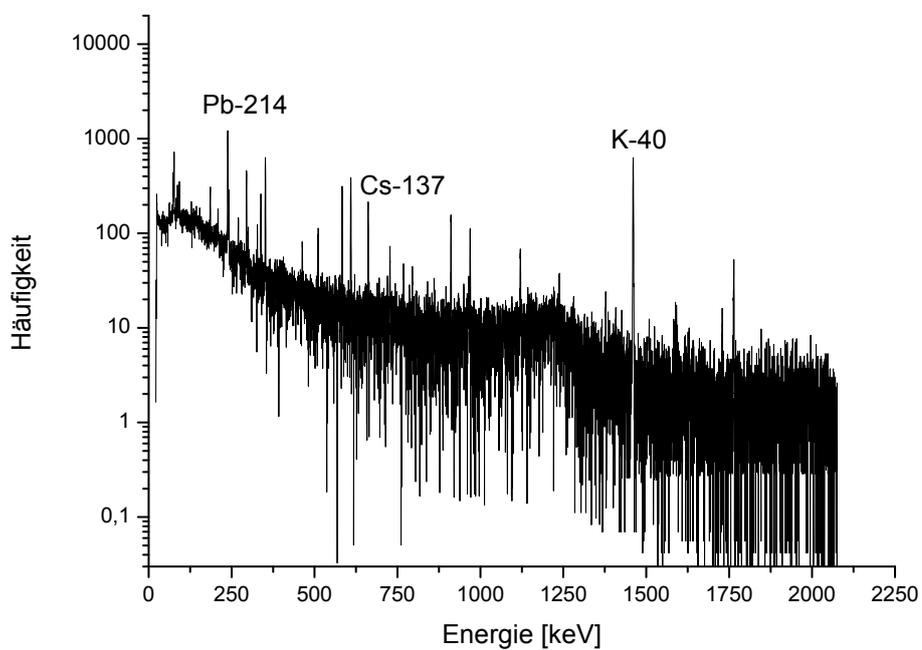


Abbildung A.14: Spektrum der 28-30 cm Schicht

B Daten zur Tiefendarstellung

Tabelle B.1: Tiefenverteilung von Cs-137, an die das Konvektions-Dispersions-Modell angepasst wurde.

Tiefe [cm]	Aktivität [$\text{Bq}/\text{m}^{-2}\text{cm}^{-1}$]	Standardabweichung [$\text{Bq}/\text{m}^{-2}\text{cm}^{-1}$]
0-2	408,49	42,99
2-4	364,10	35,94
4-6	314,25	33,14
6-8	236,98	22,78
8-10	154,34	14,96
10-12	127,53	12,43
12-14	109,39	11,44
14-16	108,12	10,27
16-18	86,29	7,10
18-20	74,28	7,88
20-22	48,62	5,19
22-24	30,37	2,87
24-26	24,55	2,31
26-28	20,06	2,29
28-30	16,53	1,70

Tabelle B.2: Startaktivitäten, die für beide Quellen mit Daten von Kirchner (1998) berechnet wurden. Am 01.11.1992 stammten 60,16% der Cs-137 Aktivität aus Tschernobyl und 39,84% vom Waffenfallout. Diese Aktivitäten wurden als Anfangswerte in das Modell eingetragen und zur Modellierung verwendet.

Quelle	Datum	Startaktivität [$\text{Bq}/\text{m}^{-2}\text{cm}^{-1}$]
Gesamtaktivität	22.09.2014	2123,96
Gesamtaktivität	01.11.1992	3511,97
Tschernobyl	01.05.1986	2453,42
Waffenfallout	01.01.1964	2713,76

Tabelle B.3: Daten für den Waffenfallout, der mit Werten von Kirchner (1998) vorhergesagt wurde, indem $D = 0,99$ und $u = 0,73$ angenommen wurden.

Tiefe [cm]	Aktivität [$\text{Bq}/\text{m}^{-2}\text{cm}^{-1}$]
0-2	0,05
2-4	0,11
4-6	0,25
6-8	0,51
8-10	1,00
10-12	1,85
12-14	3,25
14-16	5,43
16-18	8,68
18-20	13,26
20-22	19,37
22-24	27,11
24-26	36,33
26-28	46,66
28-30	57,46
30-32	67,86
32-34	76,88
34-36	83,56
36-38	87,16
38-40	87,26
40-42	83,86
42-44	77,37
44-46	68,53
46-48	58,29
48-50	47,61
50-52	37,34
52-54	28,13
54-56	20,36
56-58	14,15
58-60	9,44
60-62	6,05
62-64	3,73
64-66	2,20
66-68	1,25
68-70	0,68

Tabelle B.4: Daten für den Tschernobylanteil, der bestimmt wurde, indem die vorhergesagten Aktivitäten für den Waffenfallout von der Gesamtaktivität abgezogen wurden.

Tiefe [cm]	Aktivität [$\text{Bq}/\text{m}^{-2}\text{cm}^{-1}$]
0-2	408,44
2-4	363,99
4-6	314,00
6-8	236,46
8-10	153,33
10-12	125,68
12-14	106,14
14-16	102,69
16-18	77,60
18-20	61,02
20-22	29,25
22-24	3,26

C R-Skript

```
# Fitte Modell an Gesamtaktivität von 2014
library(ggplot2) # GGplot-package
library(pracma) # Errorfunktion
# Definiere Gesamtaktivität mit Fehlern
df <- data.frame(x = c(1, 3, 5, 7, 9, 11, 13, 15, 17, 19, 21,
  23, 25, 27, 29),
  y = c(408.491557, 364.1046872, 314.2543966, 236.9828494,
    154.3410199, 127.5301168, 109.3957386, 108.1242377,
    86.29042275, 74.28385996, 48.6258311, 30.37145336,
    24.55924067, 20.06786772, 16.53747591),
  ymin = c(408.491557, 364.1046872, 314.2543966, 236.9828494,
    154.3410199, 127.5301168, 109.3957386, 108.1242377,
    86.29042275, 74.28385996, 48.6258311, 30.37145336,
    24.55924067, 20.06786772, 16.53747591) - c(42.9956632,
    35.94934589, 33.14889139, 22.78019109, 14.96845824,
    12.43829675, 11.44235981, 10.27244829, 7.10348479,
    7.882607695, 5.19989964, 2.879267076, 2.31857846,
    2.293084139, 1.708726491),
  ymax = c(408.491557, 364.1046872, 314.2543966, 236.9828494,
    154.3410199, 127.5301168, 109.3957386, 108.1242377,
    86.29042275, 74.28385996, 48.6258311, 30.37145336,
    24.55924067, 20.06786772, 16.53747591) + c(42.9956632,
    35.94934589, 33.14889139, 22.78019109, 14.96845824,
```

```

12.43829675, 11.44235981, 10.27244829, 7.10348479,
7.882607695, 5.19989964, 2.879267076, 2.31857846,
2.293084139, 1.708726491),
xmin = c(1, 3, 5, 7, 9, 11, 13, 15, 17, 19, 21, 23, 25, 27, 29)
      - c(1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1),
xmax = c(1, 3, 5, 7, 9, 11, 13, 15, 17, 19, 21, 23, 25, 27, 29)
      + c(1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1)

# Definiere Fitfunktion
Fit <- function(x, u, D) {C1*exp(-l*t1)*(((exp(-(x-u*t1))^2/(4*D
*t1)))/(sqrt(pi*u*t1)))-(u/(2*D))*exp((u*x)/D)*erfc((x+u*t1)
/(2*sqrt(D*t1)))+C2*exp(-l*t2)*(((exp(-(x-u*t2))^2/(4*D*t2))
)/(sqrt(pi*u*t2)))-(u/(2*D))*exp((u*x)/D)*erfc((x+u*t2)/(2*
sqrt(D*t2)))))}

# Definiere Variablen:
# C = Anfangskonzentration fur Tschernobyl 1.5.1986:
2453.423281 Bq/m^2 und fur Waffen 1.1.1964: 2713.760773
C1 = 2453.423281
C2 = 2713.760773

# t = Zeit seit Tschernobyl: 28.394 Jahre und seit
Waffenfallout: 50.724 Jahre
t1 = 28.394
t2 = 50.724

# l = radioaktive Zerfallskonstante: 0.022974716 pro Jahr

fmdl <- nls(y ~ Fit(x, u, D), data = df, start = list(u = 0.01,
D = 1), trace = TRUE)

summary(fmdl)

sum(resid(fmdl)^2)

```

Erklärung

Hiermit bestätige ich, dass die vorliegende Arbeit von mir selbständig verfasst wurde und ich keine anderen als die angegebenen Hilfsmittel – insbesondere keine im Quellenverzeichnis nicht benannten Internet-Quellen – benutzt habe und die Arbeit von mir vorher nicht in einem anderen Prüfungsverfahren eingereicht wurde. Die eingereichte schriftliche Fassung entspricht der auf dem elektronischen Speichermedium. Ich bin damit einverstanden, dass die Bachelorarbeit veröffentlicht wird.

Hamburg, den 22. Februar 2016

Paul Ferdinand Kaiser