

*Dissertation 16/2008*

**Radon als Indikator für Non-Aqueous Phase Liquids (NAPL)  
in der ungesättigten Bodenzone: Entwicklung und Eichung  
eines numerischen eindimensionalen Radontransportmodells**

Steffen Lau

Helmholtz-Zentrum für Umweltforschung (UFZ)



00343701

ISSN 1860-0387

Institut für Agrar- und Ernährungswissenschaften  
der Naturwissenschaftlichen Fakultät III  
der  
Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg

**Radon als Indikator für Non-Aqueous Phase Liquids (NAPL)  
in der ungesättigten Bodenzone:  
Entwicklung und Eichung eines numerischen eindimensionalen  
Radontransportmodells**

Dissertation

Zur Erlangung des akademischen Grades  
doctor agriculturarum (Dr. agr.)

vorgelegt von



Diplomagraringenieur Steffen Lau  
geb. am 14.12.75 in Stendal

Gutachter: Prof. Dr. Ralph Meissner  
Prof. Dr. Heinz Borg  
PD Dr. habil. Michael Schubert

Verteidigung am: 3. November 2008

Halle/Saale 2008

Helmholtz-Zentrum für  
Umweltforschung GmbH - UFZ  
Zentralbibliothek  
Permoserstraße 15  
D - 04318 Leipzig

09-0072

Die Zeit ist im Innersten all dessen, was dem Menschen wichtig ist.

*Bernard d'Espagnat*

<b>Zusammenfassung</b>	<b>V</b>
<b>Summary</b>	<b>VIII</b>
<b>1 Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2 Physikalisch-chemische Eigenschaften des Radons</b>	<b>5</b>
2.1 Radon als Bestandteil natürlicher Zerfallsreihen	5
2.1.1 Zerfallsgesetz und Halbwertszeit von Radon	5
2.1.2 Radioaktive Zerfallsreihen mit Radon als Zwischenprodukt	6
2.2 Entstehung und Zerfall von Radon in Böden	7
2.2.1 Radonentstehung (Emanation)	7
2.2.2 Radonzerfall	12
2.3 Löslichkeit von Radon in organischen Flüssigphasen	13
2.3.1 Theorie der regulären Lösung	13
2.3.2 Radon-Verteilungskoeffizient	16
<b>3 Experimente zur Bestimmung des Radon-Verteilungskoeffizienten</b>	<b>19</b>
3.1 Einleitung	19
3.2 Mischungsexperimente	20
3.2.1 Material und Methoden	20
3.2.2 Ergebnisse	23
3.2.3 Diskussion	26
3.3 Durchströmungsexperimente	27
3.3.1 Material und Methoden	28
3.3.2 Ergebnisse	31
3.3.3 Diskussion	34
<b>4 Experimente zur Bestimmung der Radonkonzentration der Bodenluft in Gegenwart von NAPL</b>	<b>37</b>
4.1 Vorbemerkungen	37
4.2 Material und Methoden	37
4.2.1 Materialien und Geräte	37
4.2.2 Methoden	39
4.2.3 Versuchsdurchführung	41
4.2.4 Auswertung der Daten	41
4.3 Ergebnisse	42

4.4	Diskussion	44
<b>5</b>	<b>Messgenauigkeit des AlphaGUARD</b>	<b>46</b>
<b>6</b>	<b>Radontransport im Boden</b>	<b>54</b>
6.1	Fluidbewegung	54
6.1.1	Einphasenströmung	54
6.1.2	Mehrphasenströmung	55
6.2	Stofftransport	57
6.2.1	Advektion	58
6.2.2	Dispersion	59
6.2.3	Diffusion	60
6.3	Advektions-Dispersions-Gleichung (ADG)	66
6.4	Radontransport in der ungesättigten Bodenzone	69
6.5	Radontransport in der gesättigten Bodenzone	71
<b>7</b>	<b>Modellierung des Radontransports</b>	<b>73</b>
7.1	Finites-Differenzen-Verfahren zur Lösung der ADG	73
7.1.1	Ausgangssituation	73
7.1.2	Räumliche Diskretisierung (Raum-Indizes $i$ )	74
7.1.3	Zeitliche Diskretisierung (Zeit-Indizes $t$ )	77
7.1.4	Randbedingungen	80
7.1.5	Stabilität und Genauigkeit	83
<b>8</b>	<b>Verifizierung des Radontransportmodells</b>	<b>84</b>
8.1	Vergleich der numerischen mit der analytischen Lösung	84
8.2	Experimente in Diffusionsgefäßen	86
8.2.1	Materialien und Geräte	87
8.2.2	Versuchsdurchführung	87
8.2.3	Ergebnisse	88
8.2.3.1	Experimente	88
8.2.3.2	Modellierung	92
<b>9</b>	<b>Modellrechnungen</b>	<b>97</b>
9.1	Vorbemerkungen	97
9.2	Mächtigkeit und NAPL-Gehalt der kontaminierten Schicht	98
9.3	Mächtigkeit der Auflage und Versiegelungsgrad der Oberfläche	101

9.4	Sensitivitätsanalyse	107
<b>10</b>	<b>Vorgehensweise bei der Radonkartierung und beim Monitoring von NAPL-Kontaminationen</b>	<b>116</b>
<b>11</b>	<b>Abschließende Diskussion und Ausblick</b>	<b>123</b>
<b>12</b>	<b>Literatur</b>	<b>129</b>
<b>13</b>	<b>Abkürzungsverzeichnis</b>	<b>134</b>
<b>Anhang</b>		<b>146</b>
<b>A</b>	Thomas-Algorithmus	<b>A1</b>
<b>B</b>	Allgemeiner Ablaufplan des Computerprogramms	<b>A4</b>
<b>C</b>	Struktur des Computercodes mit VisualBASIC in Microsoft Excel	<b>A5</b>
<b>D</b>	Beschreibung des VisualBASIC-Computerprogramms	<b>A7</b>
<b>E</b>	VisualBASIC-Computerprogramm zur numerischen Berechnung des nichtstationären eindimensionalen Radontransportes	<b>A15</b>
<b>F</b>	Bestimmung von Parametern des Modellbodens	<b>A22</b>
	a) Porosität und Trockendichte des Sand/Tailings-Gemisches in den Glas-Zylindern	
	b) Dichtezustand, Trockendichte, Porosität und exemplarische Sieblinien des Sandes in Diffusionsgefäßen	
	c) Dichtezustand, Trockendichte, Porosität und exemplarische Sieblinien des Sandes in den Bodensäulen (GAMS) nach Schubert (1999)	
	d) Resultierende Radiumkonzentration des Sand/Tailings-Gemisches	
<b>G</b>	Korrekturfaktoren A und C für die Lukaszellen	<b>A26</b>
<b>H</b>	Anfangs- und Randbedingungen für die	<b>A27</b>
	a) Diffusionsgefäße	
	b) Modellrechnungen	
	c) Bodensäulen (GAMS) nach Schubert (1999)	

## Zusammenfassung

Das Ziel der Untersuchung bestand im Aufzeigen der Möglichkeiten und Grenzen der Nutzung von Radon als natürlichen Tracer zur indirekten Quantifizierung von NAPL-Kontaminationen in der ungesättigten Bodenzone. Von zentralem Interesse war die adäquate Berücksichtigung der Einflüsse unterschiedlicher Bodenparameter bei der Interpretation von gemessenen Radonkonzentrationen in NAPL-kontaminierten Böden. Dafür wurde ein eindimensionales numerisches Radontransportmodell entwickelt.

Ein wichtiger Faktor für den Radontransport und damit ein bedeutender Eingangsparameter in das Modell ist der Radon-Verteilungskoeffizient zwischen NAPL und Luft ( $K_{\text{NAPL/L}}$ ). Mangels verlässlicher Literaturdaten wurde dieser hier für NAPL-Gemische experimentell ermittelt, die im wesentlichen Benzin, Diesel bzw. Petroleum entsprechen. Die Bestimmung erfolgte zum einen durch sogenannte Mischungsexperimente (ME) und zum anderen durch Durchströmungsexperimente (DE). Die in den ME ermittelten  $K_{\text{NAPL/L}}$  liegen in einem engen Bereich zwischen 13,1 und 13,5. Die Löslichkeiten des Radons in typischen, bei realen Schadensfällen auftretenden NAPL-Gemischen (Benzin, Diesel, Petroleum) sind also ähnlich und lassen aus diesem Grund keine Unterscheidung dieser Gemische bei einer Radonkartierung zu.

Die in den DE ermittelten  $K_{\text{NAPL/L}}$  liegen zwischen 9,0 und 14,5 und damit gegenüber den ME-Werten in einem größeren Bereich. Das ist auf den unterschiedlichen Anteil volatiler Substanzen in den untersuchten NAPL zurückzuführen, die sich in den DE verflüchtigen können, in den ME dagegen nicht. Die Versuchsanordnung der DE ist daher vor allem für NAPL-Gemische mit geringem volatilen Anteil (z. B. Diesel) geeignet.

In den DE wurde zudem  $K_{\text{Olivenöl/L}}$  ermittelt. Mit Werten zwischen 10,5 und 11,1 ist er ähnlich wie für die o. g. NAPL. Daher kann in Experimenten das toxikologisch unbedenkliche Olivenöl anstelle von Benzin, Diesel oder Petroleum verwendet werden.

Die ermittelten  $K_{\text{NAPL/L}}$  konnten durch das Modell der regulären Lösung erklärt werden, sodass für NAPL-Gemische, deren Verteilungskoeffizient  $K_{\text{NAPL/L}}$  unbekannt ist und deren Zusammensetzung nachvollziehbar ist, theoretische Abschätzungen zum Lösungsverhalten von Radon durchgeführt werden können.

Zur Herleitung des numerischen Radontransportmodells wurde zunächst die Theorie des Gastransportes im Boden allgemein dargestellt und anschließend ein Finite-Differenzen-Verfahren zur Lösung der hergeleiteten Gastransportgleichung vorgestellt. Auf Basis der theoretischen Grundlagen wurde dann ein VisualBASIC-Computerprogramm zur Simulation

von Radontransportprozessen entwickelt. Es wurde ein eindimensionaler non-steady state Ansatz gewählt. Die Verifikation des Modells erfolgte einerseits durch den Vergleich der numerischen mit einer analytischen Lösung und andererseits durch einen Vergleich mit experimentellen Daten. Dazu wurde in zwei Bodensäulen (0,7 m breit, 0,7 m tief und 1,5 m hoch, Volumen  $0,735 \text{ m}^3$ ) der Verlauf der Radonkonzentration in Abhängigkeit von der Tiefe über einen längeren Zeitraum gemessen. Es wurden Konzentrationsverteilungen mit und ohne NAPL-Einfluss zunächst bei vorhandener und anschließend ohne Versiegelung der Oberfläche der Bodensäule untersucht. Sowohl der Vergleich mit der analytischen Lösung als auch mit experimentellen Daten ergab eine gute Übereinstimmung, wodurch die Richtigkeit des Modells belegt wurde.

In Computersimulationen wurde anschließend die Ausbildung des Konzentrationsprofils für variierende Werte der NAPL-Sättigung, der Ausdehnung der NAPL-haltigen Schicht, der Mächtigkeit der aufliegenden Bodenschicht und des Versiegelungsgrades der Oberfläche berechnet. Innerhalb der Modellstrecke wurde oberhalb einer wassergesättigten Zone eine Schicht mit residualer NAPL-Phase eingeführt. Die Berechnungen erfolgten beispielhaft für einen Sand und einen schwach tonigen Lehm. Für die Transportstrecke wurde jeweils eine homogene Poren-, Wasser- und Radiumverteilung zugrundegelegt.

Das Konzentrationsdefizit nahm ausgehend vom oberen Rand der NAPL-Schicht in Richtung der Bodenoberfläche ab. Das Defizit ist innerhalb der NAPL-Schicht am größten. In der NAPL-freien Zone ist das Defizit direkt über der NAPL-Schicht am größten. Mit zunehmendem Produkt aus NAPL-Sättigung ( $S_{\text{NAPL}}$ ) und NAPL-Schichtdicke, das hier als NAPL-Menge bezeichnet wurde, stieg im Sand das Defizit oberhalb der NAPL-Schicht. Bei Lehm lag ein Effekt der NAPL-Menge auf das Defizit oberhalb der NAPL-Schicht praktisch nicht vor. Versiegelungsgrade hatten insgesamt nur einen geringen Einfluss auf das Defizit über der NAPL-Schicht.

Der Einfluss von Veränderungen verschiedener Bodenparameter auf die Radonkonzentration der Bodenluft wurde in Sensitivitätsanalysen untersucht. Er nimmt mit zunehmender Tiefe ab. Bei unversiegeltem Boden reagiert die Radonkonzentration am sensibelsten auf Änderungen der Porosität, bei versiegeltem Boden auf den Versiegelungsgrad. Die NAPL-Sättigung zeigt im Vergleich zu anderen Bodenparametern eine relativ geringe Sensitivität, d. h. die Radonkonzentration wird durch diesen Parameter relativ wenig beeinflusst.

Der Einfluss der NAPL-Sättigung auf die Radonkonzentration der Bodenluft ist in der kontaminierten Schicht am größten. Da hier aber auf kurze Distanzen starke Veränderungen

der Radonkonzentration auftreten, ist eine reproduzierbare Messung schwierig. Im NAPL-freien Boden ist das Konzentrationsdefizit direkt über der NAPL-Schicht am größten und es treten keine so starken kleinräumigen Konzentrationsänderungen auf. Zudem ist hier der Einfluss von Variationen der Bodenparameter am geringsten. Radonmessungen sollten daher dicht über der kontaminierten Schicht durchgeführt werden.

Um unterschiedliche Standortbedingungen adäquat berücksichtigen zu können, wird eine Vorgehensweise vorgeschlagen, die auf Radonmessungen direkt oberhalb einer NAPL-haltigen Schicht aufbaut. Voraussetzung ist, dass möglichst viele Informationen zu den Bodenparametern mit potenziellem Einfluss auf die Radonkonzentration und ihrer räumlichen Verteilung bekannt sind. Die Vorgehensweise wurde beispielhaft für zwei kontaminierte und auf unterschiedliche Weise im Bodenaufbau von einem unkontaminierten Hintergrund abweichende Bodensäulen vorgestellt. Es wurde neben der NAPL-Kontamination eine mit der Tiefe veränderte Radiumkonzentration der Mineralmatrix betrachtet, jeweils ohne Versiegelung und bei vollständiger Versiegelung der Bodenoberfläche.

Durch eine Modellanpassung erhält man für den kontaminierten Horizont die NAPL-Sättigung. Die ermittelte NAPL-Sättigung wird dann in die Anfangsbedingungen des Hintergrundstandortes eingesetzt und ein weiterer Simulationslauf durchgeführt. Man erhält eine simulierte Kontamination des Hintergrundstandortes mit den Werten der NAPL-Sättigung des tatsächlich kontaminierten Standortes. Der ausschließlich durch den NAPL-Einfluss veränderte Verlauf der Radonkonzentration im tatsächlich kontaminierten Profil kann nun durch einen Vergleich der Radonprofile im Hintergrundstandort mit dem im rechnerisch kontaminierten Hintergrundstandort bestimmt werden. Die o. g. Zielstellung der Identifikation des NAPL-bedingten Rückgangs der Radonkonzentration bei heterogenem Bodenaufbau wurde erreicht.

Die vorgeschlagene Vorgehensweise eignet sich insbesondere für das Monitoring von NAPL-Kontaminationen. Mit den einmalig zu bestimmenden Anfangs- und Randbedingungen ist es anschließend möglich, anhand weniger oder einer Messung das Radontiefenprofil bzw. den NAPL-bedingten Rückgang der Radonkonzentration mithilfe des numerischen Modells zu ermitteln. Der Aufwand für periodische Radonmessungen wird dadurch deutlich reduziert. Zudem kann eine höhere Sicherheit bei der Dateninterpretation erreicht werden.

## Summary

The aim of this study was to show the possibilities and limitations of using the natural tracer radon for an indirect quantification of NAPL-contaminations in the vadose zone. The consideration of the effect of various soil parameters on measured radon concentrations was of particular interest. For that purpose a one-dimensional numerical radon transport model was developed.

An important factor for radon transport and thus as a significant input parameter for the model is the radon distribution coefficient between a NAPL and air ( $K_{\text{NAPL/L}}$ ). Due to a lack of reliable literature data, it was experimentally determined here for the NAPL-mixtures petrol, diesel and petroleum using so-called mixing experiments (ME) and throughflow experiments (TE). The  $K_{\text{NAPL/L}}$ -values from the ME fell into a narrow range of 13,1 to 13,5. This means that the solubilities of radon in NAPL-mixtures typical for contaminations (petrol, diesel, petroleum) are similar, which precludes an identification of these mixtures in the course of radon mapping.

In the DE the obtained  $K_{\text{NAPL/L}}$  values covered a larger range (9,0 to 14,5) than in the ME. This is due to the different share of volatile components in the NAPLs looked at here, which can vaporise in the DE, but not in the ME. Throughflow experiments are therefore only suited for NAPLs with a small share of volatile components (e. g. diesel).

The DE were also employed here to determine  $K_{\text{oliveoil/L}}$ . The obtained values of 10,5 to 11,1 are similar to those for the above NAPLs. This implies that non-toxic olive oil can be used in experiments instead of petrol, diesel or petroleum.

The experimentally generated  $K_{\text{NAPL/L}}$ -values can be explained with the theory of regular solutions. This makes it possible to estimate  $K_{\text{NAPL/L}}$  for NAPL-mixtures with known composition, whose  $K_{\text{NAPL/L}}$  is unknown.

The general theory of gas transport in soil was taken as the starting point to derive the numerical radon transport model. A finite difference solution of the gas transport equation for one-dimensional non-steady state transport was developed and programmed in VisualBASIC. The model was then verified by comparing it to an analytical solution of the gas transport equation and to experimental data. The latter were derived from two soil columns (0.7 m wide, 0.7 m deep, 1.5 m high, volume 0.735 m<sup>3</sup>) in which the radon concentration with depth was measured over several weeks. Concentrations were measured in the presence and in the absence of a NAPL-contamination and with and without a sealed surface. Both, the compari-

son with the analytical solution and the experimental data, showed a good agreement, which proves that the model is correct.

In a next step, computer simulations of the radon concentration profile for various values of NAPL-saturation, thickness of the NAPL-layer, depth of soil above the contaminated layer and degree of surface sealing were carried out. In these simulations a layer containing NAPL was placed above the saturated zone. Computations were made for a sand and a loam. Porosity, water content and radium distribution in the soil profile were assumed to be constant.

The radon concentration deficit due to the presence of the NAPL-layer decreased from the upper edge of this layer to the soil surface. Within the NAPL-layer the deficit was greatest. In the NAPL-free zone the deficit was greatest directly above this layer. As the product of NAPL-saturation and thickness of the NAPL-layer increased, hereafter called NAPL-amount, the deficit in the sand above the NAPL-layer increased, too. In the loam there was hardly any effect of the NAPL-amount on the size of the deficit above the NAPL-layer. For both soils the degree of surface sealing had only a relatively small effect on the radon deficit above this layer.

The effect of changes in various soil parameters on the radon concentration of the soil air was assessed in a sensitivity analysis. The influence of these variations decreases with increasing depth. In an unsealed soil the radon concentration reacts most sensibly to changes in porosity, in a sealed soil to the degree of sealing. Compared to other factors, changes in the NAPL-saturation have little effect on the radon concentration.

The influence of the NAPL-saturation on the radon concentration of the soil air is greatest in the contaminated layer. However, because there are large changes in the radon concentration over short distances in this layer, it is difficult to obtain a reproducible measurement. In the NAPL-free soil the concentration deficit is greatest directly above the NAPL-layer and there are no strong concentration changes over short distances. In addition, the influence of variations in various soil parameters is smallest here. Therefore, radon measurements should be carried out just above the contaminated layer.

To take different site conditions adequately into account a procedure is proposed, which builds on such measurements. The prerequisite is that there are data for the soil parameters, which affect the radon concentration distribution in a profile. The procedure outlined below was illustrated for two contaminated soils, with characteristics different from an uncontaminated reference profile. Besides a NAPL-contamination, a changing radium concentration with depth was considered, once with and once without a sealed surface.

By adjusting the model parameters appropriately the NAPL-saturation of the contaminated layer can be estimated. This saturation is subsequently entered into the initial conditions of the reference profile. The ensuing model run then yields a simulated contamination of the reference site based on the actual NAPL-saturation of the truly contaminated site. By comparing the radon distribution in the reference profile with its distribution in the mathematically contaminated reference profile the effect of a NAPL-presence on the radon concentration in a contaminated profile can be separated from other factors (here radium concentration and surface sealing) affecting the radon concentration. In this way the effect of a NAPL-presence on the radon concentration in a contaminated profile can be separated from other factors (here radium concentration and surface sealing) affecting the radon concentration. The aim stated above, namely to identify the reduction in the radon concentration caused by a NAPL in a heterogeneous soil profile was achieved.

The suggested procedure is especially suited for monitoring an existing NAPL-contamination. To apply it the necessary soil parameters, i. e. the initial and boundary conditions for the model, must be determined once. With the help of the model it is then possible to determine a NAPL-induced reduction in the radon concentration on the basis of a few or even just one radon measurement in the soil profile. Thus, the effort for periodic radon measurements is greatly reduced. Furthermore, obtained data can be interpreted much more reliably.

## 1 Einleitung

Als non-aqueous phase liquids (NAPL) werden Flüssigkeiten bezeichnet, die nicht mit Wasser mischbar sind. Hierzu gehören viele organische Verbindungen aus aliphatischen und aromatischen Kohlenwasserstoffen, die als Schadstoffe in den Untergrund gelangen können. NAPL, die leichter als Wasser sind ( $\rho < 1 \text{ g m}^{-3}$ ), werden „light non-aqueous phase liquids“ (LNAPL) genannt. Dazu zählen u. a. die für Schadensfälle in Tanklagern relevanten Mineralölgemische Benzin, Diesel und Petroleum. Hauptsächliche Bestandteile der Gemische sind C-5 bis C-10-Aliphate (Alkane und Alkene), einfache Cykloalkane (Cyklohexan), Cykloalkane mit funktionellen Gruppen (Methylcyklohexan) oder aromatische Kohlenwasserstoffe (BTEX).

NAPL, die schwerer als Wasser sind ( $\rho > 1 \text{ g m}^{-3}$ ), werden „dense non-aqueous phase liquids“ (DNAPL) genannt. Zu diesen zählen vor allem Flüssigkeiten, die u. a. in der KFZ-Technik als Reinigungsmittel (z. B. Trichlorethen,  $\rho = 1,46 \text{ g m}^{-3}$ ) Verwendung finden, sowie Pestizide ( $\gamma$ -Hexachlorcyklohexan bzw. „Lindan“,  $1,87 \text{ g m}^{-3}$ ) oder Holzimprägnierungsmittel (komplexe Steinkohlenteeröle). Im Gegensatz zu LNAPL bestehen DNAPL zumeist aus Chlorsubstituierten Alkanen, Alkenen und Zyklalkanen.

In der vorliegenden Arbeit werden hauptsächlich LNAPL behandelt; auf DNAPL wird nur in Einzelfällen eingegangen. Im weiteren Verlauf sind mit „NAPL“ immer LNAPL gemeint, sofern nicht explizit anders vermerkt.

Kontaminationen des Untergrundes mit Öl-Produkten sind weltweit zahlreich anzutreffen. Diese Verunreinigungen können zu einer Beeinträchtigung bzw. Gefährdung des Grundwassers und der menschlichen Gesundheit führen. Die Sanierung von NAPL-belasteten Standorten nimmt daher einen bedeutenden Rang bei der Altlastensanierung ein. Neben der Auskoffierung kontaminierter Bodenvolumina spielt die In-situ-Sanierung großflächiger Standorte zunehmend eine wichtige Rolle.

Vor der Sanierung müssen Untergrundkontaminationen lokalisiert werden. Im Falle von NAPL-Kontaminationen werden zur Lokalisierung von Belastungen und zum Monitoring von Sanierungsmaßnahmen herkömmlicherweise Rammkernsondierungen (RKS) abgeteuft und/oder Grundwassermessstellen (GWMS) installiert. Die gewonnenen Boden- und Grundwasserproben werden anschließend im Labor auf ihren NAPL-Gehalt hin untersucht. Die für eine eindeutige Lokalisierung eines Schadens und für die Dokumentation des Sanierungserfolges notwendige Anzahl der RKS bzw. GWMS wird jedoch zumeist auf Grund standortspezi-

fischer Verhältnisse (z. B. Versiegelung der Oberfläche durch Beton) oder mangelnder finanzieller Mittel nicht realisiert.

Radon ist ein natürliches, in der Bodenluft vorkommendes Edelgas und weist eine sehr gute Löslichkeit in den meisten NAPL auf. Diese Eigenschaft führt zu einer Akkumulation des im Porenraum eines Bodens vorhandenen Radons in der NAPL (Schubert, 2001). Eine NAPL-Kontamination in der grundwasserungesättigten Bodenzone hat daher eine lokale Verringerung der Radonkonzentration der Bodenluft in der unmittelbaren Umgebung der Kontamination zur Folge. Dadurch ist es möglich, mit einer Radonkartierung NAPL-Verunreinigungen des Untergrundes zu lokalisieren. RKS und GWMS können mithilfe der Ergebnisse der Kartierung in ihrer Position präzisiert und in ihrer Anzahl minimiert werden. Durch zusammenfassende Interpretation der Erkenntnisse aus den RKS-Bodenuntersuchungen und den Bodenluft-Radonuntersuchungen können sowohl die Aussagefähigkeit von Bodenproben hinsichtlich der vorliegenden Schadstoffgehalte optimiert werden, als auch die Aussagen hinsichtlich der Schadstoffausbreitung im untersuchten Areal verbessert werden. Der Aufwand für NAPL-Lokalisierungen wird dadurch verringert und das Ergebnis gleichzeitig verbessert. Die Anwendbarkeit des Verfahrens wurde auf mehreren Standorten erfolgreich demonstriert (Schubert, 2001; Lau et al., 2004). Schubert (2001) zeigte, dass über eine Radondetektion eine ausreichend hohe Messpunktdichte zur indirekten Erfassung einer NAPL-Kontamination vergleichsweise kostengünstig erreicht werden kann. Die Ergebnisse konnten durch Lau et al. (2004) bestätigt werden.

Das erstmals von Schubert (2001) vorgestellte Lokalisierungsverfahren stellt den aktuellen Stand der Technik dar. Bei der Interpretation der gewonnenen Messergebnisse bestehen bisher jedoch zum Teil erhebliche Unsicherheiten, die vor allem auf die Einflüsse heterogener Standorteigenschaften (z. B. Bodenversiegelungsgrad, Bodenfeuchte) auf den Radongehalt der Bodenluft zurückzuführen sind. Die mit dem Nachweis der Praxis-tauglichkeit einhergehenden Interessenbekundungen seitens der Wirtschaft verlangen nach zusätzlichen Untersuchungen, um diese Unsicherheiten möglichst zu minimieren und das Anwendungspotential des zugrundeliegenden Prinzips auszuschöpfen. Dies begründet die Notwendigkeit der folgenden Arbeiten im Rahmen dieser Dissertation:

### *1. Experimente zur Ableitung des Radon-Verteilungskoeffizienten*

Ein wichtiger Parameter bei der Nutzung von Radonmessungen zur Lokalisierung von NAPL-Kontaminationen ist der Verteilungskoeffizient von Radon zwischen NAPL und Bodenluft. Es gilt zu prüfen, ob deutliche Unterschiede zwischen den Koeffizienten verschiedener NAPL

auch signifikant unterschiedliche Einflüsse der einzelnen NAPL auf die Radonkonzentration der Bodenluft zur Folge haben. Somit wären Aussagen zur Art der Kontamination möglich. Die Verteilungskoeffizienten verschiedener NAPL werden deshalb in dieser Arbeit bestimmt. Zunächst soll geklärt werden, ob unterschiedliche NAPL-Gemische, wie z. B. die schadensfallrelevanten Gemische Benzin, Diesel und Petroleum, Radon unterschiedlich stark absorbieren. Dazu werden die Radon-Verteilungskoeffizienten einiger reiner NAPL sowie von NAPL-Gemischen mit definierter Zusammensetzung untersucht und die Ergebnisse thermodynamisch hinterlegt. Anschließend wird der Einfluss der Sättigung eines beispielhaften Bodens mit einer ausgesuchten NAPL auf die Radonkonzentration der Bodenluft untersucht. Die Experimente und die theoretische Hinterlegung der Versuchsergebnisse erlauben auch Rückschlüsse auf die Verteilungskoeffizienten anderer, nicht im Detail untersuchter NAPL.

## *2. Entwicklung eines eindimensionalen numerischen Radontransportmodells*

Zur besseren Interpretation der Ergebnisse aus Säulenexperimenten und Felduntersuchungen (vgl. Punkt 3) wird ein Transportmodell für Radon in der Bodenluft benötigt, das individuelle standortspezifische Transportbedingungen, wie Bodenversiegelungsgrad, Bodenfeuchte, NAPL-Gehalt, etc. berücksichtigt. Zur Entwicklung eines solchen Modells soll zunächst die Theorie des Gastransportes im Boden allgemein dargestellt und ein numerisches Verfahren zur Lösung der hergeleiteten Gastransportgleichung vorgestellt werden. Auf diesen Grundlagen wird dann ein Computerprogramm zur Simulation von eindimensionalen Radontransportprozessen entwickelt.

## *3. Verifizierung des Transportmodells für Radon*

Zur Verifizierung des Transportmodells werden die numerisch gewonnenen Ergebnisse zunächst mit denen der analytischen Lösung der Advektions-Dispersions-Gleichung (ADG) verglichen. Weiterhin werden die Modellergebnisse zum Migrationsverhalten von Radon experimentell hinterlegt, indem die Konzentrationsverteilung von Radon in der Bodenluft eines beispielhaften Bodens in großdimensionierten Diffusionsgefäßen (1,5 m hoch; 0,7 m breit; 0,7 m tief) bestimmt und mit den berechneten Werten verglichen wird. Die Gefäße werden hierzu mit einer geeigneten mineralischen Matrix (Sandgemisch) mit definierter Radonemanation, geeignetem Diffusionskoeffizienten und Gaspermeabilität befüllt. Innerhalb der Bodensäule wird mittels einer definierten Sättigung mit einer exemplarischen NAPL eine NAPL-Kontamination simuliert.

In dieser Dissertation werden die sonst üblichen Gliederungspunkte Einleitung, Material und Methoden, Ergebnisse und Diskussion jeweils innerhalb der Kapitel zu den einzelnen Themenbereichen behandelt. Der Aufbau der Arbeit wird nachfolgend kurz erläutert:

Zunächst werden in der Literaturübersicht (Kapitel 2) grundlegende physikalisch-chemische Eigenschaften von Radon und dessen Verhalten in Gegenwart von NAPL dargelegt, wobei der Schwerpunkt auf den Lösungseigenschaften von Radon in einer NAPL liegt.

Kapitel 3 beschreibt Experimente zur Bestimmung des Radon-Verteilungskoeffizienten. Dieser wird für exemplarische NAPL, die zum Einen für Schadensfälle typisch sind und zum Anderen in weiterführenden Experimenten verwendet werden, bestimmt.

Mit einer ausgesuchten NAPL, deren Verteilungskoeffizient bekannt ist, wird anschließend der Einfluss der NAPL-Sättigung auf die Radonkonzentration der Bodenluft eines definierten Sandes untersucht, so dass der theoretisch bestehende quantitative Zusammenhang zwischen der NAPL-Sättigung und der Radonkonzentration praktisch nachgewiesen werden kann (Kapitel 4).

Es schließen sich Betrachtungen zur Messgenauigkeit mit dem AlphaGUARD an (Kapitel 5).

Nachfolgend werden in Kapitel 6 Grundlagen des Fluidtransports sowie von Stofftransportmechanismen allgemein und radonspezifisch beleuchtet.

Darauf aufbauend (Kapitel 7) erfolgt die mathematische Herleitung eines numerischen ein-dimensionalen Transportmodells für Radon und die Umsetzung in ein Computerprogramm.

Kapitel 8 enthält eine Verifikation der numerischen Lösung anhand der analytischen Lösung für einen vereinfachten Fall sowie eine weitere Verifizierung anhand von Ergebnissen aus Experimenten zur Radon-Verteilung in Bodensäulen.

In Kapitel 9 wird in Modellrechnungen der Einfluss verschiedener Parameter mit Einfluss auf die Radonkonzentration der Bodenluft untersucht.

Anhand der bis dahin gewonnenen Erkenntnisse wird in Kapitel 10 ein Vorschlag zur optimierten Vorgehensweise bei Radonkartierungen und beim Monitoring von NAPL-Kontaminationen erläutert.

Am Ende der Arbeit werden Schlussfolgerungen gezogen und ein Ausblick gegeben (Kapitel 11).

## 2 Physikalisch-chemische Eigenschaften des Radons

### 2.1 Radon als Bestandteil natürlicher Zerfallsreihen

#### 2.1.1 Zerfallsgesetz und Halbwertszeit von Radon

Die Zerfallswahrscheinlichkeit eines Radionuklids pro Zeiteinheit wird mit Hilfe der Zerfallskonstante ( $\lambda$ ) ausgedrückt. Sie ist für jedes Nuklid eine spezifische Größe und beträgt für Radon  $2,1 \cdot 10^{-6}$  Zerfälle pro Sekunde ( $Z s^{-1}$ ). Die Zahl der in einem Zeitintervall  $dt$  zerfallenden Kerne wird als Aktivität bezeichnet und wird in Becquerel (Bq;  $1Bq = 1 Z s^{-1}$ ) angegeben. Besitzt eine Probe zu einem bestimmten Zeitpunkt  $N$  Radonkerne, dann werden pro Sekunde  $\lambda N$  Kerne zerfallen. Es gilt:

$$A(t) = \frac{dN}{dt} = -\lambda N \quad [1]$$

$A$  = Aktivität [ $Z s^{-1}$ ]  
 $N$  = Anzahl der radioaktiven Atome  
 $t$  = Zeit, in der Zerfall stattfindet [ $s$ ]  
 $\lambda$  = Zerfallskonstante [ $Z s^{-1}$ ]

Durch Integration dieser Gleichung unter der Randbedingung  $N(t_0) = N_0$  erhält man das allgemeine Zerfallsgesetz:

$$N_t = N_0 e^{-\lambda t} \quad [2]$$

$N_t$  = Anzahl der radioaktiven Atome zu einem beliebigen Zeitpunkt  $t$   
 $N_0$  = Anzahl der radioaktiven Atome zum Zeitpunkt  $t = 0$

Die Anzahl der Kerne  $N$  nimmt also mit der Zeit  $t$  exponentiell ab. Die Zeit, die vergeht, bis die Anzahl der noch nicht zerfallenen Kerne auf die Hälfte der Ausgangsmenge abgenommen hat, heißt Halbwertszeit ( $t_{1/2}$ ) und wird zur Charakterisierung der ‚Lebensdauer‘ der betrachteten Atomkerne herangezogen. Setzt man in obige Gleichung  $t = t_{1/2}$  und  $N_{t_{1/2}} = N_0 / 2$  erhält man:

$$\frac{N_0}{2} = N_0 e^{-\lambda t_{1/2}} \quad [3]$$

Daraus ergibt sich für  $t_{1/2}$ :

$$t_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} \quad [4]$$

Mit [4] ergibt sich über die o.g. Zerfallskonstante des Radons ( $\lambda = 2,1 \cdot 10^{-6} \text{ Z s}^{-1}$ ) dessen Halbwertszeit von 3,8235 d.

### 2.1.2 Radioaktive Zerfallsreihen mit Radon als Zwischenprodukt

Die natürlich vorkommenden Isotope des Elementes Radon sind Thoron ( $^{220}\text{Rn}_{86}$ ), Actinon ( $^{219}\text{Rn}_{86}$ ) und Radon ( $^{222}\text{Rn}_{86}$ ). Sie entstehen innerhalb der Zerfallsreihen der in der Natur vorkommenden radioaktiven Kerne  $^{232}\text{Th}_{90}$ ,  $^{235}\text{U}_{92}$  und  $^{238}\text{U}_{92}$ , die jeweils das Anfangsglied einer Zerfallsreihe bilden. Thoron und Actinon sind veraltete Bezeichnungen, die für die entsprechenden Isotope noch verwendet werden. Die Schreibweise  $^{222}\text{Rn}_{86}$  bedeutet, dass der Atomkern 86 Protonen und  $222 - 86 = 136$  Neutronen enthält. Radon geht innerhalb der Uran-238-Zerfallsreihe durch Alpha-Zerfall aus Radium (Ra) hervor und zerfällt wiederum in das sehr kurzlebige Polonium (Po). Mit dem Zerfallsprozess geht ein Masseverlust der Atomkerne einher. Dieser ist auf die Emission von Alpha-Teilchen (2 Protonen + 2 Neutronen = Heliumkern) und Energie zurückzuführen. Der Zerfall von  $^{222}\text{Rn}_{86}$  kann mit  $^{222}\text{Rn}_{86} = ^{218}\text{Po}_{84} + ^4\text{He}_2 + E$  beschrieben werden, wobei E die Energie zur Bilanzierung aus Einsteins Masse-Energie-Beziehung darstellt. Endprodukte der Zerfallsreihen bilden jeweils stabile Isotope des Bleis (Tabelle 1).

**Tabelle 1:** Ausgewählte Glieder der Zerfallsreihen des  $^{232}\text{Th}_{90}$ ,  $^{235}\text{U}_{92}$  und  $^{238}\text{U}_{92}$  (verändert nach Wilkening, 1990).

Glied der Zerfallsreihe	Thorium-232-Reihe	Uran-235-Reihe	Uran-238-Reihe
Ausgangsisotop	$^{232}\text{Th}_{90}$	$^{235}\text{U}_{92}$	$^{238}\text{U}_{92}$
Halbwertszeit $t_{1/2}$	$1,405 \cdot 10^{10} \text{ a}$	$7,037 \cdot 10^8 \text{ a}$	$4,468 \cdot 10^9 \text{ a}$
Radium-Glied	$^{224}\text{Ra}_{88}$	$^{223}\text{Ra}_{88}$	$^{226}\text{Ra}_{88}$
Halbwertszeit $t_{1/2}$	3,664 d	11,435 d	1600 a
Radon-Glied	$^{220}\text{Rn}_{86}$ (Thoron)	$^{219}\text{Rn}_{86}$ (Actinon)	$^{222}\text{Rn}_{86}$ (Radon)
Halbwertszeit $t_{1/2}$	55,6 s	3,96 s	3,8235 d
Polonium-Glied	$^{216}\text{Po}_{84}$	$^{215}\text{Po}_{84}$	$^{218}\text{Po}_{84}$
Halbwertszeit $t_{1/2}$	0,145 s	0,0018 s	183 s
Blei-Glied	$^{212}\text{Pb}_{82}$	$^{211}\text{Pb}_{82}$	$^{214}\text{Pb}_{82}$
Halbwertszeit $t_{1/2}$	10,64 h	36,1 min	26,8 min
Blei als stabiles Endglied	$^{208}\text{Pb}_{82}$	$^{207}\text{Pb}_{82}$	$^{206}\text{Pb}_{82}$

Die Radon-222-Produktionsrate wird durch das Gleichgewicht zwischen dem Mutterisotop Radium ( $t_{1/2}^{\text{Ra}} = 1600 \text{ a}$ ) und Radon ( $t_{1/2}^{\text{Rn}} = 3,8 \text{ d}$ ) bestimmt. Die Halbwertszeit des Mutterisotops  $t_{1/2}^{\text{Ra}}$  ist im Vergleich zu der des Tochterisotops ( $t_{1/2}^{\text{Rn}}$ ) sehr viel größer ( $t_{1/2}^{\text{Ra}} \gg t_{1/2}^{\text{Rn}}$ ),

sodass das Radon, bezogen auf die Halbwertszeit des Radiums, gewissermaßen sofort zerfällt. Die Radiumaktivität kann auf Grund der relativ langen Halbwertszeit (1600 a) im hier besprochenen Zusammenhang als konstant angesehen werden. Da nur so viele Radonisotope zerfallen können wie durch den Zerfall von Radiumisotopen gebildet werden, sind die Aktivitäten von Mutter- und Tochterisotop gleich (säkulares Gleichgewicht):

$$A_{\text{Ra}} = A_{\text{Rn}} \quad [5]$$

$A_{\text{Ra}}$  = Radiumaktivität =  $\lambda_{\text{Ra}} N_{\text{Ra}}$  (vgl. [1]) [Bq]

$A_{\text{Rn}}$  = Radonaktivität =  $\lambda_{\text{Rn}} N_{\text{Rn}}$  (vgl. [1]) [Bq]

$\lambda_{\text{Ra}}$  = Zerfallskonstante von Radium [ $\text{Z s}^{-1}$ ]

$\lambda_{\text{Rn}}$  = Zerfallskonstante von Radon [ $\text{Z s}^{-1}$ ]

$N_{\text{Ra}}$  = Anzahl der Radiumatome

$N_{\text{Rn}}$  = Anzahl der Radonotope

Bei Aktivitäten ist gemäß der Strahlenschutzverordnung (StrlSchV, 2001) festzulegen, auf welche Größe (Gesamtaktivität [Bq], Masse [ $\text{Bq kg}^{-1}$ ], Volumen [ $\text{Bq m}^{-3}$ ]) sich die Aktivität bezieht. Aktivität bezogen auf die Masse der Matrix erhält die Bezeichnung spezifische Aktivität, Aktivität bezogen auf das Volumen den Namen Aktivitätskonzentration (StMUGV, 2003). Im Folgenden werden sowohl auf die Masse bezogene (spezifische) Aktivitäten als auch volumenbezogene Aktivitäten als Konzentrationen bezeichnet.

## 2.2 Entstehung und Zerfall von Radon in Böden

### 2.2.1 Radonentstehung (Emanation)

Der Vorgang der Freisetzung von Radon aus einer mineralischen Matrix in den Porenraum wird als Emanation bezeichnet. Der Anteil der aus der Mineralmatrix in den Porenraum freigesetzten Radonotope an der Anzahl der insgesamt im betrachteten Volumen gebildeten Radonotope wird durch den Emanationskoeffizienten  $\varepsilon$  ausgedrückt (Tanner, 1980) und beschreibt die Stärke der Emanation eines Bodens oder Gesteins:

$$\varepsilon = \frac{N^e}{N^p} \quad [6]$$

$\varepsilon$  = Emanationskoeffizient [-]

$N^e$  = Anzahl der emanierenden Radonotope

$N^p$  = Anzahl der produzierten Radonotope

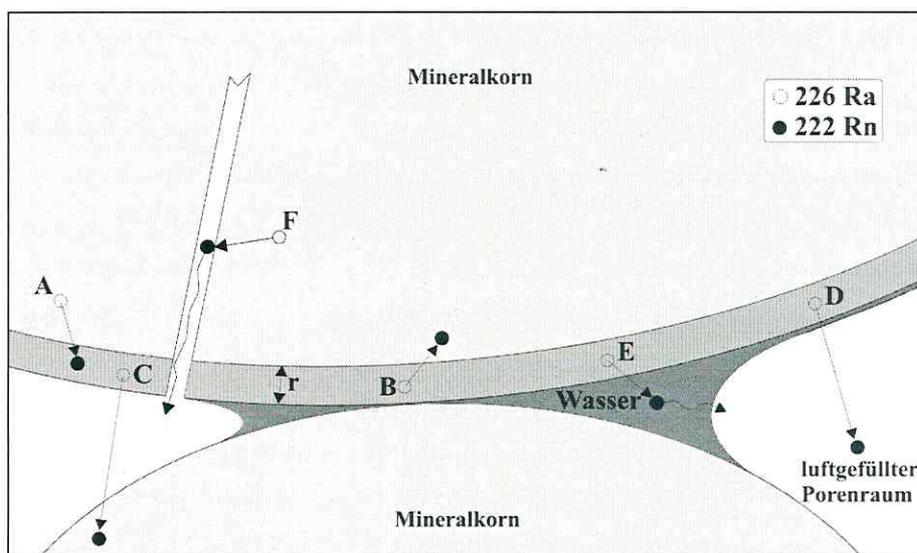
Emanationskoeffizienten für häufig vorkommende Böden und Gesteine liegen in einer Spanne von 0,05 bis 0,7 (Nazaroff, 1992).

Von besonderer Bedeutung für die Stärke der Emanation ist die Verteilung des Radonmutternuklids Radium im Mineralkorn. Beim Alpha-Zerfall des Radiums entfernt sich das entstehende Radonatom durch den dabei auftretenden Rückstoßeffect eine bestimmte Strecke vom Mutternuklid (Abbildung 1). Nach Tanner (1980) beträgt die maximale Rückstoßreichweite  $r$  im Mineralkorn maximal  $0,07 \mu\text{m}$ . Nur wenn der Zerfall innerhalb dieser Distanz vom Rande des Kornes stattfindet und das Radonatom in die Richtung des Porenraums beschleunigt wird, kann Radon in den Porenraum gelangen, ansonsten verbleibt es im Mineralkorn (Abbildung 1, A bzw. B). Durch Verwitterungsprozesse im Boden kann es zur natürlichen Anreicherung von Uran und seinen Folgeprodukten auf Mineralkornoberflächen kommen (Andrews & Wood, 1972; Tanner, 1980). Hierbei werden Uran und Radium als Kopräzipitate in mineralischen Überzügen (Coatings; Andrews & Wood, 1972; Megumi & Mamuro, 1974, 1977; Tanner, 1980; Purtscheller et al., 1995) in Form von Eisen- und Manganoxiden sowie Karbonaten gebunden (Schuman & Gundersen, 1996). Eine weitere Möglichkeit der oberflächigen Uran- und Radiumanreicherung auf Mineralkornoberflächen ergibt sich im Prozess der Uranerzaufbereitung. Die so künstlich mit Uran und Radium angereicherten Rückstände dieser Prozesse werden auch Uran-Tailings genannt. (Diese werden in den Experimenten in Kapitel 3 und 4 in definierten Mischungsverhältnissen mit ursprünglich radiumarmen Sand zur kontrollierten Radiumanreicherung verwendet.) Durch die Konzentration von Uran und/oder Radium auf die äußere Sphäre der Mineralkörner kann nach Sasaki et al. (2004) der Emanationskoeffizient maximale Werte von 0,75 erreichen.

Da das Radonatom im Porenraum weniger stark gebremst wird als in der Mineralmatrix, ist die Rückstoßreichweite im Porenraum größer. Ist der Porenraum mit Luft gefüllt, sind Weglängen bis zu  $63 \mu\text{m}$  möglich (Andrews & Wood, 1972; Tanner, 1980; Wilkening, 1990; Nazaroff, 1992). Liegen die Körner sehr dicht aneinander, schlägt gegebenenfalls ein in den luftgefüllten Porenraum gelangtes Radonatom wieder in das benachbarte Korn ein (Abbildung 1, C) und geht somit der Emanation wieder verloren. Im Wasser können Radonatome rückstoßbedingt Weglängen von etwa  $0,1 \mu\text{m}$  zurücklegen (Tanner 1980). Ein Wasserfilm auf der Oberfläche der Mineralmatrix bremst daher die Radonatome, sodass sie im luftgefüllten Porenraum (Abbildung 1, D) oder im Porenwasser (Abbildung 1, E) verbleiben. Geringe Gehalte an Flüssigkeiten im Boden erhöhen daher deutlich den Emanationskoeffizient des Bodens (Serdyokova & Kapitanov, 1978; Stranden et al., 1984; Uchdorf, 1990). In Experimenten mit unterschiedlichen Wassersättigungen ermittelten van der Spoel et al. (1999) für einen Sand eine deutliche Erhöhung des Emanationskoeffizienten für einen Anstieg des

Porenwassergehalts von 0 auf 0,5%. Höhere Wassergehalte ließen keine konsistente Beeinflussung des Emanationskoeffizienten erkennen.

Innerkristalline Wegsamkeiten vergrößern die effektive Kornoberfläche und erhöhen die Freisetzung von Radon in den Porenraum (Abbildung 1, F).



**Abbildung 1:** Schematische Darstellung der Radon-Emanation im Porenmaßstab des porösen Mediums (verändert nach Tanner, 1980). Der Weg eines neu entstandenen Radon-Atoms ist durch einen Pfeil gekennzeichnet. Die maximale Rückstoßreichweite  $r$  im Mineralkorn bildet die für die Emanation entscheidende äußere Sphäre. Diese ist im oberen Korn beispielhaft mittelgrau markiert.

Weiterhin ist das Korngrößenspektrum ein wichtiger Faktor für die Stärke der Emanation. So sind Böden gegenüber Gesteinen bessere Emanatoren, da die innere Oberfläche größer ist und somit mehr Fläche für die Emanation zur Verfügung steht.

Für die sich im Porenraum eines abgeschlossenen Systems einstellende Radongleichgewichtskonzentration  $C_L^{\infty}$  sind neben dem Emanationskoeffizienten  $\epsilon$  die Trockendichte des Bodens  $\rho$ , die Radiumkonzentration der mineralischen Matrix  $C_{\text{Ra}}$  sowie die Porosität  $n$  von entscheidender Bedeutung. In der Bodenluft liegt die Radonkonzentration im Normalfall zwischen ca. 10 und 40 kBq/m<sup>3</sup> (Lau et al., 2004). Die genannten Parameter gehen in [7] ein (Gast & Stolz, 1982), in der sich die Radongleichgewichtskonzentration für einen luftgefüllten Porenraum (Index L) folgendermaßen darstellt:

$$C_L^\infty = \frac{\varepsilon C_{Ra} \rho}{n} \quad [7]$$

$C_L^\infty$  = Radongleichgewichtskonzentration in der Porenluft [Bq m<sup>3</sup>]

$\varepsilon$  = Emanationskoeffizient [-]

$C_{Ra}$  = Radiumaktivität der Mineralmatrix [Bq kg<sup>-1</sup>]

$\rho$  = Trockendichte des Mediums [kg cm<sup>-3</sup>]

$n$  = Porosität [m<sup>3</sup><sub>Poren</sub> m<sup>-3</sup><sub>Medium</sub>]

Enthält der Porenraum mehrere Fluidphasen (z. B. gasförmig und flüssig), gibt man Sättigungen  $S_F$  und Porositäten  $n_F$  der beteiligten Phasen F wie folgt an:

$$S_F = \frac{V_F}{V_{\text{Poren}}} \quad [8]$$

$S_F$  = Sättigung der Fluidphase [m<sup>3</sup><sub>Fluid</sub> m<sup>-3</sup><sub>Poren</sub>]

$V_F$  = von einer Fluidphase eingenommenes Porenvolumen [m<sup>3</sup><sub>Fluid</sub>]

$V_{\text{Poren}}$  = Gesamtvolumen der Poren [m<sup>3</sup><sub>Poren</sub>]

Die Sättigung entspricht dem Raum, den die Phase bezogen auf das Gesamtvolumen der Poren einnimmt, wobei die Summe aller Sättigungen eins ist:

$$\sum_{F=1}^u S_F = 1 \quad [9]$$

$u$  = Anzahl der Phasen

Die mit einer Fluidphase gefüllte Porosität entspricht dem Hohlraum, der bezogen auf das Gesamtvolumen des Mediums (z. B. Boden) von der Phase eingenommen wird:

$$n_F = \frac{V_F}{V_{\text{Medium}}} = S_F n \quad [10]$$

$n_F$  = mit einer Fluidphase F gefüllte Porosität [m<sup>3</sup><sub>Fluid</sub> m<sup>-3</sup><sub>Medium</sub>]

$V_{\text{Medium}}$  = Gesamtvolumen des Mediums [m<sup>3</sup><sub>Medium</sub>]

Im Falle eines signifikant mit einer flüssigen Phase (Index FL) gefüllten Porenanteils muss dieser in [7] entsprechend [11] berücksichtigt werden:

$$n(S_{FL} + S_L) = n_{FL} + n_L \quad [11]$$

$$S_{FL} = \text{Flüssigkeits-Sättigung} [ m_{\text{Flüssigkeit}}^3 m_{\text{Poren}}^{-3} ]$$

$$S_L = \text{Luft-Sättigung} [ m_{\text{Luft}}^3 m_{\text{Poren}}^{-3} ]$$

$$n_{FL} = \text{flüssigkeitsgefüllte Porosität} [ m_{\text{Flüssigkeit}}^3 m_{\text{Medium}}^{-3} ]$$

$$n_L = \text{luftgefüllte Porosität} [ m_{\text{Luft}}^3 m_{\text{Medium}}^{-3} ]$$

Setzt man [11] in [7] ein, erhält man nach Umstellung:

$$C_{FL}^{\infty} n(S_{FL} + S_L) = C_{FL}^{\infty} n_{FL} + C_L^{\infty} n_{S_L} = \varepsilon C_{Ra} \rho \quad [12]$$

$$C_{FL}^{\infty} = \text{Radongleichgewichtskonzentration in der Flüssigkeit [Bq m}^{-3}\text{]}$$

Durch die Flüssigphase wird erstens der luftgefüllte Porenraum verringert und zweitens geht Radon in dieser Flüssigkeit in Lösung. Die Affinität des Radons zur jeweiligen Flüssigkeit wird im Gleichgewicht durch den Verteilungskoeffizienten  $K_{FL/L}$  quantifiziert. Es gilt:

$$C_{FL}^{\infty} = K_{FL/L} C_L^{\infty} \quad [13]$$

$$K_{FL/L} = \text{Radon-Verteilungskoeffizient zwischen Flüssigkeit und Luft [-]}$$

Setzt man [13] in [12] ein, erhält man:

$$K_{FL/L} C_L^{\infty} n_{S_{FL}} + C_L^{\infty} n_{S_L} = C_L^{\infty} n(K_{FL/L} S_{FL} + S_L) = \varepsilon C_{Ra} \rho \quad [14]$$

bzw.:

$$C_L^{\infty} = \frac{\varepsilon C_{Ra} \rho}{n(K_{FL/L} S_{FL} + S_L)} = \frac{\varepsilon C_{Ra} \rho}{n_e} \quad [15]$$

$$n_e = n(K_{FL/L} S_{FL} + S_L) = \text{scheinbare Porosität [-]}$$

Bei der Neubildung von Radon ist die Konzentrationsänderung pro Zeiteinheit (Emanationsrate  $\Phi$ ) proportional der Gleichgewichtskonzentration im Porenraum. Der Proportionalitätsfaktor ist die Zerfallskonstante von Radon  $\lambda$ :

$$\Phi = \frac{dC}{dt} = \lambda (C^{\infty} - C_t) = \lambda \frac{\varepsilon C_{Ra} \rho}{n_e} \quad [16]$$

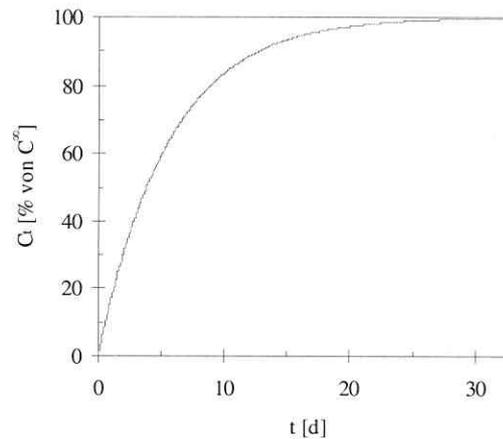
$$\Phi = \text{Emanationsrate [Bq m}^{-3} \text{s}^{-1}\text{]}$$

In Analogie zur Herleitung des Zerfallsgesetzes [2] aus [1], erhält man durch Integration von [16] unter der Randbedingung  $C(t=0) = C_0$ :

$$C_t = C^\infty(1 - e^{-\lambda t}) \quad [17]$$

$C_t$  = Radonkonzentration zum Zeitpunkt  $t$  [ $\text{Bq m}^{-3}$ ]

Der sich nach [17] ergebene theoretische Aufbau der Radonkonzentration in einem abgeschlossenen System bis zur Einstellung des Gleichgewichtszustandes in Abhängigkeit von der Zeit ist in Abbildung 2 dargestellt. Die Konzentration nähert sich exponentiell der Gleichgewichtskonzentration.



**Abbildung 2:** Verlauf der Radonkonzentration als Folge der Emanation in einem abgeschlossenen System mit einer anfänglichen Radonkonzentration von  $C_0 = 0$  und einer Gleichgewichtskonzentration von  $C^\infty = 100\%$ .

### 2.2.2 Radonzerfall

Beim radioaktivem Zerfall ist die Konzentrationsänderung von Radon pro Zeiteinheit ( $I$ ) proportional zur aktuellen Radonkonzentration. Der Proportionalitätsfaktor ist das Negative der Zerfallskonstante von Radon  $\lambda$ :

$$I = \frac{\partial C}{\partial t} = -\lambda C \quad [18]$$

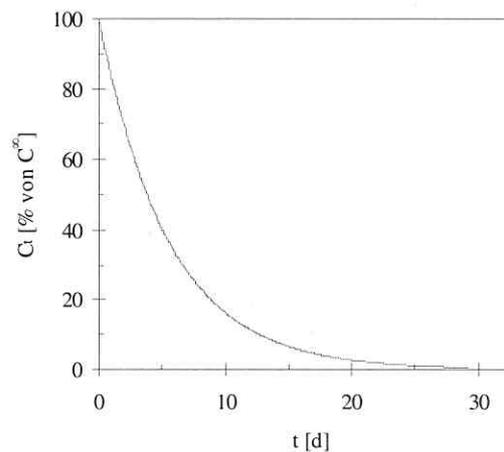
$I$  = Zerfallsrate [ $\text{Bq m}^{-3} \text{s}^{-1}$ ]

Durch Integration unter der Randbedingung  $C(t_0) = C_0$  lässt sich [18] umformen zu:

$$C_t = C_0 e^{-\lambda t}$$

[19]

Der sich nach [19] ergebene theoretische Verlauf des radioaktiven Zerfalls in Abhängigkeit von der Zeit ist in Abbildung 3 dargestellt. Die Konzentration verringert sich exponentiell.



**Abbildung 3:** Verlauf der Radonkonzentration als Folge von Radonzerfall in einem abgeschlossenen System mit einer anfänglichen Radonkonzentration von  $C_0 = 100\%$ .

## 2.3 Löslichkeit von Radon in organischen Flüssigphasen

### 2.3.1 Theorie der regulären Lösung

Zur Beschreibung des Verteilungsverhaltens von Radon gelöst in Flüssigphasen und der in Kontakt mit der Flüssigkeit stehenden Bodenluft kann auf die „Theorie der regulären Lösung“ von Hildebrand und Scatchard zurückgegriffen werden (Hildebrand, 1929; Scatchard, 1931). Nach dieser Theorie werden die Moleküle der beteiligten Komponenten im Lösungsprozess voneinander separiert, sodass keine Wechselwirkungen mehr zwischen den Teilchen stattfinden bzw. der Teilchenabstand als unendlich groß betrachtet wird, was in etwa dem Verdampfungsprozess entspricht. Der Quotient aus Verdampfungsenergie und molarem Volumen einer (reinen) Flüssigkeit ist ein Maß für die Energie, die aufgebracht werden muss, um die zu lösende Substanz im Lösungsmittel aufnehmen zu können. Die Wurzel aus diesem Quotienten wird nach dem amerikanischen Physiker JOEL HILDEBRAND auch als Hildebrandscher Löslichkeitsparameter oder kurz Hildebrand-Parameter  $\delta$  bezeichnet und dient zur Beschreibung physikochemischer Wechselwirkungen zwischen verschiedenen Lösungen ([20], Prausnitz et

al., 1986; Barton, 1991).  $\delta$  ist eine charakteristische Maßzahl für die Kohäsionskräfte zwischen den einzelnen Molekülen einer bestimmten Flüssigphase.

$$\delta = \left( \frac{\Delta H_V - RT}{V_m} \right)^{\frac{1}{2}} = c^{\frac{1}{2}} \quad [20]$$

- $\delta$  = Hildebrand-Parameter  $[(\text{J m}^{-3})^{1/2} = \text{Pa}^{1/2}]$
- $\Delta H_V$  = molare Verdampfungsenthalpie des Lösungsmittels  $[\text{J mol}^{-1}]$
- $R$  = Gaskonstante  $[\text{J K}^{-1} \text{mol}^{-1}]$
- $T$  = Temperatur  $[\text{K}]$
- $V_m$  = molares Volumen  $[\text{m}^3 \text{mol}^{-1}]$
- $c$  = Dichte der Kohäsionsenergie  $[\text{J m}^{-3}]$

Wenn eine Lösung mit einem hohen Hildebrand-Parameter mit einer Lösung mit niedrigem  $\delta$  gemischt werden soll, ist dazu mehr Energie notwendig als durch den Mischungsprozess gewonnen wird. Der energetisch ungünstige Charakter dieser Reaktion führt zur Nicht-Mischbarkeit der Lösungen. Die Moleküle zweier Lösungen mit gleich hohem Hildebrand-Parameter erhalten demgegenüber ausreichend Energie, um die Mischung der Komponenten zu ermöglichen.

Um die Theorie der regulären Lösung auch auf Gase und damit auf Radon anwendbar zu machen, können nach Prausnitz et al. (1986) Gase als hypothetische Flüssigphasen unter normalen Druck- und Temperaturverhältnissen angenommen werden. Bei der Betrachtung der Lösung von Gasen in Flüssigkeiten kann festgestellt werden, dass ein Gas dann eine hohe Löslichkeit in einer Flüssigphase aufweist, wenn der Hildebrand-Parameter des gelösten Gases dem des Lösungsmittels sehr nahe kommt (Steinberg & Manowitz, 1959).

Mit einer Verdampfungsenthalpie ( $\Delta H_V$ ) von  $16.400 \text{ J mol}^{-1}$  und einem molaren Volumen ( $V_m$ ) von  $50,5 \times 10^{-6} \text{ m}^3 \text{ mol}^{-1}$  ergibt sich für Radon unter Normalbedingungen ( $T = 273,15 \text{ K}$  und  $P = 101,325 \text{ kPa}$ ; Weigel, 1978; Stein, 1983; Cothorn, 1987; Wilkening, 1990) eine kohäsive Energiedichte ( $c$ ) von  $325 \text{ MJ m}^{-3}$  bzw. ein Hildebrandparameter ( $\delta$ ) von  $18,11 \text{ MPa}^{1/2}$ . Vergleicht man die in Tabelle 2 aufgeführten Hildebrand-Parameter einzelner Flüssigphasen mit dem von Radon, so ist eine gute Übereinstimmung von  $\delta$  verschiedener NAPL (Benzol, Toluol, Xylol, Olivenöl) und Radon erkennbar, wogegen  $\delta$  des Ethanol, Glycerins und Wassers vergleichsweise weit entfernt von dem des Radons sind. Die Theorie der regulären Lösung geht davon aus, dass die Wechselwirkungen zwischen den beteiligten Stoffen durch das geometrische Mittel der Dichte der Kohäsionsenergie gemäß [21] beschrieben werden

kann und temperaturunabhängig ist. Weiterhin geht man von der Annahme aus, dass durch das Lösen keine Volumen- und Entropieänderungen stattfinden.

**Tabelle 2:** Hildebrand-Parameter für Radon, einzelne NAPL und Wasser bei 25°C nach Barton (1991).

Substanz	Hildebrand-Parameter [MPa <sup>1/2</sup> ]
Radon	18,1
Benzol	18,8
Toluol	18,2
Xylol	18,0
Olivenöl	19,4
Ethanol	26,0
Glyzerin	33,7
Wasser	47,9

$$c_{1,2} = (c_1 c_2)^{1/2} \quad [21]$$

$c_1$  = Dichte der Kohäsionsenergie von Stoff 1 [J m<sup>-3</sup>]

$c_2$  = Dichte der Kohäsionsenergie von Stoff 2 [J m<sup>-3</sup>]

$c_{1,2}$  = geometrisches Mittel der Energiedichte der Stoffe 1 und 2 [J m<sup>-3</sup>]

Die thermische Bewegung sorgt für eine rein zufällige Verteilung der gelösten Moleküle in der Lösung.

Die genannten Beziehungen lassen sich auch zur Beschreibung der Radonlöslichkeit in Gemischen aus mehreren bekannten NAPL-Komponenten nutzen. Es ist jedoch zu beachten, dass hier spezielle Mischungseffekte zur Abweichung von den theoretisch zu erwartenden Ergebnissen führen können (Barton, 1991), auf die hier aber nicht näher eingegangen werden soll. In diesen Fällen muss der Verteilungskoeffizient von Radon in den beteiligten Lösungsgemischen experimentell bestimmt werden (vgl. Kapitel 3). Grundsätzlich können jedoch die theoretischen Ansätze zum besseren Verständnis der dem Verteilungsverhalten von Radon zwischen Luft und NAPL zugrunde liegenden Prozesse dienen.

Für Mehrkomponentengemische ergibt sich der effektive Löslichkeitsparameter  $\bar{\delta}$  aus der Summe der Produkte aus den Volumenanteilen  $\phi$  und den Löslichkeitsparametern  $\delta$  der Einzelkomponenten:

$$\bar{\delta} = \sum_{i=1}^n \phi_i \delta_i \quad [22]$$

Ein Gas sollte demnach vollständig in einem Flüssigkeitsgemisch löslich sein, wenn es durch das Mischen der Volumenanteile der Einzelkomponenten der Flüssigkeit  $\phi_i$  zu einer Annäherung des effektiven Hildebrand-Parameters der Flüssigkeit ( $\bar{\delta}$ ) an den Hildebrand-Parameter des Gases ( $\delta_g$ ) kommt, also  $\delta_g \approx \bar{\delta}$ .

### 2.3.2 Radon-Verteilungskoeffizient

Radon ist grundsätzlich chemisch inert (stabile Elektronenkonfiguration). Es kann jedoch durch flüssige und feste Phasen sorbiert werden. Neben der vergleichsweise schlechten Löslichkeit von Radon in Wasser ist hier vor allem die Löslichkeit in NAPL von Interesse. Ursache der Aufnahme von Radon durch NAPL sind die bereits mithilfe der Theorie der regulären Lösung beschriebenen Wechselwirkungen zwischen Radonatomen und den Molekülen der NAPL.

Die Zeit, die zur Einstellung des Radonverteilungsgleichgewichts zwischen Luft und Wasser im Porenraum benötigt wird, liegt nach Schütz (1994) im Bereich von wenigen Sekunden. Dies ist auf die kurzen Distanzen zurückzuführen, die Radon für den Gasaustausch im Porenraum diffusiv zurücklegen muss. Das heißt, dass die Kinetik der Lösung des Radons im Porenwasser (Nazaroff, 1992) oder in einer NAPL mit vergleichbarem Diffusionskoeffizienten praktisch vernachlässigt werden kann. Die Radonkonzentration einer Wasser- oder NAPL-Phase im porösen Medium kann somit immer als im Verteilungsgleichgewicht mit der Radonkonzentration in der Porenluft betrachtet werden. Es wird keine Unterscheidung zwischen Atmosphären- und Bodenluft vorgenommen, da man davon ausgeht, dass sich Radon im System Bodenluft / NAPL genauso wie im System Atmosphärenluft / NAPL verhält. Sowohl Bodenluft als auch Atmosphärenluft wird im Folgenden durch den Index L ausgedrückt.

In einer Gleichgewichtslösung steigt im Allgemeinen die sorbierte Stoffmenge mit wachsender Konzentration der Substanz gegen einen Sättigungswert an. Bei der Lösung von Radon in Wasser oder einer NAPL kann man unter natürlichen Verhältnissen jedoch von sehr kleinen Konzentrationen ausgehen, wodurch ein linearer Zusammenhang zwischen der Radonkonzentration in der Flüssigkeit und der Konzentration in der Luft besteht.

Die spezifische Löslichkeit des Radons im Verteilungsgleichgewicht mit einer NAPL lässt sich experimentell über den linearen Verteilungskoeffizienten von Radon ( $K_{\text{NAPL/L}}$ ) zwischen einer NAPL und Luft quantifizieren, der durch den Quotienten der Radonkonzentration in der NAPL ( $C_{\text{NAPL}}$ ) und in der mit der NAPL in Kontakt stehenden Luft ( $C_L$ ) definiert ist:

$$K_{\text{NAPL/L}} = \frac{C_{\text{NAPL}}}{C_{\text{L}}} \quad [23]$$

Analog dazu gilt für den Radon-Verteilungskoeffizienten zwischen einer NAPL und Wasser:

$$K_{\text{NAPL/W}} = \frac{C_{\text{NAPL}}}{C_{\text{W}}} \quad [24]$$

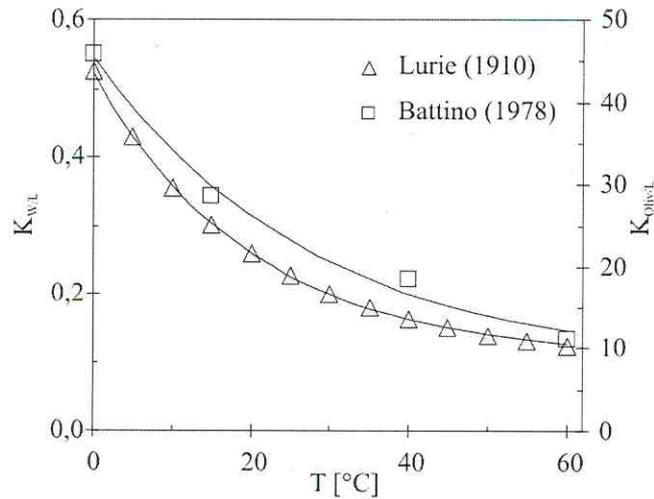
Da der Radon-Verteilungskoeffizient zwischen Wasser und Luft:

$$K_{\text{W/L}} = \frac{C_{\text{W}}}{C_{\text{L}}} \quad [25]$$

über ein weites Temperaturspektrum sehr gut untersucht und dokumentiert ist (Clever 1979), lässt sich  $K_{\text{NAPL/L}}$  auch durch Verbinden von [24] und [25] berechnen als:

$$K_{\text{NAPL/L}} = K_{\text{NAPL/W}} K_{\text{W/L}} = \frac{C_{\text{NAPL}}}{C_{\text{W}}} \frac{C_{\text{W}}}{C_{\text{L}}} = \frac{C_{\text{NAPL}}}{C_{\text{L}}} \quad [26]$$

Im Fall des linearen Zusammenhangs wird, in Anlehnung an den Henryschen Satz über die Lösung von Gasen in flüssigen Phasen, der Verteilungskoeffizient auch Henry-Konstante oder -Koeffizient genannt. Ein bestimmter Wert dieses Koeffizienten gilt für eine konstante Temperatur, d. h. für isotherme Verhältnisse. Um den Verteilungskoeffizienten später im numerischen Modell zu parametrisieren, werden an die für diskrete Temperaturen gemessenen Werte für Wasser (Battino, 1978) und Olivenöl (Lurie, 1910) exponentielle Regressionsfunktionen angenähert. Diese sind in Abbildung 4 für den dokumentierten Temperaturbereich graphisch dargestellt. Daraus wird ersichtlich, dass die Radonkonzentration in der flüssigen Phase umgekehrt proportional zur Temperatur ist. In Clever (1979) sind für Radon zahlreiche experimentell ermittelte Werte für  $K_{\text{W/L}}$  zusammengefasst. Er liegt bei Raumtemperatur etwa bei 0,26, während der Verteilungskoeffizient zwischen verschiedenen NAPL und Luft ( $K_{\text{NAPL/L}}$ ) mit Werten zwischen etwa 10 und 20 deutlich höher liegt. Dies demonstriert die sehr gute Löslichkeit von Radon in NAPL gegenüber der in Wasser. Einige in der Literatur dokumentierte Werte für  $K_{\text{W/L}}$  und  $K_{\text{NAPL/L}}$  sind Tabelle 3 zu entnehmen.



**Abbildung 4:** Verteilungskoeffizient von Radon zwischen Wasser und Luft ( $K_{W/L}$ ) bzw. Olivenöl und Luft ( $K_{Oliv/L}$ ) in Abhängigkeit von der Temperatur. Die Messwerte sind durch Dreiecke ( $K_{W/L}$ ) bzw. Rechtecke ( $K_{Oliv/L}$ ) gekennzeichnet. Die Regressionsgleichungen lauten:  $K_{W/L}(T) = 0,1054 + 0,4173e^{-0,0499T}$  mit  $R^2 = 0,99$  bzw.  $K_{Oliv/L}(T) = 7,772 + 37,7533e^{-0,0359T}$  mit ebenfalls  $R^2 = 0,99$ .

**Tabelle 3:** Literaturwerte für Verteilungskoeffizienten (K) zwischen Radon und Wasser sowie verschiedenen NAPL.

Flüssigkeit im Verteilungsgleichgewicht mit Luft	T [°C]	K	<sup>a</sup> Referenz	
Wasser	17,5	0,28	Kofler, 1912	
	18,0	0,29	Ramstedt, 1911	
	20,0	0,23	Hofman, 1905	
		0,25	Boyle, 1911	
		0,26	Szeparowicz, 1920	
Reine NAPL	Hexan (C <sub>6</sub> H <sub>12</sub> )	18,0	16,6	Ramstedt, 1911
	Cyclohexan (C <sub>6</sub> H <sub>12</sub> )	18,0	18,0	Ramstedt, 1911
	Toluol (C <sub>7</sub> H <sub>8</sub> )	14,0	13,7	Boyle, 1911
		18,0	13,2	Ramstedt, 1911
		20,0	11,8	Hofman, 1905
		11,8	Lurie, 1910	
Xylol (C <sub>8</sub> H <sub>10</sub> )	18,0	12,8	Lurie, 1910	
		15,4	Ramstedt, 1911	
NAPL-Gemische	Benzin	20,0	13,2 ± 1,5	Schubert, 2001
	Diesel	12,0	13,2	Hunkeler et al. 1997 b
		20,0	10,0 ± 0,3	Schubert, 2001
			11,4 ± 1,2	Schubert, 2001
	Petroleum	20,0	9,0	Lurie, 1910
	9,6	Hofman, 1905		
	10,6 ± 2,1	Schubert, 2001		

<sup>a</sup>alle Referenzen außer Schubert (2001) aus Clever (1979)

### 3 Experimente zur Bestimmung des Radon-Verteilungskoeffizienten

#### 3.1 Einleitung

Der Verteilungskoeffizient von Radon zwischen einer NAPL und der Bodenluft ( $K_{\text{NAPL/L}}$ ) ist die entscheidende Größe dafür, wie stark Radon im Fall einer Bodenverunreinigung der Bodenluft entzogen und in der NAPL angereichert wird. In der Literatur sind Radon-Verteilungskoeffizienten bisher entweder nur für reine NAPL (Clever, 1979) oder für Gemische dokumentiert, die hinsichtlich ihrer NAPL-Komponenten nicht definiert sind (Clever, 1979, Hunkeler et al. 1997, Schubert, 2001).

Bei realen Schadensfällen, wie sie häufig auf dem Gelände von Tankstellen oder Tanklagern angetroffen werden, sind zumeist NAPL-Gemische wie Benzin, Diesel oder Petroleum beteiligt. Diese Gemische bestehen aus mehreren Komponenten. Die Zusammensetzungen sind zum Teil starken Schwankungen unterworfen, was auf das jeweilige Rohöl und dessen Raffination zurückzuführen ist (Schubert, 2001). Für Gemische wie Benzin, Diesel und Petroleum sind zwar Verteilungskoeffizienten veröffentlicht (vgl. Tabelle 4), aufgrund der Variabilität der Zusammensetzungen sind diese Ergebnisse jedoch nur schwer reproduzierbar.

Ziel der Untersuchungen ist es, die Verteilungskoeffizienten von Radon zwischen in ihrer Zusammensetzung bekannten NAPL-Gemischen, die im wesentlichen Benzin, Diesel bzw. Petroleum entsprechen, und Luft ( $K_{\text{NAPL/L}}$ ) reproduzierbar und hinreichend genau zu bestimmen. Im Rahmen der Auswertung der Ergebnisse wird geprüft, ob die ermittelten Verteilungskoeffizienten durch das Modell der regulären Lösung (Kapitel 2.3.1) erklärt werden können. Für NAPL-Gemische, deren Verteilungskoeffizient  $K_{\text{NAPL/L}}$  unbekannt und deren (typische) Zusammensetzung nachvollziehbar ist, könnten damit theoretische Abschätzungen zum Lösungsverhalten von Radon durchgeführt werden.

Die Bestimmung des Verteilungskoeffizienten von Radon zwischen einer NAPL und der Bodenluft erfolgte durch zwei verschiedene Methoden: Zum einen durch sogenannte Mischungsexperimente und zum anderen durch Durchströmungsexperimente. Zu diesen Experimenten werden nachfolgend in gesonderten Kapiteln jeweils die verwendeten Materialien und Methoden erläutert sowie die Ergebnisse vorgestellt und anschließend diskutiert.

## 3.2 Mischungsexperimente

### 3.2.1 Material und Methoden

Der Verteilungskoeffizient von Radon zwischen der NAPL und Luft ( $K_{NAPL/L}$ ) wurde hier nicht direkt bestimmt. Es erfolgte zunächst die experimentelle Bestimmung von  $K_{NAPL/W}$ . Da der Koeffizient  $K_{W/L}$  gut untersucht und in der Literatur dokumentiert ist, wird  $K_{NAPL/L}$  dann berechnet als:

$$K_{NAPL/L} = K_{NAPL/W} \cdot K_{W/L} \quad [27]$$

Die Bestimmung der NAPL-spezifischen Verteilungskoeffizienten  $K_{NAPL/W}$  erfolgte zunächst mithilfe von Mischungsexperimenten. Als NAPL dienten die oben angesprochenen und für die Experimente selbst hergestellten Gemische Benzin, Diesel und Petroleum. Zur Kontrolle der Ergebnisse wurde auch eine Messreihe mit Toluol durchgeführt, dessen Verteilungskoeffizient  $K_{Tol/L}$  gut untersucht und in der Literatur vielfach dokumentiert ist. Durch Vergleich der in den Mischungsexperimenten ermittelten Koeffizienten  $K_{Tol/L}$  mit den entsprechenden Literaturdaten können die Messergebnisse der NAPL-Gemische verifiziert werden. Die Benzin-, Diesel- und Petroleumgemische wurden nach ARAL (2000) bzw. Merck KgaA (2000) zusammengesetzt (Tabelle 4).

**Tabelle 4:** Anteil (%) einzelner Substanzen an den selbst hergestellten NAPL-Gemischen Benzin, Diesel und Petroleum nach ARAL (2000) bzw. Merck KgaA (2000).

Substanz	Substanzklasse	Benzin	Diesel	Petroleum
2,4,4-Trimethylpentan (Isooctan)	Alkan	50		
Hexadecan	Alkan		60	33
1,2-Dimethylcyclohexan	Cykloalkan		15	33
2,4,4-Trimethyl-2-penten	Alken	10		
1-Hexadecen	Alken			33
1,2-Dimethylbenzol (o-Xylol)	Monoaromat	40	20	
1-Methylnaphtalin	Diaromat		5	

Um die Untersuchungsergebnisse der Mischungsexperimente statistisch abzusichern, wurden mit jeder der untersuchten NAPL vier separate Experimente durchgeführt. Als Radonquellmaterial wurden vier radonhaltige Wässer mit unterschiedlichen Radonkonzentrationen verwendet. Dementsprechend erhält man für den NAPL-spezifischen Verteilungskoeffizienten  $K_{NAPL/W}$  vier Wertepaare der Radonkonzentrationen in der NAPL ( $C_{NAPL}$ ) im Verteilungsgleichgewicht mit der im jeweiligen Wasser ( $C_{WX}$ ). Jedes der Mischungsexperimente wurde nach dem im Folgenden beschriebenen Versuchsablauf durchgeführt.

Zunächst erfolgte die Bestimmung der Ausgangsradonkonzentration in dem jeweils als Radonquellmaterial verwendeten Wasser ( $C_{W0}$ ) mithilfe der Flüssigszintillation (Freyer et al., 1997). Das Radon wird über Mischung mit einer geeigneten Szintillatorlösung dem Wasser entzogen und in dieser angereichert. Im Flüssigkeitsszintillationsspektrometer wird die Konzentration der mit Radon angereicherten Szintillatorlösung gemessen. Die Konzentration im Wasser wird, wie nachfolgend noch erläutert wird, über den bekannten szintillatorspezifischen Verteilungskoeffizienten  $K_{Szin/W}$  berechnet.

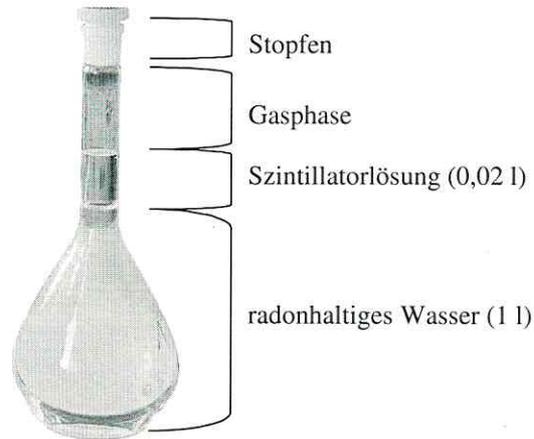
Die Szintillatorlösung besteht aus dem Lösungsmittel Toluol und dem eigentlichen Szintillator, für den ein handelsüblicher Cocktail mit 5 g PPO (2,5 diphenyloxazol) und 0,1 g POPOP (1,4-Di[2-(5-phenyloxazolyl)]-benzol) pro Liter verwendet wurde (Fa. Packard BioScience, Groningen, Niederlande). Der Szintillator dient zum Nachweis der mit dem Zerfall der Radonnuclide einhergehenden Alpha-Strahlung. Die Szintillatormoleküle werden durch die Alphastrahlung angeregt und erzeugen einen Lichtblitz, der auf eine Photokathode fällt und von Photomultipliern in ein elektrisches Signal umgewandelt wird.

Zur Bestimmung des als Radonquellmaterial verwendeten Wassers ( $C_{W0}$ ) wurde ein definiertes Wasservolumen ( $V_W = 1$  l) in einem Glaskolben mit einem definierten Volumen der Szintillatorlösung ( $V_{Szin} = 0,02$  l) überschichtet (Abbildung 5). Der befüllte Glaskolben wurde gut verschlossen, um ein unkontrolliertes Entweichen von Radon aus dem System auszuschließen. Das Radoninventar ( $C_{W0}V_W$ ) im abgeschlossenen System des Maßkolbens wird allein durch das im Wasservolumen enthaltene Radon zur Verfügung gestellt und verteilt sich entsprechend der Volumenanteile des Wassers  $V_W$  und der Szintillatorlösung  $V_{Szin}$  nach [28] auf die beteiligten Phasen.

$$C_{W0}V_W = C_{WX}V_W + C_{Szin}V_{Szin} \quad [28]$$

Die beiden Phasen wurden mithilfe eines Überkopfschüttlers für etwa 20 Minuten bei niedriger Umdrehungszahl (ca.  $10 \text{ U min}^{-1}$ ) intensiv vermischt. Im Zuge des Mischungsvorgangs verteilt sich das Radoninventar gemäß dem szintillatorspezifischen Verteilungskoeffizienten  $K_{Szin/W}$  zwischen den Phasen gemäß [29]:

$$K_{Szin/W} = \frac{C_{Szin}}{C_{WX}} \quad [29]$$



**Abbildung 5:** Maßkolben mit radonhaltigem Wasser und Szintillator für Mischungsexperimente.

Danach wurde der Glaskolben mit dem Szintillator/Wasser-Gemisch zur möglichst vollständigen Entmischung der Phasen für etwa eine Stunde ruhig stehen gelassen. Nach dieser Ruhephase konnte die Entmischung der Phasen durch eine scharfe Grenzschicht zwischen der farblosen wässrigen und der trüben aufschwimmenden nichtwässrigen Phase nachvollzogen werden. Der Glaskolben wurde vorsichtig geöffnet und das darin befindliche Szintillatorvolumen  $V_{Szin}$  vollständig abgehebert.

Bei der Separation wurde immer darauf geachtet, dass der Luftkontakt des Wassers und eine damit einhergehende unerwünschte Radonabreicherung in die Luft weitestgehend minimiert wurde. Das wurde erreicht, indem der Zeitraum, in dem der Stopfen nicht auf dem Kolben war, so gering wie möglich gehalten wurde.

Die Radonkonzentration der separierten Szintillatorlösung  $C_{Szin}$  wurde anschließend in einem Flüssigkeitsszintillationsspektrometer bestimmt. Da der Verteilungskoeffizient  $K_{Szin/W}$  bekannt ist, berechnet sich die Radonkonzentration des durch die Szintillatorlösung angereicherten Wassers  $C_{Wx}$  durch Umstellen von [29] entsprechend [30]:

$$C_{Wx} = \frac{C_{Szin}}{K_{Szin/W}} \quad [30]$$

In einem zweiten Maßkolben wurden Durchmischung und Separation anstelle der Szintillatorlösung mit einem NAPL-Modellgemisch durchgeführt. Das Radoninventar im Maßkolben

wird wiederum durch das als Radonquellmaterial verwendete Wasser mit  $C_{W0}V_W$  zur Verfügung gestellt und verteilt sich nun gemäß [31] auf die beteiligten Phasen.

$$C_{W0}V_W = C_{WX}V_W + C_{NAPL}V_{NAPL} \quad [31]$$

Durch Mischung der NAPL mit dem Wasser kommt es zu Extraktion von Radon aus dem Wasservolumen. Das Inventar verteilt sich entsprechend dem NAPL-spezifischen Verteilungskoeffizienten  $K_{NAPL/W}$  zwischen den Phasen gemäß:

$$K_{NAPL/W} = \frac{C_{NAPL}}{C_{WX}} \quad [32]$$

Das nach der Ruhephase separierte NAPL-Volumen wurde verworfen. NAPL-Reste, die dem Wasser aufschwammen, wurden mithilfe eines Zellstofftuches abgesaugt. Die Radonkonzentration des durch die NAPL abgereicherten Wassers  $C_{WX}$  wurde durch den oben beschriebenen Vorgang der Flüssigszintillation nach Freyer et al. (1997) bestimmt.

Nach Umstellen von [31] gilt  $C_{NAPL} = \frac{V_W}{V_{NAPL}}(C_{W0} - C_{WX})$ . Substituiert man diesen Ausdruck für  $C_{NAPL}$  in [32] und stellt die Gleichung um, erhält man die Gleichung zur Berechnung des Verteilungskoeffizienten  $K_{NAPL/W}$  im Mischungsexperiment.

$$K_{NAPL/W} = \frac{V_W}{V_{NAPL}} \left( \frac{C_{W0}}{C_{WX}} - 1 \right) \quad [33]$$

Die Radonkonzentration des beteiligten NAPL-Modellgemischs im Verteilungsgleichgewicht mit dem jeweiligen Wasser berechnet sich aus den ermittelten Konzentrationen des (durch die NAPL abgereicherten) Wassers ( $C_{WX}$ ) und dem Verteilungskoeffizienten  $K_{NAPL/W}$ :

$$C_{NAPL} = K_{NAPL/W} C_{WX} \quad [34]$$

### 3.2.2 Ergebnisse

Die Ergebnisse der Mischungsexperimente sind in Tabelle 5 zusammengefasst und Literaturdaten gegenübergestellt. Die Mittelwerte der Verteilungskoeffizienten der untersuchten NAPL in Tabelle 5 liegen innerhalb eines engen Wertespektrums von  $K_{NAPL/W} = 55,0$  bis  $56,6$ .

**Tabelle 5:** In Mischungsexperimenten ermittelte Radonkonzentrationen [ $\text{Bq l}^{-1}$ ] des jeweils verwendeten Wassers ( $C_{\text{WX}}$ ) und der jeweiligen NAPL ( $C_{\text{NAPL}}$ ), daraus berechnete Verteilungskoeffizienten  $K_{\text{NAPL/W}}$  sowie  $K_{\text{NAPL/L}}$  als Mittelwert mit Standardabweichung ( $\mu \pm \sigma$ ) und Vergleich mit Literaturwerten.

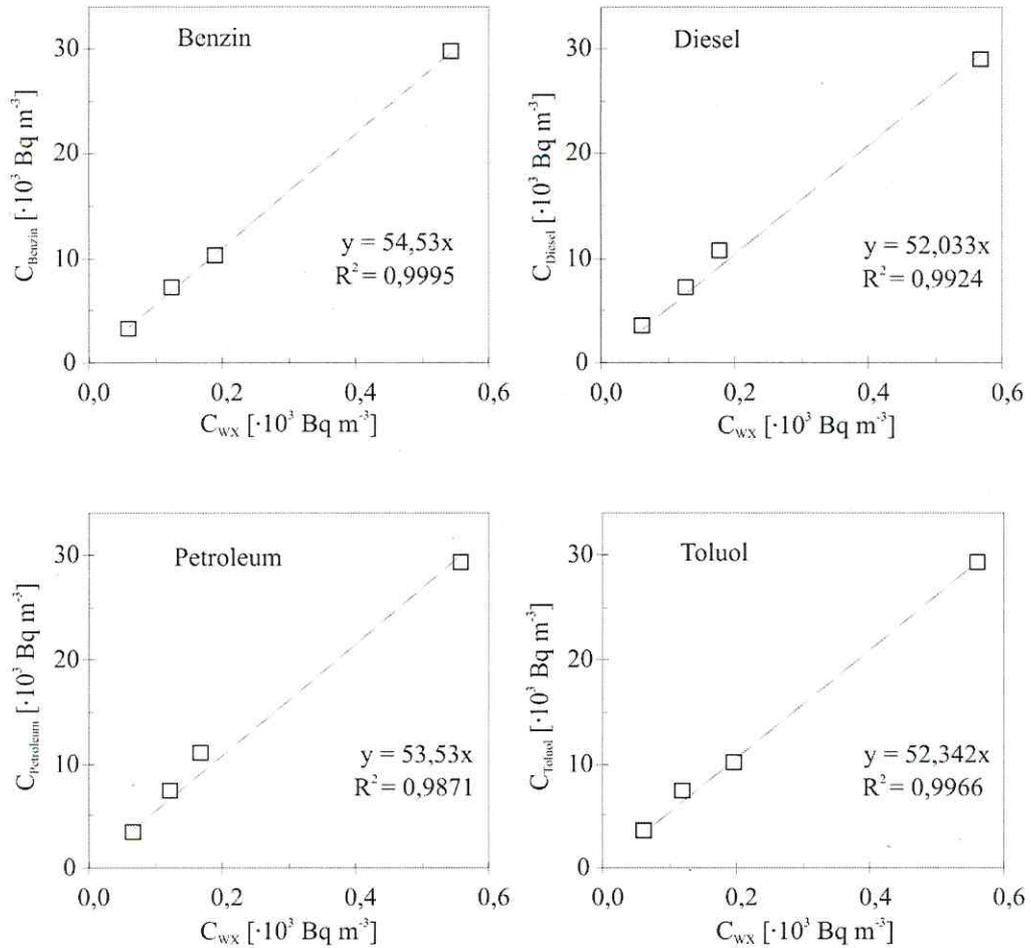
NAPL	$C_{\text{WX}}$	$C_{\text{NAPL}}$	$K_{\text{NAPL/W}}$	<sup>1</sup> $K_{\text{NAPL/L}}$	<sup>2</sup> $K_{\text{NAPL/L}}$	<sup>3</sup> Referenz
Benzin	545	29.695	54,5		13,2 ± 1,5	Schubert (2001)
	192	10.296	53,6			
	125	7.260	58,1			
	61	3.284	53,8			
$\mu \pm \sigma$			55,0 ± 2,1	13,1 ± 0,4		
Diesel	568	28.949	51,0		11,4 ± 1,2	Schubert (2001)
	178	10.742	60,3			
	129	7.145	55,4			
	62	3.597	58,0			
$\mu \pm \sigma$			56,2 ± 4,0	13,4 ± 0,8		
Petroleum	560	29.228	52,2		9,0	Lurie (1910)
	169	11.039	65,3		9,6	Hofman (1905)
	124	7.310	59,0		10,6 ± 2,1	Schubert (2001)
	69	3.432	50,0			
$\mu \pm \sigma$			56,6 ± 7,0	13,5 ± 1,4		
Toluol	561	29.197	52,0		13,2	Ramstedt (1911)
	199	10.065	50,6			
	121	7.392	61,1			
	63	3.564	56,6			
$\mu \pm \sigma$			55,1 ± 4,8	13,1 ± 1,0		

<sup>1</sup>berechnet nach [27] mit  $K_{\text{WL}} = 0,238$  (gültig bei 23°C) nach Clever (1979)

<sup>2</sup>Literaturwerte von Benzin, Diesel und Petroleum für 20°C, der Wert von Toluol gilt für 18°C

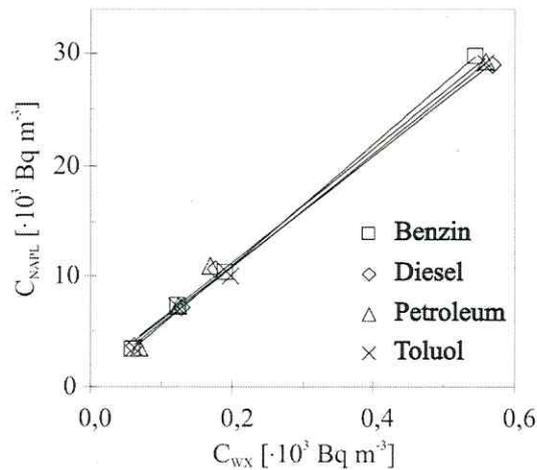
<sup>3</sup>alle Referenzen außer Schubert (2001) aus Clever (1979)

Die Unterschiede zwischen den in den Mischungsexperimenten ermittelten NAPL-spezifischen Verteilungskoeffizienten liegen im Bereich der Standardabweichungen der Mittelwerte. In Abbildung 6 sind die in den Mischungsexperimenten ermittelten Konzentrationen des Wassers und der NAPL gegenübergestellt. Eine andere Methode den Mittelwert zu bilden, ist durch lineare Regression von  $C_{\text{NAPL}}$  und  $C_{\text{WX}}$  in den vier Versuchsreihen. Die durch lineare Regression ermittelten Anstiege (vgl. Regressionsgleichungen in Abbildung 6) entsprechen den in Tabelle 5 berechneten Mittelwerten für  $K_{\text{NAPL/W}}$ . Sie liegen mit 52,0 bis 54,5 etwas, aber nicht wesentlich niedriger als die in der Tabelle. Die vier Einzelbilder aus Abbildung 6 sind in Abbildung 7 zusammengefasst. Sie zeigt, dass die in den Mischungsexperimenten ermittelten Verteilungskoeffizienten für alle NAPL in einem engen Wertebereich liegen.



**Abbildung 6:** Zusammenhang zwischen der Radonkonzentration im Wasser ( $C_{wx}$ ) und in der NAPL ( $C_{\text{Benzin}}$ ,  $C_{\text{Diesel}}$ ,  $C_{\text{Petroleum}}$ ,  $C_{\text{Toluol}}$ ).

Das bedeutet, dass im Fall einer NAPL-Kontamination der ungesättigten Bodenzone die Radonkonzentration der Bodenluft aufgrund der ähnlichen Affinität von Radon gegenüber den betrachteten NAPL-Gemischen Benzin, Diesel und Petroleum nicht signifikant verschieden beeinflusst wird. Eine Identifikation bzw. Unterscheidung der für den jeweiligen Schadensfall relevanten NAPL durch Messung der Radonkonzentration der Bodenluft ist somit nicht möglich.



**Abbildung 7:** Vergleich der NAPL-spezifischen Regressionsgeraden der in den Mischungsexperimenten untersuchten NAPL im Verteilungsgleichgewicht mit Wasser.

### 3.2.3 Diskussion

Der hier für Toluol ermittelte Wert für  $K_{TOL/L}$  von  $13,1 \pm 1,0$  stimmt sehr gut mit dem Literaturwert aus Clever (1979;  $K_{TOL/L} = 13,2$ ) überein. Das spricht für die Richtigkeit der eigenen Vorgehensweise. Die geringe Standardabweichung des Verteilungskoeffizienten für Toluol spricht für die gute Reproduzierbarkeit der eigenen Messwerte.

Die Ergebnisse in Tabelle 6 zeigen auch, dass ähnliche Verteilungskoeffizienten  $K_{NAPL/L}$  bestimmt wurden wie in der Literatur aufgeführt. Direkt lassen sich die eigenen Ergebnisse mit denen von Schubert (2001) vergleichen, da die Versuchsdurchführung ähnlich war. Die hier bestimmten Werte für  $K_{Diesel/L}$  (13,4) bzw.  $K_{Petroleum/L}$  (13,5) weichen von den in Schubert (2001; 10,0 bzw. 10,6) signifikant ab. Eine mögliche Ursache für die niedrigeren Werte bei Schubert (2001) kann in einer unzureichenden Entmischung der Phasen, insbesondere bei Diesel und Petroleum, liegen (pers. Mitteilung). Die in Clever (1979) dokumentierten Werte für  $K_{Petroleum/L}$  (9,0 und 9,6) liegen ebenfalls deutlich unter den eigenen Werten für Petroleum. Die Unterschiede können hier vermutlich auf unterschiedliche Versuchsdurchführungen und Petroleum-Zusammensetzungen zurückgeführt werden, die jedoch nicht im Einzelnen nachvollzogen werden können, da sie in Clever (1979) nicht detailliert dokumentiert sind.

Zur Interpretation der im Mischungsexperiment ermittelten Verteilungskoeffizienten von Radon zwischen Luft und NAPL kann der Hildebrandsche Löslichkeitsparameter  $\bar{\delta}$  für Mehrkomponentengemische (vgl. Kapitel 2.2) herangezogen werden.  $\bar{\delta}$  ergibt sich aus den jeweiligen Volumenanteilen und den Hildebrand-Parametern der Einzelkomponenten nach

[22]. Die so berechneten Hildebrand-Parameter der hier verwendeten Benzin-, Diesel- und Petroleumgemische sind in Tabelle 6 zusammen mit den Volumenanteilen der Einzelsubstanzen und deren Hildebrand-Parameter aufgeführt.

**Tabelle 6:** Hildebrand-Parameter  $\bar{\delta}$  der untersuchten NAPL-Gemische nach Schubert et. al (2007).

Komponente	$\bar{\delta}$ (J cm <sup>-3</sup> ) <sup>1/2</sup>	Anteil (%) einzelner Substanzen am selbst hergestellten Gemisch		
		Benzin	Diesel	Petroleum
2,4,4-Trimethylpentan (Isooctan)	14,051	50		
Hexadecan	15,938		60	33
1,2-Dimethylcyclohexan	16,249		15	33
2,4,4-trimethyl-2-penten	14,980	10		
1-Hexadecen	15,773			33
1,2-Dimethylbenzol (o-Xylol)	18,453	40	20	
1-Methylnaphthalin	20,176		5	
$\bar{\delta}$ [Mpa <sup>1/2</sup> ]		15,9	16,7	15,8

Für die Verbindungen 2,4,4-Trimethylpentan sowie 1,2- Dimethylbenzol lagen keine Daten vor. Da diese Verbindungen in ihrem chemischen Aufbau den Substanzen 2,2,4-Trimethylpentan bzw. o-Xylen ähneln, wurden deren Hildebrand-Parameter für die Berechnung verwendet.

Die Hildebrand-Parameter ( $\bar{\delta}$ ) der verwendeten Mehrkomponentengemische lagen mit 15,8 (Petroleum), 15,9 (Benzin) bzw. 16,7 (Diesel) in der gleichen Größenordnung wie der des Radons (18,1 MPa<sup>1/2</sup>). Die Verteilungskoeffizienten  $K_{NAPL/L}$  in Tabelle 5 lagen, wie die Hildebrand-Parameter der untersuchten NAPL, in einem engen Wertebereich. Das lässt den Schluss zu, dass das Lösungsverhalten von Radon in anderen NAPL oder NAPL-Gemischen mit ähnlichen Hildebrand-Parametern ähnlich ist.

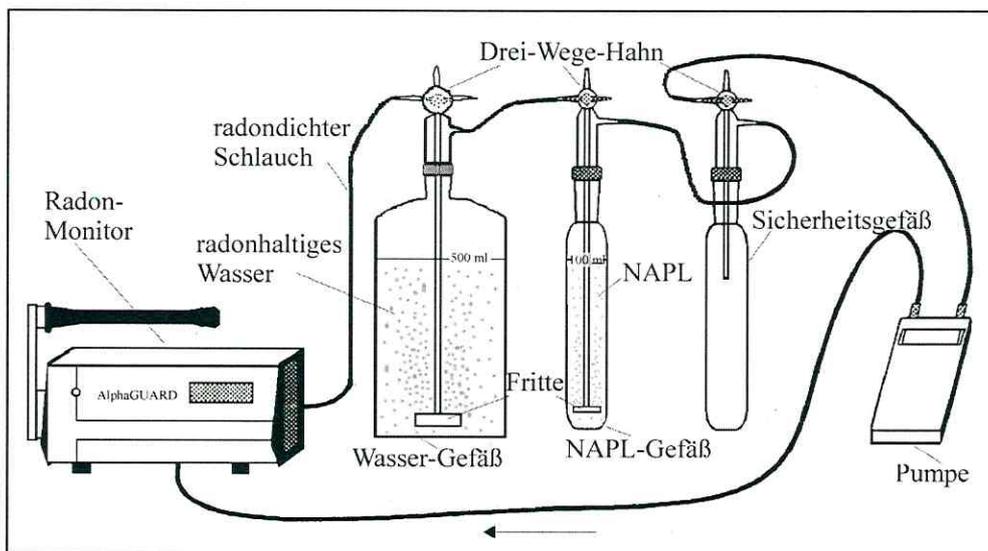
### 3.3 Durchströmungsexperimente

In diesen und später noch vorgestellten Experimenten wurde als zusätzliche NAPL Olivenöl (Kaufland Warenhandel GmbH & Co. KG, Neckarsulm, Deutschland) untersucht. Olivenöl wurde gewählt, da es nicht toxisch und somit für Laborexperimente gut geeignet ist. Außerdem ist seine Viskosität geeignet um die späteren Sand-Kontaminations-Experimente durchzuführen. Zur Bestimmung des Radonverteilungskoeffizienten zwischen Olivenöl und Wasser ist die in Kapitel 3.2 beschriebene Experimentalanordnung der Mischungsexperimente ungeeignet, da Olivenöl relativ gut in Wasser löslich ist und es daher zu keiner bzw.

nur zur unvollständigen Entmischung der wässrigen von der nicht wässrigen Phase kommt (Bildung von Emulsionen). Die Bestimmung des Verteilungskoeffizienten von Radon zwischen Wasser und Olivenöl sowie weiterer wasserlöslicher NAPL, wie z. B. Ethanol, erfordert eine Experimentieranordnung, die Wasser und NAPL separat hält. Zu diesem Zweck wurde eine Messapparatur entwickelt, die im Folgenden beschrieben wird. In den Experimenten wurde  $K_{NAPL/L}$  gemäß [39] (Seite 30) aus den im Experiment verwendeten Volumen  $V$  der beteiligten Phasen Wasser, Luft und NAPL, den Radonkonzentrationen  $C$  dieser Phasen sowie dem bekannten  $K_{W/L}$  berechnet.

### 3.3.1 Material und Methoden

In den Durchströmungsexperimenten wurden die Verteilungskoeffizienten  $K_{NAPL/W}$  basierend auf der Messapparatur bestimmt, die in Abbildung 8 schematisch dargestellt ist.



**Abbildung 8:** Schematischer Versuchsaufbau der Durchströmungsexperimente; der Pfeil markiert die Richtung des Gasstroms.

Die Messapparatur besteht aus einem Radon-in-Luft Monitor (AlphaGUARD; Genitron Instruments, Frankfurt/Main, Deutschland; vgl. Kapitel 5), einer elektronisch gesteuerten Kleinpumpe für Gase, einem Gefäß für 500 ml Wasser, einem weiteren für 100 ml der zu untersuchenden NAPL, einem 50 ml Sicherheitsgefäß zum Auffangen von kondensiertem Wasser und radondichtem Schlauchmaterial (Tygon® R 3606).

Im ersten Schritt des Versuches wurden der Radonmonitor, das Entgasungsgefäß mit radonhaltigem Wasser als Radonquelle, das Sicherheitsgefäß und die Pumpe durch radondichte

Verbindungsschläuche zu einem geschlossenen System verbunden. Das NAPL-Gefäß blieb abgekoppelt. Die Pumpe erzeugt einen im System zirkulierenden Luftstrom, wobei das radonhaltige Wasser über eine Fritte mit feinen Luftbläschen durchströmt wird. Das gesamte Radoninventar des geschlossenen Kreislaufsystems wird durch das Inventar des Wassers  $C_{w0}V_w$  zu Verfügung gestellt. Das Inventar verteilt sich im ersten Schritt (Index 1 in [35]) entsprechend der Volumenanteile der Luft  $V_{L1}$  und des Wassers  $V_w$  im System gemäß:

$$C_{w0}V_w = C_{L1}V_{L1} + C_{w1}V_w \quad [35]$$

$C_{L1}$  = Radonkonzentration der Luft in Schritt 1 [ $\text{Bq l}^{-1}$ ]

$V_{L1}$  = Luftvolumen in Schritt 1 [l]

$C_{w1}$  = Radonkonzentration des Wassers in Schritt 1 [ $\text{Bq l}^{-1}$ ]

Im ersten Schritt wurden 500 ml radonhaltiges Wasser 15 min lang mit einem konstanten Luftdurchsatz von  $1 \text{ l min}^{-1}$  durchströmt.

Im Verteilungsgleichgewicht zwischen Luft und Wasser stellt sich im Luftstrom eine Radonkonzentration ein, die durch das Radoninventar des Wassers  $C_{w0}V_w$  und die temperaturabhängigen Verteilungskoeffizienten von Radon zwischen Wasser und Luft ( $K_{w/L} = C_{w1} / C_{L1}$ ) bestimmt wird. Schreibt man in [35] für  $C_{w1} = C_{L1} K_{w/L}$  und dividiert durch  $V_w$ , erhält man die Ausgangs-Radonkonzentration des Wassers:

$$C_{w0} = C_{L1} \left( \frac{V_{L1}}{V_w} + K_{w/L} \right) \quad [36]$$

Im zweiten Schritt (Index 2 in [37]) wurde das Gefäß für die NAPL in den Kreislauf integriert (vgl. Abbildung 8). Mit einem konstanten Luftdurchsatz von  $1 \text{ l min}^{-1}$  wurden wiederum 500 ml radonhaltiges Wasser und 100 ml NAPL 15 min lang durchströmt.

Die Zeitspanne von jeweils 15 min war nötig, damit sich erstens ein Gleichgewicht zwischen den Radonkonzentrationen der beteiligten Phasen einstellen konnte, und zweitens genügend Einzelwerte für die jeweilige Gleichgewichtssituation vorliegen. Die Radonkonzentrationen im Luftstrom wurden im Minutentakt gemessen und gespeichert. Nach jedem Versuch wurde die Messkammer des Radonmonitors mit Außenluft gespült.

Das Radoninventar  $C_{w0}V_w$  verteilt sich entsprechend der Volumenanteile der Luft  $V_{L2}$ , des Wassers  $V_w$  und der NAPL  $V_{\text{NAPL}}$  im abgeschlossenen Kreislaufsystem gemäß [37].

$$C_{W0}V_W = C_{L2}V_{L2} + C_{W2}V_W + C_{NAPL}V_{NAPL} \quad [37]$$

$C_{L2}$  = Radonkonzentration der Luft in Schritt 2 [ $Bq\ l^{-1}$ ]

$V_{L2}$  = Luftvolumen in Schritt 2 [l]

Das Luftvolumen in Schritt 2 ist geringfügig größer als das in Schritt 1. Dies ist auf das im zweiten Schritt in den Kreislauf integrierte Luftvolumen im NAPL-Gefäß und in zusätzlichen Schlauchstücken zurückzuführen.

Entsprechend dem Verteilungskoeffizienten zwischen der verwendeten NAPL und Luft  $K_{NAPL/L} = C_{NAPL}/C_{L2}$  wird Radon NAPL-spezifisch absorbiert und somit dem Kreislauf entzogen. Für  $C_{W2} = C_{L2} K_{W/L}$  und  $C_{NAPL} = C_{L2} K_{NAPL/L}$  in [37] erhält man:

$$\begin{aligned} C_{W0}V_W &= C_{L2}V_{L2} + C_{L2}K_{W/L}V_W + C_{L2}K_{NAPL/L}V_{NAPL} \\ &= C_{L2}(V_{L2} + K_{W/L}V_W + K_{NAPL/L}V_{NAPL}) \end{aligned} \quad [38]$$

Der Verlauf der Radon-Konzentration während eines Durchlaufs ist exemplarisch in Abbildung 9 dargestellt. Im ersten Schritt des Versuches bildet die gemessene Gleichgewichtskonzentration ein oberes Plateau (1). Dies entspricht der Konzentration von Radon in der Luft ( $C_{L1}$ ), die sich einstellt, wenn nur radonreiches Wasser im Kreislauf durchströmt wird. Das untere Plateau (2) wird im zweiten Schritt des Versuches gebildet. Es entspricht der Konzentration von Radon in der Luft, die sich einstellt, wenn im System Wasser und NAPL mit Luft durchströmt werden ( $C_{L2}$ ). Die sich neu einstellende Gleichgewichtskonzentration  $C_{L2}$  ist geringer als die im ersten Schritt  $C_{L1}$ , weil ein Teil des Radons durch die NAPL absorbiert wird.

Aus dem arithmetischen Mittel der Messwerte, die das jeweilige Plateau bilden, wurden  $C_{L1}$  bzw.  $C_{L2}$  und die dazugehörige Standardabweichung bestimmt.

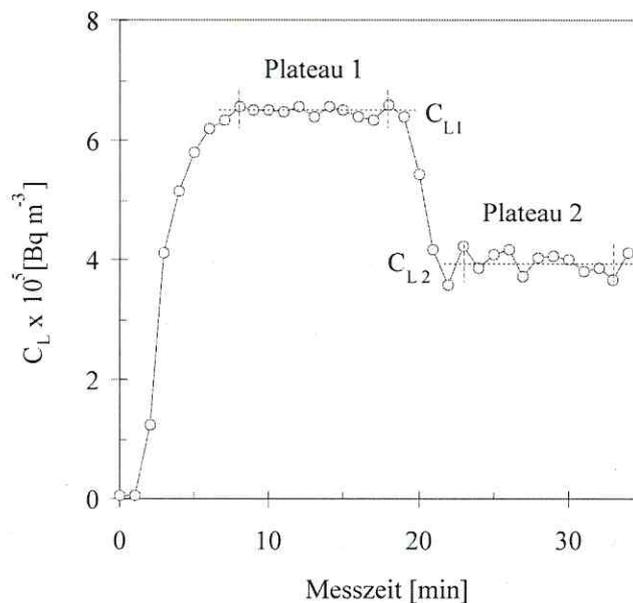
Nach Umstellen von [38] erhält man zur Berechnung des Verteilungskoeffizienten  $K_{NAPL/L}$ :

$$K_{NAPL/L} = \frac{V_W}{V_{NAPL}} \left( \frac{C_{W0}}{C_{L2}} - \frac{V_{L2}}{V_W} - K_{W/L} \right) \quad [39]$$

Da  $K_{W/L}$  gut untersucht und in der Literatur dokumentiert ist, wird der Verteilungskoeffizient von Radon zwischen der NAPL und Wasser ( $K_{NAPL/W}$ ) schließlich berechnet als:

$$K_{NAPL/W} = \frac{K_{NAPL/L}}{K_{W/L}} \quad [40]$$

Zur Überprüfung der Versuchsanordnung der Durchströmungsexperimente wurde neben den Gemischen Benzin, Diesel, Petroleum und Olivenöl der Verteilungskoeffizient für Ethanol bestimmt. Dieser ist gut untersucht und dokumentiert. Zur Verifizierung der Ergebnisse wurden diese außerdem mit denen der Mischungsexperimente verglichen und bewertet.



**Abbildung 9:** Beispiel für den Verlauf der Radonkonzentration im Durchströmungsexperiment. Gekennzeichnet sind die Plateaus, deren Werte zur Berechnung der mittleren Gleichgewichtskonzentrationen ohne NAPL (Plateau bzw. Index 1) und mit NAPL (Plateau bzw. Index 2) herangezogen wurden.

### 3.3.2 Ergebnisse

Die Ergebnisse der mittels AlphaGUARD im Luftstrom gemessenen mittleren  $C_{L2}$  und die damit nach:

$$C_{\text{NAPL}} = K_{\text{NAPL/L}} C_{L2} \quad [41]$$

in der beteiligten NAPL berechneten Radonkonzentrationen  $C_{\text{NAPL}}$  mit Standardabweichungen sind in Tabelle 7 aufgeführt. Für Benzin wurden jeweils zwei Messreihen mit acht Wiederholungen, für Diesel, Petroleum und Ethanol zwei Messreihen mit zehn Wiederholungen durchgeführt, für Olivenöl drei Messreihen mit zehn Wiederholungen. (Als Wiederholung wird hier ein Plateau mit je fünfzehn Messwerten bezeichnet.) Die Werte in Tabelle 7 stellen den arithmetischen Mittelwert mit mittlerer Standardabweichung aus zehn bzw. acht Wiederholungen dar. In Tabelle 8 sind die Mittelwerte mit Standardabweichung für  $K_{\text{NAPL/W}}$

und  $K_{NAPL/L}$  für die 10 bzw. 8 Wiederholungen (für  $K_{NAPL/L}$  auch die minimalen und maximalen Werte) dokumentiert. Die Berechnung der Mittelwerte der NAPL-spezifischen Verteilungskoeffizienten  $K_{NAPL/L}$  erfolgte über [39], wobei die einzelnen Wiederholungen ( $C_{L2}$ ) unterschiedlich gewichtet wurden.

**Tabelle 7:** In Durchströmungsexperimenten ermittelte mittlere Radonkonzentrationen [ $Bq\ l^{-1}$ ] der Luft ( $C_{L2}$ ) und der jeweiligen NAPL ( $C_{NAPL}$ )  $\pm$  Standardabweichung

Messreihe/ Parameter	Benzin	Diesel	Petroleum	Olivenöl	Ethanol
1/ $C_{L2}$	183,6 $\pm$ 27,3	74,3 $\pm$ 11,6	159,9 $\pm$ 21,8	58,6 $\pm$ 10,5	392,8 $\pm$ 22,9
<sup>a</sup> $C_{NAPL}$	1723,2 $\pm$ 119,2	1068,9 $\pm$ 62,7	1973,0 $\pm$ 108,8	664,4 $\pm$ 72,2	2619,6 $\pm$ 91,4
2/ $C_{L2}$	345,2 $\pm$ 27,0	129,0 $\pm$ 19,3	194,4 $\pm$ 23,9	75,4 $\pm$ 11,6	303,4 $\pm$ 29,0
<sup>a</sup> $C_{NAPL}$	3135,9 $\pm$ 106,8	1929,0 $\pm$ 95,3	2253,6 $\pm$ 109,4	839,9 $\pm$ 78,9	2077,4 $\pm$ 112,8
3/ $C_{L2}$				160,7 $\pm$ 24,2	
<sup>a</sup> $C_{NAPL}$				1715,0 $\pm$ 160,3	

<sup>a</sup> $C_{NAPL}$  wurde über die in Schritt 2 gemessene Radonkonzentrationen der Luft  $C_{L2}$  und den nach [39] berechneten Verteilungskoeffizienten  $K_{NAPL/L}$  mit [41] berechnet.

Als Wichtungsfaktor wurde das Reziproke der Standardabweichung einer Wiederholung herangezogen (Paschke et al., 1985). Eine größere Standardabweichung hat dabei eine geringere Wichtung des Wertes zur Folge. Dadurch wird verhindert, dass sich durch die Verknüpfung der unterschiedlich stark fehlerbehafteten und voneinander unabhängigen Messwerte durch Fehlerfortpflanzung ein Ergebnis mit einem Zufallsfehler ergibt, der größer ist als die verknüpften Teilfehler (Sachs, 1992). Zum Vergleich enthält die Tabelle außerdem die Werte für  $K_{NAPL/L}$  aus den obigen Mischungsexperimenten sowie aus der Literatur.

Zur Verifizierung der im Durchströmungsexperiment ermittelten Verteilungskoeffizienten wurde die reine NAPL Ethanol untersucht. Die eigenen Ergebnisse für  $K_{NAPL/L}$  liegen mit  $6,53 \pm 0,2$  und  $6,72 \pm 0,1$  nur leicht über den Literaturwerten von Clever (1979; 5,6 bzw. 6,4). Die gute Übereinstimmung bestätigt die Richtigkeit der eigenen Vorgehensweise in den Durchströmungsexperimenten.

Bei Benzin liegen die eigenen Werte ( $7,42 \pm 0,7$  bis  $10,51 \pm 2,0$ ) deutlich niedriger als in den Mischungsexperimenten ( $13,1 \pm 0,4$ ) und der Literatur ( $13,2 \pm 1,5$ ). Das ist vermutlich auf den relativ hohen Anteil volatiler (aromatischer) Komponenten zurückzuführen, die über den zirkulierenden Luftstrom in das Wasservolumen gelangen und somit einen niedrigen Verteilungskoeffizienten vortäuschen. Mit maximal  $10,51 \pm 2,0$  und unter Beachtung der Standardabweichungen nähern sich die Werte denen aus den Mischungsexperimenten an. Mit den Literaturwerten gibt es dann Überschneidungen.

Die beste Übereinstimmung zwischen eigenen und publizierten Daten können für Diesel verzeichnet werden. Die eigenen Werte liegen im Mittel zwischen  $13,92 \pm 0,6$  und  $14,54 \pm 0,5$ . Die Verteilungskoeffizienten aus den Mischungsexperimenten und der Literatur (ausgenommen Schubert, 2001) liegen im Bereich der Standardabweichungen dieser Mittelwerte.

**Tabelle 8:** In Durchströmungsexperimenten bestimmte Radonverteilungskoeffizienten  $K_{NAPL/W}$  und  $K_{NAPL/L}$  (bei 23°C) sowie entsprechende Werte aus den Mischungsexperimenten (ME) und aus der Literatur

NAPL	<sup>1</sup> $K_{NAPL/W} \pm \sigma$	$K_{NAPL/L} \pm \sigma$		<sup>3</sup> Mittelwert	ME	Literatur
		<sup>2</sup> min	<sup>2</sup> max			
Benzin	$37,70 \pm 1,4$	$7,42 \pm 0,7$	$9,80 \pm 0,8$	$8,97 \pm 0,3$	$13,1 \pm 0,4$	<sup>4</sup> $13,2 \pm 1,5$
	$39,64 \pm 1,0$	$8,45 \pm 1,4$	$10,51 \pm 2,0$	$9,43 \pm 0,3$		
Diesel	$61,11 \pm 2,0$	$12,68 \pm 1,3$	$17,57 \pm 3,1$	$14,54 \pm 0,5$	$13,4 \pm 0,8$	<sup>4</sup> $11,4 \pm 1,2$ <sup>5</sup> $13,4 \pm 0,8$
	$58,49 \pm 2,3$	$11,55 \pm 1,8$	$17,29 \pm 2,9$	$13,92 \pm 0,6$		
Petrol.	$47,67 \pm 2,3$	$9,94 \pm 1,3$	$15,51 \pm 3,2$	$11,35 \pm 0,5$	$13,5 \pm 1,4$	<sup>6</sup> 9,0 <sup>7</sup> 9,6 <sup>4</sup> $10,6 \pm 2,1$
	$47,27 \pm 1,8$	$9,48 \pm 1,6$	$15,56 \pm 1,8$	$11,25 \pm 0,4$		
Olivenöl	$46,45 \pm 2,1$	$8,75 \pm 1,7$	$13,87 \pm 2,4$	$11,06 \pm 0,5$		<sup>8</sup> 8,1 <sup>6</sup> 24,5
	$46,19 \pm 3,2$	$7,69 \pm 2,0$	$15,05 \pm 2,6$	$10,99 \pm 0,8$		
	$44,03 \pm 2,3$	$8,32 \pm 1,3$	$8,32 \pm 1,3$	$10,48 \pm 0,6$		
Ethanol	$27,45 \pm 0,7$	$5,90 \pm 0,4$	$7,84 \pm 0,7$	$6,53 \pm 0,2$		<sup>9</sup> 5,6 <sup>10</sup> 6,4
	$28,22 \pm 0,6$	$6,25 \pm 0,4$	$7,46 \pm 0,9$	$6,72 \pm 0,1$		

<sup>1</sup> berechnet über [40] mit  $K_{w/L} = 0,238$  bei 23°C aus Clever (1979)

<sup>2</sup> berechnet mit Ergebnissen der jeweiligen Einzelmessung über [39]

<sup>3</sup> gewichteter Mittelwert mit Standardabweichung aus 10 (bei Benzin 8) Wiederholungen pro Messreihe

<sup>4</sup> Schubert (2001) bei 20°C

<sup>5</sup> Hunkeler et al. (1997);  $K_{NAPL/L}$  berechnet über [26] mit  $K_{NAPL/W} = 40,0 \pm 2,3$  und  $K_{w/L} = 0,335$  (bei 12°C nach Abbildung 4)

<sup>6</sup> Lurie (1910) in Clever (1979), bei Petroleum für 20°C

<sup>7</sup> Hofman (1905) bei 20°C in Clever (1979)

<sup>8</sup> Nussbaum & Hursh (1958) in Clever (1979)

<sup>9</sup> Ramstedt (1911) in Clever (1979)

<sup>10</sup> Hofbauer (1914) in Clever (1979)

Für Petroleum liegen die Werte aus den Durchströmungsexperimenten im Mittel zwischen den Literaturdaten und den Werten aus den Mischungsexperimenten. Betrachtet man die minimalen und maximalen Werte für  $K_{NAPL/L}$ , schließen diese die Werte aus den Mischungsexperimenten und der Literatur mit ein.

Bei Olivenöl liegen die eigenen Werte in einem relativ weiten Bereich zwischen  $7,69 \pm 2,0$  und  $15,05 \pm 2,6$ . Die Literaturwerte (8,1 und 24,5) lassen ebenfalls auf ein weites Wertespektrum schließen.

### 3.3.3 Diskussion

Die in Clever (1979) dokumentierten Verteilungskoeffizienten wurden von ihm einer Bewertung hinsichtlich ihrer Validität unterzogen. Verschiedene Autoren haben demnach unterschiedliche Vorgehensweisen gewählt, wobei diese nicht immer vollständig nachvollzogen werden können. Die in Tabelle 8 als Referenz herangezogenen Autoren und Werte wurden als vertrauenswürdig eingestuft. Bei den von Schubert (2001) veröffentlichten Werten führte eine systematische Fehlerquelle (vgl. Kapitel 3.2.3) zu niedrigeren Verteilungskoeffizienten. Neben der Nutzung unterschiedlicher Methoden sind auch verschiedene Zusammensetzungen der durch verschiedene Autoren verwendeten Gemische Benzin, Diesel und Petroleum zu erwarten. Dies wird, wie bereits erwähnt, durch das jeweilige Rohöl und dessen Raffination beeinflusst. Die Zusammensetzung von Olivenöl als natürliches Produkt ist ebenfalls Schwankungen unterworfen. Betrachtungen der experimentellen Methoden und der jeweiligen NAPL-Zusammensetzungen sind grundsätzlich bei der Interpretation von Verteilungskoeffizienten und deren Wertespektrum zu beachten.

Bei Benzin führte die Versuchsanordnung der Durchströmungsexperimente zu verringerten Verteilungskoeffizienten im Vergleich zu den Versuchsanordnungen der Mischungsexperimente bzw. den Literaturdaten. Die Ergebnisse von Benzin lassen den Schluss zu, dass ein hoher Anteil volatiler (aromatischer) Komponenten (vgl. Tabelle 4) dazu führen kann, dass sich diese Komponenten mit dem Luftstrom im Kreislaufsystem der Versuchsanordnung verteilen, in der Messkammer des Radon-Monitors oder in der wässrigen Phase anreichern und das Messergebnis beeinflussen. Durchströmungsexperimente zur Bestimmung der Verteilungskoeffizienten  $K_{NAPL/L}$  sind daher vor allem für Gemische mit geringen volatilen Anteilen, wie beispielsweise Diesel und Petroleum geeignet. Bei diesen Gemischen konnte auch eine gute Übereinstimmung mit den Literaturwerten verzeichnet werden (vgl. Tabelle 8 und die dazugehörigen Erläuterungen).

Bei Olivenöl haben neben unterschiedlichen methodischen Vorgehensweisen vor allem verschiedene Olivenölsorten bzw. -zusammensetzungen einen großen Einfluss auf das Messergebnis bzw. auf das publizierte Wertespektrum. Die im eigenen Experiment für eine Sorte von Olivenöl ermittelten Verteilungskoeffizienten erscheinen unter Betrachtung der übrigen in den Durchströmungsexperimenten ermittelten Ergebnisse durchaus plausibel.

Die ermittelten Verteilungskoeffizienten wurden F- und t-Tests unterzogen. Mithilfe der F-Tests wird geprüft, ob ein Unterschied zwischen den Standardabweichungen von zwei jeweils zusammengehörigen, voneinander unabhängigen Experimentalreihen im Rahmen der Zufalls-

schwankungen liegt, d. h. auf die gleiche Varianz der normalverteilten Grundgesamtheit zurückgeführt werden kann. Mithilfe der t-Tests wird geprüft, ob die Mittelwerte zweier zusammengehöriger Messreihen auf eine normalverteilte Grundgesamtheit zurückgeführt werden können. Die Ergebnisse der Tests belegen, dass mit der vorgestellten Methode reproduzierbare Werte für die untersuchten NAPL-Substanzen und -Gemische bestimmt werden konnten (Tabelle 9). Das Ergebnis für  $K_{NAPL/L}$  bzw.  $K_{NAPL/W}$  stellt den gewichteten Mittelwert aus den Einzelmessungen der Messreihen mit zugehöriger gewichteter Standardabweichung dar (vgl. Tabelle 8). Lediglich bei Benzin fällt der t-Test negativ aus, d.h. die Mittelwerte der Messreihen sind signifikant verschieden. Dieses Ergebnis stellt jedoch nicht die Methode in Frage, da für vier der fünf NAPL die Reproduzierbarkeit der Methode bereits belegt wurde. Die in den durchgeführten Experimenten ermittelten Verteilungskoeffizienten sind in Abbildung 10 den Hildebrand-Parametern gegenübergestellt.

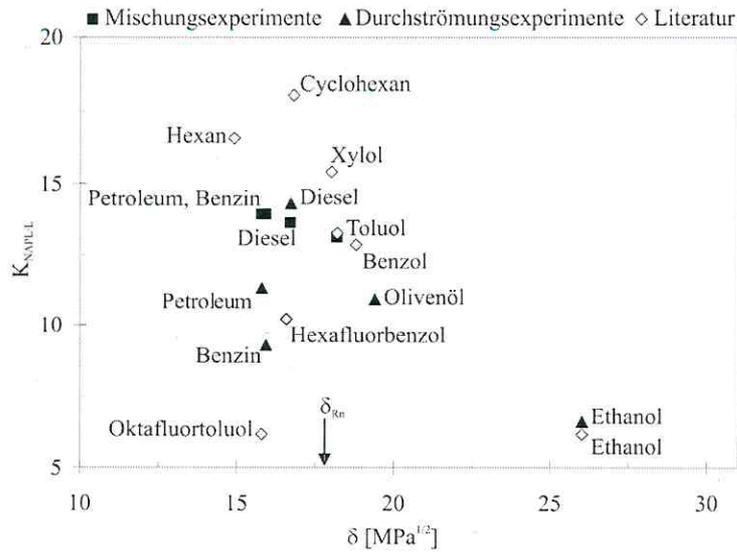
**Tabelle 9:** Ergebnisse der F- und t-Tests der Durchströmungsexperimente. Die Verteilungskoeffizienten  $K_{NAPL/W}$  und  $K_{NAPL/L}$  mit Standardabweichung ( $\sigma$ ) stammen aus Tabelle 8, die Hildebrand-Parameter ( $\delta$ ) für Benzin, Diesel und Petroleum aus Tabelle 6,  $\delta_{Olive\text{öl}}$  aus Schubert et al. (2006) und  $\delta_{Ethanol}$  aus Clever (1979).

	Benzin	Diesel	Petroleum	Olivenöl	Ethanol
$K_{NAPL/W} \pm \sigma$	38,9 $\pm$ 0,9	60,0 $\pm$ 1,3	47,4 $\pm$ 0,2	45,5 $\pm$ 0,8	27,9 $\pm$ 0,4
F-Test*	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.
t-Test*	s.	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.
$K_{NAPL/L} \pm \sigma$	9,32 $\pm$ 0,22	14,37 $\pm$ 0,31	11,35 $\pm$ 0,05	10,90 $\pm$ 0,19	6,68 $\pm$ 0,10
$\delta$ [MPa <sup>1/2</sup> ]	15,9	16,7	15,8	19,4	26,4

\* n.s. = nicht signifikant für eine Irrtumswahrscheinlichkeit von 5%

s. = signifikant für eine Irrtumswahrscheinlichkeit von 5%

Die eigenen Ergebnisse reihen sich sehr gut in die vorliegenden Daten für reine NAPL aus der Literatur ein.



**Abbildung 10:** Radonverteilungskoeffizienten verschiedener NAPL vs. Hildebrand-Parameter, verändert nach Schubert (2001). Die Literaturwerte stammen aus Lewis et al. (1987), Clever (1979) und Barton (1991). Die vollen Symbole setzen die Verteilungskoeffizienten aus dieser Arbeit mit den Hildebrand-Parametern aus Yaws (1999) in Beziehung. Der Pfeil kennzeichnet  $\delta$  für Radon (18,1 MPa<sup>1/2</sup>) nach Prausnitz & Shair (1961).

## **4 Experimente zur Bestimmung der Radonkonzentration der Bodenluft in Gegenwart von NAPL**

### **4.1 Vorbemerkungen**

Liegt in einem Boden eine residuale NAPL-Kontamination vor, kommt es zu Sorption des in der Bodenluft vorhandenen Radons in der NAPL-Phase. Daraus resultiert eine lokale Verringerung der Radonkonzentration der Bodenluft, d. h. ein Defizit bezüglich der sich ohne Kontamination einstellenden Hintergrundkonzentration. Dieses Defizit ist der NAPL-Sättigung des Porenraumes proportional.

In den nachfolgend beschriebenen Experimenten soll der Einfluss der Porenraumsättigung eines Bodens mit einer NAPL ( $S_{\text{NAPL}}$ ), deren Verteilungskoeffizient  $K_{\text{NAPL/L}}$  bekannt ist, auf die Radonkonzentration der Bodenluft nachvollzogen werden. Als exemplarische NAPL wurde Olivenöl gewählt. Olivenöl ist nicht toxisch und aufgrund seiner Viskosität gut zu handhaben. Der Verteilungskoeffizient zwischen Olivenöl und Luft  $K_{\text{Oliv/L}}$  ist bekannt, er wurde vorausgehend experimentell bestimmt (vgl. Kapitel 3.3).

Die Ergebnisse mit Olivenöl ermöglichen Rückschlüsse auf das Lösungsverhalten von Radon in anderen, hier nicht untersuchten NAPL bei verschiedenen Porenraumsättigungen. Anhand der Ergebnisse wird zudem eine für die in Diffusionsgefäßen bzw. in Bodensäulen nach Schubert (1999) durchzuführenden Experimente geeignete Porenraumsättigung mit dem in den Bodensäulenexperimenten verwendeten Olivenöl ausgewählt. Die in diesen Experimenten zur Untersuchung der Radonkonzentration der Bodenluft in Gegenwart von NAPL verwendeten Materialien und Methoden, die Ergebnisse sowie deren Auswertung und Diskussion werden im Folgenden erläutert.

### **4.2 Material und Methoden**

#### **4.2.1 Materialien und Geräte**

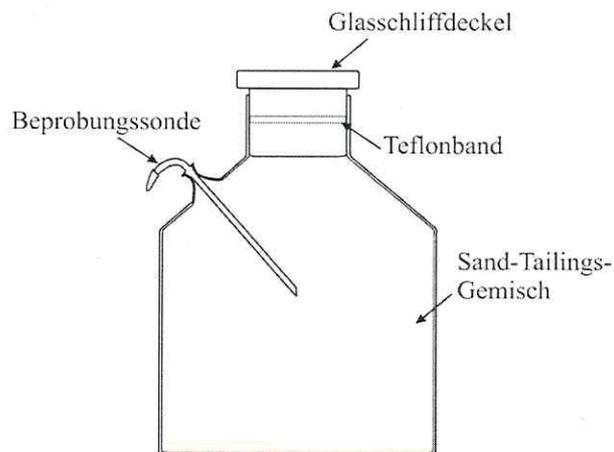
Als Modellboden wurde ein eng gestufter Quarzsand (Kornspektrum 0,2 - 0,63 mm, Firma EUROQUARZ GmbH, Ottendorf-Okrilla) gewählt. Der Radiumgehalt des Sandes wurde vor Versuchsbeginn gamma-spektrometrisch bestimmt. Für den Sand wurde eine vergleichsweise geringe Radiumkonzentration von  $C_{\text{Ra}} = 4,4 \text{ Bq kg}^{-1}$  (Treutler, 2002) ermittelt. Für die Versuche wurden dem Quarzsand daher Uran-Tailings als Radonquellmaterial zugemischt. Gamma-spektrometrische Untersuchungen des Tailingmaterials ergaben eine durchschnittliche Radiumkonzentration von  $C_{\text{Ra}} = 2700 \text{ Bq kg}^{-1}$  (Schubert, 2001). Die Ergebnisse der Gamma-

spektrometrie in Abhängigkeit von der Korngröße sind in Tabelle 10 zusammengestellt. Exemplarische Sieblinien des Sandes sind Anhang Fb, Sieblinien des Tailingmaterials Schubert (2001) zu entnehmen. Um ein für die Experimente hinreichend hohes Radonkonzentrationsniveau zu gewährleisten, erfolgte die Mischung von Tailings und Sand im Massenverhältnis 1:20.

**Tabelle 10:** Korngrößenspektren und Radiumkonzentrationen der verwendeten Uran- Tailings (Schubert, 2001) und des Sandes (n. b. = nicht bestimmt).

Tailings			Sand		
Korngröße [ $\mu\text{m}$ ]	Masseanteil [Gew.%]	$C_{\text{Ra}}$ [ $\text{Bq kg}^{-1}$ ]	Korngröße [ $\mu\text{m}$ ]	Masseanteil [Gew.%]	$C_{\text{Ra}}$ [ $\text{Bq kg}^{-1}$ ]
> 2.000	4,5	2.000	630 - 1.000	0,3	4,4
630 - 2.000	25,5	2.000	355 - 630	57,1	4,4
200 - 630	60,5	2.200	200 - 355	38,7	4,4
63 - 200	9,0	6.500	63 - 200	3,7	n. b.
< 63	0,5	37.500	< 63	0,2	n. b.

Als Versuchsgefäße wurden radondichte Glasschliffflaschen mit einer Beprobungssonde gemäß Abbildung 11 entwickelt und verwendet.



**Abbildung 11:** Schema der Versuchsgefäße zur Untersuchung des Einflusses der NAPL-Sättigung des Bodens auf die Radonkonzentration der Bodenluft.

Das befüllbare Volumen einer Flasche beträgt 11,4 l. Deckel und Beprobungssonde sind unter Verwendung eines Teflonbandes am Stopfen gasdicht verschließbar. Aus dem Fassungsvermögen der Gefäße, dem Füllgewicht des Sand-Tailings-Gemisches und der Dichte von Quarz

(2,65 g cm<sup>-3</sup>; Rösler, 1984) wurde eine Porosität des Modellbodens von 0,43 - 0,46 ermittelt. Die Trockendichte des Bodens beträgt damit durchschnittlich 1,47 g cm<sup>-3</sup> (vgl. Anhang Fa).

Zur Bestimmung der Radonkonzentration der Bodenluft kamen Lucaszellen in Verbindung mit dem Radon-Monitor AB-5R (PYLON Electronics Inc., Ottawa, Canada) zum Einsatz. Der Begriff Lucaszelle wird historisch auf eine Szintillationsmesskammer angewendet, in die eine radonhaltige Gasprobe eingeführt werden kann. Die Innenwand der Zelle ist bis auf einen transparenten Ausschnitt mit Zinksulfid (ZnS) ausgekleidet. Wenn ein Alpha-Partikel (der durch Radonzerfall oder Zerfall der Radonfolgeprodukte entsteht) in die Zellenwand einschlägt, wird ein Lichtblitz vom ZnS emittiert. Wenn dieser zur durchsichtigen Scheibe gerichtet ist, wird er über einen Photomultiplier (Radon-Monitor AB-5R) detektiert und in ein digitales Signal umgewandelt. Die Anwendung dieser Methode wurde gewählt, da dafür nur ein relativ geringes Bodenluftvolumen (150 ml) zur Radonbestimmung aus dem System (11,4 l pro Zylinder) abgezogen werden muss.

#### 4.2.2 Methoden

Flüssigkeiten im Boden haben einen großen Einfluss auf den Emanationskoeffizienten  $\epsilon$  des Bodens (vgl. Kapitel 2.2.1). Um bei diesen Experimenten den Einfluss von Olivenöl auf den Emanationskoeffizienten zu ermitteln, wurden aus den Messwerten für  $C_L$  die Emanationskoeffizienten  $\epsilon$  für den trockenen ( $S_{Oliv} = 0$ ) und für den olivenölfeuchten ( $0 < S_{Oliv} < 1$ ) Boden durch Umstellen von [15] berechnet:

$$\epsilon = \frac{C_L n_e}{C_{Ra} \rho} \quad [42]$$

$$n_e = n (1 - S_{Oliv} + K_{Oliv/L} S_{Oliv})$$

$C_L$  = Messwert der Radonkonzentration

Sofern nicht anders erwähnt, wird im Folgenden mit Feuchtigkeit bzw. feuchtem Boden eine durch Olivenöl bedingte Feuchtigkeit bzw. olivenölfeuchter Boden verstanden. Die für den trockenen Boden gemessene Radonkonzentration ist auf den Emanationskoeffizienten  $\epsilon$  ( $S_{Oliv} = 0$ ) zurückzuführen. Wie in Kapitel 2.2.1 beschrieben, bremsen geringe Gehalte an Flüssigkeiten die emanierenden Radonotope, sodass sie im luftgefüllten Porenraum verbleiben. Der Emanationskoeffizient  $\epsilon$  ( $0 < S_{Oliv} < 1$ ) ist daher höher als der des trockenen Bodens  $\epsilon$  ( $S_{Oliv} = 0$ ). Die Formulierung  $1 < S_{Oliv} < 0$  bezieht sich im Experiment auf eine Porenraum-sättigung zwischen 0,0 und 0,2. Um den Porenfeuchtigkeitseinfluss auf den Emanationskoeffizienten zu berücksichtigen bzw. um die durch die unterschiedlichen Emanationsko-

effizienten ermittelten Konzentrationen des trockenen und feuchten Bodens vergleichbar zu machen, wird der Messwert des trockenen Bodens  $C_L(S_{Oliv} = 0)$  gemäß [43] korrigiert:

$$C_{\text{korrigiert}} = \frac{\varepsilon(1 < S_{Oliv} < 0)}{\varepsilon(S_{Oliv} = 0)} C_L(S_{Oliv} = 0) \quad [43]$$

$C_{\text{korrigiert}}$  = korrigierter Messwert von  $C_L(S_{Oliv} = 0)$  [ $\text{Bq m}^{-3}$ ]  
 $\varepsilon(S_{Oliv} = 0)$  = Emanationskoeffizient des trockenen Bodens [-]  
 $\varepsilon(1 < S_{Oliv} < 0)$  = Emanationskoeffizient des feuchten Bodens [-]  
 $C_L(S_{Oliv} = 0)$  = Messwert für den trockenen Boden [ $\text{Bq m}^{-3}$ ]

Durch die Korrektur des Messwertes entsprechend [43] wird für den korrigierten Messwert  $C_{\text{korrigiert}}$  bei  $S_{Oliv} = 0$  der gleiche Emanationskoeffizient angesetzt, wie für die ölhaltigen Varianten ( $S_{Oliv} > 0$ ) eines Zylinders. Bei dem untersuchten olivenölfreien Boden ist im Experiment jedoch nicht von einem vollständig wassertrockenen Sand auszugehen, da bei dem verwendeten Sand von vorhandenem Adsorptionswasser um die Mineralkörner auszugehen ist.

Im Verteilungsgleichgewicht von Radon im Porenraum zwischen Olivenöl und Bodenluft sowie zwischen Radonemanation und Radonzerfall gilt für die sich theoretisch im abgeschlossenen System einstellende Radonkonzentration  $C^\infty$  in der Bodenluft analog zu [15] folgende Gleichung:

$$C^\infty = \frac{\varepsilon C_{Ra} \rho}{n(1 - S_{Oliv} + K_{Oliv/L} S_{Oliv})} \quad [44]$$

Aus dem Verhältnis der Gleichgewichtskonzentration  $C^\infty$  eines NAPL-haltigen Bodens ( $0 < S_{NAPL} < 1$ ) zu der eines NAPL-freien Bodens ( $S_{NAPL} = 0$ ) leitet sich der Radondefizitfaktor ( $\Delta C$ ) ab (Schubert, 2001):

$$\Delta C = \frac{C^\infty(0 < S_{NAPL} < 1)}{C^\infty(S_{NAPL} = 0)} = (1 - S_{NAPL} + K_{NAPL/L} S_{NAPL})^{-1} \quad [45]$$

Die NAPL-Sättigung  $S_{NAPL}$  des Porenraumes kann durch Umstellen von [45] als Funktion von  $\Delta C$  ausgedrückt werden (Schubert, 2001):

$$S_{NAPL} = \frac{1 - \Delta C}{\Delta C (K_{NAPL/L} - 1)} \quad [46]$$

Neben der Radonkonzentration der Bodenluft ist der Verteilungskoeffizient ( $K_{NAPL/L}$ ) der einzige notwendige Parameter zur Bestimmung des NAPL-Sättigungsgrades.

#### 4.2.3 Versuchsdurchführung

In der ersten Phase des Experiments wurde die Radongleichgewichtskonzentration in trockenem NAPL-freiem Sand-Tailings-Gemisch gemessen. Hierfür wurden fünf der oben beschriebenen Glaszylinder mit dem Gemisch befüllt.

Zur Einstellung des Gleichgewichts zwischen Radium und Radon wurden in den Experimenten mit Bodenluftmessungen mindestens 20 d (ca. 5  $t_{1/2}$  von Radon) abgewartet, bevor mittels einer evakuierten Lukaszelle ein Bodenluftvolumen von 150 ml aus dem System abgezogen wurde. Nach [17] und Abbildung 2 kann zu diesem Zeitpunkt von einer Konzentration in der Bodenluft ausgegangen werden, die ca. 97,3% der Gleichgewichtskonzentration  $C^\infty$  entspricht. Damit sich in den mit der Bodenluft gefüllten Lukaszellen ein Gleichgewicht von Radon mit seinen alpha-strahlenden Folgeprodukten Po-218 und Po-214 einstellen konnte, wurde mindestens 3,5 h (ca. 7  $t_{1/2}$  von  $^{214}\text{Pb}_{82}$ , vgl. Tabelle 1) pro Zelle gewartet, bis die Radonkonzentration über den Radon-Monitor AB-5R bestimmt wurde.

In der zweiten Phase des Versuches wurde das Sand-Tailings-Gemisch jedes Zylinders mit einer definierten Menge Olivenöl homogen vermischt, so dass sich in jedem Zylinder ein bekannter NAPL-Sättigungsgrad einstellte. Bei der Mischung von Öl und Substrat wurde auf eine homogene Verteilung des Öls geachtet. Nach Befüllung der Flaschen wurde wieder die Zeit bis zur Gleichgewichtseinstellung der Radonkonzentration im System abgewartet (20 d).

Die Öl-Sättigung  $S_{\text{Oliv}}$  des Porenraums betrug zunächst in Zylinder I 2%, in Zylinder II 6%, in Zylinder III 10%, in Zylinder IV 14% und in Zylinder V 18%. Die Probenahme und Messung der Radonkonzentration der Bodenluft wurde mittels Lucaszellen durchgeführt, wie bereits oben beschrieben. In einem zweiten Schritt wurde dann die Öl-Sättigung in jedem Zylinder um jeweils zwei Prozent erhöht, um weitere Daten zu erhalten. Die Bestimmung der Radonkonzentration erfolgte wie eben beschrieben.

#### 4.2.4 Auswertung der Daten

Der Radon-Monitor AB-5R zählt die Zerfälle von Radon in einem Zeitintervall von fünf Minuten. Zur statistischen Auswertung erfolgte für jede Probe die Messung der Zerfälle über mindestens fünf Intervalle. Die gemessenen Zerfälle pro Messintervall werden in Zerfälle pro Minute (cpm) angegeben. Ein für jede Zelle bekannter Hintergrundwert wird von diesem Wert abgezogen.

Weil zwischen dem Zeitpunkt der Probenahme und dem Messbeginn ein Zeitintervall von mindestens 3,5 h liegt und der Zeitraum der Messung mindestens 25 Minuten beträgt,

währenddessen der Zerfall von Radon in der Bodenluftprobe weitergeht, müssen zur Berechnung der Radonkonzentration Korrekturfaktoren eingesetzt werden. Diese können publizierten Tabellen entnommen werden (vgl. Anhang G). Die mittels Lukaszelle bestimmte Radonkonzentration einer Bodenluftprobe lässt sich dann anhand folgender Gleichungen berechnen:

$$C_L = \frac{\text{CPM} \cdot \text{KF1} \cdot \text{KF2}}{\text{KF3} \cdot \text{KF4} \cdot \text{KF5} \cdot E \cdot V} \quad [47]$$

- $C_L$  = Radonkonzentration der Luft [ $\text{Bq m}^{-3}$ ]
- CPM = Counts per minute minus Hintergrundwert [cpm]
- KF1 = Korrekturfaktor für den Zerfall während einer Messung [-]
- KF2 = Umrechnungsfaktor von  $\text{pCi l}^{-1}$  in  $\text{Bq m}^{-3}$  [-] = 37
- KF3 = Anzahl der Alpha-Emitter: Radon, Thoron, Actinon [-] = 3
- KF4 = Umrechnungsfaktor von dpm zu pCi [-] = 2,22
- KF5 = Korrekturfaktor für den Zerfall zwischen Probenahme und Start des Intervalls [-]
- E = Zählereffizienz [ $\text{cpm dpm}^{-1}$ ] = 0,76
- V = Volumen der Lukaszelle [l]

### 4.3 Ergebnisse

In Tabelle 11 sind die Ergebnisse zur Bestimmung des NAPL-Einflusses auf die Radonkonzentration der Bodenluft zusammengestellt.

Bei einem Mischungsverhältnis von 1 (Tailings;  $C_{\text{Ra}} = 2,7 \text{ kBq kg}^{-1}$ ) : 20 (Sand;  $C_{\text{Ra}} \approx 0,0 \text{ kBq kg}^{-1}$ ) beträgt die Radiumkonzentration  $C_{\text{Ra}}$  des verwendeten Gemisches etwa  $0,135 \text{ kBq kg}^{-1}$ . Der Verteilungskoeffizient des Olivenöls wurde mit  $K_{\text{Oliv/L}} = 10,9$  bestimmt (vgl. Kapitel 3.3.2). Bei einer Porosität von  $n = 0,45$  und einer Lagerungsdichte von  $\rho = 1,47 \text{ g cm}^{-3}$  ist der nach [42] berechnete Emanationskoeffizient des trockenen Sandes im Zylinder I im Mittel um etwa 16% niedriger als der im olivenölfeuchten Sand.

Die Korrektur von  $C_L$  bei  $S_{\text{Oliv}} = 0$  gemäß [43] für den Einfluss der Olivenölsättigung auf den Emanationskoeffizienten erfolgte für jeden Zylinder. Die Vorgehensweise soll nachfolgend exemplarisch an Zylinder I demonstriert werden. Für diesen Zylinder betrug  $\epsilon$  ( $S_{\text{Oliv}} = 0$ ) nach [42] 0,301.  $\epsilon$  der ölfeuchten Varianten des selben Zylinders liegt im Mittel bei 0,360. Die entsprechend [43] korrigierte Radonkonzentration der Bodenluft für  $S_{\text{Oliv}} = 0$  beträgt somit  $C_{\text{korrigiert}} = 0,360/0,301 \cdot 132,56 = 158,6 \text{ kBq m}^{-3}$  (vgl. Tabelle 11).

**Tabelle 11:** Gemessene Radonkonzentrationen der Bodenluft  $C_L$  [ $\text{kBq m}^{-3}$ ] in Abhängigkeit der Porenraumsättigung  $S_{\text{Oliv}}$  [-] des Sand/Tailings-Gemisches und über [42] ermittelte Emanationskoeffizienten ( $\epsilon$  [-]). Die Messwerte  $C_L$  bei  $S_{\text{Oliv}} = 0$  wurden gemäß [43] pro Zylinder korrigiert ( $C_{\text{korrigiert}}$  [ $\text{kBq m}^{-3}$ ])

Zylinder	$S_{\text{Oliv}}$	$C_L$	$^a\epsilon$	$^bC_{\text{korrigiert}}$	$^d\Delta C$ [-]
I	0,00	132,56	0,301	158,60	1,00
	0,02	124,62	0,339		0,79
	0,04	120,27	0,381		0,76
II	0,00	176,61	0,400	236,04	1,00
	0,06	151,54	0,548		0,64
	0,08	128,64	0,523		0,54
III	0,00	142,12	0,322	174,95	1,00
	0,10	70,59	0,319		0,40
	0,12	95,72	0,475		0,55
IV	0,00	179,90	0,408	213,23	1,00
	0,14	103,61	0,561		0,49
	0,16	69,37	0,406		0,33
V	0,00	158,69	0,360	$^c$ 174,40	1,00
	0,18	62,69	0,395		0,36
	0,20	27,13	0,183		0,16

<sup>a</sup>Emanationskoeffizient des Sand/Tailings-Gemisches nach [42]

<sup>b</sup>über [43] korrigierter Messwert; für  $\epsilon$  wurde jeweils der Mittelwert der Emanationskoeffizienten der ölfleuchten Varianten pro Zylinder herangezogen

<sup>c</sup>Für  $\epsilon$  wurde  $\epsilon = 0,395$  bei  $S_{\text{Oliv}} = 0,18$  herangezogen, da  $\epsilon$  bei  $S_{\text{Oliv}} = 0,2$  abweichend (vgl. Text)

<sup>d</sup>nach [45] berechneter Radondefizitfaktor

Im Zylinder II liegt der mittlere Emanationskoeffizient bei der Ölsättigung des Porenraums von  $S_{\text{Oliv}} = 0,06$  bzw.  $0,08$  mit  $\epsilon = 0,535$  etwa 25% höher als der der trockenen Variante des gleichen Zylinders ( $\epsilon = 0,4$ ). In den Zylindern III bzw. IV beträgt die Erhöhung des Emanationskoeffizienten bei den Sättigungsstufen  $S_{\text{Oliv}} = 0,1$  und  $0,12$  (Zylinder III) bzw.  $0,14$  und  $0,16$  (Zylinder IV) für Zylinder III 19% und für Zylinder IV 16%.

Im Zylinder V ist der Emanationskoeffizient bei  $S_{\text{Oliv}} = 0,18$  etwa 9% größer als der des trockenen Sandes. Bei einer Sättigung von  $0,2$  ist der Emanationskoeffizient mit  $0,183$  etwa 49% kleiner, als der des trockenen Sandes. Ein ähnliches Verhalten des Emanationskoeffizienten wurde auch durch van der Spoel et. al (1999) beschrieben. Eine plausible physikalische Erklärung für den Einfluss höherer Porenraumsättigungen, die zu einem starken Absinken des Emanationskoeffizienten führen, wie es hier in Zylinder V bei  $S_{\text{Oliv}} = 0,2$  beobachtet wurde, konnte nicht genannt werden.

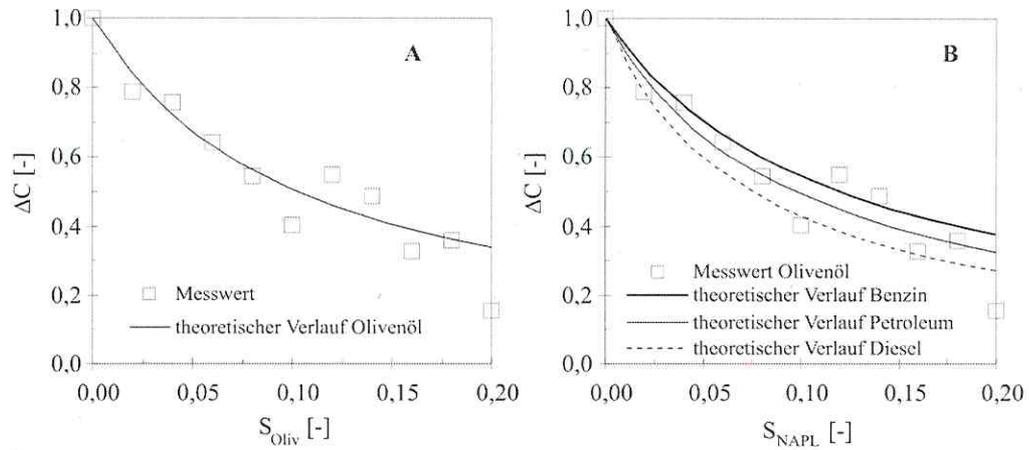
#### 4.4 Diskussion

Nach Nazaroff (1992) liegt der Emanationskoeffizient, wie in Kapitel 2.2.1 beschrieben, für verschiedene natürliche Böden und mineralische Materialien in einem relativ weiten Bereich zwischen 0,05 und 0,7 und kann einen maximalen theoretischen Wert von 0,75 (Sasaki et al., 2004) erreichen. Im vorliegenden Fall handelt es sich um ein Gemisch aus Sand und Uran-Tailings. Legt man Emanationskoeffizienten natürlicher Böden, die nach Nazaroff (1992) für verschiedene, nicht näher definierte Böden bei 0,22 liegen, zugrunde, wären die in den Zylindern ermittelten Werte (etwa 0,4) als relativ hoch einzuschätzen; für das Sand/Tailings-Gemisch erscheinen die eigenen Werte aber durchaus plausibel. Durch Schubert (2001) wurden verschiedene Sand/Tailings-Gemische (10:1, 7,5:1, 6,5:1) in Bodensäulen untersucht. Die Emanationskoeffizienten lagen mit 0,25 bis 0,26 (Schubert, 2003) deutlich unterhalb der Werte hier. Es ist jedoch festzuhalten, dass bei den in Schubert (2001) beschriebenen Experimenten nicht von einem abgeschlossenen System auszugehen ist. Die Feuchtigkeit bzw. Ölsättigung des Gemischs wurde nicht definiert vorgegeben. Zudem wurde in Schubert (2001) eine Radonmessmethode verwendet, die nach meiner Meinung relativ große Unsicherheiten bei der gewählten Experimentieranordnung bedingt.

Der für einen Verteilungskoeffizienten des Olivenöls von  $K_{\text{NAPL/L}} = 10,90$  berechnete theoretische Zusammenhang zwischen Radondefizit und Olivenölsättigung gemäß [45] ist in Abbildung 12 A dargestellt, die verdeutlicht, dass die gemessenen Werte mit dem theoretischen Verlauf recht gut übereinstimmen. Die Berechnung der theoretischen Verläufe in Abbildung 12 erfolgte gemäß [45]. Für den Emanationskoeffizienten  $\epsilon$  wurde der Mittelwert der ölfeuchten Varianten in dem Experiment (außer Zylinder V, bei  $S_{\text{Oliv}} = 0,2$ ) herangezogen; dieser beträgt 0,434 (vgl. Tabelle 11).

Um den Einfluss weiterer NAPL auf die Radonkonzentration der Bodenluft zu betrachten, wurden die theoretischen Verläufe der Radondefizitfaktoren als Funktion der NAPL-Sättigung des Porenraums durch die NAPL-Gemische Benzin, Diesel und Petroleum, deren Verteilungskoeffizienten bekannt sind (vgl. Tabelle 8), dargestellt.

Abbildung 12 B ist zu entnehmen, dass die Messwerte für Olivenöl den Wertebereich der theoretischen Verläufe der genannten Gemische einschließen. Dies verdeutlicht, dass Radon einerseits als natürlicher Tracer für NAPL-Kontaminationen genutzt werden kann und andererseits eine NAPL-Identifikation bzw. -Unterscheidung mit der oben vorgestellten Methode nicht möglich ist.



**Abbildung 12:** Radondefizitfaktor ( $\Delta C$ ) als Funktion der NAPL Sättigung.

A: theoretischer Verlauf für Olivenöl nach [45] mit  $\varepsilon = 0,434$  und  $K_{Oliv/L} = 10,9$ .

B: theoretische Verläufe für Benzin, Diesel und Petroleum nach [44] mit  $\varepsilon = 0,434$ ,  $K_{Benzin/L} = 9,2$ ,  $K_{Diesel/L} = 14,23$  und  $K_{Petroleum/L} = 11,3$ .

Die Verteilungskoeffizienten  $K$  sind Mittelwerte aus Tabelle 8.

## 5 Messgenauigkeit des AlphaGUARD

Für die Messung der Radonkonzentration der Bodenluft nach dem Radon-Verfahren wird in der Praxis der bereits in Kapitel 3.3.1 genannte Radonmonitor mit Ionisationsmesskammer (AlphaGUARD) verwendet.

Bei der Probenahme wird ein Bodenluftvolumen von etwa 0,6 l aus der gewählten Probenahmetiefe in die Messkammer gepumpt, die ein starkes elektrisches Feld erzeugt. Durch die ionisierende Strahlung (Alpha-Strahlung) entstehen in der Kammer positiv und negativ geladene Ionen, die jeweils zur entgegengesetzten Elektrode wandern. Die Ladungsimpulse, die sich bei hoher Impulsdichte auch überlagern können, werden registriert. Im unteren Konzentrationsbereich (geringe Impulsdichte) wird nach Impulshöhe, -form und -anzahl unterschieden. Bei höheren Konzentrationen wird der Gesamtionisationsstrom ausgewertet. Die Übergänge zwischen den Bereichen werden durch mathematische Algorithmen fließend gestaltet. Für eine gewählte Messzeit wird durch das Messgerät der Messwert  $\pm$  „Unsicherheit“ ( $x_i \pm s_{x_i}$ , [ $\text{Bq m}^{-3}$ ]) ausgewiesen. Die „Unsicherheit“ wird pro Messzeit über  $s_{x_i} = \sqrt{\text{Impulse}}$  berechnet (Bürkin, 2006). Die Anzahl der Impulse pro Messzeit lässt sich somit über  $s_{x_i}^2$  ableiten. Bei  $s_{x_i} = 3.000 \text{ Bq m}^{-3}$  ( $= 3 \text{ kBq m}^{-3}$ ) und 1 min Messzeit (vgl. Abbildung 13 Ab) werden beispielsweise 9.000.000 Impulse pro Minute registriert. Ein durch das Messgerät ausgewiesener Messwert  $x_i$  [ $\text{Bq m}^{-3}$ ] ist somit das Ergebnis einer hohen Anzahl von registrierten Impulsen in der Messkammer pro Messzeit. Abbildung 13 zeigt typische Messreihen für wiederholte Messungen mit einer Messzeit von 1 min und 10 min. Die Bodenluftprobenahme erfolgte auf zwei (NAPL-freien) Standorten, die unterschiedliche mittlere Radonkonzentrationen  $\bar{x}$  aufzeigten. Die Standardabweichung  $s$  vom Mittelwert  $\bar{x}$  aus den Messwerten  $x_i$  berechnet sich entsprechend als:

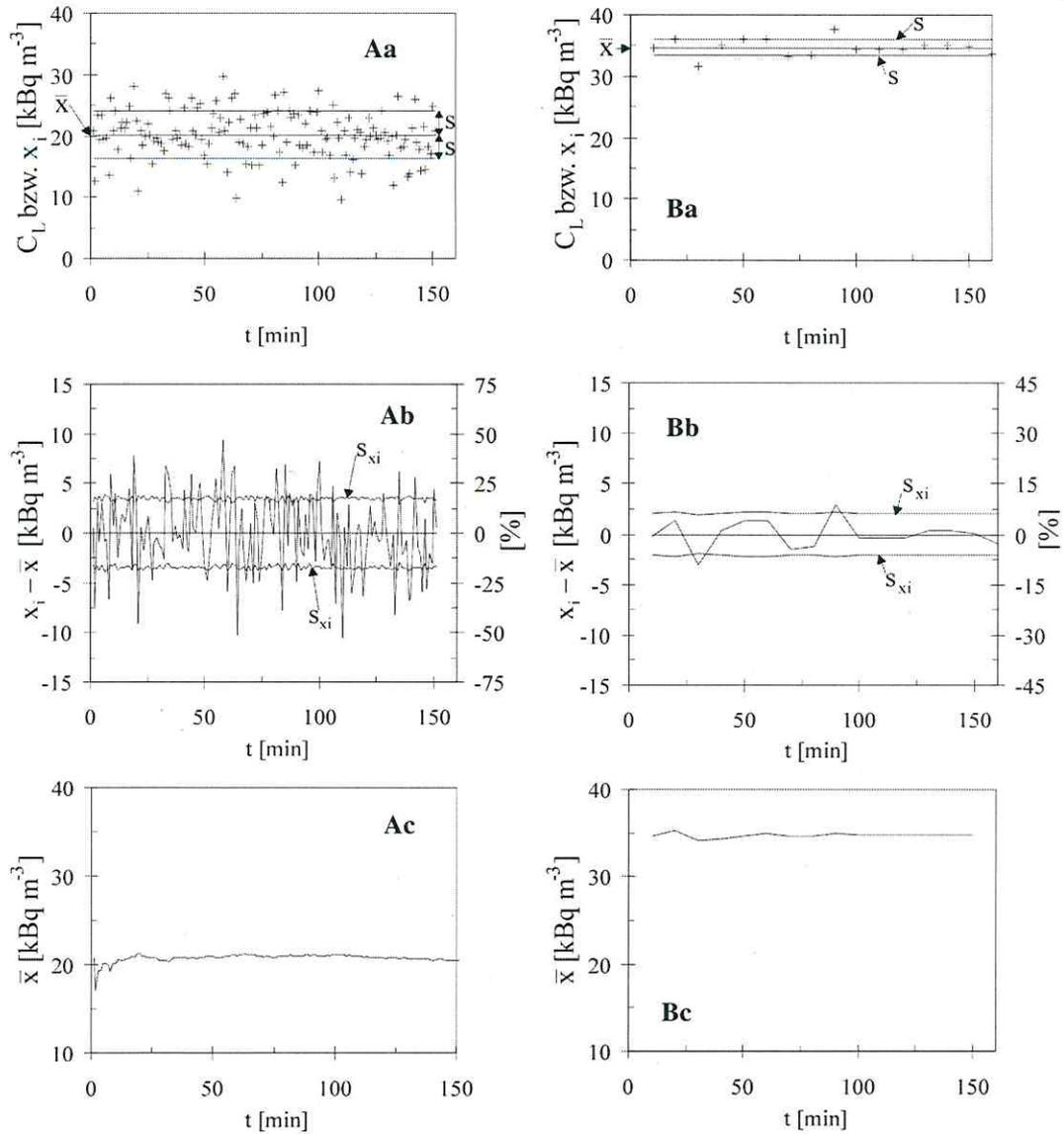
$$s = \sqrt{\frac{\sum(x_i - \bar{x})^2}{n - 1}} \quad [48]$$

$x_i$  = einzelne Messwerte

$\bar{x}$  = Mittel aller  $x_i$

$n$  = Anzahl aller Messungen

Die Standardabweichung  $s$  nimmt in der Regel mit steigenden Werten für  $\bar{x}$  zu. Bei den in Abbildung 13 dargestellten Messungen nach einer Messzeit von jeweils 1 min wurde ein kleinerer Wert für  $\bar{x}$  gemessen als nach 10 min Messzeit (vgl. Tabelle 12). Aufgrund der



**Abbildung 13:** Typische Zeitreihen der Messung der Radonkonzentration der Bodenluft mit dem AlphaGUARD auf zwei NAPL-freien Böden bei A) 1 min Messzeit und B) 10 min Messzeit. In a) sind jeweils die ausgewiesenen Werte  $C_L$  [ $\text{kBq m}^{-3}$ ], in b) die Abweichungen vom Mittelwert  $\bar{x}$  der Messungen  $x_i$  dargestellt. In c) sind die Messwerte  $C_L$  pro Messzeit als „laufender“ Mittelwert  $\bar{x}$  dargestellt. In a) sind zudem die Standardabweichung  $s$  von  $\bar{x}$  und in b) die ausgewiesene „Unsicherheit“  $s_{x_i}$  von  $x_i$  dargestellt.

kürzeren Messzeit von 1 min ist die Standardabweichung bei kleinerem  $\bar{x}$  jedoch größer als die bei größerem  $\bar{x}$  und einer längeren Messzeit von 10 min (Abbildung Aa und Ba). Abbildung 13 c zeigt, dass der Mittelwert ab einer Gesamtmesszeit von etwa 30 min, unabhängig

von der gewählten Messzeit der Einzelwerte, weitgehend konstant bleibt. Zum direkten Vergleich der Standardabweichungen ist in Tabelle 12 auch die durch  $s/\bar{x}$  beschriebene relative Standardabweichung aufgeführt.

**Tabelle 12:** Charakterisierung einer Serie von Einzelmessungen bei einer Messzeit von 1 min und 10 min. n ist die Anzahl der Messungen  $x_i$ ,  $\bar{x}$  der Mittelwert von  $x_i$ , s die Standardabweichung von  $x_i$  nach [48] und  $s/\bar{x}$  die relative Standardabweichung.

Messzeit	n	Zeit [min]	$\bar{x}$ [kBq m <sup>-3</sup> ]	s [kBq m <sup>-3</sup> ]	$s/\bar{x}$ [-]
1 min	10	10	19,89	4,17	0,21
	20	20	20,97	3,84	0,18
	30	30	20,16	3,76	0,19
	40	40	20,42	3,65	0,18
	50	50	20,63	3,58	0,17
	60	60	20,74	3,74	0,18
	151	151	20,18	3,88	0,19
10 min	1	10	34,56	<sup>a</sup>	
	2	20	35,33	<sup>a</sup>	
	3	30	34,09	2,28	0,07
	4	40	34,34	1,92	0,05
	5	50	34,69	1,84	0,05
	6	60	34,92	1,74	0,05
	16	160	34,73	1,39	0,04

<sup>a</sup> zu wenig Einzelwerte

Mit der nachfolgenden statistischen Untersuchung soll geprüft werden, wie groß der Unterschied zwischen dem mit dem AlphaGUARD gewonnenen NAPL-unbeeinflussten Messwert  $\bar{x} \pm s$  und einer verringerten Konzentration  $\mu_0$  sein muss, damit ein tatsächlicher Unterschied und damit eine NAPL-Kontamination mit statistischer Signifikanz nachzuweisen ist.

Eine sichere Identifizierung des Unterschiedes  $\bar{x} - \mu_0$  hängt von der Streuung der Messwerte (s) um den Mittelwert ( $\bar{x}$ ) und der Anzahl der wiederholten Einzelmessungen n ab. Eine erste Abschätzung der nötigen Messwertanzahl n und damit der Messzeit zur Mittelwertbildung lässt sich Abbildung 13 c entnehmen (> 30 min). Um den Unterschied von einem Messwert  $\bar{x}$  und der theoretisch abgeleiteten verringerten Radonkonzentration  $\mu_0$  mit statistischer Signifikanz zu identifizieren, kann nach Doerfel (1990) mithilfe des t-Tests die Abweichung eines Mittelwertes  $\bar{x}$  von einer theoretisch abgeleiteten (fehlerlosen) Zahl  $\mu_0$  geprüft werden. Die Prüfgröße t wird nach [49] berechnet.

$$t = \frac{\bar{x} - \mu_0}{s} \sqrt{n} \quad [49]$$

Die Prüfung erfolgt durch Gegenüberstellen des nach [49] berechneten  $t$  mit den tabellierten Integralgrenzen  $t(f; P)$  der  $t$ -Verteilung in Abhängigkeit vom Freiheitsgrad  $f$  und der Wahrscheinlichkeit  $P$ .  $P$  ist die statistische Sicherheit dafür, dass ein Messwert im Vertrauensintervall (z. B.  $\bar{x} \pm \sigma$ ) der Verteilungskurve liegt.  $1-P$  ist die entsprechende Wahrscheinlichkeit, dass ein Messwert außerhalb des Vertrauensintervalls liegt und wird als Irrtumswahrscheinlichkeit bezeichnet (Tabelle 13). Durch das Lösen von Radon in einer NAPL ist grundsätzlich von einer verringerten Konzentration  $\mu_0$  gegenüber der unbeeinflussten Konzentration  $\bar{x}$  auszugehen. In diesem Fall interessiert nur eine (die untere) Grenze des Vertrauensintervalls, man spricht hier von einer einseitigen Fragestellung mit der dazugehörigen Wahrscheinlichkeit  $\bar{P}$ . Die Prüfhypothese ist  $\bar{x} \geq \mu_0$ . Zwischen den zur ein- bzw. zweiseitigen Fragestellung gehörigen Wahrscheinlichkeit  $\bar{P}$  bzw.  $P$  gilt die Beziehung [50] (Doerfel, 1990).

$$\bar{P} = 0,5 + \frac{P}{2} \quad [50]$$

Tabelle 13 enthält die zum praktischen Gebrauch häufig verwendeten Werte von  $\bar{P}$  und  $P$  für eine ein- bzw. zweiseitige Begrenzung des Vertrauensintervalls.

**Tabelle 13:** Gängige Werte von  $\bar{P}$  und  $P$  für eine ein- bzw. zweiseitige Begrenzung des Vertrauensintervalls.

einseitig		zweiseitig	
$\bar{P}$	$1-\bar{P}$	$P$	$1-P$
0,8415	0,1585	0,683	0,317
0,875	0,125	0,750	0,250
0,950	0,050	0,900	0,100
0,975	0,025	0,950	0,050
0,995	0,005	0,990	0,010

Für eine gegebene Anzahl von Freiheitsgraden wird in entsprechenden Tabellen der  $t$ -Wert abgelesen, der bei einer möglichst großen Wahrscheinlichkeit  $\bar{P}$  bzw. einer möglichst geringen Irrtumswahrscheinlichkeit  $1-\bar{P}$  größer ist als der berechnete  $t$ -Wert. Für die betrachtete Anzahl von Freiheitsgraden erhält man somit die Wahrscheinlichkeit  $\bar{P}$ , dass  $\bar{x}$  und  $\mu_0$  unterschiedlichen Grundgesamtheiten angehören, also der Unterschied  $\bar{x} - \mu_0$  mit statistischer Signifikanz identifiziert werden kann. In den Betrachtungen hier wurden für die nach 30, 40, 50 und 60 min Gesamtmesszeit ermittelten  $\bar{x}$  jeweils Abweichungen von  $\bar{x}$  von 2,5%, 5%, 7,5% und 10% betrachtet. Ähnliche Abweichungen können auch durch NAPL-Kontaminationen im Boden hervorgerufen werden (vgl. Kapitel 4.3, 8.2 und 9).

Voraussetzung für den t-Test ist eine Normalverteilung der Einzelwerte  $x_i$  (Doerfel, 1990). Die Prüfung auf Normalverteilung erfolgt entsprechend dem Schema in Tabelle 14 ( $\chi^2$ -Test). Die  $n$  Einzelwerte werden in  $m$ -Klassen eingeteilt. Für jede Klasse wird die absolute ( $h_a$ ) und theoretische Häufigkeit ( $h_t$ ) bestimmt. Zur Berechnung von  $h_t$  werden die nach der Klassenobergrenze  $x_{ob}$  aufgeteilten Werte nach  $u$  normiert und den zugehörigen Tabellenwerten ( $y(u)$ ) gegenübergestellt. Für einzelne Klassen wird eine Besetzung  $h_t > 5$  gefordert. Wenn  $h_t \leq 5$  können unterbesetzte Klassen zusammengefasst und eine ausreichende Besetzung erreicht werden. Entsprechend der Anzahl  $n$ , der Klassenbreite  $d$  und der Standardabweichung  $s$  wird die theoretisch zu erwartende absolute Häufigkeit  $h_t$  für die Besetzung der einzelnen Klassen berechnet. Aus den Größen  $h_a$  und  $h_t$  berechnet man die Prüfgröße  $\chi^2$  nach [51].

$$\chi^2 = \sum \frac{(h_a - h_t)^2}{h_t} \quad [51]$$

Ein Unterschied ist nachweisbar, wenn der berechnete Wert  $\chi^2$  größer ist als der tabellierte Wert  $\chi^2(P, f)$ . In Tabelle 14 ist beispielhaft für eine Serie von  $n = 30$  Einzelmessungen nach einer Messzeit von jeweils 1 min das Prüfschema des  $\chi^2$ -Tests dokumentiert. Für  $n = 30, 40, 50$  und  $60$  sind die ermittelten Prüfgrößen  $\chi^2$  und  $\chi^2(P, f)$  in Tabelle 15 zusammengefasst. Nach Doerfel (1990) findet man für  $m - 3$  Freiheitsgrade und für  $n = 30$  den tabellierten Wert  $\chi^2(0,99; 2) = 9,21$  (vgl. Tabelle 14). Da  $\chi^2 = 7,13 < 9,21$  kann mit einer Irrtumswahrscheinlichkeit von 1% bestätigt werden, dass die Messwerte als Stichprobe einer normalverteilten Grundgesamtheit betrachtet werden können. Für die Gesamtmesszeiten 30, 40, 50 und 60 min (vgl. Tabelle 12) sind in Tabelle 15 die Prüfgrößen  $\chi^2$  und  $\chi^2(P; f)$  gegenübergestellt.

Für eine Messzeit von 10 min werden zu wenige Einzelwerte im hier betrachteten Gesamtmesszeitraum von bis zu 150 min erhoben, um einen  $\chi^2$ -Test durchzuführen. Für diese Werte wird hier ebenfalls eine normalverteilte Grundgesamtheit zugrunde gelegt.

In Tabelle 16 sind für eine signifikante Abweichung von  $\bar{x}$  von 2,5% ( $\mu_0 = 0,975 \bar{x}$ ), 5% ( $\mu_0 = 0,95 \bar{x}$ ), 7,5% ( $\mu_0 = 0,925 \bar{x}$ ) und 10% ( $\mu_0 = 0,90 \bar{x}$ ) und  $n = 30, 40, 50$  bzw.  $60$  (nach jeweils 1 min Messzeit der Einzelwerte) die nach [49] berechneten  $t$  den entsprechenden tabellierten  $t(\bar{P}; f)$  gegenübergestellt. Zeile 1 kann entnommen werden, dass eine einseitige Abweichung von  $\bar{x}$  um 2,5% nach einer Gesamtmesszeit von 30, 40, 50 und 60 min mit einer Irrtumswahrscheinlichkeit von jeweils 25% nachgewiesen werden kann. Eine Abweichung von  $\bar{x}$  um 5% (Zeile 2) kann nach 30 min mit 12,5%, nach 40 min mit 5% sowie nach 50 und 60 min mit 2,5% Irrtumswahrscheinlichkeit nachgewiesen werden.

**Tabelle 14:** Prüfung auf Normalverteilung für eine Serie von Messwerten mit dem Alpha-GUARD nach einer Messzeit von jeweils 1 min und einer Gesamtmesszeit von 30 min (n = 30). d ist die Klassenbreite und s die Standardabweichung.

Klassenobergrenze	absolute Häufigkeit	Abzissenwert der Normalverteilung	Ordinatenwert der Normalverteilung	theoretische Häufigkeit		
$x_{ob}^a$	$h_a$	$u = \frac{x_{ob} - \bar{x}}{s}$	$y(u)$	$h_t = \frac{nd}{s} y(u)$	$\frac{(h_a - h_t)^2}{h_t}$	
12	1	-2,17	0,03788	0,60489	5,7056	
14	2	-1,64	0,10396	1,66009		
16	2	-1,11	0,21546	3,44059		
18	1	-0,57	0,33912	5,41526		3,59992
20	8	0,04	0,39862	6,36539		0,41976
22	7	0,49	0,35381	5,64984		0,32265
24	5	1,02	0,38466	6,14247	8,9898	2,76961
26	2	1,55	0,12051	1,92437		
28	1	2,09	0,04491	0,71715		
30	1	2,62	0,01289	0,20583		
				$\chi^2 =$	7,13	
				$\chi^2(0,99; 2) =$	9,21	

<sup>a</sup> der Einzelwerte [kBq m<sup>-3</sup>]

<sup>b</sup>  $\chi^2$  nach [51]

<sup>c</sup> P = 0,99. Nach Zusammenfassen der unterbesetzten Klassen beträgt die Klassenzahl m = 5. Die Zahl der Freiheitsgrade f = m - 3 beträgt somit 2 (vgl. Text).

**Tabelle 15:** Vergleich der tabellierten  $\chi^2(P; f)$  mit den experimentellen  $\chi^2$  (n.s. = nicht signifikant).

n	30	40	50	60
$\bar{x} \pm s$	20,16 ± 3,76	20,42 ± 3,65	20,63 ± 3,58	20,74 ± 3,74
$\chi^2 < \chi^2$ ( <sup>a</sup> P; f)	7,13 < 9,21	8,14 < 11,3	6,17 < 9,21	10,58 < 11,3
	n.s.	n.s.	n.s.	n.s.

<sup>a</sup> signifikant für eine Irrtumswahrscheinlichkeit 1-P = 0,01

Eine Abweichung von  $\bar{x}$  um 7,5% (Zeile 3) kann nach 30 min mit 2,5%, nach 40 min mit 1%, nach 50 und 60 min mit 0,5% Irrtumswahrscheinlichkeit nachgewiesen werden. Eine Unterschreitung von  $\bar{x}$  um 10% (Zeile 4) kann nach einer Gesamtmesszeit von 30, 40, 50 und 60 min mit einer Irrtumswahrscheinlichkeit von jeweils 0,5% nachgewiesen werden.

Wenn die Radonkonzentration im NAPL-freien Boden beispielsweise  $\bar{x} = 20,16$  kBq m<sup>-3</sup> (vgl. Tabelle 15) beträgt, muss man nach einer Gesamtmesszeit von 30 min mindestens eine um 7,5% verringerte Konzentration ( $\mu_0 = 18,6$  kBq m<sup>-3</sup>) messen, um mit einer Irrtumswahrscheinlichkeit von 2,5% sagen zu können, dass ein NAPL-bedingtes Defizit vorliegt.

**Tabelle 16:** Vergleich der tabellierten  $t(\bar{P}; f)$  mit den experimentellen  $t$  nach [49] für eine signifikante Abweichung  $\bar{x} - \mu_0$  (vgl.  $\bar{x}$  in Tabelle 15) bei der Irrtumswahrscheinlichkeit  $1 - \bar{P}$  und verschiedenen Messzeiten ( $n$ ).

n = 30			n = 40			n = 50			n = 60		
$\mu_0$	$t$	$t(\bar{P}; f)$	$\mu_0$	$t$	$t(\bar{P}; f)$	$\mu_0$	$t$	$t(\bar{P}; f)$	$\mu_0$	$t$	$t(\bar{P}; f)$
<sup>1</sup> 19,7	0,73 > <sup>a</sup> 0,68		19,9	0,88 > <sup>a</sup> 0,68		20,1	1,02 > <sup>a</sup> 0,68		20,2	1,07 > <sup>a</sup> 0,68	
<sup>2</sup> 19,1	1,47 > <sup>b</sup> 1,17		19,4	1,77 > <sup>c</sup> 1,68		19,6	2,04 > <sup>d</sup> 2,01		19,7	2,15 > <sup>d</sup> 2,00	
<sup>3</sup> 18,6	2,20 > <sup>d</sup> 2,04		18,9	2,65 > <sup>e</sup> 2,42		19,1	3,06 > <sup>f</sup> 2,67		19,2	3,22 > <sup>f</sup> 2,66	
<sup>4</sup> 18,2	2,94 > <sup>f</sup> 2,75		18,4	3,54 > <sup>f</sup> 2,70		18,6	4,07 > <sup>f</sup> 2,67		18,7	4,33 > <sup>f</sup> 2,66	
<sup>1</sup> $\mu_0 = 0,975 \bar{x}$			<sup>2</sup> $\mu_0 = 0,95 \bar{x}$			<sup>3</sup> $\mu_0 = 0,925 \bar{x}$			<sup>4</sup> $\mu_0 = 0,90 \bar{x}$		
<sup>a</sup> $1 - \bar{P} = 25\%$			<sup>b</sup> $1 - \bar{P} = 12,5\%$			<sup>c</sup> $1 - \bar{P} = 5\%$			<sup>d</sup> $1 - \bar{P} = 2,5\%$ <sup>e</sup> $1 - \bar{P} = 1\%$ <sup>f</sup> $1 - \bar{P} = 0,5\%$		

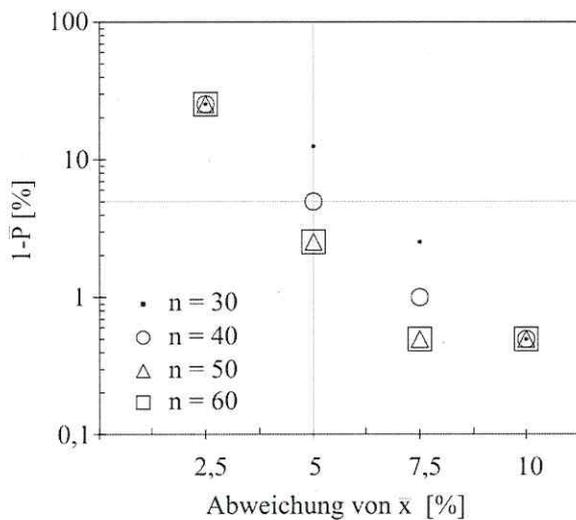
Wenn man eine höhere Irrtumswahrscheinlichkeit in Kauf nimmt, kann auch ein geringerer Unterschied identifiziert werden. Die nur um 5% gegenüber  $\bar{x}$  verringerte Radonkonzentration  $\mu_0 = 19,1 \text{ kBq m}^{-3}$  ließe sich beispielsweise mit einer Irrtumswahrscheinlichkeit von 12,5% als signifikant verschieden von  $\bar{x}$  ausweisen. Geringere Abweichungen von  $\bar{x}$  (z. B. 2,5% bei  $\mu_0 = 19,7 \text{ kBq m}^{-3}$ ) könnten nur mit einer höheren Irrtumswahrscheinlichkeit (z. B. 25%; vgl. Tabelle 16) identifiziert werden.

Wenn die Gesamtmesszeit auf 40 min erhöht wird, dann muss die Abweichung von  $\bar{x} = 20,42 \pm 3,65$  mindestens 5% ( $\mu_0 = 19,4 \text{ kBq m}^{-3}$ ) betragen, um mit einer Irrtumswahrscheinlichkeit von 5% die Abweichung mit akzeptabler statistischer Sicherheit zu identifizieren. Wenn die Gesamtmesszeit auf 50 oder 60 min erhöht wird, dann kann eine Abweichung von  $\bar{x}$  (vgl. Tabelle 16) um 5% bereits mit einer Irrtumswahrscheinlichkeit von 2,5% nachgewiesen werden. Wenn die Abweichung 7,5% beträgt, dann verringert sich die Irrtumswahrscheinlichkeit auf 0,5%.

Eine Abweichung von  $\bar{x}$  um 2,5% kann unabhängig von der betrachteten Gesamtmesszeit (zwischen 30 und 60 min) nur mit einer hohen Irrtumswahrscheinlichkeit von 25% nachgewiesen werden. Beträgt die Abweichung von  $\bar{x}$  dagegen 10%, kann unabhängig von der Messzeit ein entsprechendes Konzentrationsdefizit mit einer sehr geringen Irrtumswahrscheinlichkeit von 0,5% nachgewiesen werden.

Aufgrund der statistischen Analyse wird empfohlen, bei wiederholten Messungen mit dem AlphaGUARD nach einem Einzelmessintervall von 1 min eine Gesamtmesszeit von 40 min einzuhalten. Nach dieser Messzeit ist es wahrscheinlich, dass ein relativ geringes NAPL-bedingtes Konzentrationsdefizit von 5% noch mit relativ hoher statistischer Sicherheit (Irrtumswahrscheinlichkeit 5%) nachweisbar ist.

In Abbildung 14 sind die in Tabelle 16 genannten Irrtumswahrscheinlichkeiten  $1-\bar{P}$  den betrachteten Abweichungen von  $\bar{x}$  bei verschiedenen  $n$  gegenübergestellt. Es ist die bei einer Irrtumswahrscheinlichkeit von 5% empfohlene Messzeit von 40 min ( $n = 40$ ) markiert, die notwendig ist, um eine Abweichung von  $\bar{x}$  um 5% mit statistischer Sicherheit nachzuweisen. Mit zunehmender Abweichung von  $\bar{x}$  lässt sich ein Unterschied zwischen  $\bar{x}$  und  $\mu_0$  mit abnehmender Irrtumswahrscheinlichkeit bzw. höherer statistischer Sicherheit nachweisen.



**Abbildung 14:** Irrtumswahrscheinlichkeit  $1-\bar{P}$  als Funktion der Abweichung von  $\bar{x}$  bei verschiedenen Werten für  $n$ . Die Werte sind Tabelle 16 zu entnehmen.

## 6 Radontransport im Boden

### 6.1 Fluidbewegung

#### 6.1.1 Einphasenströmung

Die Fluidbewegung durch ein poröses Medium wird mit der Darcy-Gleichung beschrieben:

$$Q = -k A \frac{d\Psi}{dx} \quad [52]$$

$Q$  = Fluidfluss [ $\text{m}^3 \text{s}^{-1}$ ]

$k$  = Leitfähigkeit des Mediums für das Fluid [ $\text{m s}^{-1}$ ]

$A$  = Fließquerschnitt [ $\text{m}^2$ ]

$\Psi$  = Fluid-Potential, ausgedrückt als Energie je Gewichtseinheit [ $\text{m}$ ]

$x$  = Entfernung [ $\text{m}$ ]

Der Proportionalitätsfaktor ist Leitfähigkeit des porösen Mediums für das betrachtete Fluid. Das Darcy-Gesetz gilt für laminares Strömen, bei dem Trägheitskräfte vernachlässigt werden können. Sind die Poren mit Wasser gesättigt, wird für  $k$  die gesättigte Wasserleitfähigkeit  $k_s$  des porösen Mediums eingesetzt. Typische Werte für  $k_s$  liegen zwischen  $10^{-2} \text{ m s}^{-1}$  für Kies und  $10^{-11} \text{ m s}^{-1}$  für Ton (Freeze & Cherry, 1979).

Der positive Fluidfluss ( $Q$ ) verläuft, ausgehend vom Ort des höheren Potentials in Richtung des abnehmenden Potentials (Abbildung 15). Der den Fluidfluss antreibende Gradient ist definiert als der Anstieg  $\frac{\Delta\Psi}{\Delta x} = \frac{\Psi_2 - \Psi_1}{x_2 - x_1}$  einer Geraden in einem  $x/\Psi$ -Koordinatensystem. Da der

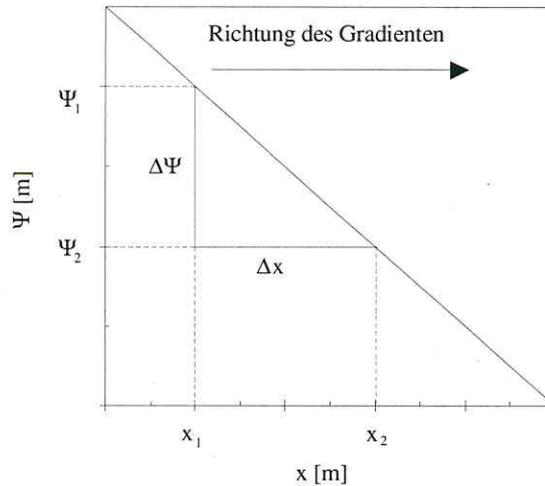
Gradient negativ ist, wird in [52] ein negatives Vorzeichen auf der rechten Seite eingefügt, damit  $Q$  in Richtung des Gradienten positiv ist.

Gradient negativ ist, wird in [52] ein negatives Vorzeichen auf der rechten Seite eingefügt, damit  $Q$  in Richtung des Gradienten positiv ist.

Für weitere Berechnungen wird  $Q$  auf die Fläche bezogen (Division durch  $A$ ) und als spezifischer Fluidfluss (Flux)  $q$  bezeichnet:

$$q = \frac{Q}{A} = k \frac{d\Psi}{dx} \quad [53]$$

$q$  = Fluidflux [ $\text{m}^3 \text{s}^{-1} \text{m}^{-2} = \text{m s}^{-1}$ ]



**Abbildung 15:** Schematische Darstellung der Differenz der Fluid-Potentiale  $\Delta\Psi$  entlang der Fließstrecke  $\Delta x$  als Anstieg bzw. Gefälle einer Geraden.

Für den Fluidfluss steht jedoch nicht die gesamte Querschnittsfläche des porösen Mediums zur Verfügung, sondern nur die fluidgefüllte am Transport beteiligte Porosität  $n$ . Wird der Flux durch  $n$  dividiert, erhält man die mittlere Fließgeschwindigkeit  $v$  entlang der Strecke  $dx$ :

$$v = \frac{q}{n} = \frac{k}{n} \cdot \frac{d\Psi}{dx} \quad [54]$$

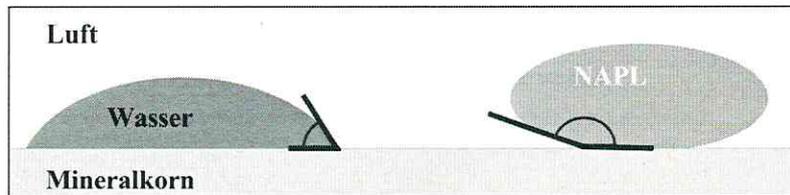
$v$  = mittlere Fließgeschwindigkeit des Fluids [ $\text{m s}^{-1}$ ]

$n$  = fluidgefüllte Porosität [ $\text{m}^3_{\text{Fluid}} \text{m}^{-3}_{\text{Medium}}$ ]

Natürliche Böden sind durch unterschiedliche Korn- und Porengrößen gekennzeichnet. Dadurch ergeben sich für einzelne Fluidpartikel unterschiedlich lange Fließwege und Fließgeschwindigkeiten. Die tatsächliche Geschwindigkeit einzelner Partikel kann somit von der mittleren Geschwindigkeit ( $v$ ) abweichen. Außerdem ist sie auch innerhalb einer Pore verschieden (vgl. Kapitel 6.2.2).

### 6.1.2 Mehrphasenströmung

In den Poren eines porösen Mediums grenzen bei gleichzeitigem Vorhandensein von Luft, Wasser und NAPL sowie der (mineralischen) Festkörpermatrix bis zu vier Phasen aneinander. Zwischen den Grenzflächen eines Fluids und der Porenwand stellt sich ein Winkel ein, dessen Größe von der relativen Benetzbarkeit der mineralischen Oberfläche in Bezug auf die beteiligten Phasen abhängt (Abbildung 16).

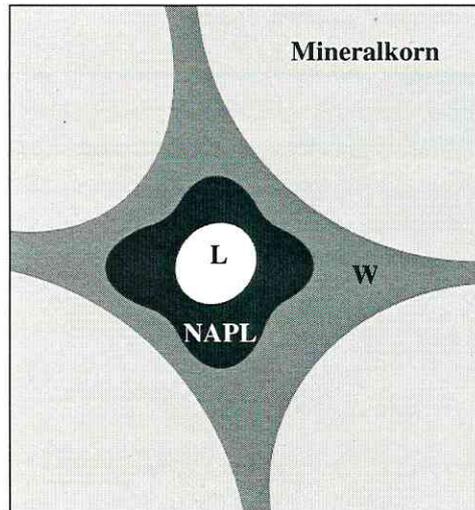


**Abbildung 16:** Verhalten einer benetzenden (Wasser) bzw. nichtbenetzenden Flüssigphase (NAPL) gegenüber einer mineralischen Feststoffgrenzfläche (Mineralkorn). Verändert nach Mercer & Cohen (1990).

Die Fluidphase, die geringere Spannungen auf einer Oberfläche bewirkt, wird bevorzugt adsorbiert und bildet einen spitzen Winkel aus (benetzende Phase). Dies ist in einer mineralischen Matrix in der Regel die wässrige Phase, die dadurch bevorzugt die kleineren Poren ausfüllt. Die andere (verdrängte) Phase (z. B. NAPL), in der Fluidgrenzfläche und Porenwand einen stumpfen Winkel einschließen, wird als nicht-benetzende Phase bezeichnet (Busch et al., 1993). In der Regel füllt die nicht benetzende Phase (z. B. Luft, NAPL) die größeren Poren aus bzw. berührt die innere Oberfläche der mineralischen Matrix nicht, so dass die nicht benetzende Phase nur insular (tröpfchenartig) verteilt auftritt (Abbildung 17).

Solche inkohärent (nicht zusammenhängend) bzw. residual verteilten Fluide können als immobil betrachtet werden. Die Menge, die als Residualphase im Boden fixiert wird, hängt sowohl von bodenspezifischen als auch von NAPL-spezifischen Parametern ab; nach Mercer & Cohen (1990) können bis zu 20% des verfügbaren Porenraums eines Bodens residual durch NAPL besetzt werden. (Aus diesem Grund wurden in den Sand-Kontaminations-Experimenten im Rahmen dieser Arbeit Sättigungen zwischen 0 und 0,2 gewählt.) Die benetzende Phase ist dagegen kohärent im porösen Medium verteilt, was die Bewegung durch einen antreibenden Potentialgradienten ermöglicht. Ein gewisser Anteil der kohärenten Phase (z. B. Adsorptionswasser) am gesamten Porenraum  $n$  bleibt jedoch immobil.

Geht man von nur zwei nichtmischbaren Fluidphasen nebeneinander aus, verringert sich die Durchlässigkeit  $k$  für ein Fluid durch die Anwesenheit des anderen (Busch et al., 1993). Für den Fall, dass der Porenraum durch 3 Phasen (Wasser, Luft, NAPL) eingenommen wird, lassen sich die Mobilitätsbereiche einer Phase in Abhängigkeit von der Sättigung anschaulich gemäß Abbildung 18 ausweisen. Die Fluide, die in einem Feld genannt sind, sind jeweils mobil. Im linken mittleren Feld sind z. B. Luft und Wasser mobil, während die NAPL immobil ist. Im obersten Feld ist beispielsweise nur die Bodenluft mobil, während die flüssigen Phasen immobil bleiben.



**Abbildung 17:** Schematische Verteilung der nichtmischbaren fluiden Phasen Wasser (W), Luft (L) und NAPL im Porenmaßstab des porösen Mediums mit mineralischer Feststoffgrenzfläche (Wasser ist das benetzende Fluid). Verändert nach Busch et al. (1993).

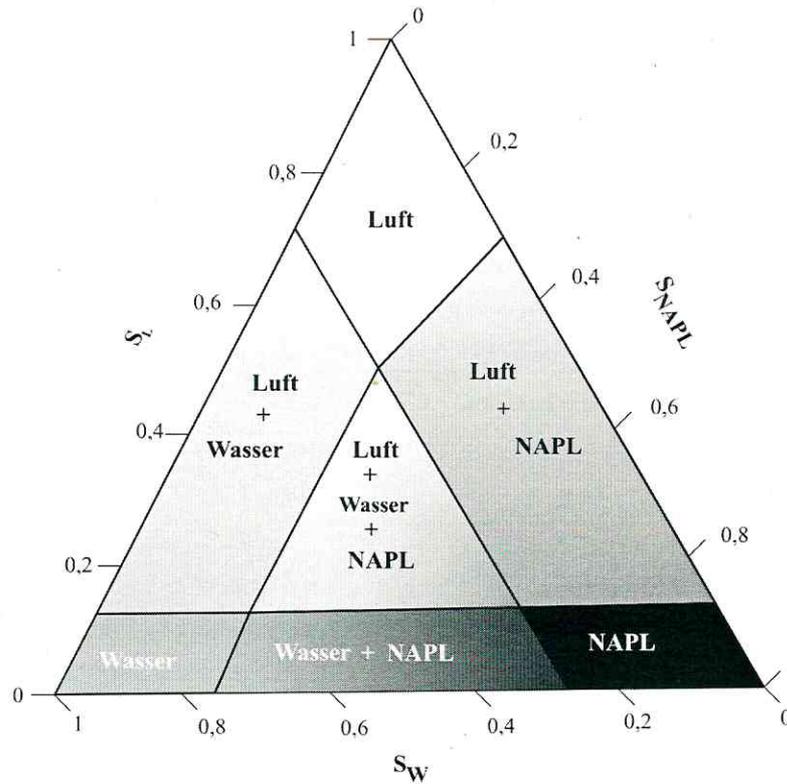
Mit der Definition [10] der fluidgefüllten Porosität, ergibt sich aus [54] das Fließgesetz von Darcy für ein Mehrphasensystem.

$$v_F = \frac{q_F}{n_F} = \frac{k_F}{n_F} \cdot \frac{d\Psi}{dx} \quad [55]$$

$v_F$  = Fließgeschwindigkeit der Phase F [m s<sup>-1</sup>]  
 $q_F$  = Fluidflux der Phase F [m<sup>3</sup> s<sup>-1</sup> m<sup>-2</sup> = m s<sup>-1</sup>]  
 $n_F$  = mit einer Fluidphase F gefüllte Porosität [m<sup>3</sup> m<sup>-3</sup>]  
 $k_F$  = Leitfähigkeit des Mediums für die Phase F [m s<sup>-1</sup>]

## 6.2 Stofftransport

In der vorliegenden Arbeit konzentrieren sich die Betrachtungen im Wesentlichen auf die ungesättigte Zone. Im Zusammenhang mit der Fragestellung dieser Arbeit handelt es sich bei den Stofftransportbetrachtungen grundsätzlich um ein Mehrphasensystem, bei dem Wasser, Bodenluft und NAPL im Porensystem eines porösen Mediums (Boden) als nicht-mischbare fluide Phasen nebeneinander auftreten können. Sofern es sich im Folgenden nicht um eine phasenspezifische Beschreibung des Stofftransportes handelt, wird der allgemeine Index F für alle drei Phasen verwendet.



**Abbildung 18:** Mobilitätsbereiche der Fluide Wasser, Luft, und NAPL in einem schwach schluffigen, stark kiesigen Sand. Die in einem Feld genannten Fluide sind jeweils mobil. Verändert nach Busch et al. (1993).

### 6.2.1 Advektion

Advektion ist der Transport von Fluidinhaltsstoffen mit der Fluidströmung. Wird die Strömung durch Temperaturunterschiede hervorgerufen, handelt es sich um konvektiven Stofftransport (Wang & Anderson, 1982). Die auf die von der Phase F durchströmte Querschnittsfläche der mineralischen Matrix bezogene advective Stoffflussdichte  $J_{a,F}$  ist proportional zur Stoffkonzentration  $C_F$  sowie dem advectiven Fluidflux  $q_F$  bzw. der mittleren Fließgeschwindigkeit  $v_F$  und der fluidgefüllten Porosität  $n_F$ :

$$J_{a,F} = q_F C_F = n_F v_F C_F \quad [56]$$

$J_{a,F}$  = advective Stoffflussdichte in der Phase F [ $\text{kg m}^{-2} \text{s}^{-1}$ ]

$C_F$  = Stoffkonzentration in der Phase F [ $\text{kg m}^{-3}$ ]

Betrachtet man den Radontransport in der Bodenluft, dann wird im Normalfall eine strömungsbedingte Radonmigration eines (unversiegelten) Bodens ausnahmslos von atmosphä-

rischen Einflüssen angetrieben (Schubert, 2006). Schubert und Schulz (2002) konnten temperaturbedingte tageszyklische Schwankungen der Radonkonzentration in einem Mittelsand bis in eine Tiefe von 0,3 m nachweisen. Nach Gast & Stolz (1982) sind meteorologische Einflüsse generell bis in etwa 0,6 m Tiefe nachweisbar. Nazaroff (1992) beschreibt noch für Tiefen von bis zu 1 m signifikante Tagesschwankungen der Radonkonzentration. Ursachen für die z. T. erheblichen Unterschiede in den Literaturangaben werden durch Schubert (2006) in unzureichenden Längen der ausgewerteten Zeitreihen, unterschiedlichen Eigenschaften der jeweils untersuchten Böden, unterschiedlichen Messverfahren und zu großen Abständen zwischen den Einzelmessungen gesehen.

### 6.2.2 Dispersion

Die Dispersion eines gelösten Inhaltsstoffes wird vor allem durch die Heterogenität des Transportmediums hervorgerufen: Die Poren sind unterschiedlich groß und unterschiedlich gewunden. Das führt zu einer räumlichen Variabilität der Fließgeschwindigkeit, zum anderen werden die gelösten Inhaltsstoffe mit dem Fluidstrom über unterschiedliche Transportstrecken transportiert. (Beides zusammen wird als Makrodispersion bezeichnet). Des Weiteren nehmen die Fließgeschwindigkeiten von flüssigen Phasen innerhalb einer Pore zum Rand hin ab (Mikrodispersion). Im Gegensatz zu Flüssigkeiten strömen Gase aufgrund der zu vernachlässigenden Reibung an der Porenwand im gesamten Querschnitt eines Porenkanals nahezu gleich schnell.

Diese Umstände führen mit zunehmender Transportstrecke zur Aufweitung einer ursprünglich scharfen Stofffront. Durch die Aufweitung kommt es zu einer zusätzlich zur molekularen Diffusion (s. u.) wirksamen Vermischung. Diese Vermischung wird mathematisch wie die Diffusion beschrieben:

$$J_{\text{Disp},F} = \frac{Q_{\text{Disp},F}}{A_F} = D_{\text{Disp},F} \frac{dC_F}{dx} \quad [57]$$

$$J_{\text{Disp},F} = \text{dispersive Stoffflussdichte in der Phase F [kg m}^{-2} \text{ s}^{-1}]$$
$$D_{\text{Disp},F} = \text{longitudinaler Dispersionskoeffizient der Phase F [m}^2 \text{ s}^{-1}]$$

$D_{\text{Disp},F}$  ist abhängig von der Fließgeschwindigkeit der fluiden Phase F und kann wie folgt berechnet werden (Baer, 1972):

$$D_{\text{Disp},F} = \alpha v_F \quad [58]$$

$\alpha$  = longitudinale Dispersivität [m]

Die Dispersivität ist eine Eigenschaft des porösen Mediums. Sie hängt vom Grad der Ungleichförmigkeit des Aquifers und vor allem von der betrachteten Fließstrecke  $L$  ab. Aus Daten in Gelhar et al. (1992) lässt sich empirisch folgender Zusammenhang für die longitudinale Dispersivität  $\alpha$  ableiten.

$$\alpha = 0,1 L \quad [59]$$

$L$  = Fließstrecke

### 6.2.3 Diffusion

Als Diffusion wird der aufgrund eines Konzentrationsunterschiedes hervorgerufene Stofftransport auf molekularer Ebene bezeichnet. Durch den Konzentrationsunterschied innerhalb der Phase F ( $dC_F$ ) entlang der Diffusionsstrecke ( $dx$ ) wird in Richtung der niedrigeren Konzentration ein Teilchenfluss ( $J_{\text{Diff},F}$ ) induziert. Der Prozess entsteht aus der Brownschen Molekularbewegung und führt zu einem Konzentrationsausgleich. Der diffusive Fluss wird mithilfe des 1. Fickschen Gesetzes beschrieben. Die diffusive Flussdichte ist demnach proportional dem antreibenden Konzentrationsgradienten und dem Diffusionskoeffizienten des betrachteten Stoffes in der Phase F im Boden, der auch effektiver Diffusionskoeffizient  $D_{e,F}$  genannt wird.

$$J_{\text{Diff},F} = D_{e,F} \frac{dC_F}{dx} \quad [60]$$

$J_{\text{Diff},F}$  = diffusive Stoffflussdichte in der Phase F [ $\text{kg m}^{-2} \text{s}^{-1}$ ]

$D_{e,F}$  = (effektiver) Diffusionskoeffizient eines Stoffes in der Phase F im Boden [ $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$ ]

Der Diffusionskoeffizient eines Stoffes in Luft übertrifft in der Regel den in einer NAPL oder Wasser um mehrere Größenordnungen. Bei vernachlässigbarer Fließgeschwindigkeit der fluiden Phase ist Diffusion daher der dominierende Mechanismus für den Radontransport im Boden.

Der Diffusionskoeffizient im Boden lässt sich über den Diffusionskoeffizienten des Stoffes in Luft und Parametern des Transportmediums herleiten. Die Zusammenhänge sollen nachfolgend kurz erläutert werden.

Der Diffusionskoeffizient eines Gases in Luft ( $D_L$ ) ist abhängig von der diffundierenden Species sowie vom Luftdruck  $P$  und von der Temperatur  $T$ . Der Einfluss der beiden letztgenannten Parameter wird durch folgende empirische Beziehung zum Ausdruck gebracht (Currie, 1960a, 1960b, 1961; Tanner 1980):

$$D_L(T, P) = D_L^{STP} \left( \frac{P^{STP}}{P} \right) \left( \frac{T}{T^{STP}} \right)^g \quad [61]$$

$D_L$  = Diffusionskoeffizient eines Gases in Luft

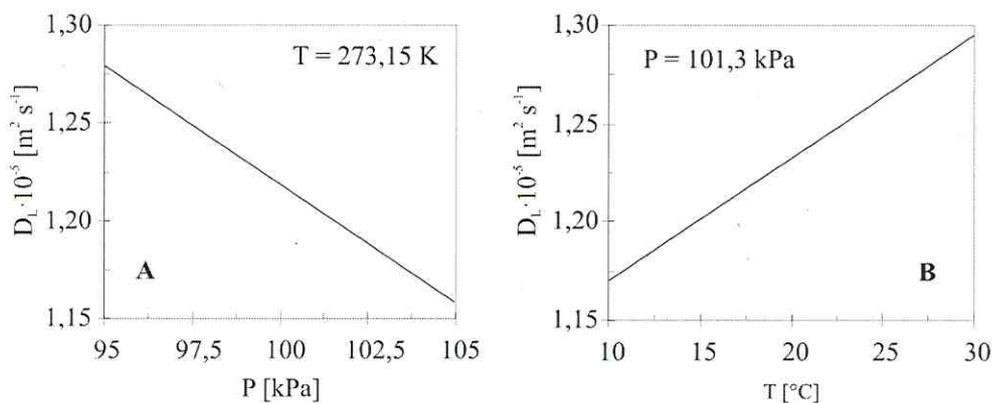
$T$  = Temperatur [K]

$P$  = Luftdruck [Pa]

$D_L^{STP}$  = Koeffizient des Gases in Luft bei Standardbedingungen ( $P = 101,3 \text{ kPa}$ ,  $T = 273,15 \text{ K}$ )

$g$  = stoffspezifische Konstante (1,65 für Rn)

In Abbildung 19 ist die Abhängigkeit des Radon-Diffusionskoeffizienten in Luft von  $P$  und  $T$  illustriert.



**Abbildung 19:** Einfluss A) des Luftdrucks und B) der Temperatur auf den Radon-Diffusionskoeffizienten in Luft nach [61].

Da der Luftdruck im Vergleich zur Temperatur meist weniger stark variiert, kann man Gleichung [61] vereinfachen und die Temperaturabhängigkeit des Radondiffusionskoeffizienten  $D_L$  nach folgender empirischer Gleichung berechnen (Rehs, 1999):

$$D_L(T) = D_L(15^\circ\text{C}) \left( \frac{T}{288} \right)^{\frac{3}{2}} \quad [62]$$

Der Diffusionskoeffizient für Radon in Luft beträgt bei einer Temperatur von  $15^\circ\text{C}$  und einem Luftdruck von  $101,3 \text{ kPa}$   $D_L = 1,2 \times 10^{-5} \text{ m}^2\text{s}^{-1}$  (Hirst & Harrison, 1939). Da es aufwendig ist,  $D_e$  in situ oder im Labor zu bestimmen, werden in der Literatur Ansätze diskutiert, diesen Parameter über andere, leichter zugängliche Bodenkenngrößen zu ermitteln, die in direktem Zusammenhang mit  $D_e$  stehen. Nachfolgend werden einige davon vorgestellt. Neben der Porenstruktur der Matrix ist für die Gasdiffusion vor allem der Sättigungsgrad  $S_{FL}$  des Porenraums mit einer Flüssigphase (Wasser, NAPL) zu nennen. Die Diffusionsrate eines Gases im Boden wird dabei als Funktion des effektiv für den Diffusionsfluss verfügbaren

luftgefüllten Porenquerschnitts (luftgefüllte Porosität  $n_L$ ) und der Tortuosität des Transportweges (d. h. der Poren) im Vergleich zur Diffusionsrate in Luft verringert. Anhand von Experimenten an unterschiedlichen Transportmedien mit unterschiedlichen wasser- bzw. luftgefüllten Porositäten ( $n_w$  bzw.  $n_L$ ) wurden zahlreiche empirische Gleichungen zur Beschreibung dieser Zusammenhänge veröffentlicht, von denen nachfolgend einige vorgestellt werden sollen

Ausgehend von verschiedenen aus der Literatur bekannten Modellierungsversuchen und einem umfangreichen Datensatz für verschiedenste Bodentypen schlagen Rogers & Nielson (1991, Abbildung 20) folgende empirische Korrelationsfunktion vor:

$$D_{e,L} = D_L n e^{(-6S_w \cdot n - 6S_w^{14n})} \quad [63]$$

Zu einer ähnlichen Darstellung führt die Funktion von Millington (1959, Abbildung 20):

$$D_{e,L} = D_L \left( \frac{n_L}{n} \right)^2 n_L^{\frac{4}{3}} \quad [64]$$

In der folgenden von Wesseling (1962) vorgeschlagenen Gleichung wird  $D_e$  bei luftgefüllten Porositäten ( $n_L$ ) von 11% gleich null (Abbildung 20):

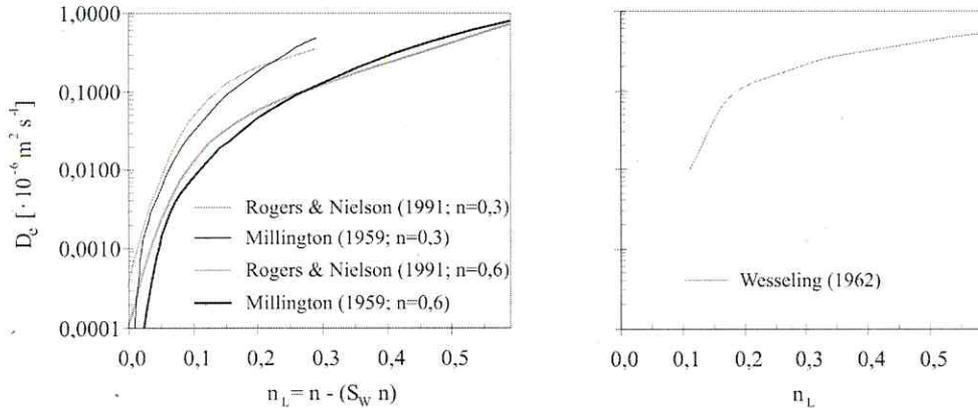
$$D_{e,L} = D_L (0,9n_L - 0,1) \quad [65]$$

Aufbauend auf experimentellen Ergebnissen fand Currie (1965) folgenden empirischen Zusammenhang:

$$D_{e,L} = D_L b n_L^m \quad [66]$$

$b, m$  = empirische Konstanten

Die Konstante  $b$  repräsentiert die Tortuosität des Mediums und ist abhängig vom Anteil des luftgefüllten Volumens an der Porosität ( $S_L$ ; [ $m^3_{Luft} m^{-3}_{Poren}$ ]). Die Konstante  $m$  repräsentiert die Abhängigkeit des Diffusionskoeffizienten von der Form der Bodenteilchen. Ist eine Flüssigkeit in den Poren, verringert sich  $n_L$  um die flüssigkeitsgefüllte Porosität und die Tortuosität des Transportweges steigt.



**Abbildung 20:** Durch verschiedene Autoren vorgeschlagene Abhängigkeiten des effektiven Diffusionskoeffizienten  $D_{e,L}$  von der luftgefüllten Porosität  $n_L$  nach Rogers & Nielson (1991; [63]), Millington (1959; [64]) und Wesseling (1962; [65]) für  $n = 0,6$ .

In Tabelle 17 sind einige empirisch ermittelte Werte für  $b$  und  $m$  dargestellt, die für unterschiedliche luftgefüllte Porositäten bzw. Wassergehalte und Bodenteilchenformen ermittelt wurden.

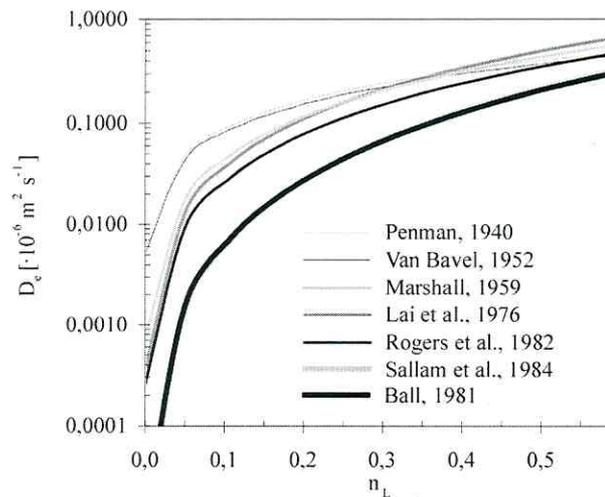
**Tabelle 17:** Werte für  $b$  und  $m$  aus der Literatur zur Verwendung in [66].

Material	$b$	$m$	Referenz
aggregierter Schluff-Lehm	0,90	2,36	<sup>a</sup> Sallam et al., 1984
Schluff-Lehm (ungestört)	0,81	2,29	<sup>a</sup> Ball, 1981
kiesiger Lehm bis Schluff-Lehm ( $1,4 < \rho_d < 1,8$ )	0,92	1,70	<sup>a</sup> Rogers et al., 1982
sandiger Lehm (gesiebt, gepackt)	1,30	1,70	<sup>a</sup> Lai et al., 1976
trockener gepackter Sand	1,00	1,50	<sup>b</sup> Marshall, 1959
trockener Sand	0,66	1,00	<sup>b</sup> Penman, 1940
Sand	0,61	1,00	<sup>b</sup> Van Bavel, 1952

<sup>a</sup>Referenzen aus Currie (1960a,b)

<sup>b</sup>Referenzen aus Hillel (1998)

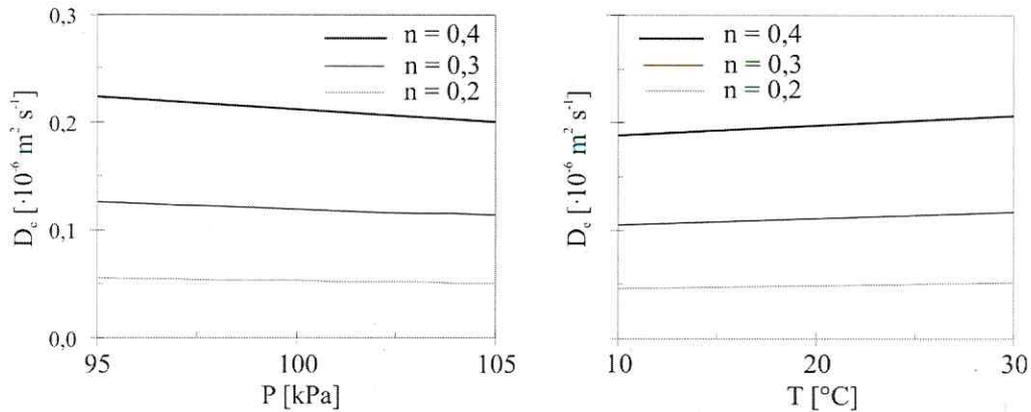
Abbildung 21 illustriert die durch [66] beschriebenen Abhängigkeiten mit den in Tabelle 17 angegebenen Werten für die Konstanten  $b$  und  $m$ . Abbildung 20 und 21 zeigen, dass  $D_{e,L}$  in Abhängigkeit von der vorliegenden luftgefüllten Porosität in einem mehrere Größenordnungen überspannenden Wertebereich zwischen  $10^{-10}$  und  $10^{-6} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$  liegen kann. Ab einer luftgefüllten Porosität von  $n_L = n(1 - S_w) \approx 0,2$  bzw. einer Porenwassersättigung von  $S_w = \frac{n - n_L}{n} \approx 0,8$  nimmt  $D_{e,L}$  mit zunehmender Wassersättigung (d. h. abnehmender luftgefüllter Porosität) stark ab, wohingegen bei geringeren Sättigungsgraden bzw. höheren luftgefüllten Porositäten  $D_{e,L}$  relativ unsensibel reagiert.



**Abbildung 21:** Abhängigkeit des effektiven Diffusionskoeffizienten  $D_{e,L}$  von der luftgefüllten Porosität  $n_L$  nach [66] mit den durch verschiedene Autoren vorgeschlagenen Werten für die Parameter  $b$  und  $m$  (Tabelle 17) sowie mit  $n = 0,6$ .

Die dargestellten Beziehungen zwischen dem Diffusionskoeffizienten  $D_{e,L}$  im Boden und der luftgefüllten Porosität  $n_L$  bzw. der Porenwassersättigung  $S_w$  führen für unterschiedliche empirische Funktionen grundsätzlich zu einer ähnlichen Abhängigkeit (vgl. Abbildung 20 und 21). Für die in dieser Arbeit durchgeführten Experimente ist es schwierig, die für die Anwendung einer dieser Funktionen im Rahmen der Modellierung notwendigen Parameter im Einzelnen zu bestimmen. Die Werte in Tabelle 17 bieten für  $b$  und  $m$  gute erste Annäherungen für verschiedene Böden. Daher soll in dieser Arbeit für die Quantifizierung von  $D_{e,L}$  für im Rahmen von Modellrechnungen [66] herangezogen werden. Da die Radonkonzentration in den zu untersuchenden Bodensäulen durch Messung in verschiedenen Sondenhorizonten weitgehend bekannt ist, kann durch Variation der Parameter  $b$  und  $m$  im Rahmen einer Modellierung  $D_e$  für die betrachtete Bodensäule ermittelt werden, wodurch eine gute Annäherung an die Messwerte erreicht wird. Bei Bodenluftuntersuchungen im Feld wird die Abschätzung des Diffusionskoeffizienten durch die meist geringen Informationen zum oft heterogen aufgebauten Boden (z. B. Wassergehalt und Korngrößenverteilung) erschwert.

Neben der beschriebenen Abhängigkeit des effektiven Diffusionskoeffizienten  $D_{e,L}$  von  $n_L$  besteht, wie in freier Luft so auch im Boden, eine Abhängigkeit des Diffusionskoeffizienten vom Luftdruck  $P$  und der Temperatur  $T$ . Abbildung 22 ist zu entnehmen, dass der Einfluss des Luftdrucks und der Temperatur auf den Diffusionskoeffizienten unter natürlichen Verhältnissen im Vergleich zum Porenwassergehaltseinfluss relativ gering ist. Im Modell wird daher von konstanten Druck- und Temperaturbedingungen ausgegangen und  $D_{e,L}$  nicht angepasst.



**Abbildung 22:** Einfluss des Luftdrucks (P; nach [61] mit  $g = 1,65$  und  $D_L = 1,2 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$  (bei  $15^\circ\text{C}$ ) und [66] mit  $b = 1,0$  und  $m = 2,0$ ) sowie der Temperatur (T; nach [62] und [66] mit  $b = 1,0$  und  $m = 2,0$ ) für verschiedene  $n_L$  und  $n = 0,6$ .

Der Diffusionskoeffizient für Radon in Wasser ist mit  $D_w = 10^{-9} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$  (Bird et al., 1960; Andrews & Wood, 1972) vier Größenordnungen kleiner als der Diffusionskoeffizient  $D_L$  für Radon in Luft. Dieser liegt nach Hirst & Harrison (1939) in der Größenordnung  $D_L = 10^{-5} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$  (bei  $15^\circ\text{C}$ ). Radondiffusion im Wasser ist daher von untergeordneter Bedeutung.

Trotz der gleichen mathematischen Beschreibung sind grundlegende Unterschiede zwischen den Koeffizienten der Diffusion und der Dispersion festzuhalten. Diffusion wirkt isotrop, also auch gegen die Strömungsrichtung. Dispersion verläuft dagegen nur in Strömungsrichtung und ist in dieser Richtung immer größer als quer dazu. Zudem ist  $D_{\text{Disp}}$  eine sogenannte skalierende Größe, d. h. der Dispersionskoeffizient und damit der dispersive Fluss wächst mit zunehmender Erstreckung des betrachteten Gebietes.  $D_e$  liegt im grundwassergesättigten Aquifer in der Größenordnung von  $5 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ . Bei Fließgeschwindigkeiten  $> 10^{-8} \text{ m s}^{-1}$  ist  $D_{\text{Disp}}$  daher wesentlich größer als  $D_e$ , so dass die Dispersion quantitativ meist sehr viel bedeutender für den Stofftransport in einem Aquifer ist als die Diffusion.  $D_e$  wird in Transportmodellen bei Fließgeschwindigkeiten von  $v > 10^{-8} \text{ m s}^{-1}$  daher zumeist vernachlässigt.

Die Durchmischung durch Diffusion und Dispersion kann experimentell nicht unterschieden werden. Der Diffusions- und Dispersionskoeffizient werden daher summarisch zusammengefasst und als hydrodynamischer Dispersionskoeffizient  $D_h$  bezeichnet.

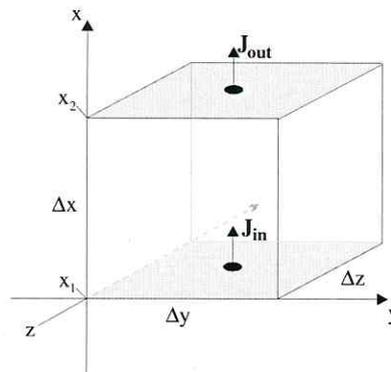
$$J_{h,F} = n_F (D_{e,F} + D_{\text{Disp},F}) \frac{dC_F}{dx} = n_F D_{h,F} \frac{dC_F}{dx} \quad [67]$$

### 6.3 Advektions-Dispersions-Gleichung (ADG)

Die quantitative Beschreibung von Fluidflüssen durch ein poröses Medium erfolgt über die Massenbilanz in einem repräsentativen Elementar- oder Speichervolumen (SV). Die Größe des SV wird so gewählt, dass das Porensystem in einem makroskopischen Maßstab betrachtet werden kann, wodurch die Strömungswege im Porenmaßstab statistisch verteilt sind und das poröse Medium durch einen Mittelwert repräsentiert werden kann. Die nachfolgenden Betrachtungen finden in Bezug auf das in Abbildung 23 dargestellte Koordinatensystem statt, indem das SV zeitlich und räumlich unverändert ist. Die Massenbilanz in einem SV wird entsprechend der folgenden allgemeinen Beziehung gebildet:

$$\text{zeitliche Massenänderung des SV} = \text{Eintritt} - \text{Austritt} + \text{Quelle} - \text{Senke} \quad [68]$$

Der Eintritt des Radons in das SV erfolgt in dem zugrundeliegenden Koordinatensystem in positiver Richtung der x-Achse über die Fläche  $A = \Delta y \Delta z$  (grau schattiert).



**Abbildung 23:** Dreidimensionales repräsentatives Speichervolumen (SV). Dargestellt sind die in positiver Richtung der x-Achse verlaufenden Radonflüsse, die über die (grau schattierte) Fläche  $A = \Delta y \Delta z$  in das SV hinein ( $J_{in}$ ) bzw. aus dem SV heraus ( $J_{out}$ ) gerichtet sind.

Der Radonfluss in das SV ( $J_{in}$ ) wird summarisch aus den in Kapitel 6.2 besprochenen möglichen Flüssen durch hydrodynamische Dispersion ( $J_h$ ) und Advektion ( $J_a$ ) gebildet.

Alle Stoffflüsse in das SV hinein werden auf den in der „Tiefe“  $x_1$  durchströmten Querschnitt  $A$  bezogen. Es gilt:

$$AJ_{in} = AJ_{h,F} + AJ_{a,F} = \text{Eintritt} \quad [69]$$

Der auf die in der „Tiefe“  $x_2$  durchströmte Fläche  $A$  bezogene Massenfluss  $J_{out}$  aus dem SV heraus ergibt sich als Änderung der Flüsse entlang der Fließstrecke  $\Delta x$ .

$$AJ_{\text{out}} = A \left[ J_{h,F} + \left( \frac{\partial J_{h,F}}{\partial x} \right) \Delta x \right] + A \left[ J_{a,F} + \left( \frac{\partial J_{a,F}}{\partial x} \right) \Delta x \right] = \text{Austritt} \quad [70]$$

Ein Unterschied zwischen dem Massenfluss in das SV hinein und aus diesem heraus muss aus Gründen der Massenerhaltung zu einer Änderung der im SV vorliegenden Masse führen oder durch Quellen oder Senken ausgeglichen werden. Setzt man voraus, dass die Radonkonzentration der Anzahl der Radonotope bzw. deren Masse proportional ist, dann gilt für die zeitliche Änderung der im dreidimensionalen SV ( $\Delta x \Delta y \Delta z$ ) gespeicherten Masse [71], für eine Radonquelle (Emanation) [72] und für eine Radonsenke (radioaktiver Zerfall) [73]:

$$n_F A \left( \frac{\partial C_F}{\partial t} \right) \Delta x = \text{zeitliche Änderung} \quad [71]$$

$$n_F A \Phi \Delta x = n_F A \lambda \frac{\epsilon C_{Ra} \rho}{n} \Delta x = \text{Quelle (Emanation)} \quad [72]$$

$$n_F A I \Delta x = n_F A \lambda C_F \Delta x = \text{Senke (radioaktiver Zerfall)} \quad [73]$$

In den letzten drei Gleichungen ist die Porosität  $n_F$  enthalten, um die Ausdrücke wie die Stoffflüsse des Eintritts [69] und Austritts [70] auf die Einheit [ $\text{Bq m}^{-3}_{\text{Medium}}$ ] zu beziehen.

Fasst man die Gleichungen [69] bis [73] entsprechend [68] zusammen, kann folgende ausführliche Bilanzgleichung geschrieben werden:

$$n_F A \left( \frac{\partial C_F}{\partial t} \right) \Delta x = AJ_{h,F} + AJ_{a,F} - A \left[ J_{h,F} + \left( \frac{\partial J_{h,F}}{\partial x} \right) \Delta x \right] - A \left[ J_{a,F} + \left( \frac{\partial J_{a,F}}{\partial x} \right) \Delta x \right] + n_F A \frac{\epsilon C_{Ra} \rho}{n} \Delta x - n_F A \lambda C_F \Delta x \quad [74a]$$

Nach Auflösen der Klammern auf der rechten Seite in [74a] erhält man:

$$n_F A \left( \frac{\partial C_F}{\partial t} \right) \Delta x = AJ_{h,F} + AJ_{a,F} - AJ_{h,F} + A \left( \frac{\partial J_{h,F}}{\partial x} \right) \Delta x - AJ_{a,F} + A \left( \frac{\partial J_{a,F}}{\partial x} \right) \Delta x + n_F A \frac{\epsilon C_{Ra} \rho}{n} \Delta x - n_F A \lambda C_F \Delta x \quad [74b]$$

Bleibt der Querschnitt mit der Transportstrecke gleich, kann in [74] durch A dividiert werden.

Nach Elimination von  $AJ_{h,F}$  und  $AJ_{a,F}$  und Division durch A und  $\Delta x$  erhält man [75].

$$n_F \frac{\partial C_F}{\partial t} = - \frac{\partial J_{h,F}}{\partial x} - \frac{\partial J_{a,F}}{\partial x} + n_F \frac{\epsilon C_{Ra} \rho}{n} - n_F \lambda C_F \quad [75]$$

Setzt man die Gleichungen für  $J_{h,F}$  [67] und  $J_{a,F}$  [56] in [75] ein, so erhält man die ausführliche ADG als Differentialgleichung 2. Ordnung für den eindimensionalen Transport von Radon im mit der fluiden Phase F gefüllten Porenraum  $n_F$  durch Advektion, Dispersion und Diffusion entlang der x-Achse mit Quelle (Emanationsrate  $\Phi$ ) und Senke (radioaktiver Zerfall I).

$$n_F \frac{\partial C_F}{\partial t} = - \frac{\partial \left[ -n_F (D_{e,F} + D_{Disp,F}) \frac{\partial C_F}{\partial x} \right]}{\partial x} - n_F v_F \frac{\partial C_F}{\partial x} + n_F \lambda \frac{\epsilon C_{Ra} \rho}{n} - n_F \lambda C_F \quad [76]$$

Die mathematische Beschreibung des Radontransportes in einem vollständig mit Bodenluft, Wasser oder einer NAPL gesättigten Porenraum, wird nachfolgend zunächst getrennt für die Einphasensysteme und schließlich für das Dreiphasensystem mit den Phasen Wasser, Bodenluft und NAPL vorgestellt. Für die Systeme gelten folgende Grundgleichungen:

Wassergesättigtes Medium, Index W:

$$n_W \frac{\partial C_W}{\partial t} = - \frac{\partial \left[ -n_W (D_{e,W} + D_{Disp,W}) \frac{\partial C_W}{\partial x} \right]}{\partial x} - n_W v_W \frac{\partial C_W}{\partial x} + n_W \lambda \frac{\epsilon C_{Ra} \rho}{n} - n_W \lambda C_W \quad [77]$$

Trockenes, luftgefülltes Medium, Index L:

$$n_L \frac{\partial C_L}{\partial t} = - \frac{\partial \left[ -n_L (D_{e,L} + D_{Disp,L}) \frac{\partial C_L}{\partial x} \right]}{\partial x} - n_L v_L \frac{\partial C_L}{\partial x} + n_L \lambda \frac{\epsilon C_{Ra} \rho}{n} - n_L \lambda C_L \quad [78]$$

NAPL-gesättigtes Medium, Index NAPL:

$$n_{NAPL} \frac{\partial C_{NAPL}}{\partial t} = - \frac{\partial \left[ -n_{NAPL} (D_{e,NAPL} + D_{Disp,NAPL}) \frac{\partial C_{NAPL}}{\partial x} \right]}{\partial x} - n_{NAPL} v_{NAPL} \frac{\partial C_{NAPL}}{\partial x} + n_{NAPL} \lambda \frac{\epsilon C_{Ra} \rho}{n} - n_{NAPL} \lambda C_{NAPL} \quad [79]$$

Dreiphasensystem:

$$\begin{aligned} n_W \frac{\partial C_W}{\partial t} + n_L \frac{\partial C_L}{\partial t} + n_{NAPL} \frac{\partial C_{NAPL}}{\partial t} &= \frac{\partial \left[ n_W (D_{e,W} + D_{Disp,W}) \frac{\partial C_W}{\partial x} \right]}{\partial x} - n_W v_W \frac{\partial C_W}{\partial x} + n_W \lambda \frac{\epsilon C_{Ra} \rho}{n} \\ &- n_W \lambda C_W + \frac{\partial \left[ n_L (D_{e,L} + D_{Disp,L}) \frac{\partial C_L}{\partial x} \right]}{\partial x} - n_L v_L \frac{\partial C_L}{\partial x} + n_L \lambda \frac{\epsilon C_{Ra} \rho}{n} - n_L \lambda C_L \\ &+ \frac{\partial \left[ n_{NAPL} (D_{e,NAPL} + D_{Disp,NAPL}) \frac{\partial C_{NAPL}}{\partial x} \right]}{\partial x} - n_{NAPL} v_{NAPL} \frac{\partial C_{NAPL}}{\partial x} + n_{NAPL} \lambda \frac{\epsilon C_{Ra} \rho}{n} - n_{NAPL} \lambda C_{NAPL} \end{aligned} \quad [80]$$

Der Porenraum im betrachteten Transportmodell wird hier durch die Phasen Wasser, Luft und NAPL ausgefüllt. Der phasengefüllte Porenanteil in [80] ist entsprechend [81] definiert.

$$n_L + n_W + n_{NAPL} = nS_L + nS_W + nS_{NAPL} = n (S_L + S_W + S_{NAPL}) \quad [81]$$

$$n_{NAPL} = \text{NAPL-gefüllter Porenanteil [ m}_{NAPL}^3 \text{ m}_{\text{Boden}}^{-3} ]$$

$$S_{NAPL} = \text{NAPL-Sättigungsgrad [ m}_{NAPL}^3 \text{ m}_{\text{Poren}}^{-3} ]$$

Nach Berücksichtigung der Definition des Porenraums [81], erhält man nach Ausklammern von  $n$ ,  $\lambda$  und  $\frac{\varepsilon C_{Ra} \rho}{n}$  die ausführliche Dreiphasendifferentialgleichung für den Radontransport im porösen Medium, dessen Porosität mit der Transportstrecke  $\Delta x$  konstant bleibt:

$$\begin{aligned} n \frac{\partial (S_W C_W + S_L C_L + S_{NAPL} C_{NAPL})}{\partial t} = n \left( \frac{\partial \left[ (D_{e,W} + D_{Disp,W}) \frac{\partial S_W C_W}{\partial x} \right]}{\partial x} + \frac{\partial \left[ (D_{e,L} + D_{Disp,L}) \frac{\partial S_L C_L}{\partial x} \right]}{\partial x} \right) \\ + \frac{\partial \left[ (D_{e,NAPL} + D_{Disp,NAPL}) \frac{\partial S_{NAPL} C_{NAPL}}{\partial x} \right]}{\partial x} \\ - n \left( v_W \frac{\partial S_W C_W}{\partial x} - v_L \frac{\partial S_L C_L}{\partial x} - v_{NAPL} \frac{\partial S_{NAPL} C_{NAPL}}{\partial x} \right) + n \lambda \frac{\varepsilon C_{Ra} \rho}{n} (S_W + S_L + S_{NAPL}) \\ - n \lambda (S_W C_W + S_L C_L + S_{NAPL} C_{NAPL}) \quad [82] \end{aligned}$$

Die Betrachtung der Radonentstehung (Emanation) ist nach dieser Gleichung unabhängig vom Sättigungsgrad  $S$  der beteiligten Phasen, da sie nach [9] in der Summe eins ergeben. Die Emanation findet in jedem Fall in Bezug auf den gesamten Porenraum  $n$  statt.

Anschließend werden für die ungesättigte und gesättigte Bodenzone, jeweils mit und ohne NAPL-Einfluss in [82] Transportgleichungen für das jeweilige Szenario abgeleitet.

#### 6.4 Radontransport in der ungesättigten Bodenzone

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit werden Radonkonzentrationen der Bodenluft, d. h. in der Gasphase der ungesättigten Bodenzone untersucht. Ab einer bestimmten Tiefe von der Oberfläche – in Abhängigkeit von der Bodenart zwischen 0,3 und 1 m Tiefe; vgl. Kapitel 6.2.1 – führen tageszyklische Temperaturschwankungen und der Wind an der Oberfläche (Bernoulli-Effekt) bzw. Luftdruckschwankungen zu keiner nennenswerten Induktion von advektivem Radontransport durch Luftströmungen (Schubert & Schulz, 2002). Der unter den genannten Voraussetzungen resultierende Radontransport in der ungesättigten Bodenzone findet somit hauptsächlich durch Diffusion in der Gasphase statt. Das bedeutet, dass in [82] die Fließgeschwindigkeiten der Luft  $v_L$ , des Wassers  $v_W$  und der NAPL  $v_{NAPL}$  und damit die

Dispersionskoeffizienten  $D_{\text{Disp,L}}$ ,  $D_{\text{Disp,W}}$  und  $D_{\text{Disp,NAPL}}$  sowie die Diffusionskoeffizienten von Radon in Wasser ( $D_{e,W}$ ) und in der NAPL ( $D_{e,NAPL}$ ) vernachlässigbar sind, d. h. gleich Null gesetzt werden. Nach diesen Umformungen und der Division durch  $n$  in [82] erhält man mit [83] die Gleichung für diffusiven Transport von Radon in der ungesättigten Bodenzone mit NAPL-Einfluss:

$$\frac{\partial(S_W C_W + S_L C_L + S_{\text{NAPL}} C_{\text{NAPL}})}{\partial t} = \frac{\partial\left(D_{e,L} \frac{\partial S_L C_L}{\partial x}\right)}{\partial x} + \lambda \frac{\varepsilon C_{\text{Ra}} \rho}{n} - \lambda(S_W C_W + S_L C_L + S_{\text{NAPL}} C_{\text{NAPL}}) \quad [83]$$

Die Radonkonzentration der Luft  $C_L$  wird im Gleichgewicht mit Wasser durch den in [25] formulierten Verteilungskoeffizienten bestimmt. Aus [25] folgt, dass  $C_W = K_{W/L} C_L$ . Im Gleichgewicht mit der NAPL ist der Verteilungskoeffizient durch [26] definiert, woraus folgt, dass  $C_{\text{NAPL}} = K_{\text{NAPL/L}} C_L$ . Substituiert man in [83]  $C_W$  durch  $K_{W/L} C_L$  und  $C_{\text{NAPL}}$  durch  $K_{\text{NAPL/L}} C_L$  erhält man:

$$\frac{\partial(S_L C_L + S_W K_{W/L} C_L + S_{\text{NAPL}} K_{\text{NAPL/L}} C_L)}{\partial t} = D_{e,L} \left( \frac{\partial^2 S_L C_L}{\partial x^2} \right) + \lambda \frac{\varepsilon A_{\text{Ra}} \rho_d}{n} - \lambda(S_L C_L + S_W K_{W/L} C_L + S_{\text{NAPL}} K_{\text{NAPL/L}} C_L) \quad [84]$$

Dividiert man in [84] durch  $S_L$  und isoliert anschließend  $C_L$ , erhält man folgenden Zusammenhang:

$$\frac{\left(1 + K_{W/L} \frac{S_W}{S_L} + K_{\text{NAPL/L}} \frac{S_{\text{NAPL}}}{S_L}\right) \partial C_L}{\partial t} = D_{e,L} \left( \frac{\partial^2 C_L}{\partial x^2} \right) + \frac{\lambda}{S_L} \frac{\varepsilon A_{\text{Ra}} \rho_d}{n} - \lambda C_L \left(1 + K_{W/L} \frac{S_W}{S_L} + K_{\text{NAPL/L}} \frac{S_{\text{NAPL}}}{S_L}\right) \quad [85]$$

Der Ausdruck  $\left(1 + K_{W/L} \frac{S_W}{S_L} + K_{\text{NAPL/L}} \frac{S_{\text{NAPL}}}{S_L}\right) = R$  wird als Retardationsfaktor bezeichnet. Er beschreibt die Verzögerung des Transportes von Radon durch Lösung in der NAPL und in Wasser in Bezug auf das Transportmedium (hier Luft).  $R = 10$  bedeutet z. B., dass Radon 10mal langsamer verlagert wird als das Transportmedium. Nach Substitution dieses Ausdrucks in [85] durch  $R$  und anschließende Division durch  $R$  erhält man die Transportgleichung für Radon durch Diffusion in der Gasphase der ungesättigten Bodenzone:

$$\frac{\partial C_L}{\partial t} = \frac{D_{e,L}}{R} \left( \frac{\partial^2 C_L}{\partial x^2} \right) + \frac{\lambda}{S_L} \frac{\varepsilon C_{\text{Ra}} \rho_d}{nR} - \lambda C_L \quad [86]$$

Je höher der Anteil der NAPL und des Wassers am Porenraum und je höher der Verteilungskoeffizient  $K_{NAPL/L}$ , desto größer ist der Einfluss der NAPL auf die Radonkonzentration der Bodenluft. Mit zunehmendem Wasseranteil  $S_w$  kommt es aufgrund der Verringerung des Porenraumes und des relativ geringen Wertes von  $K_{w/L}$  zu einem Anstieg von  $C_L$ . Mit zunehmendem Luftanteil  $S_L$  verringert sich die Retardation.

Für den Radontransport in der ungesättigten Bodenzone ohne NAPL-Einfluss und immobilierter Wasserphase gilt in [86]  $S_{NAPL} = 0$ . Damit erhält man für den Retardationskoeffizienten in

[86] den Ausdruck  $R = \left(1 + K_{w/L} \frac{S_w}{S_L}\right)$ . Ansonsten bleibt [86] unverändert.

### 6.5 Radontransport in der gesättigten Bodenzone

In der gesättigten Bodenzone mit einer residual vorliegenden NAPL-Phase gilt in [82]  $S_L = 0$ . Der Radontransport findet hier dann hauptsächlich durch Advektion und Dispersion mit der Grundwasserströmung statt. Das bedeutet, dass in [82] die Fließgeschwindigkeiten der Luft ( $v_L$ ), und der NAPL ( $v_{NAPL}$ ) und damit die Dispersionskoeffizienten  $D_{Disp,L}$  und  $D_{Disp,NAPL}$  sowie der Diffusionskoeffizient von Radon in der NAPL ( $D_{e,NAPL}$ ) vernachlässigbar sind, d. h. gleich Null gesetzt werden können. Für typische Fließgeschwindigkeiten des Grundwassers ist der Diffusionskoeffizient von Radon in Wasser ( $D_{e,w}$ ) ebenfalls zu vernachlässigen. Für  $S_L = 0$  und nach Division durch  $n$  in [82] erhält man damit die Gleichung für advektiv-dispersiven Transport von Radon in der gesättigten Bodenzone mit NAPL-Einfluss.

$$\frac{\partial(S_w C_w + S_{NAPL} C_{NAPL})}{\partial t} = \frac{\partial\left(D_{Disp,W} \frac{\partial S_w C_w}{\partial x}\right)}{\partial x} - v_w \frac{\partial S_w C_w}{\partial x} + \lambda \frac{\varepsilon C_{Ra} \rho}{n} - \lambda(S_w C_w + S_{NAPL} C_{NAPL}) \quad [87]$$

Durch das Umströmen der immobilien NAPL kommt es zur Verteilung von Radon zwischen den Flüssigkeiten. Das Verteilungsgleichgewicht im System Wasser/NAPL wird durch den in [24] formulierten Koeffizienten  $K_{NAPL/W}$  bestimmt. Aus [24] folgt, dass  $C_{NAPL} = K_{NAPL/W} C_w$ . Substituiert man in [87]  $C_{NAPL}$  durch  $K_{NAPL/W} C_w$  erhält man:

$$\frac{\partial(S_w C_w + K_{NAPL/W} C_w S_{NAPL})}{\partial t} = D_{Disp,W} \left(\frac{\partial^2 S_w C_w}{\partial x^2}\right) - v_w \left(\frac{\partial S_w C_w}{\partial x}\right) + \lambda \frac{\varepsilon A_{Ra} \rho}{n} - \lambda(C_w S_w + K_{NAPL/W} C_w S_{NAPL}) \quad [88]$$

Dividiert man in [88] durch  $S_w$  und isoliert anschließend  $C_w$  erhält man:

$$\left(1 + K_{\text{NAPL}/\text{W}} \frac{S_{\text{NAPL}}}{S_{\text{W}}}\right) \frac{\partial C_{\text{W}}}{\partial t} = D_{\text{Disp.,W}} \left(\frac{\partial^2 C_{\text{W}}}{\partial x^2}\right) - v_{\text{W}} \left(\frac{\partial C_{\text{W}}}{\partial x}\right) + \frac{\lambda}{S_{\text{W}}} \frac{\varepsilon A_{\text{Ra}} \rho_{\text{d}}}{n} - \lambda C_{\text{W}} \left(1 + K_{\text{NAPL}/\text{W}} \frac{S_{\text{NAPL}}}{S_{\text{W}}}\right) \quad [89]$$

Der Ausdruck  $\left(1 + K_{\text{NAPL}/\text{W}} \frac{S_{\text{NAPL}}}{S_{\text{W}}}\right)$  wird wieder als Retardationsfaktor  $R$  bezeichnet. Nach Substitution von diesem Ausdruck durch  $R$  und Division durch  $R$  in [89] erhält man die Radontransportgleichung in der gesättigten Bodenzone mit NAPL-Einfluss:

$$\frac{\partial C_{\text{W}}}{\partial t} = \frac{D_{\text{Disp.,W}}}{R} \left(\frac{\partial^2 C_{\text{W}}}{\partial x^2}\right) - \frac{v_{\text{W}}}{R} \left(\frac{\partial C_{\text{W}}}{\partial x}\right) + \frac{\lambda}{S_{\text{W}}} \frac{\varepsilon A_{\text{Ra}} \rho_{\text{d}}}{nR} - \lambda C_{\text{W}} \quad [90]$$

$$R = \left(1 + K_{\text{NAPL}/\text{W}} \frac{S_{\text{NAPL}}}{S_{\text{W}}}\right)$$

Je höher der Anteil der NAPL am Porenraum und je höher der Verteilungskoeffizient, desto größer ist die Verzögerung des Transportes von Radon im Bezug auf das Transportmedium (Wasser). Mit zunehmendem Wasseranteil  $S_{\text{W}}$  verringert die Retardation.

Für den Radontransport in der wassergesättigten Bodenzone ohne NAPL-Einfluss gilt in [90]  $S_{\text{NAPL}} = 0$ . Damit erhält man die Radontransportgleichung für das Einphasensystem, das bereits mit [77] beschrieben wurde, wobei in [91] noch die Diffusion von Radon in Wasser ( $D_{\text{e,W}}$ ) vernachlässigt wurde und durch die Porosität  $n_{\text{W}}$  (hier =  $n$ ) dividiert wurde.

$$\frac{\partial C_{\text{W}}}{\partial t} = D_{\text{Disp,W}} \left(\frac{\partial^2 C_{\text{W}}}{\partial x^2}\right) - v_{\text{W}} \left(\frac{\partial C_{\text{W}}}{\partial x}\right) + \lambda \frac{\varepsilon C_{\text{Ra}} \rho}{n} - \lambda C_{\text{W}} \quad [91]$$

## **7 Modellierung des Radontransports**

### **7.1 Finites-Differenzen-Verfahren zur Lösung der ADG**

#### **7.1.1 Ausgangssituation**

Aufgrund der relativ hohen Radonkonzentrationen in der Bodenluft und der sehr geringen Konzentration in der Atmosphäre kommt es zur Ausbildung eines Gradienten, der einen zur Bodenoberfläche gerichteten eindimensionalen diffusiven Radonfluss antreibt. Für das zu entwickelnde Verfahren wird aus diesem Grund ein eindimensionaler Ansatz gewählt. Das Verfahren soll räumlich und zeitlich variable Parameter (z. B. Wassergehalt) einbeziehen, einschließlich einer lokalen residualen NAPL-Kontamination, wie sie typischerweise unter Feldbedingungen auftreten können. Von zentralem Interesse ist dabei, dass bei der Interpretation von Radonmesswerten die Einflüsse unterschiedlicher Parameterwerte und der NAPL-Einfluss adäquat berücksichtigt werden können.

In diesem Kapitel wird ein Finite-Differenzen-Lösungsverfahren entwickelt, mit dem räumlich und zeitlich variable (non-steady state) Verhältnisse beim Radontransport berücksichtigt werden können. Die Differentialquotienten des infinitesimalen Strömungs- und Transportmodells (ADG) werden durch diskrete räumliche und zeitliche Differenzenquotienten angenähert. Die Berechnung der Flüsse und Stoffkonzentrationen entlang der Transportstrecke erfolgt an diskreten Knoten- und Zeitpunkten. Jeder Knotenpunkt ist dabei repräsentativ hinsichtlich verschiedener Parameter für das entsprechende Kompartiment.

Bei der Interpretation von einmaligen Radonmessungen im Felde, wie in Lau et al. (2004) beschrieben, müssen normalerweise keine zeitlichen Veränderungen von Transportparametern berücksichtigt werden. Das hier zu entwickelnde Verfahren soll aber auch für non-steady state Verhältnisse geeignet sein, da z. B. im Rahmen der in Kapitel 8 beschriebenen Bodensäulenexperimente auch Zeitreihen der Radonkonzentration in Abhängigkeit von verschiedenen Parametern untersucht werden sollen.

Wie in Kapitel 6.4 bereits erwähnt, erfolgt der Radontransport im Boden hauptsächlich durch Diffusion. Mit dem zu entwickelnden Verfahren sollen neben der Diffusion aber auch Advektion und Dispersion berücksichtigt werden können. Der Aufwand für die Entwicklung bzw. für entsprechende Berechnungen ist für ein derartiges Modell nicht wesentlich höher als für ein reines steady state Diffusions-Modell. Es kann zudem universell für verschiedene Fragestellungen, die Radon als natürlichen Tracer nutzen, eingesetzt werden. Ein breites Spektrum

von Anwendungsmöglichkeiten wird in Schubert (2006) dargestellt. In der vorliegenden Arbeit werden Diffusionsprozesse in der ungesättigten Bodenzone betrachtet.

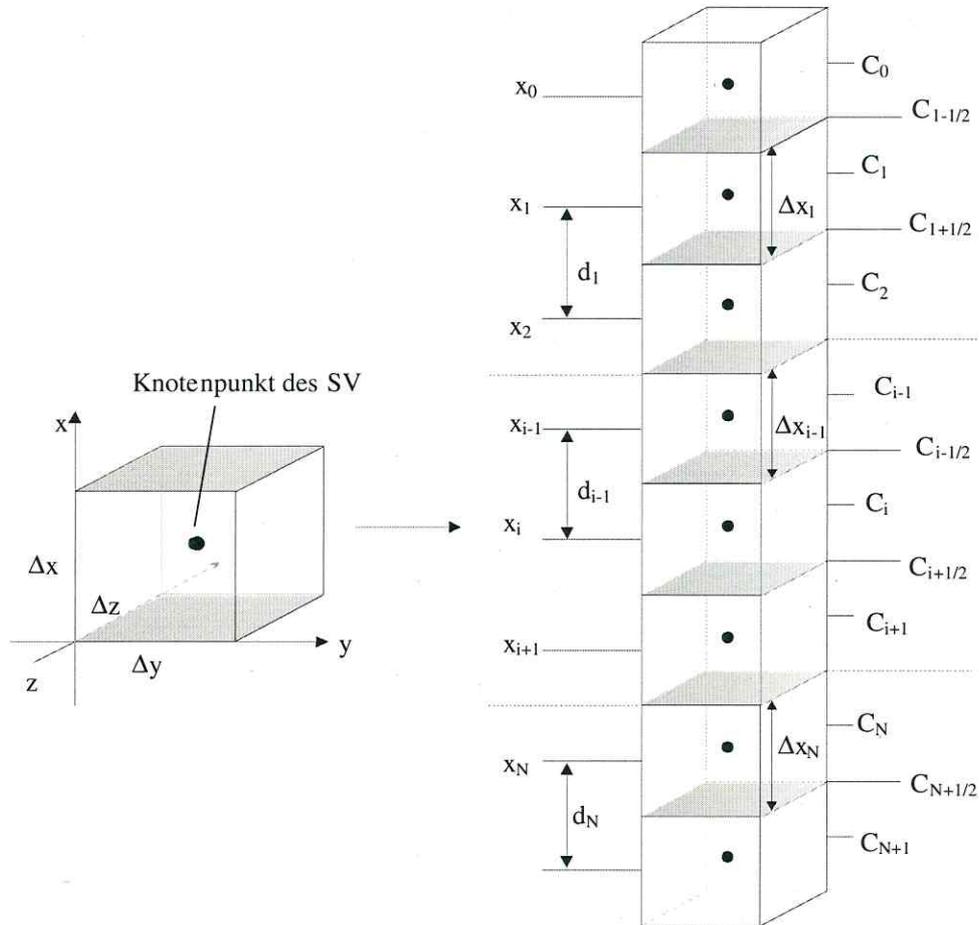
### 7.1.2 Räumliche Diskretisierung (Raum-Indizes i)

Zur räumlichen Diskretisierung wird die Transportstrecke in N Kompartimente entsprechend Abbildung 24 unterteilt. Die Berechnung der Radonkonzentrationen entlang der Transportstrecke erfolgt für ein System von N Bilanzgleichungen der Massenflüsse für N Kompartimente. Jedes Kompartiment wird durch ein repräsentatives Elementar- oder Speichervolumen (SV), wie in Kapitel 6.3 beschrieben, mit der Dicke  $\Delta x$  und der Querschnittsfläche  $A = \Delta y \Delta z$  gebildet. Die Radonkonzentrationen  $C_i$  werden für die im Zentrum der Kompartimente befindlichen Knotenpunkte berechnet. Die Schichtdicken  $\Delta x_i$  und damit die Knotenabstände  $d_i$  können verschieden groß gewählt werden. Bei der Wahl der Abstände  $d_i$  ist zu beachten, dass mit kleiner werdenden Abständen die Genauigkeit der berechneten Lösung zwar zunimmt, gleichzeitig aber die in Kapitel 7.1.5 genannten Kriterien zur Stabilität eingehalten werden müssen.

Die zeitliche Massenänderung  $\frac{\partial C}{\partial t}$  in einem Kompartiment, repräsentiert durch den Index i, wird durch die Differenz der Massenflüsse hinein ( $J_{in}$ ) und heraus ( $J_{out}$ ) bzw. der Summe von advektivem ( $J_a$ ) und diffusiv-dispersivem Stofffluss ( $J_h$ ) sowie Quellen- und Senkenterm entsprechend [92] gebildet:

$$A \frac{\partial C_i}{\partial t} \Delta x_i = -(J_{out} - J_{in}) = -[(J_{h,out} - J_{h,in}) + (J_{a,out} - J_{a,in})] + A\Phi\Delta x - AI\Delta x \quad [92]$$

Die Terme für die Stoffflüsse J wurden bereits in Kapitel 6.2.2 bzw. 6.2.3 bei der Herleitung der ADG vorgestellt. Diese Terme enthalten alle den Differentialquotienten  $\frac{\partial C}{\partial x}$ . In einem Finite-Differenzen-Verfahren wird dieser in einen Differenzenquotienten mit Ortsdiskretisierung umgewandelt. Die Differenzenbildung erfolgt entsprechend der Steigung der Geraden im C-x-Koordinatensystem, wie in Abbildung 25 dargestellt. Es wird hier dabei zu Grunde gelegt, dass in großer Tiefe relativ hohe Konzentrationen vorherrschen, die in Richtung der Oberfläche abnehmen.

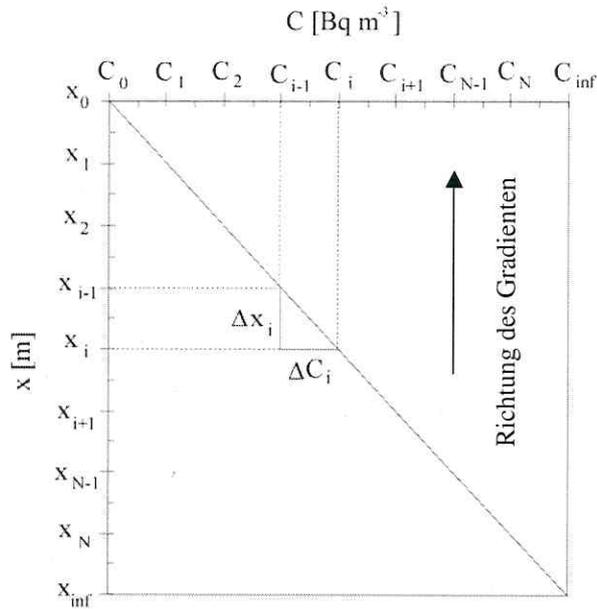


**Abbildung 24:** Dreidimensionales repräsentatives Speichervolumen (SV) und räumliche Diskretisierung des Modellgebiets in N Kompartimente. Verändert nach Richter & Anlauf (1988).

Die Differenzen vom Knoten  $i+1$  nach  $i$  (hineingerichtet) werden gemäß [93] gebildet. Die Distanz  $d$  wird mit dem Kompartimentindex des nächsten Knotens notiert, also  $d$  von  $i+1$  nach  $i$  als  $d_i$ :

$$\frac{\partial C}{\partial x} \approx \frac{\Delta C}{\Delta x} = \frac{C_{i+1} - C_i}{d_i} \quad [93]$$

Die Differenzen vom Knoten  $i$  nach  $i-1$  (herausgerichtet) werden entsprechend [94] gebildet. Die Distanz  $d$  wird wiederum mit dem Kompartimentindex des nächsten Knotens notiert, also hier als  $d_{i-1}$ :



**Abbildung 25:** Schematische Darstellung des Konzentrationsgradienten im eindimensionalen Modellgebiet.

$$\frac{\partial C}{\partial x} \approx \frac{\Delta C}{\Delta x} = \frac{C_i - C_{i-1}}{d_{i-1}} \quad [94]$$

Die in den Termen der Stoffflüsse ( $J$ ), die in Kapitel 6.2.2 und 6.2.3 hergeleitet wurden, enthaltenden Transportkoeffizienten  $D$  und  $v$  werden hier ebenfalls mit dem Kompartimentindex des nachfolgenden Punktes notiert. Der Koeffizient  $D$  wird beispielsweise vom Knoten  $i+1$  nach  $i$  als  $D_i$  notiert. Für den Diffusions-Dispersionsterm erhält man vom Knoten  $i+1$  nach  $i$  bzw. für die Stoffflüsse in das SV  $i$  hinein ( $J_{h,in}$ ):

$$J_{h,in} = AD_i \frac{\partial C_i}{\partial x_i} \approx AD_i \frac{C_{i+1} - C_i}{d_i} \quad [95]$$

Für den Stofffluss aus dem SV  $i$  heraus bzw. vom Knoten  $i$  nach  $i-1$  gilt:

$$J_{h,out} = AD_{i-1} \frac{\partial C_i}{\partial x_{i-1}} \approx AD_{i-1} \frac{C_i - C_{i-1}}{d_{i-1}} \quad [96]$$

Die advektiven Stoffflüsse ( $J_a$ ) werden folgendermaßen berechnet:

$$J_{a,in} = Av_i C_{i+1} \quad [97]$$

$$J_{a,out} = Av_{i-1} C_i \quad [98]$$

Für die Radonquelle und -senke des SV am Knoten  $i$  gilt:

$$A\Phi_i \Delta x_i = A\lambda \frac{\epsilon_i C_{Ra,i} P_i}{n_i} \Delta x_i = \text{Quelle (Emanation)} \quad [99]$$

$$AI_i \Delta x_i = A\lambda C_i \Delta x_i = \text{Senke (radioaktiver Zerfall)} \quad [100]$$

Setzt man die o. g. Ausdrücke für die diffusiv-dispersiven und advektiven Stoffflüsse sowie Radonquelle und -senke in [92] ein, erhält man:

$$A \frac{\partial C_i}{\partial t} \Delta x_i = - \left[ \left( AD_{i-1} \frac{C_i - C_{i-1}}{d_{i-1}} - AD_i \frac{C_{i+1} - C_i}{d_i} \right) + (Av_{i-1} C_i - Av_i C_{i+1}) \right] + A\Phi_i \Delta x_i - AI_i \Delta x_i \quad [101]$$

Da der Querschnitt  $A$  mit der Transportstrecke gleich bleibt und  $A$  in jedem Term vorhanden ist, kann er aus [101] herausgekürzt werden. Nach Kürzen von  $A$  und Division durch  $\Delta x_i$  erhält man die räumlich diskretisierte Transportgleichung:

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = - \frac{D_{i-1}}{d_{i-1} \Delta x_i} (C_i - C_{i-1}) + \frac{D_i}{d_i \Delta x_i} (C_{i+1} - C_i) - \frac{v_{i-1}}{\Delta x_i} C_i + \frac{v_i}{\Delta x_i} C_{i+1} + \Phi_i - I_i \quad [102]$$

Nach Ausklammern der Konzentrationen  $C_{i-1}$ ,  $C_i$  und  $C_{i+1}$  ergibt sich das Schema:

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = \frac{D_{i-1}}{d_{i-1} \Delta x_i} C_{i-1} - \left( \frac{D_{i-1}}{d_{i-1} \Delta x_i} + \frac{D_i}{d_i \Delta x_i} + \frac{v_{i-1}}{\Delta x_i} \right) C_i + \left( \frac{D_i}{d_i \Delta x_i} + \frac{v_i}{\Delta x_i} \right) C_{i+1} + \Phi_i - I_i \quad [103]$$

### 7.1.3 Zeitliche Diskretisierung (Zeit-Indizes $t$ )

Die Zeitableitung  $\frac{\partial C}{\partial t}$  wird durch diskrete Zeitpunkte  $t$  ersetzt. Zum Zeitpunkt  $t$  werden die neuen Konzentrationen  $t + \Delta t$  aller ortsdiskreten Knotenpunkte, wie auch in [93] und [94], durch rückwärtige Differenzen berechnet.

$$\frac{\partial C}{\partial t} \approx \frac{\Delta C}{\Delta t} = \frac{C_i^{t+\Delta t} - C_i^t}{\Delta t} \quad [104]$$

Ersetzt man die Zeitableitung  $\frac{\partial C}{\partial t}$  in [103] durch die Differenzen gemäß [104], dann gilt:

$$\frac{C_i^{t+\Delta t} - C_i^t}{\Delta t} = \frac{D_{i-1}}{d_{i-1}\Delta x_i} C_{i-1} - \left( \frac{D_{i-1}}{d_{i-1}\Delta x_i} + \frac{D_i}{d_i\Delta x_i} + \frac{v_{i-1}}{\Delta x_i} \right) C_i + \left( \frac{D_i}{d_i\Delta x_i} + \frac{v_i}{\Delta x_i} \right) C_{i+1} + \Phi_i - I_i \quad [105]$$

Multipliziert man [105] mit  $\Delta t$  erhält man:

$$C_i^{t+\Delta t} - C_i^t = \frac{D_{i-1}\Delta t}{d_{i-1}\Delta x_i} C_{i-1} - \left( \frac{D_{i-1}\Delta t}{d_{i-1}\Delta x_i} + \frac{D_i\Delta t}{d_i\Delta x_i} + \frac{v_{i-1}\Delta t}{\Delta x_i} \right) C_i + \left( \frac{D_i\Delta t}{d_i\Delta x_i} + \frac{v_i\Delta t}{\Delta x_i} \right) C_{i+1} + \Phi_i\Delta t - I_i\Delta t \quad [106]$$

Für weitere Berechnungen werden folgende Vereinfachungen in den Bezeichnungen gemacht:

$$\alpha_{i-1} = \frac{D_{i-1}\Delta t}{d_{i-1}\Delta x_i} \quad [107]$$

$$\alpha_i = \frac{D_i\Delta t}{d_i\Delta x_i} \quad [108]$$

$$\beta_{i-1} = \frac{v_{i-1}\Delta t}{\Delta x_i} \quad [109]$$

$$\beta_i = \frac{v_i\Delta t}{\Delta x_i} \quad [110]$$

$$U_i = \Phi_i\Delta t - I_i\Delta t \quad [111]$$

Zur weiteren Vereinfachung kann die Annahme getroffen werden, dass alle Kompartimente gleich groß sind, d. h.  $\Delta x$  konstant ist, so dass  $d_i = \Delta x_i$ . Dies würde jedoch eine Einschränkung bei der Gestaltung räumlich heterogener Verhältnisse nach sich ziehen, sodass hier diese Annahme nicht getroffen wird.

Nach Einsetzen der vereinfachten Terme in [106] erhält man [112]:

$$C_i^{t+\Delta t} - C_i^t = \alpha_{i-1} C_{i-1} - (\alpha_{i-1} + \alpha_i + \beta_{i-1}) C_i + (\alpha_i + \beta_i) C_{i+1} + U_i \quad [112]$$

Zur Berechnung der Knotenpunktkonzentrationen  $C_{i-1}$ ,  $C_i$  und  $C_{i+1}$  wird ein zeitlich gewichtetes Mittel dieser Konzentrationen verwendet, sodass die Berechnung aus Konzentrationen zu den Zeitpunkten  $t$  und  $t + \Delta t$  erfolgt. Der Wichtungsfaktor der Zeitebene ist  $\eta$  und liegt zwischen 0 und 1. Es gilt:

$$C_i = \eta C_i^{t+\Delta t} + (1-\eta) C_i^t \quad [113]$$

Der Zeitpunkt  $t + 1$  wird durch  $\eta$  und der Zeitpunkt  $t$  durch  $(1-\eta)$  gewichtet. Beim zeitzentrierten Verfahren nach Crank & Nicholson (1947) beträgt  $\eta = 0,5$ . Die Konzentrationen zum Zeitpunkt  $t$  und  $t + 1$  werden in diesem Fall gleichgewichtig behandelt. In Abbildung 26 ist für die Konzentration am Punkt  $i$  der Zeitpunkt der Berechnung nach [113] für  $\eta = 0,5$  schematisch dargestellt. Die zeitliche Diskretisierung ergibt sich nach Einsetzen von [113] in [112] gemäß [114]. Es sei darauf hingewiesen, dass in [114] im Hinblick auf weitere Umformungen mit  $-1$  multipliziert wurde, sodass sich hier die Vorzeichen geändert haben:

$$C_i^t - C_i^{t+1} = -\alpha_{i-1}(\eta C_{i-1}^{t+1} + (1-\eta)C_{i-1}^t) + (\alpha_{i-1} + \alpha_i + \beta_{i-1})(\eta C_i^{t+1} + (1-\eta)C_i^t) - (\alpha_i + \beta_i)(\eta C_{i+1}^{t+1} + (1-\eta)C_{i+1}^t) - U_i \quad [114]$$

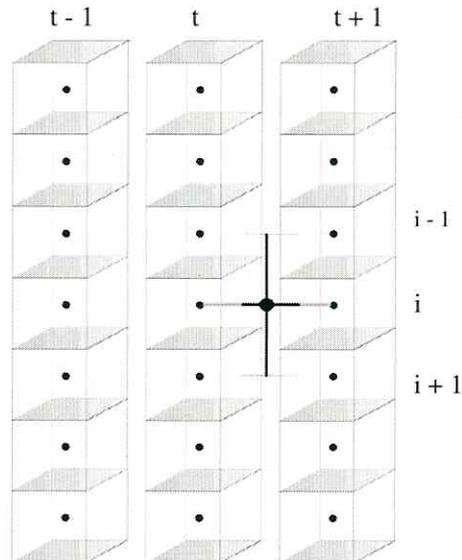
Nach Auflösen der Klammern in [114] erhält man:

$$C_i^t - C_i^{t+1} = -\alpha_{i-1}\eta C_{i-1}^{t+1} - \alpha_{i-1}(1-\eta)C_{i-1}^t + (\alpha_{i-1} + \alpha_i + \beta_{i-1})\eta C_i^{t+1} + (\alpha_{i-1} + \alpha_i + \beta_{i-1})(1-\eta)C_i^t - (\alpha_i + \beta_i)\eta C_{i+1}^{t+1} - (\alpha_i + \beta_i)(1-\eta)C_{i+1}^t - U_i \quad [115]$$

Die o. g. Differenzgleichungen enthalten sowohl bekannte Konzentrationen zum Zeitpunkt  $t$  ( $C^t$ ) als auch unbekannte zum Zeitpunkt  $t+1$  ( $C^{t+1}$ ). Wenn alle  $C^t$  und der Quellen- und Senkenterm  $U$  auf die linke Seite und alle  $C^{t+1}$  auf die rechte Seite der Gleichung geschoben und zusammengefasst werden, erhält man folgendes räumlich und zeitlich diskretisiertes Schema:

$$\alpha_{i-1}(1-\eta)C_{i-1}^t - [(\alpha_{i-1} + \alpha_i + \beta_{i-1})(1-\eta) - 1]C_i^t + (\alpha_i + \beta_i)(1-\eta)C_{i+1}^t + U_i = -\alpha_{i-1}\eta C_{i-1}^{t+1} + [(\alpha_{i-1} + \alpha_i + \beta_{i-1})\eta + 1]C_i^{t+1} - (\alpha_i + \beta_i)\eta C_{i+1}^{t+1} \quad [116]$$

Die Differenzgleichung [116] gilt für die inneren Knotenpunkte von  $i = 2$  bis  $N-1$ . Für die an den Rändern der Transportstrecke befindlichen Punkte  $i = 1$  und  $i = N$  gelten die im nachfolgenden Kapitel hergeleiteten Gleichungen.



**Abbildung 26:** Zeitliche Diskretisierung im Modell am Punkt  $i$ , mit schematischer Darstellung des Zeitpunktes nach [113] mit  $\eta = 0,5$ .

#### 7.1.4 Randbedingungen

##### *Allgemeines*

Die Formulierung von Randbedingungen ist notwendig, um die Differenzgleichungen für alle Knoten zu lösen. Die Randbedingungen sind über den betrachteten Zeitraum bekannt. Für die Gestaltung der oberen oder unteren Randbedingungen gibt es für den Radontransport drei Möglichkeiten:

- konstante Radonkonzentration (constant concentration),
- kein Radonfluss (no flow),
- konstanter Radonfluss (constant flow).

Die obere und untere Randbedingung können dabei unterschiedlich sein. Konstante Radonkonzentration kommt in der Natur z. B. vor, wenn man den Radontransport im Boden und die Bodenoberfläche als oberen Rand ( $i = 0$ ) betrachtet. In der Atmosphärenluft ist die Radonkonzentration normalerweise immer praktisch Null. In großen Bodentiefen ( $i = N+1$ ) ist die Radonkonzentration auch meist konstant. Mathematisch ausgedrückt bedeutet das:

- obere constant concentration Randbedingung:  $C_0 = \text{konstant bei } x = 0, t \geq 0$
- untere constant concentration Randbedingung:  $C_{N+1} = \text{konstant bei } x = x_{N+1}, t \geq 0$

Kein Radonfluss kommt z. B. vor, wenn die Oberfläche vollständig versiegelt ist und somit kein Radon aus dem Boden austreten kann. Hier sei auf die Bodensäulenexperimente in Diffusionsgefäßen mit Deckel zur Oberflächenabdichtung verwiesen (vgl. Kapitel 8.2). Im Feld kommt Kein-Fluss u. a. auch dann vor, wenn der Grundwasserspiegel die untere Grenze für den Radontransport in der Bodenluft bildet. Der Diffusionskoeffizient von Radon in Wasser ist um etwa vier Größenordnungen kleiner als der in Luft. Daher findet de facto kein Fluss über den unteren Rand statt. Um die Kein-Fluss-Bedingung abzubilden, wird die Konzentration an den Rändern ( $C_0$  bzw.  $C_{N+1}$ ) der zu jedem Zeitpunkt jeweils neu berechneten Konzentration im benachbarten Knoten ( $C_1$  bzw.  $C_N$ ) gleichgesetzt. Dadurch ist der Konzentrationsgradient gleich Null und es findet kein Fluss statt. Es gilt:

- obere no flow Randbedingung:  $C_0 = C_1$  bei  $x = 0, t \geq 0$

- untere no flow Randbedingung:  $C_{N+1} = C_N$  bei  $x = x_{N+1}, t \geq 0$

Kein Radonfluss (no flow) ist ein spezieller Fall der constant flow Bedingung. Konstanter Radonfluss liegt dann vor, wenn ein konstanter diffusiv-dispersiver bzw. advektiver Radonstrom über einen oder beide Ränder der Transportstrecke stattfindet. Diese Bedingungen sind jedoch unter natürlichen Verhältnissen nicht zu erwarten. Die Anwendung der constant flow Randbedingung für Radontransportsimulationen in der Bodenluft wird daher hier nicht weiter betrachtet.

#### *Oberer Rand*

Der obere Rand der Transportstrecke wird im Modell durch den Knoten  $i = 1$  repräsentiert. Setzt man in [116] für  $i = 1$  ein, erhält man [117]:

$$\begin{aligned} \alpha_0(1-\eta)C_0^t - [(\alpha_0 + \alpha_1 + \beta_0)(1-\eta) - 1]C_1^t + (\alpha_1 + \beta_1)(1-\eta)C_2^t + U_1^t = \\ -\alpha_0\eta C_0^{t+1} + [(\alpha_0 + \alpha_1 + \beta_0)\eta + 1]C_1^{t+1} - (\alpha_1 + \beta_1)\eta C_2^{t+1} \end{aligned} \quad [117]$$

$C_0$  ist hier die an der Oberfläche anliegende Radonkonzentration der Atmosphärenluft, die Null beträgt. Die Konzentration der Atmosphäre ist sowohl zum Zeitpunkt  $t$ , als auch zum neuen Zeitpunkt  $t+1$  konstant Null, sodass in [117]  $C_0^{t+1}$  auf die linke Seite mit den bekannten Konzentrationen zum Zeitpunkt  $t$  verschoben werden kann. Da zeitlich konstant, kann man in [117]  $C_0$  anstatt  $C_0^t$  oder  $C_0^{t+1}$  schreiben. Für den oberen Rand gilt dann schließlich die Differenzgleichung:

$$\begin{aligned} & [\alpha_0\eta + \alpha_0(1-\eta)]C_0 - [(\alpha_0 + \alpha_1 + \beta_0)(1-\eta) - 1]C_1^t + (\alpha_1 + \beta_1)(1-\eta)C_2^t + U_1^t = \\ & [(\alpha_0 + \alpha_1 + \beta_0)\eta + 1]C_1^{t+1} - (\alpha_1 + \beta_1)\eta C_2^{t+1} \end{aligned} \quad [118]$$

Es sei darauf hingewiesen, dass bei gleichen Kompartimentdicken  $\Delta x_i$  für den Abstand vom Knotenpunkt 1 zur Bodenoberfläche gilt:  $d_0 = \frac{1}{2}\Delta x$ . Des Weiteren ergibt sich nach Umstellung:  $[\alpha_0\eta + \alpha_0(1-\eta)]C_0 = \alpha_0(\eta+1-\eta)C_0 = \alpha_0C_0$ .

#### *Unterer Rand*

Der untere Rand der Transportstrecke wird im Modell durch den Knoten  $i = N$  repräsentiert. Wird in [116]  $i = N$  eingesetzt, erhält man:

$$\begin{aligned} & \alpha_{N-1}(1-\eta)C_{N-1}^t - [(\alpha_{N-1} + \alpha_N + \beta_{N-1})(1-\eta) - 1]C_N^t + (\alpha_N + \beta_N)(1-\eta)C_{N+1}^t + U_N^t = \\ & -\alpha_{N-1}\eta C_{N-1}^{t+1} + [(\alpha_{N-1} + \alpha_N + \beta_{N-1})\eta + 1]C_N^{t+1} - (\alpha_N + \beta_N)\eta C_{N+1}^{t+1} \end{aligned} \quad [119]$$

Ab einer bestimmten Tiefe stellt sich im Bodenprofil eine konstante Radonkonzentration  $C_{inf}$  ein. Die Tiefe des letzten Knotenpunkts ( $z_{N+1}$ ) ist so zu wählen, dass man dort  $C_{N+1} = C_{inf}$  setzen kann. Da die Konzentration  $C_{inf}$  sowohl zum Zeitpunkt  $t$ , als auch zum neuen Zeitpunkt  $t+1$  konstant ist, kann  $C_{N+1}^{t+1}$  in [119] auf die linke Seite mit den bekannten Konzentrationen zum Zeitpunkt  $t$  verschoben werden. Da  $C_{inf}$  zeitlich konstant ist, kann man in [119]  $C_{N+1}^t$  und  $C_{N+1}^{t+1}$  durch  $C_{inf}$  ersetzen. Für den unteren Rand gilt somit letztlich die Differenzgleichung:

$$\begin{aligned} & \alpha_{N-1}(1-\eta)C_{N-1}^t - [(\alpha_{N-1} + \alpha_N + \beta_N)(1-\eta) - 1]C_N^t + [(\alpha_N + \beta_N)(1-\eta) + (\alpha_N + \beta_N)\eta]C_{inf} + U_N^t = \\ & -\alpha_{N-1}\eta C_{N-1}^{t+1} + [(\alpha_{N-1} + \alpha_N + \beta_N)\eta + 1]C_N^{t+1} \end{aligned} \quad [120]$$

#### *Anfangsbedingungen*

Neben den Randbedingungen muss für jeden Knoten zum Anfangszeitpunkt  $t = 0$  eine Anfangskonzentration vorgegeben werden, die in den Berechnungen für den Zeitschritt  $t + \Delta t$  als Anfangswert benutzt wird. Des Weiteren müssen zum Startzeitpunkt für die Transportterme mit den Parametern  $D$  und  $v$  sowie für die Quellen- und Senkenterme mit den Parametern  $\Phi$  und  $I$  für jeden Knoten Werte vorgegeben werden. Diese müssen nicht über die gesamte Transportstrecke konstant sein, sondern können für jedes Kompartiment unterschiedlich sein. Dadurch kann die Transportstrecke hinsichtlich verschiedener Parameter mit Einfluss auf die Radonkonzentration räumlich variabel gestaltet werden.

Die Differentialgleichung des Radontransportes stellt sich durch die räumliche und zeitliche Diskretisierung für N Knoten als ein System von N Gleichungen mit N Unbekannten dar. Die Knotengleichungen können nicht explizit und separat gelöst werden. Die Lösung des linearen Gleichungssystems erfolgt durch Elimination mit dem Thomas Algorithmus (Thomas, 1949), der unter anderem gut in Wang & Anderson (1980) beschrieben ist und hier in Anhang A kurz erläutert wird.

#### 7.1.5 Stabilität und Genauigkeit

Für eine stabile Lösung der Finite-Differenzen-Gleichungen muss nach Bear (1979) folgendes Stabilitätskriterium eingehalten werden:

$$\frac{2D\Delta t}{\Delta x^2} + \frac{v\Delta t}{\Delta x} \leq 1 \quad [121]$$

Da die Ortsschrittweiten zum Quadrat in den ersten Term in [121] eingehen, wird das Stabilitätskriterium insbesondere durch die Dicke der Kompartimente bestimmt.

Die Genauigkeit der Annäherung der Differenzenquotienten an die Differentialquotienten des infinitesimalen Strömungs- und Transportmodells wird mit kleiner werdenden  $\Delta t$  und  $\Delta x$  erhöht. Gleichzeitig steigt aber auch der Rechenaufwand. Die Kompartimentdicke muss über das betrachtete Medium nicht gleich sein. Wenn über einen Teil der betrachteten Strecke über einen Zeitschritt nur geringe Veränderungen stattfinden, kann man dafür relativ große  $\Delta x$  wählen. Wenn aber deutliche Veränderungen auftreten, dann sind kleinere  $\Delta x$  zu wählen, um eine entsprechende räumliche Auflösung zu erhalten. Dies ist z. B. bei Schichtwechseln oder einem Wechsel von einem kontaminierten zu einem unkontaminierten Bereich der Fall. Das Gleiche gilt sinngemäß für den Zeitschritt  $\Delta t$ .

## 8 Verifizierung des Radontransportmodells

### 8.1 Vergleich der numerischen mit der analytischen Lösung

Für vereinfachende Annahmen, wie z. B. Parameterkonstanz bei homogenem Transportmedium über die gesamte Strecke kann die ADG außer mit dem numerischen Verfahren auch analytisch gelöst werden.

Zur Verifikation der numerischen Lösung wird hier der Fall der Diffusion und Advektion von Radon in einem über die gesamte Transportstrecke von 6 m homogenen Medium unter stationären Verhältnissen betrachtet. Die Verifikation erfolgt durch den Vergleich der analytischen mit der numerischen Lösung von [117] bis [120] für die in Tabelle 5 genannten Bedingungen und einem Zeitschritt von 6 min, einer gleichmäßigen Schichtdicke von 0,1 m und einer Laufzeit von 1.000 h im numerischen Modell. Nach der genannten Laufzeit haben sich stationäre Bedingungen eingestellt.

Während das analytische Verfahren eine geschlossene und genaue Lösung liefert, nähert das numerische Modell das Ergebnis für diskrete Tiefen an das Ergebnis der analytischen Lösung an. Diese berechnet die Tiefenverteilung der Konzentration für einen unendlich ausgedehnten Bodenkörper, an dessen unterem Ende eine konstante Radonkonzentration  $C_{inf}$  vorliegt. Um das numerische mit dem analytischen Ergebnis vergleichen zu können, ist es daher nötig, im numerischen Modell mit einem tiefen Bodenkörper zu arbeiten, sodass an dessen unterem Rand ( $z_{N+1}$ ) die Radon-Konzentration  $C_{N+1} = C_{inf}$  gesetzt werden kann (siehe Abschnitt *Unterer Rand*). Da die Darstellung der Ergebnisse als tiefenabhängige relative Abnahme der Konzentration relativ zu  $C_{inf}$  erfolgt (vgl. Abbildung 27), ist die Darstellung unabhängig vom absoluten Wert für  $C_{inf}$ , das daher hier mit 100 angegeben wird. Für den Vergleich wird jeweils der Fall eines jeweils 6 m tiefen Schluffs, Lehms bzw. Sands mit den Eigenschaften in Tabelle 18 herangezogen. Alle Parameter sind über die Transportstrecke homogen.

Unter stationären Verhältnissen sind die Terme der Transportgleichung zeitkonstant, d. h.

$\left(\frac{\partial C}{\partial t} = 0\right)$ . Die ADG reduziert sich dann zu:

$$0 = D_e \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - v \frac{\partial C}{\partial x} + \lambda \frac{\epsilon C_{Ra} \rho_d}{n_e} - \lambda C \quad [122]$$

**Tabelle 18:** Parameter für Modellrechnungen zur Verifikation der numerischen Lösung der ADG.

Parameter	Dimension	Schluff	Lehm	Sand
n	[-]	0,45	0,45	0,45
n <sub>L</sub>	[-]	0,29	0,34	0,40
S <sub>w</sub>	[-]	0,35	0,25	0,11
S <sub>L</sub>	[-]	0,65	0,75	0,89
S <sub>NAPL</sub>	[-]	0	0	0
b	[-]	0,81	0,92	0,61
m	[-]	2,29	1,7	1
D <sub>e</sub>	[m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> ]	5,8·10 <sup>-7</sup>	1,7·10 <sup>-6</sup>	2,9·10 <sup>-6</sup>
K <sub>w/L</sub>	[-]	0,24	0,24	0,24

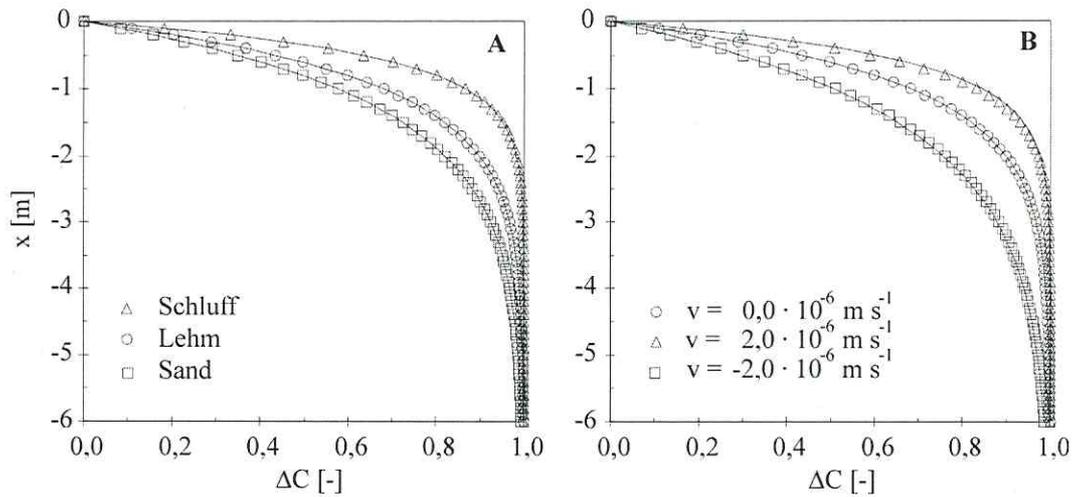
Die analytische Lösung für diese Form der Advektions-Dispersionsgleichung mit  $C = 0$  für den oberen Rand und  $C = C_{\text{inf}}$  in unendlicher Tiefe (unterer Rand) lautet (Schubert, 2001; Höhener & Surbeck, 2004):

$$C(x) = C_{\text{inf}} (1 - e^{-\omega x}) \quad [123]$$

$$\text{wobei- } \omega = \left[ \frac{v}{2D_e} + \sqrt{\frac{v^2}{(2D_e)^2} + \frac{\lambda R}{D_e}} \right]$$

Wie schon gesagt, ist das hier vorgestellte numerische Modell für nicht-stationäre Bedingungen entwickelt worden. Man kann es aber auch für stationäre Bedingungen verwenden, indem man es über eine ausreichend lange Zeit laufen lässt. Ab einer bestimmten Zeit ändert sich das Ergebnis dann nicht mehr, der stationäre Zustand ist erreicht.

Ein Vergleich der Ergebnisse für die drei Böden aus Tabelle 18 unter den dort genannten Bedingungen für das analytische und numerische Modell zeigt Abbildung 27. Das Profil der Radonkonzentration ist als relative Abnahme der Radonkonzentration gegenüber der Konzentration in unendlicher Tiefe  $C_{\text{inf}}$  durch den Defizitfaktor  $\Delta C = C/C_{\text{inf}}$  dargestellt. Dieser repräsentiert, unabhängig von den absoluten Werten des Einzelfalls, den relativen Verlauf der Radonkonzentration im Boden. Die numerische Lösung stimmt in jedem Fall sehr gut mit der analytischen überein, was die Richtigkeit des hier vorgestellten numerischen Modells belegt.



**Abbildung 27:** Tiefenverteilung der Radonkonzentrationen, dargestellt als relative Abnahme der Konzentration gegenüber  $C_{\text{inf}}$ , also als Defizitfaktor  $\Delta C = C/C_{\text{inf}}$ . Symbole kennzeichnen jeweils die numerische Lösung, die durchgezogenen Linien die entsprechende analytische Lösung.  
 A) für einen Schluff, Lehm und Sand, jeweils ohne Advektion ( $v = 0 \text{ m s}^{-1}$ ),  
 B) für einen Schluff bei verschiedenen Fließgeschwindigkeiten  $v$ .

## 8.2 Experimente in Diffusionsgefäßen

Die Experimente in den sogenannten Diffusionsgefäßen dienen der weiteren Verifizierung der Ergebnisse der numerischen Simulation. In den Diffusionsgefäßen mit einem Volumen von  $0,735 \text{ m}^3$ , in denen die Bedingungen für den Radontransport relativ einfach zu kontrollieren sind, wurde der Verlauf der Radonkonzentration in Abhängigkeit von der Tiefe über einen längeren Zeitraum gemessen. Die Konzentrationsverteilungen wurden mit den bekannten Anfangs- und Randbedingungen (s. u.) der untersuchten Diffusionsgefäße numerisch simuliert und mit den Messergebnissen verglichen. Hierbei wurden Konzentrationsverteilungen mit und ohne NAPL-Einfluss untersucht.

Um einzelne Messwerte, die mittels der Radon-Methode an verschiedenen Stellen im Gelände gewonnen werden, zuverlässig vergleichen zu können, also eine Verteilungskarte der NAPL-Kontamination des Untergrundes zu erstellen, muss die Probenahme der Bodenluft unter sonst gleichen Bedingungen erfolgen. Der Messwert hängt einerseits von der im Untergrund vorliegenden NAPL-Konzentration und andererseits von Bodenaufbau und -beschaffenheit ab. Diese Einflüsse können anhand des Messergebnisses nicht voneinander unterschieden werden. Dadurch wird die Interpretation der Messergebnisse erschwert und ist mit Unsicherheiten behaftet. Zu den Bodeneigenschaften, die die Messwerte eines Untersuchungsareals beeinflussen können, zählen beispielsweise Bodenschichten mit unterschiedlicher Boden-

feuchte und wechselndem geologischen Aufbau oder auch unterschiedlich starke Versiegelungsgrade der Bodenoberfläche.

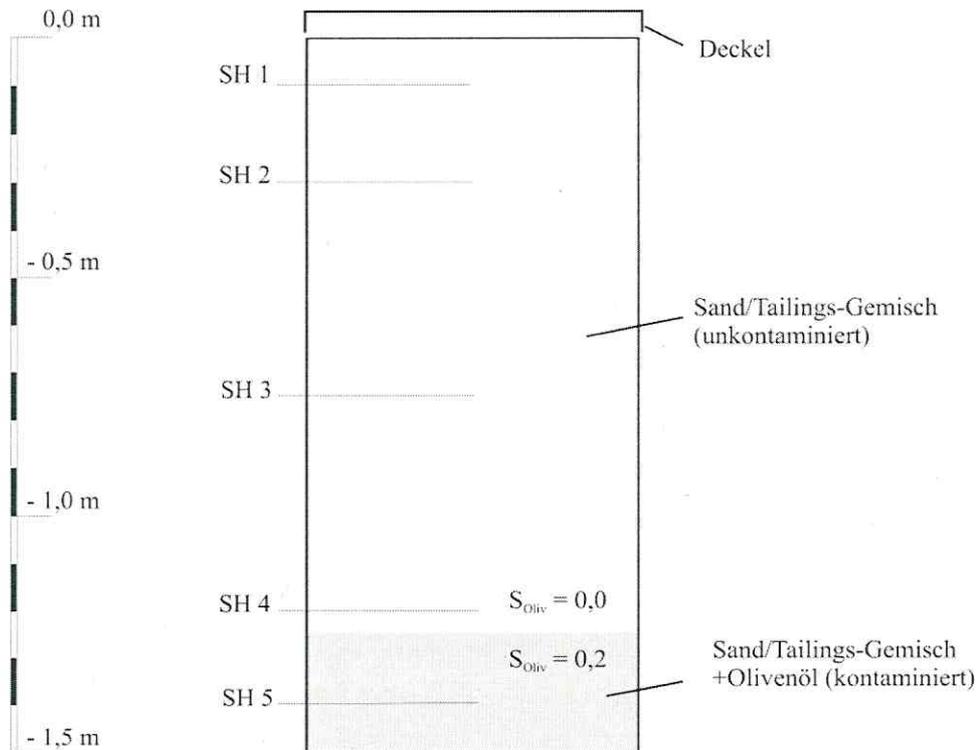
Neben der Verifizierung des Modells besteht daher das Hauptaugenmerk der Experimente auf der Ermittlung des Einflusses dieser Faktoren auf die Radonkonzentration der Bodenluft. Indem einzelne Modellparameter in Computersimulationen variiert werden, wird der Einfluss dieser Parameter auf das sich theoretisch ausbildende Radontiefenprofil am Messpunkt ermittelt.

### **8.2.1 Materialien und Geräte**

Wie in den Experimenten in Kapitel 4 wurde das Gemisch aus Quarzsand und Uran-Tailings als Modellboden sowie Olivenöl als exemplarische NAPL verwendet. Als Versuchsgefäße (Diffusionsgefäße) kamen zwei für dieses Experiment angefertigte, mit einem Deckel radondicht verschließbare Kunststoffboxen (LDPE, Wandstärke: 0,01 m; 0,7 m breit, 0,7 m tief und 1,5 m hoch) zum Einsatz. Wie in Abbildung 28 dargestellt, wurden in fünf verschiedenen Horizonten Beprobungssonden eingebaut. Der Deckel ermöglicht einen luftdichten Verschluss. Nach Hofmann (2004) ist LDPE (Low Density Polyethylene) als nicht völlig radondicht zu bezeichnen. Um den (diffusiven) Radonverlust an den Rändern der Bodensäule zu minimieren, wurden die Innenseiten der Boxen zusätzlich mit Alufolie ausgekleidet, welches in Verbindung mit dem LDPE eine wirksame Barriere gegen diffusiven Radontransport darstellt. Die Bestimmung der Radonkonzentration der Bodenluft erfolgte wie in den Experimenten in Kapitel 4 mittels Lucaszellen in Verbindung mit dem Radon-Monitor AB-5R.

### **8.2.2 Versuchsdurchführung**

Eine der Versuchsboxen wurde mit lufttrockenem Sand/Tailings-Gemisch gefüllt. In die zweite Box wurde an der Basis eine 0,25 m mächtige, mit Olivenöl als NAPL „kontaminierte“ Bodenschicht eingebracht. Die Sättigung des Porenraums mit der NAPL betrug  $S_{Oliv} = 0,2$ . Die darüberliegende Bodenschicht bestand aus unkontaminiertem lufttrockenem Sand/Tailings-Gemisch (Abbildung 28). Nach Einstellung des Gleichgewichtes zwischen Emanationsrate und Zerfall in der Bodenmatrix (ca. 20 d, vgl. Abbildung 2) wurden zu verschiedenen Zeiten Bodenluftproben aus den Messhorizonten mittels Lucaszellen entnommen. Beide Diffusionsgefäße waren in der ersten Versuchphase (etwa 100 Tage) an der Oberfläche luftdicht verschlossen.



**Abbildung 28:** Schematische Darstellung eines Diffusionsgefäßes (DG) mit Bodenluftplanzen in fünf Sondenhorizonten (SH 1 bis SH 5). Das DG ist mit einem Sand/Tailings-Gemisch gefüllt. An der Basis des dargestellten DG ist eine 0,25 m mächtige Olivenöl-Kontamination eingebaut ( $S_{Oliv} = 0,2$ ; grau hinterlegt), darüber ist das Gemisch ölfrei ( $S_{Oliv} = \text{Olivenöl-Sättigungsgrad} = 0$ ).

In der nächsten Versuchsphase (etwa 30 Tage) wurden die Oberflächenversiegelungen (Deckel) entfernt und wiederum zu verschiedenen Zeitpunkten Bodenluftproben aus den Horizonten mit Sonden entnommen und gemessen. Das sich für die Rand- und Transportbedingungen der Diffusionsgefäße im Gleichgewicht einstellende Tiefenprofil der Radonkonzentration wurde jeweils numerisch simuliert und den tatsächlich gemessenen Ergebnissen gegenübergestellt. Die Simulation erfolgte mittels des in Anhang B, C, D und E vorgestellten Computerprogramms.

### 8.2.3 Ergebnisse

#### 8.2.3.1 Experimente

Die Ergebnisse sind in Tabelle 19 als Mittelwerte  $\pm$  Standardabweichung der gemessenen Konzentration je Messtiefe zusammengefasst und in den folgenden Abbildungen dargestellt.

**Tabelle 19:** Mittlere Radonkonzentration  $C_L$  [ $\text{kBq m}^{-3}$ ] mit Standardabweichung  $\sigma$  und Anzahl der Wiederholungen  $w$  in den Diffusionsgefäßen.  $w$  beschränkt sich auf die im Gleichgewicht gemessenen Konzentrationen.

SH	Tiefe [m]	unkontaminiert				kontaminiert			
		geschlossen		offen		geschlossen		offen	
		$C_L \pm \sigma$	$w$	$C_L \pm \sigma$	$w$	$C_L \pm \sigma$	$w$	$C_L \pm \sigma$	$w$
1	0,10	$260,5 \pm 4,0$	5	$8,9 \pm 0,2$	9	$235,3 \pm 5,8$	5	$9,8 \pm 1,9$	8
2	0,30	$269,0 \pm 1,3$	5	$29,7 \pm 0,8$	9	$236,6 \pm 4,4$	5	$24,3 \pm 0,3$	8
3	0,75	$273,5 \pm 3,6$	5	$58,5 \pm 1,0$	10	$237,0 \pm 2,0$	5	$52,4 \pm 1,0$	9
4	1,10	$273,2 \pm 3,8$	5	$74,5 \pm 2,1$	8	$234,0 \pm 4,2$	4	$67,6 \pm 0,7$	7
5	1,40	$271,9 \pm 4,6$	5	$77,4 \pm 1,4$	6	$231,9 \pm 4,8$	5	$71,5 \pm 2,3$	8
	Mittel	$^a 272,9 \pm 4,0$		$49,8 \pm 1,1$		$^a 234,3 \pm 3,6$		$45,1 \pm 1,3$	

<sup>a</sup> Zur Bildung des Mittelwertes in den geschlossenen Varianten wurden hier nur die  $C_L \pm \sigma$  der Tiefen 0,75 m, 1,1 m und 1,4 m herangezogen; zur Begründung siehe Text.

In der geschlossenen und partiell mit Olivenöl gesättigten Bodensäule (kontaminiert, geschlossen) liegen die Radonkonzentrationen mit durchschnittlich  $234 \text{ kBq m}^{-3}$  etwa 14% niedriger als die mittlere Konzentration ( $273 \text{ kBq m}^{-3}$ ) im unkontaminierten geschlossenen Gefäß. Ausgehend von der Basis (SH 5) der geschlossenen Gefäße nimmt die Konzentration bis zu einem maximalen Wert von  $237 \text{ kBq m}^{-3}$  (kont.) bzw.  $273,5 \text{ kBq m}^{-3}$  (unkont.) im Horizont SH 3 jeweils leicht zu. In den Horizonten SH 2 und SH 1 gehen die Konzentrationen dann wieder leicht zurück. Die Werte in SH 1 und SH 2 wurden für die geschlossenen Gefäße jeweils von der Bildung des o. g. Mittelwertes ausgeschlossen. Eine Erklärung dafür wird später gegeben.

Nach dem Öffnen des Deckels ist in beiden Diffusionsgefäßen ein deutlicher Rückgang der Radonkonzentrationen zu verzeichnen. In den oberflächennahen Horizonten SH 1 wurden Konzentrationen von  $8,9 \text{ kBq m}^{-3}$  (unkont.) und  $9,8 \text{ kBq m}^{-3}$  (kont.) gemessen. Mit zunehmender Tiefe stiegen die Konzentrationen bis  $77,4 \text{ kBq m}^{-3}$  (unkont.) bzw.  $71,5 \text{ kBq m}^{-3}$  (kont.) im Horizont SH 5.

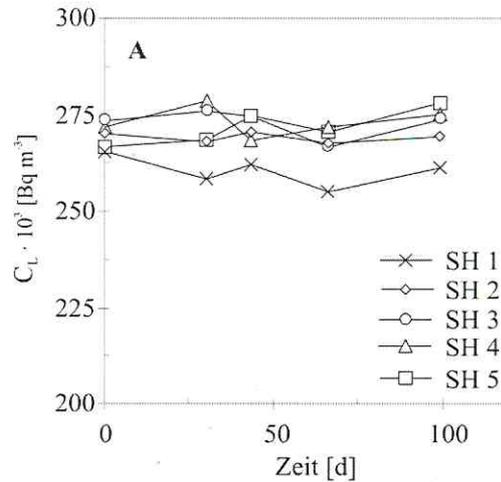
Das sich in den Diffusionsgefäßen einstellende Gleichgewicht führte zu den in Tabelle 20 dokumentierten Radondefizitfaktoren  $\Delta C$ . Die Berechnung von  $\Delta C$  erfolgte gemäß [45]. Für  $C_\infty (S_{\text{NAPL}} = 0)$  wurde der im geschlossenen unkontaminierten Diffusionsgefäß berechnete Mittelwert der Gleichgewichtskonzentrationen der Mineralmatrix der Horizonte SH 3 bis SH 5 ( $C_\infty = 273 \text{ kBq m}^{-3}$ ) herangezogen.

**Tabelle 20:** Mittlere Radondefizitfaktoren  $\Delta C$  [-] in den Diffusionsgefäßen  $\pm$  Standardabweichungen  $\sigma$ .

SH	Tiefe [m]	$\Delta C \pm \sigma$			
		unkontaminiert		kontaminiert	
		geschlossen	offen	geschlossen	offen
1	0,10		$0,03 \pm 0,00$	$0,86 \pm 0,02$	$0,04 \pm 0,01$
2	0,30		$0,11 \pm 0,00$	$0,87 \pm 0,02$	$0,09 \pm 0,00$
3	0,75	<sup>a</sup> 1,00	$0,21 \pm 0,00$	$0,87 \pm 0,01$	$0,19 \pm 0,00$
4	1,10		$0,27 \pm 0,01$	$0,86 \pm 0,02$	$0,25 \pm 0,00$
5	1,40		$0,28 \pm 0,00$	$0,85 \pm 0,02$	$0,26 \pm 0,01$

<sup>a</sup> Das Mittel des unkontaminierten geschlossenen Gefäßes ( $C_{\infty} = 273 \text{ kBq m}^{-3}$ ) repräsentiert den Wert, auf den sich die restlichen  $\Delta C$  gemäß [45] beziehen.

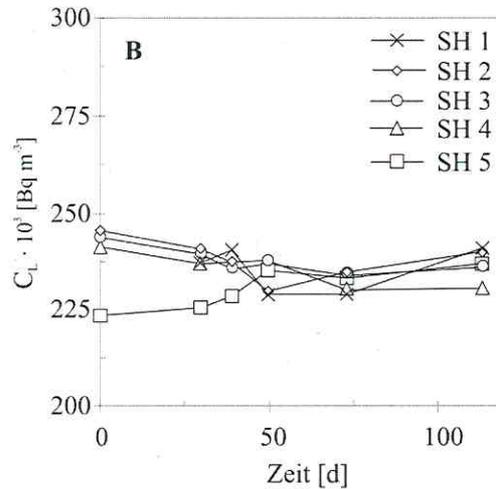
Die nach Einstellung des Gleichgewichts (nach 20 Tagen) in den Messhorizonten des geschlossenen unkontaminierten Gefäßes ermittelte Zeitreihe der Radonkonzentrationen ist in Abbildung 29 dargestellt.



**Abbildung 29:** Zeitreihe der Radonkonzentrationen in verschiedenen Horizonten im an der Oberfläche geschlossenen unkontaminierten Diffusionsgefäß. Zeitpunkt 0 ist 20 Tage nach Schließen des Gefäßes.

In der Sand/Tailings-Matrix des unkontaminierten geschlossenen Diffusionsgefäßes ist unabhängig vom Zeitpunkt der Betrachtung und vom Sondenhorizont eine weitgehend gleichbleibende Radonkonzentration der Porenluft zu beobachten. Dabei lag das Konzentrationsniveau im Horizont SH 1 immer leicht unterhalb derer der übrigen Horizonte.

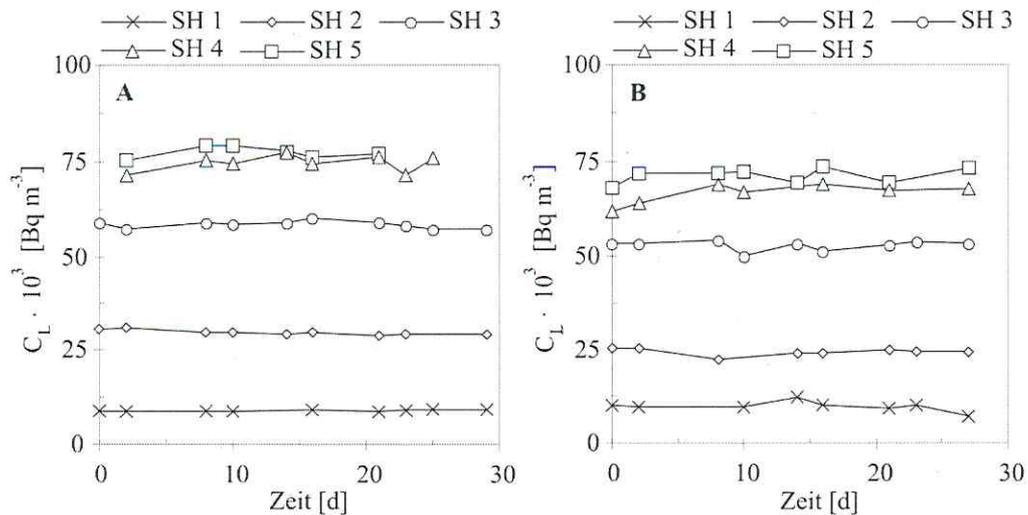
Die nach Einstellung des Gleichgewichts (nach 20 Tagen) in den Messhorizonten des geschlossenen kontaminierten Gefäßes ermittelte Zeitreihe der Radonkonzentrationen ist in Abbildung 30 dargestellt.



**Abbildung 30:** Zeitreihe der Radonkonzentrationen in verschiedenen Horizonten im an der Oberfläche geschlossenen kontaminierten Diffusionsgefäß. Zeitpunkt 0 ist 20 Tage nach Schließen des Gefäßes.

Im kontaminierten Diffusionsgefäß, das zwischen 1,25 und 1,5 m Tiefe olivenöhlaltig (vgl. Abbildung 28;  $S_{Oliv} = 0,2$ ) und an der Oberfläche geschlossen war, liegen die Konzentrationen insgesamt auf einem geringeren Niveau, ansonsten stellte sich grundsätzlich ein ähnliches Bild wie im unkontaminierten Gefäß ein. Die niedrigsten Konzentrationen sind hier nicht an der Oberfläche (SH 1), wie im unkontaminierten Gefäß, sondern im Bereich der Sondenhorizonte SH 4 und SH 5 (vgl. Tabelle 19) zu verzeichnen. Ein Gleichgewicht hat sich in der kontaminierten geschlossenen Variante erst nach etwa 30 d nach Beginn der Aufzeichnung der Konzentrationen eingestellt.

Nach dem Öffnen der Deckel wurden bis zum Beginn der Messungen (Zeitpunkt Null) wiederum jeweils 20 d zur Gleichgewichtseinstellung abgewartet. Der danach betrachtete Verlauf der Radonkonzentrationen in den Sondenhorizonten der geöffneten Gefäße ist in Abbildung 31 dargestellt. Die geöffneten Gefäße zeigen unabhängig vom Zeitpunkt der Betrachtung eine für jeden Sondenhorizont spezifische, mit der Zeit weitgehend gleich bleibende Radonkonzentration der Porenluft. Die niedrigsten Konzentrationen wurden jeweils in den oberflächennahen Horizonten SH 1 gemessen. Mit zunehmender Tiefe steigen die Konzentrationen an. Die maximalen Konzentrationen wurden jeweils im Horizont SH 5 gemessen.



**Abbildung 31:** Zeitreihen der Radonkonzentrationen in verschiedenen Horizonten in den an der Oberfläche geöffneten Diffusionsgefäßen. A) unkontaminiert und B) kontaminiert. Zeitpunkt 0 ist 20 Tage nach Öffnen der Gefäße.

Trotz der Olivenölsättigung an der Basis eines Gefäßes (vgl. Abbildung 28;  $S_{Oliv} = 0$  bzw. 0,2) waren die Konzentrationen in den einzelnen Sondenhorizonten in beiden Gefäßen ähnlich, liegen aber im kontaminierten Gefäß, bis auf SH 1, konsistent leicht unterhalb derer im unkontaminierten Gefäß.

### 8.2.3.2 Modellierung

#### *Randbedingungen*

Das eindimensionale numerische Modell verlangt die Definition einer oberen und einer unteren Randbedingung (vgl. Kapitel 7.1.4). Für die geschlossenen Gefäße, in denen die Gleichgewichtskonzentration gemäß [15] allein durch die Radiumkonzentration, den Emanationskoeffizienten, die Trockendichte und die Porosität der Mineralmatrix sowie den radioaktiven Zerfall bestimmt wird, wurde im Modell zunächst eine sogenannte no flow Randbedingung sowohl für den oberen, als auch für den unteren Rand festgelegt. Diese Festlegung beruht auf der Annahme, dass die Diffusionsgefäße vollständig, d. h. zu 100% versiegelt sind. Mit der no flow Randbedingung wird festgelegt, dass in jedem Zeitschritt die Konzentration im obersten ( $i = 0$ ) bzw. untersten ( $i = N+1$ ) Kompartiment gleich der Konzentration im jeweils folgenden Kompartiment ( $i = N$  bzw.  $N-1$ ) ist. Dadurch kommt es im Laufe der numerischen Berechnung zu keinem Konzentrationsgradienten entlang der Transportstrecke und der diffusive Radonfluss bleibt somit gleich Null. Für die numerischen Simulationen wurde eine Laufzeit von  $t_{max.} = 100$  d gewählt, da sich dann der

Gleichgewichtszustand eines abgeschlossenen Systems entsprechend [17] zu 100% eingestellt hat. Die no flow Bedingung am oberen Rand wurde letztlich durch eine low flow Bedingung ersetzt, da damit eine bessere Übereinstimmung zwischen berechneten und gemessenen Werten erzielt wurde.

Ohne Deckel, d. h. bei 0% Versiegelung stellt sich am oberen Rand des Gefäßes die Konzentration der Außenluft ein. Im Vergleich zur Konzentration in der Bodensäule (vgl. Tabelle 19) ist diese jedoch vernachlässigbar gering. Im Modell wurde daher die Konzentration am oberen Rand der Transportstrecke ( $i = 0$ ) mit  $C_0 = 0$  [ $\text{Bq m}^{-3}$ ] als obere, sogenannte constant concentration Randbedingung für jeden Zeitschritt festgelegt. Dadurch existiert ein Konzentrationsgradient der einen diffusiven Fluss in Richtung des Gradienten, d. h. der Oberfläche bedingt. Infolgedessen stellt sich in den offenen Diffusionsgefäßen im Laufe der Simulation ein tiefenabhängiges Konzentrationsprofil ein.

Im Falle einer signifikanten Ölsättigung des Materials kommt es zu einer Beeinflussung des Diffusionskoeffizienten  $D_e$  und der Gleichgewichtskonzentration  $C_\infty$ . Zum einen wird der luftgefüllte Porenanteil ( $n_L$ ) verringert, was zur Verringerung von  $D_e$  führt, zum anderen führt die Absorption von Radon in die Ölphase zur Verringerung von  $C^\infty$ . Die Tiefenprofile der Radonkonzentration für das kontaminierte und unkontaminierte geöffnete Gefäß in Abbildung 33 erscheinen entgegen der zu erwartenden Unterschiede jedoch ähnlich. Dabei führt der relativ hohe Diffusionskoeffizient im gesamten Gefäß in Verbindung mit der relativ geringen Tiefe der Gefäße zu einer so starken Abnahme der Radonkonzentration, dass das durch Absorption von Radon in die NAPL bedingte Konzentrationsdefizit nicht besonders deutlich beobachtet werden kann.

#### *Anfangsbedingungen*

Neben den o. g. Randbedingungen der obersten und untersten Kompartimente sind im Modell für jedes Kompartiment  $i$  die Werte der Parameter  $D_e(i)$  (Diffusionskoeffizient von Radon im Boden) und  $C_\infty(i)$  (Radon-Gleichgewichtskonzentration im abgeschlossenen System) für den zeitlichen Anfang der Simulation (Zeitpunkt  $t = 0$ ) festzulegen. Sie werden als Anfangsbedingungen bezeichnet. Im Modell wird  $C_\infty$  aus den Parametern  $n$  (Porosität),  $S_{\text{NAPL}}$  (NAPL-Sättigung),  $S_w$  (Wassersättigung),  $C_{\text{Ra}}$  (Radium-Aktivitätskonzentration),  $\epsilon$  (Emanationskoeffizient) und  $\rho$  (Bodendichte) für jedes Kompartiment entsprechend [15] berechnet,  $D_e$  über die empirischen Parameter  $b$  und  $m$  sowie die luftgefüllte Porosität  $n_L$  entsprechend [66]. Während die meisten Parameter aus Voruntersuchungen bekannt sind, müssen die Parameter  $\epsilon$  bzw.  $b$  und  $m$  zunächst aus der Literatur (Currie 1960a, b; Tanner, 1980) für vergleichbare

Materialien entnommen werden. Diese werden später für das verwendete Sand/Tailings-Gemisch angepasst. Dazu werden die Ausgangswerte in verschiedenen Simulationsdurchläufen solange variiert, bis das numerische Ergebnis gut mit den Messergebnissen übereinstimmt.

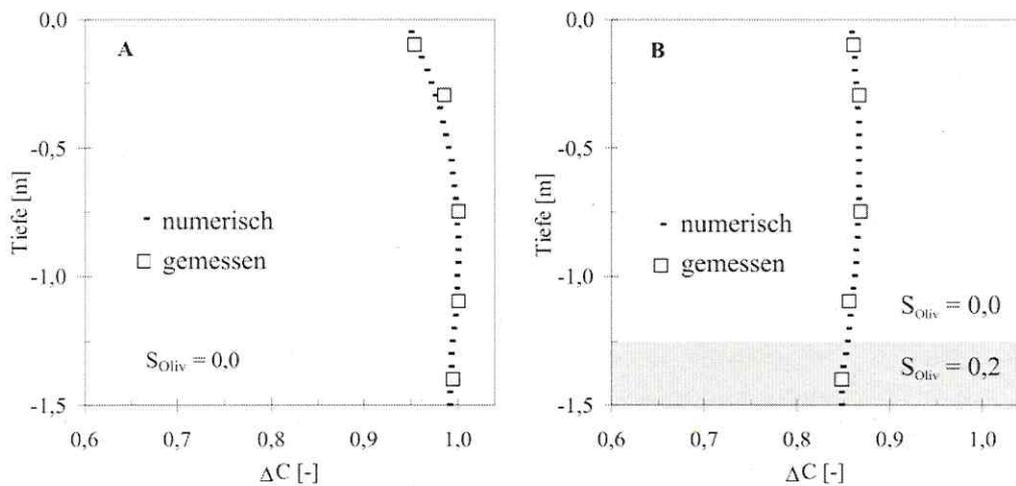
### *Ergebnisse*

In der Darstellung und Diskussion der Ergebnisse und aus den Diffusionsgefäßexperimenten werden die entsprechenden Defizitfaktoren  $\Delta C$  [-] verwendet. Im Hinblick auf die Auswertung von Daten, die mit der Radon-Methode ermittelt werden, sind absolute Messwerte [ $\text{Bq m}^{-3}$ ] nicht relevant, da der Einfluss einer NAPL-Kontamination am deutlichsten durch die Rn-Konzentrationsabnahme im Vergleich zur Hintergrundkonzentration zum Ausdruck kommt.

Zunächst wurde so der Emanationskoeffizient für das unkontaminierte geschlossene Gefäß bestimmt. Der Diffusionskoeffizient kann in diesem Szenario vernachlässigt werden, da innerhalb der Gefäße kein Konzentrationsgradient vorliegt und an den Rändern, wie bereits erwähnt, no-flow Bedingungen gelten. Es findet also kein diffusiver Radonfluss statt. Für jedes Kompartiment wird daher pro Zeitschritt die gleiche Konzentration berechnet, die alleine durch den gesuchten Emanationskoeffizienten und die bekannte Zerfallsrate des Radons beeinflusst wird. Unter den o. g. Anfangs- und Randbedingungen tritt bei einem Emanationskoeffizienten von  $\epsilon = 0,638$  die beste Übereinstimmung mit der gemessenen Gleichgewichtskonzentration  $C_{\infty}(S_{\text{NAPL}} = 0) = 273 \text{ kBq m}^{-3}$  auf, so dass  $\Delta C \approx 1$  (vgl. Abbildung 32). Auf die Abweichungen am oberen Rand wird später noch eingegangen. Die mit diesem Emanationskoeffizienten berechneten Diffusionskoeffizienten von Radon im Boden und die Werte für  $b$  und  $m$  sind Anhang Ha zu entnehmen. Die simulierten Radontiefenverteilungen konnten gut an die Messwerte angenähert werden.

In Abbildung 32 A und B sind die in Tabelle 19 bzw. 20 dokumentierten Defizitfaktoren als Funktion der Tiefe dargestellt und Berechnungen mit dem o. g. Modell gegenübergestellt. Die Anfangsbedingungen sind den in Anhang Ha dokumentierten numerischen Berechnungen zu entnehmen. Wie bereits erwähnt, weichen die Ergebnisse der numerischen Simulation in den geschlossenen Gefäßen in Richtung der Oberfläche (in den Horizonten SH 1 und SH 2) zunehmend von den Messwerten ab. In den Horizonten SH 3 bis SH 5 ist hingegen eine gute Übereinstimmung zu verzeichnen. Für die Abweichungen liegt die Annahme nahe, dass der Deckel die Oberfläche nicht zu 100% versiegelte. Geringe diffusive Radonflüsse durch die Oberfläche führten so zu einer systematischen Fehlerquelle.

Dafür spricht auch die Tatsache, dass die gemessenen Werte im Gleichgewicht deutlich geringer sind, als die mit der no-flow Bedingung am oberen Rand berechneten (hier nicht gezeigt). Zur Überprüfung dieser Annahme wurde im Modell die obere no-flow Randbedingung durch eine hier sogenannte low-flow Bedingung ersetzt.



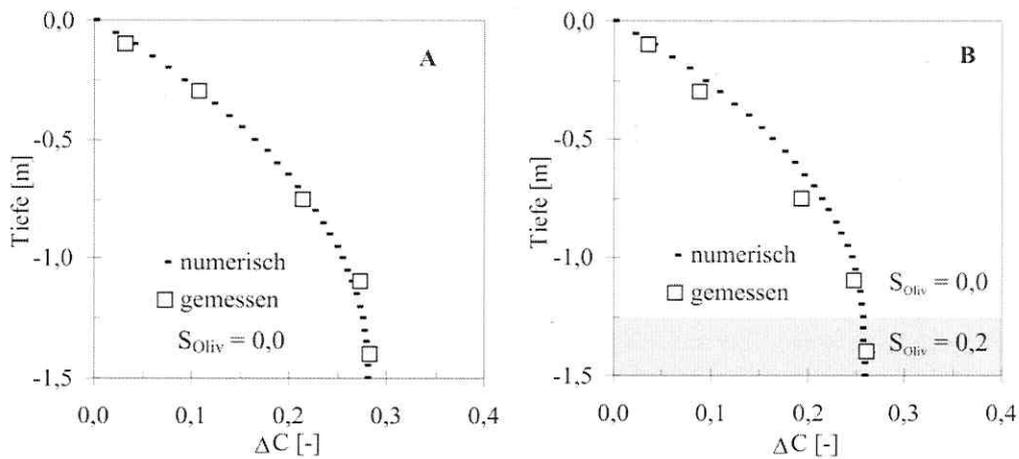
**Abbildung 32:** Gemessene und berechnete Tiefenprofile des Radondefizitfaktors  $\Delta C$  in den geschlossenen Diffusionsgefäßen. A) unkontaminiert und B) kontaminiert. Für die numerischen Berechnungen wurde am oberen Rand jeweils low flow, am unteren Rand no flow verwendet. Die Laufzeit betrug jeweils 100 d.  $S_{Oliv}$  = Olivenöl-Sättigungsgrad.

Der Wert  $1 - n_L(0)$  stellt den Versiegelungsgrad an der Oberfläche dar. Bei der no-flow Bedingung ist am oberen Rand  $n_L(0) = 0$  und der Versiegelungsgrad der Oberfläche gleich 1 bzw. 100%. Es findet somit kein diffusiver Fluss durch die Oberfläche statt. Bei der low-flow Bedingung ist  $n_L(0) > 0$ , der genaue Wert ist jedoch zunächst unbekannt. Durch Variation von  $n_L(0)$  in mehreren Simulationsläufen konnten die berechneten an die gemessenen Konzentrationsverläufe angepasst werden und der tatsächliche Wert für  $n_L(0)$  bzw. der Versiegelungsgrad der Oberfläche ermittelt werden.

In Abbildung 32 sind die Ergebnisse der numerischen Simulationen mit der low-flow Randbedingung am oberen Rand und no-flow Bedingung unten für eine Laufzeit von 100 d den Messergebnissen der geschlossenen Gefäße gegenübergestellt. Bei einem Versiegelungsgrad der Oberfläche von 97% (unkontaminiert) bzw. 99,93% (kontaminiert) stimmt das simulierte Gleichgewicht nach 100 d Laufzeit gut mit den Messwerten überein. Die Ergebnisse zeigen, dass die o. g. Vermutung richtig zu sein scheint. Durch Verwendung der low-flow Bedingung

am oberen Rand konnten mit dem Modell die tatsächlich gemessenen Profile der Radonkonzentrationen in den geschlossenen Diffusionsgefäßen simuliert werden.

Durch das Öffnen der Oberflächenversiegelung der Bodensäule kommt es aufgrund des Gradienten zwischen der Radonkonzentration im Diffusionsgefäß und der Außenluft zur diffusiven Ausgasung (Exhalation) von Radon aus der Oberfläche (Abbildung 33). Für die geöffneten Diffusionsgefäße lässt sich für alle Sondenhorizonte eine sehr gute Übereinstimmung zwischen numerischem und gemessenem Tiefenprofil der Radonkonzentration verzeichnen. Für die geöffneten Diffusionsgefäße wurde in der numerischen Simulation, wie bei den geschlossenen Gefäßen, eine Laufzeit von  $t_{\max} = 100$  d gewählt. Mit dem o. g. Modell war es somit möglich, unter den genannten Anfangs- und Randbedingungen der geöffneten Diffusionsgefäße die gemessenen Tiefenverteilungen der Radonkonzentration mit und ohne NAPL-Einfluss gut zu simulieren.



**Abbildung 33:** Gemessene und berechnete Tiefenprofile des Radondefizitfaktors  $\Delta C$  in den geöffneten Diffusionsgefäßen. A) unkontaminiert und B) kontaminiert. Für die numerischen Berechnungen wurde am oberen Rand jeweils constant concentration, am unteren Rand no flow verwendet. Die Laufzeit betrug jeweils 100 d.  $S_{Oliv}$  = Olivenöl-Sättigungsgrad.

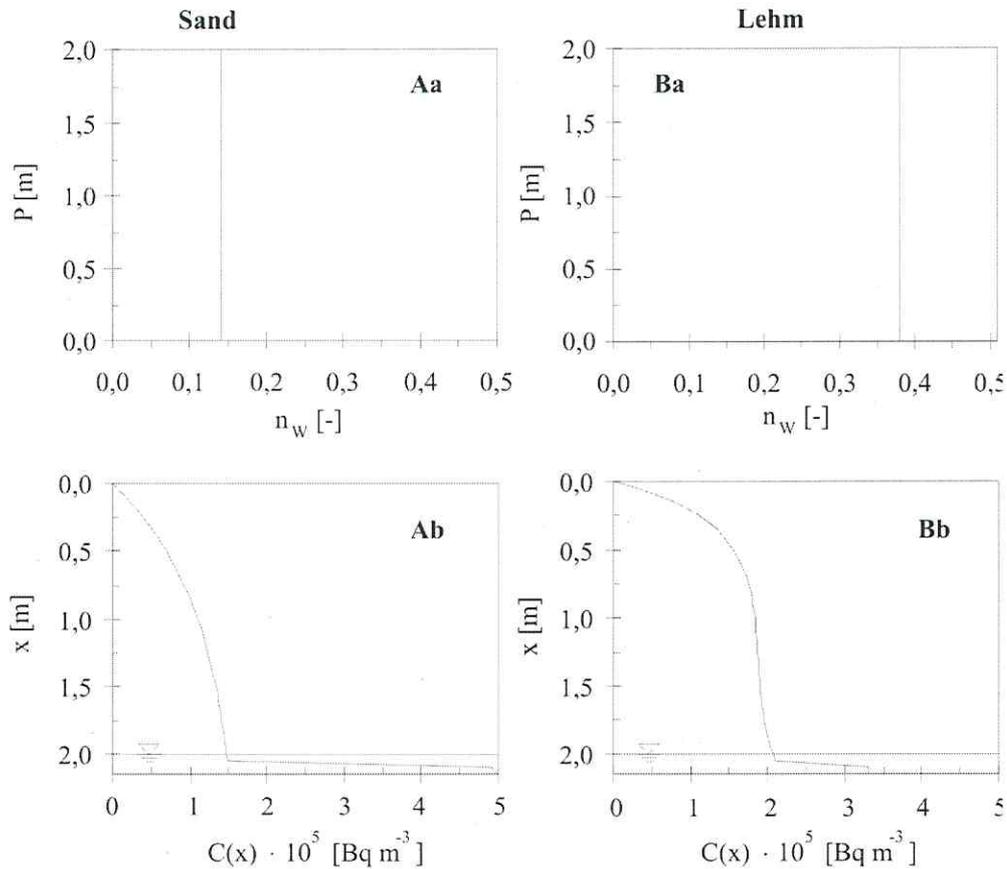
## 9 Modellrechnungen

### 9.1 Vorbemerkungen

Im kontaminierten Diffusionsgefäß bildet sich das Radon-Tiefenprofil in der Bodenluft entsprechend der Ausdehnung der NAPL-Schicht sowie der residualen NAPL-Sättigung aus. Die Mächtigkeit der aufliegenden Bodenschicht und der Versiegelungsgrad der Oberfläche haben zusätzlich einen maßgeblichen Einfluss auf die Ausbildung des Konzentrationsprofils.

Mit dem vorgestellten numerischen Modell konnte sowohl anhand der analytischen Lösung (Kapitel 8.1) der Transportgleichung (ADG) als auch der gemessenen Konzentrationsverteilung (Kapitel 8.2) in den Diffusionsgefäßen gezeigt werden, dass die Radonkonzentration als Funktion der Tiefe richtig berechnet werden kann. Mithilfe von Modellrechnungen sollen nun die Einflüsse des NAPL-Gehaltes des Bodens, der Dicke der NAPL-haltigen Schicht, der Mächtigkeit des Bodens über der kontaminierten Schicht und des Versiegelungsgrades der Oberfläche auf die Ausbildung des Profils der Radonkonzentration untersucht werden. Hierzu werden für die genannten Parameter Tiefenprofile der Radonkonzentration berechnet und für variierende Werte der genannten Parameter verglichen. Als Ergebnis sollen Aussagen zum Verfahren der Radonmessungen in der Bodenluft zur qualitativen und quantitativen NAPL-Erkundung in der ungesättigten Bodenzone getroffen werden.

Die Simulationen erfolgen beispielhaft für einen Sand (90% Sand, 5% Schluff, 5% Ton) und einen schwach tonigen Lehm (34% Sand, 33% Schluff, 33% Ton). Für die Modellstrecke wird jeweils eine homogene Poren- und Radiumverteilung zugrundegelegt. Außerdem wird auch von einer homogenen Wassergehaltsverteilung ausgegangen. In Abbildung 34 sind die damit berechneten Radonkonzentrationsverteilungen im o.g. Sand bzw. Lehm ohne Versiegelung der Oberfläche und ohne NAPL-Kontamination für eine ungesättigte Zone von 2 m Mächtigkeit dargestellt. Bei homogener Verteilung ist der volumetrische Wassergehalt  $n_w$  in jeder Tiefe  $x$  gleich. Im Sand beträgt  $n_w = 0,14$  und im Lehm  $n_w = 0,38$ , was jeweils etwa der Feldkapazität entspricht. Aufgrund der oberen constant concentration Randbedingung liegt die Radonkonzentration an der Oberfläche immer bei Null, dies entspricht etwa dem realen Konzentrationsrückgang durch die Radon-Exhalation.



**Abbildung 34:** Homogen verteilte Wassergehalte ( $n_w$ ) bei Feldkapazität des Aa) Sandes und des Ba) Lehms und entsprechende Tiefenprofile der Radonkonzentration (Ab und Bb).  $P$  ist die kapillare Saugspannung,  $C(x)$  die Radonkonzentration in der Tiefe  $x$ .

Durch den aus dem zur Oberfläche gerichteten Konzentrationsgradienten resultierenden diffusiven Fluss nimmt die Radonkonzentration zur Oberfläche ( $x = 0$ ) hin auf Null ab.

Im Sand ist über die gesamte Tiefe eine relativ gleichmäßige Abnahme der Konzentrationen bei homogener Wassergehaltsverteilung zur Oberfläche hin zu verzeichnen. Im Lehm bleibt die Konzentration bei homogener Wassergehaltsverteilung zur Oberfläche hin zunächst fast unverändert, ab einer Tiefe von etwa  $x = 0,5$  m geht die Konzentration dann relativ schnell auf Null (bei  $x = 0$ ) zurück.

## 9.2 Mächtigkeit und NAPL-Gehalt der kontaminierten Schicht

Zur Untersuchung der Einflüsse des NAPL-Gehaltes des Bodens und der Dicke der NAPL-haltigen Schicht auf die Ausbildung des Profils der Radonkonzentration wird innerhalb der

Modellstrecke oberhalb der wassergesättigten Zone eine Schicht mit residualer NAPL-Phase eingeführt. Zur Darstellung des NAPL-Einflusses auf das Radonkonzentrationsprofil wird die Konzentration in der Tiefe  $x$  bei vorhandener Kontamination ( $C(x, 0 < S_{\text{NAPL}} < 1$ ) mit der Konzentration im unkontaminierten Profil ( $C(x, S_{\text{NAPL}} = 0)$ ) bei sonst gleichen Bedingungen folgendermaßen in Beziehung gesetzt:

$$\Delta C(x) = \frac{C(x, 0 < S_{\text{NAPL}} < 1)}{C(x, S_{\text{NAPL}} = 0)} \quad [124]$$

$\Delta C(x)$  = tiefenabhängiger Radondefizitfaktor [-]

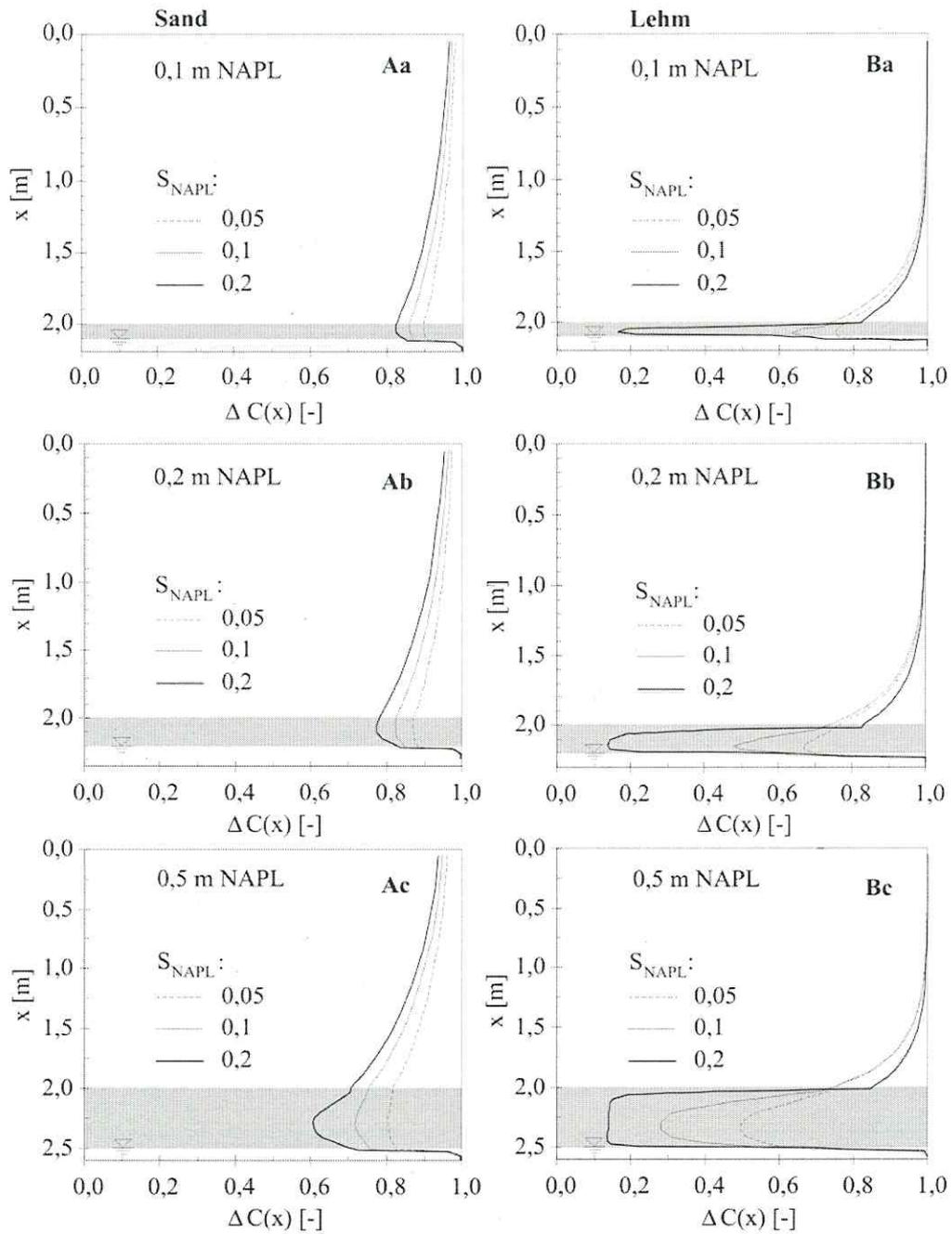
$C(x)$  = Radonkonzentration der Bodenluft in der Tiefe  $x$  [ $\text{Bq m}^{-3}$ ]

Nach [124] führen NAPL-Kontaminationen innerhalb einer Bodensäule zu Verringerungen der Radonkonzentration der Bodenluft gegenüber einer unkontaminierten Bodensäule, was in  $\Delta C(x)$  kleiner 1 resultiert. Je stärker der NAPL-Einfluss auf die Konzentration an einem Punkt des Profils gegenüber der Konzentration an diesem Punkt an der unbeeinflussten Säule ist, desto kleiner ist  $\Delta C(x)$  bzw. desto größer ist das tiefenbezogene Defizit. Kein Unterschied zur unkontaminierten Variante resultiert in  $\Delta C(x) = 1$ .

#### *Konzentrationsprofil*

Als Modell-NAPL wird Diesel mit einem in den Mischungsexperimenten ermittelten Verteilungskoeffizient  $K_{\text{Diesel/L}} = 13,4$  verwendet. Es werden Sättigungen des Porenraums von  $S_{\text{NAPL}} = 0,05, 0,1$  und  $0,2$  betrachtet, kombiniert mit NAPL-haltigen Schichtdicken von  $0,1, 0,2$  und  $0,5$  m. Die Sättigung ist jeweils homogen in der NAPL-haltigen Schicht verteilt. Die verwendeten Werte treten auch in situ bei residualen NAPL-Kontaminationen häufig auf.

In Abbildung 35 sind die tiefenabhängigen Defizitfaktoren jeweils für eine 2 m mächtige Auflage des Sandes bzw. des Lehms über einer auf dem Grundwasser aufliegenden NAPL-Schicht mit den Dicken  $0,1, 0,2$  und  $0,5$  m und NAPL-Gehalten von  $S_{\text{NAPL}} = 0,05, 0,1$  und  $0,2$  über dem Grundwasser dargestellt. Der Abbildung ist zu entnehmen, dass mit zunehmender NAPL-Sättigung und zunehmender NAPL-Schichtdicke die Defizite zu bzw. die Defizitfaktoren abnehmen (außer Lehm mit jeweils  $S_{\text{NAPL}} = 0,2$ ). In Richtung der Oberfläche geht das Defizit zurück bzw. der Defizitfaktor steigt und nähert sich somit der Konzentration des unkontaminierten Bodens an.



**Abbildung 35:** Tiefenbezogene Radondefizitfaktoren für einen A) Sand und einen B) Lehm mit einer a) 0,1, b) 0,2 und c) 0,5 m dicken NAPL-Schicht (grau hinterlegt) mit NAPL-Sättigungen des Porenraums von  $S_{NAPL} = 0,05, 0,1$  und  $0,2$ .  $\Delta C(x)$  wurde nach [124] berechnet.

Bei Sand führt die geringste Dicke der NAPL-Schicht von 0,1 m zu Defiziten oberhalb der NAPL-Schicht zwischen 10% ( $S_{NAPL} = 0,05$ ) und 18% ( $S_{NAPL} = 0,2$ ), die bis zur Oberfläche

hin auf 4% bis 2% der Konzentration des unkontaminierten Sandes zurückgehen. Bei einer Dicke von 0,2 m liegen die Defizite zwischen 13% ( $S_{\text{NAPL}} = 0,05$ ) und 22% ( $S_{\text{NAPL}} = 0,2$ ) über der NAPL, und 5% und 3% an der Oberfläche. Bei 0,5 m Schichtdicke liegen die Defizite oberhalb der NAPL-Schicht zwischen 18% ( $S_{\text{NAPL}} = 0,05$ ) und 29% ( $S_{\text{NAPL}} = 0,2$ ), die bis zur Oberfläche hin auf 6% bis 4% zurückgehen.

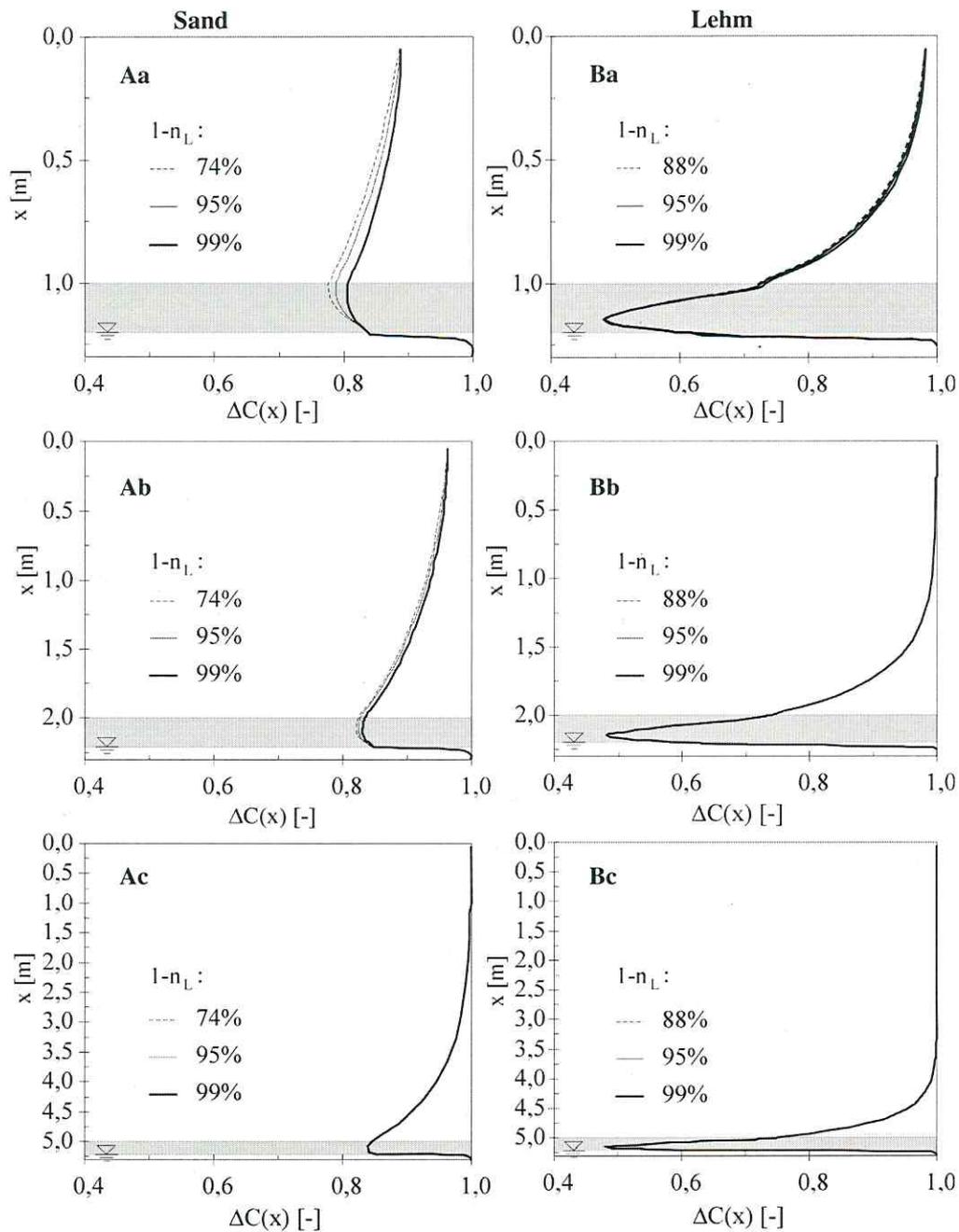
Bei Lehm sind die Unterschiede zwischen den Verläufen der Defizitfaktoren der jeweiligen NAPL-Sättigungsgrade und Dicken der NAPL-Schicht wesentlich geringer. Die maximale NAPL-Sättigung von 0,2 führt im Gegensatz zum Sand jeweils zu den geringsten Defiziten über der NAPL. Bis zur Oberfläche hin gehen in allen Fällen (Abbildung 35 B) die Defizite auf 0% zurück. Bei einer Dicke der NAPL-Schicht von 0,1 m liegen die maximalen Defizite oberhalb der NAPL-Schicht zwischen 18% ( $S_{\text{NAPL}} = 0,2$ ) und 26% ( $S_{\text{NAPL}} = 0,1$ ). Bei einer Dicke von 0,2 m liegen die Defizite zwischen 17% ( $S_{\text{NAPL}} = 0,2$ ) und 27% ( $S_{\text{NAPL}} = 0,1$ ) über der NAPL. Bei 0,5 m Schichtdicke liegen die Defizite oberhalb der NAPL-Schicht zwischen 15% ( $S_{\text{NAPL}} = 0,2$ ) und 26% ( $S_{\text{NAPL}} = 0,1$ ).

Innerhalb der NAPL-Schicht kommt es zu einer relativ starken Änderung des Defizitfaktors, die Ab- bzw. Zunahme ist hier auf kurze Distanz wesentlich stärker als in der NAPL-freien Schicht oberhalb und es werden jeweils die größten NAPL-bedingten Defizite erreicht. Im Lehm sind die Defizite in der NAPL-Schicht deutlich größer als im Sand.

Im wassergesättigten Bereich kommt es aufgrund sehr kurzer Diffusionslängen zu keinem merklichen Defizit. Auf den gesättigten Bereich wird nicht weiter eingegangen, da ja Radonkonzentrationen in der Bodenluft untersucht werden sollen.

### 9.3 Mächtigkeit der Auflage und Versiegelungsgrad der Oberfläche

In Abbildung 36 sind die tiefenabhängigen Defizitfaktoren jeweils für eine 1, 2 und 5 m mächtige Auflage des Sandes bzw. des Lehms über einer 0,2 m mächtigen NAPL-Schicht mit einem NAPL-Gehalt von  $S_{\text{NAPL}} = 0,1$  über dem Grundwasser dargestellt. Es werden außerdem unversiegelte sowie versiegelte Oberflächen mit Versiegelungsgraden von 0,95 und 0,99 betrachtet. Bei Feldkapazität beträgt die luftgefüllte Porosität  $n_L = 0,26$  (Sand) bzw.  $n_L = 0,12$  (Lehm) und somit der (natürliche) Versiegelungsgrad der Oberfläche 0,74 bzw. 0,88.  $\Delta C(x)$  nimmt ausgehend vom oberen Rand der NAPL-Schicht in Richtung der Oberfläche zu. Innerhalb der NAPL-Schicht ist  $\Delta C(x)$ , wie bereits in Abbildung 35, jeweils am kleinsten. Im Lehm ist  $\Delta C(x)$  in der NAPL-Schicht wiederum kleiner als im Sand.



**Abbildung 36:** Tiefenbezogene Radondefizitfaktoren für einen Sand A) und einen Lehm B) mit jeweils einer a) 1, b) 2 und c) 5 m mächtigen Überdeckung einer 0,2 m dicken NAPL-Schicht (grau hinterlegt) mit  $S_{NAPL} = 0,1$ .  $(1-n_L) \cdot 100$  ist der Versiegelungsgrad [%] der Oberfläche.  $\Delta C(x)$  wurde nach [124] berechnet.

Aus den in Kapitel 9.2 bereits genannten Gründen wird für die hier betrachteten Szenarien jeweils nur die Bodenschicht über der NAPL-Schicht betrachtet.

Bei einer 1 m tiefen Sandsäule (Abbildung 36 Aa) beträgt  $\Delta C(x)$  ohne zusätzliche Versiegelung des Sandes ( $1-n_L = 0,74$ ) am oberen Rand der NAPL-Schicht 0,78, mit zunehmender Versiegelung steigt  $\Delta C(x)$  auf 0,81 bei  $1-n_L = 0,99$ . Ausgehend vom  $\Delta C(x)$  am oberen Rand der NAPL-Schicht steigt  $\Delta C(x)$  in Richtung der Oberfläche unabhängig von  $1-n_L$  auf 0,9 an. Die Konzentration des unkontaminierten Sandes ( $\Delta C = 1$ ) wird bei der betrachteten 1 m tiefen Sandsäule somit nicht erreicht. Bei 1 m tiefem Lehm (Abbildung 36 Ba) beträgt  $\Delta C(x)$  am oberen Rand der NAPL-Schicht unabhängig vom Versiegelungsgrad der Oberfläche 0,72. Ausgehend von  $\Delta C(x)$  am oberen Rand der NAPL-Schicht steigt  $\Delta C(x)$  in Richtung der Oberfläche unabhängig von  $1-n_L$  auf 0,98 an. Die Konzentration des unkontaminierten Lehms ( $\Delta C = 1$ ) wird auch bei der betrachteten 1 m tiefen Lehmsäule somit nicht erreicht.

Bei einer 2 m tiefen Sandsäule (Abbildung 36 Ab) ohne zusätzliche Versiegelung der Oberfläche ( $1-n_L = 0,74$ ) beträgt  $\Delta C(x)$  am oberen Rand der NAPL-Schicht 0,82, mit zunehmender Versiegelung steigt  $\Delta C(x)$  auf 0,83 bei  $1-n_L = 0,99$ . Ausgehend vom  $\Delta C(x)$  am oberen Rand der NAPL-Schicht steigt  $\Delta C(x)$  in Richtung der Oberfläche unabhängig von  $1-n_L$  auf 0,96 an. Die Konzentration des unkontaminierten Sandes ( $\Delta C = 1$ ) wird bei der betrachteten 2 m tiefen Sandsäule ebenfalls nicht erreicht. Bei 2 m tiefem Lehm (Abbildung 36 Bb) beträgt  $\Delta C(x)$  unabhängig vom Versiegelungsgrad der Oberfläche am oberen Rand der NAPL-Schicht 0,82. Ausgehend vom  $\Delta C(x)$  am oberen Rand der NAPL-Schicht steigt  $\Delta C(x)$  in Richtung der Oberfläche unabhängig von  $1-n_L$  auf 1,0 an. Die Konzentration der unkontaminierten Lehmsäule ( $\Delta C = 1$ ) wird in einer Tiefe von  $x = 0,6$  m erreicht.

Bei einer 5 m tiefen Sandsäule (Abbildung 36 Ac) beträgt  $\Delta C(x)$  unabhängig vom Versiegelungsgrad der Oberfläche am oberen Rand der NAPL-Schicht 0,84. Ausgehend von  $\Delta C(x)$  am oberen Rand der NAPL-Schicht steigt  $\Delta C(x)$  in Richtung der Oberfläche unabhängig von  $1-n_L$  auf 1,0 an. Die Konzentration des unkontaminierten Sandes ( $\Delta C = 1$ ) wird in einer Tiefe von  $x = 1,8$  m erreicht. Bei 5 m tiefem Lehm (Abbildung 36 Bc) beträgt  $\Delta C(x)$  unabhängig vom Versiegelungsgrad der Oberfläche am oberen Rand der NAPL-Schicht 0,73. Ausgehend vom  $\Delta C(x)$  am oberen Rand der NAPL-Schicht steigt  $\Delta C(x)$  in Richtung der Oberfläche unabhängig von  $1-n_L$  auf 1,0 an. Die Konzentration der unkontaminierten Lehmsäule ( $\Delta C = 1,0$ ) wird in einer Tiefe von  $x = 3,9$  m erreicht.

Aus dem oben Gesagten folgt, dass innerhalb der NAPL-Schicht der Rückgang der Radonkonzentration immer am größten ist. In der NAPL-freien Zone ist das Konzentrationsdefizit direkt über der NAPL-Schicht am größten. Die nachfolgenden Betrachtungen beziehen sich

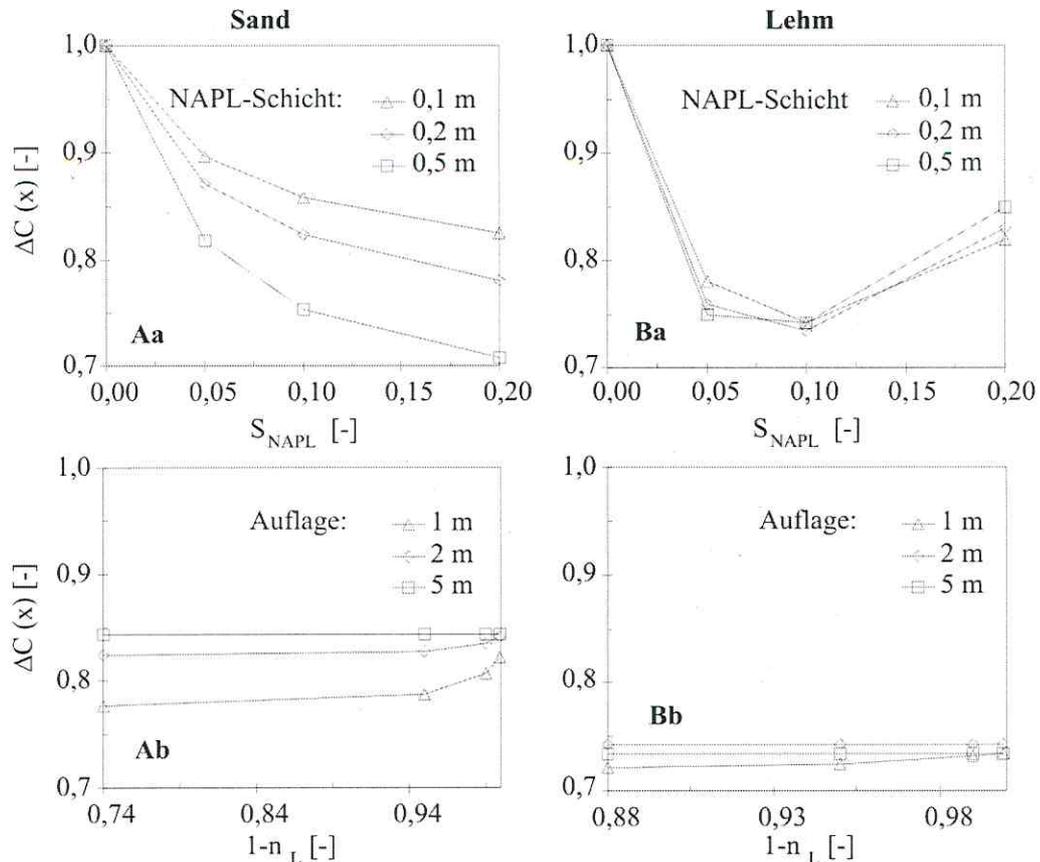
zunächst auf den NAPL-freien Bereich direkt über der NAPL-haltigen Schicht, auf die später eingegangen wird.

Abbildung 37 Aa zeigt, dass für einen 2 m tiefen Sand der Defizitfaktor am oberen Rand der NAPL-Schicht ( $\Delta C(2)$ ) mit steigender  $S_{\text{NAPL}}$  ( $0 < S_{\text{NAPL}} < 0,2$ ) und Abhängigkeit von der NAPL-Schichtdicke abnimmt. Bei  $S_{\text{NAPL}} = 0,0$  beträgt  $\Delta C(2) = 1,0$ . Bei einer 0,1 m mächtigen NAPL-Schicht sinkt  $\Delta C(2)$  mit zunehmender NAPL-Sättigung auf 0,82 ab. Bei einer 0,2 m mächtigen NAPL-Schicht nimmt  $\Delta C(2)$  mit zunehmender NAPL-Sättigung auf 0,8 ab. Bei einer NAPL-Schichtdicke 0,5 m, dann nimmt  $\Delta C(2)$  mit zunehmender NAPL-Sättigung auf 0,71 ab.

Für einen 2 m tiefen Lehm (Abbildung 37 Ba) nimmt  $\Delta C(2)$  mit zunehmender NAPL-Sättigung unabhängig von der NAPL-Schichtdicke bis zu  $S_{\text{NAPL}} = 0,1$  auf etwa 0,74 ab. Steigt  $S_{\text{NAPL}}$  auf 0,2, dann nimmt  $\Delta C(2)$  wieder zu und liegt hier zwischen 0,82 und 0,85. Dieser Effekt ist auf die Verringerung der luftgefüllten Porosität und damit des Diffusionskoeffizienten von Radon in Lehm bei relativ hohen NAPL-Sättigungen des Porenraums zurückzuführen. Ein Effekt der Dicke der NAPL-Schicht auf das Defizit oberhalb der NAPL-Schicht liegt bei Lehm praktisch nicht vor.

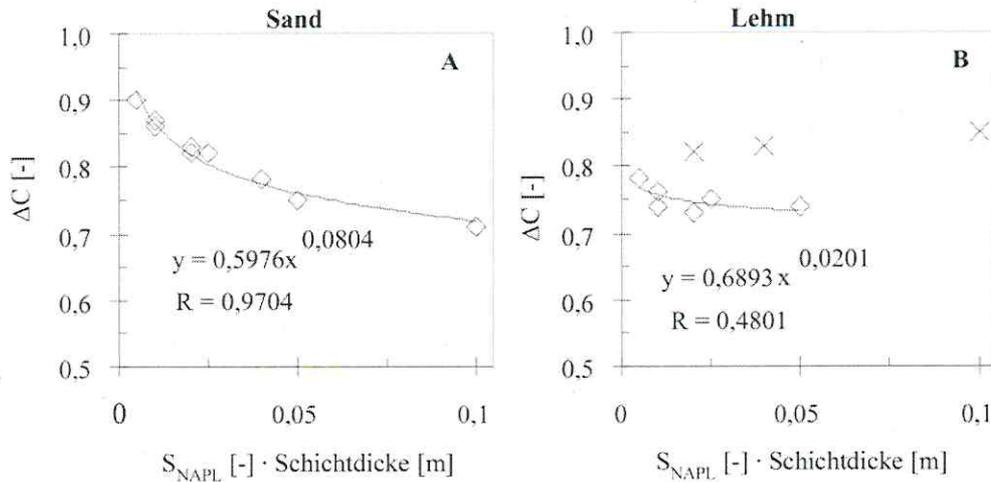
Wie Abbildung 37 Ab und Bb zeigen, haben Versiegelungsgrade ( $1-n_L$ ) insgesamt nur einen geringen Einfluss auf das beobachtete Defizit über der betrachteten 0,2 m mächtigen NAPL-Schicht mit  $S_{\text{NAPL}} = 0,1$ . Im Sand ist  $\Delta C(x)$  mit 0,78 - 0,84 insgesamt höher als im Lehm mit 0,72 - 0,74. Für die betrachteten Auflagedicken bei Sand sind die Unterschiede mit 6% größer als im Lehm (2%). Bei  $x = 5$  m Tiefe liegt  $\Delta C(5)$  in Sand mit 0,84 am höchsten und ist völlig unabhängig vom Versiegelungsgrad. Je geringer die Auflagedicke ist, desto kleiner ist  $\Delta C(x)$  direkt über der NAPL-Schicht. Beim gut durchlässigen Sand ist mit kleiner werdender Auflagedicke der Rückgang der Konzentration über der NAPL-Schicht größer als beim schlechter durchlässigen Lehm. Dies ist mit einem Konzentrationsrückgang durch Ausgasung von Radon aus der Oberfläche (Exhalation) zu begründen.

Für einen 1 m dicken Sand lassen sich ab Versiegelungsgraden von  $1-n_L = 0,94$  mit zunehmender Versiegelung Zunahmen bei  $\Delta C(1)$  um etwa 2,5% im betrachteten Horizont verzeichnen. Bei einer 2 m dicken Sandauflage sind diese Zunahmen kaum noch erkennbar, bei 5 m Auflage gar nicht mehr. Beim Lehm lassen sich ab Versiegelungsgraden von etwa 0,94 für die 1 m dicke Auflage nur marginale Zunahmen von  $\Delta C(1)$  des Defizites verzeichnen, bei 2 bzw. 5 m Auflage keine.



**Abbildung 37:** Tiefenabhängiges Radondefizit ( $\Delta C(x)$ ) als Funktion der NAPL-Sättigung ( $S_{NAPL}$ ) und NAPL-Schichtdicke bei A) Sand und B) Lehm mit a) jeweils 2 m Auflage (vgl. Abbildung 35 b) bzw. b) als Funktion der Dicke der Auflage und des Versiegelungsgrades ( $1-n_L$ ) über einer 0,2 m dicken NAPL-Schicht mit  $S_{NAPL} = 0,1$  (vgl. Abbildung 36).

Abbildung 37 kann entnommen werden, dass für einen Sand ein Konzentrationsdefizit von 20% ( $\Delta(x) = 0,8$ ) oberhalb der NAPL durch verschiedene NAPL-Dicken oder verschiedene NAPL-Sättigungen des Porenraums hervorgerufen werden kann. Die Identifikation unterschiedlicher Sättigungsgrade und Schichtdicken ist somit anhand des Defizites in der betrachteten Tiefe nicht möglich. Es lässt keine Aussagen zur NAPL-Sättigung oder Dicke der NAPL-Schicht alleine zu, vielmehr kommt es zu einer Verzahnung dieser beiden Parameter, die sich durch das Produkt aus NAPL-Sättigung und Dicke der NAPL-Schicht ausdrücken lässt. Eine Mengenabschätzung der NAPL scheint möglich, wenn das Produkt aus Schichtdicke und Sättigung einen Rückschluss auf die Menge der NAPL im Boden zulässt. Für den Sand und für den Lehm sind die berechneten Defizitfaktoren für 1 bzw. 2 bzw. 5 m Dicke als Funktion des Produktes aus  $S_{NAPL}$  und Schichtdicke in Abbildung 38 dargestellt.



**Abbildung 38:** Defizitfaktoren direkt über der NAPL-Schicht als Funktion der Produkte aus  $S_{NAPL}$  (0,05; 0,1; 0,2) und NAPL-Schichtdicke (0,1; 0,2; 0,5 m) für A) einen Sand und B) einen Lehm. Diese Produkte sind als Rhomben dargestellt. In B wurden die Produkte mit  $S_{NAPL} = 0,2$  separat durch ein Kreuz dargestellt und sind nicht Teil der Regression (vgl. Text).

Im Sand nimmt mit zunehmendem Produkt aus  $S_{NAPL}$  und NAPL-Schichtdicke, was im Folgenden als NAPL-Menge bezeichnet wird, das Defizit oberhalb der NAPL-Schicht exponentiell (hier bis etwa  $\Delta C = 0,74$ ) ab. Eine quantitative Aussage zur NAPL-Menge aus  $\Delta C$  wäre für einen Sand damit möglich, wenn man direkt über der NAPL-haltigen Schicht die Radonkonzentration misst. Im Lehm scheint eine dementsprechende Abschätzung kaum möglich, da das NAPL-bedingte Defizit (hier etwa  $\Delta C = 0,75$ ) durch eine zusätzliche NAPL-Menge nur unwesentlich verringert wird. Wie bereits in Abbildung 37 Ba gezeigt wurde, führen im Lehm NAPL-Sättigungen des Porenraums von  $S_{NAPL} > 0,1$  zu einer Abnahme des Defizites. Die Produkte aus der NAPL-Sättigung  $S_{NAPL} = 0,2$  und den Schichtdicken 0,1, 0,2, 0,5 m (vgl. Abbildung 37 A) wurden daher für Lehm nicht in die Regression zur Berechnung des Trends von  $\Delta C$  als Funktion der NAPL-Menge einbezogen.

Wie bereits erwähnt, treten die größten Radon-Defizite innerhalb der NAPL-Schicht auf. Wegen stark unterschiedlicher Defizite auf sehr kurzen Distanzen (cm) wäre eine reproduzierbare Messung hier jedoch schwierig: leichte Abweichungen in der Messpunkttiefe könnten den erfassten Wert bereits stark beeinflussen. Grundwasserschwankungen könnten auch zu einer Änderung der Lage der NAPL führen, sodass in gleicher Tiefe zu unterschiedlichen Zeiten u. U. sehr verschiedene Werte gemessen werden würden, die nicht der tatsächlich vorliegenden NAPL-Kontamination entsprechen und z. B. einen Abbau suggerieren, der gar nicht

stattgefunden hat. Eine Messung der Radonkonzentration sollte daher nicht in der NAPL-Schicht, sondern möglichst dicht an der oberen Grenze der NAPL-haltigen Schicht im ungesättigten Porenraum erfolgen. Das NAPL-bedingte Defizit ist hier am stärksten und starke kleinräumige Veränderungen, wie sie innerhalb der NAPL-Schicht auftreten, können ausgeschlossen werden.

#### 9.4 Sensitivitätsanalyse

Mithilfe einer Sensitivitätsanalyse wird die Empfindlichkeit untersucht, mit der das numerisch simulierte Ergebnis auf eine definierte Änderung von einzelnen Parametern reagiert. Im Rahmen der Analyse werden einzelne Parameter um einen bestimmten Betrag variiert. Die Abweichung des Ergebnisses  $C$  um  $\Delta C$  aufgrund der Änderung des Parameters  $P$  um  $\Delta P$  ist eine Größe für die Sensitivität bezüglich der Radonkonzentration und wird als Sensitivitätskoeffizient des Parameters oder kurz  $SK(P)$  bezeichnet. Je stärker das Ergebnis durch die Parameteränderung abweicht, desto größer ist  $SK(P)$ . Es berechnet sich aus dem Quotienten der Abweichung der Radonkonzentration ( $\Delta C$ ) und der Änderung des Parameters ( $\Delta P$ ). Um die berechneten Koeffizienten vergleichbar zu machen, werden sie normiert, indem mit dem Quotienten aus Parameterwert  $P$  und Ergebnis  $C(P)$  multipliziert wird. Es gilt:

$$SK(P) = \frac{\Delta C}{\Delta P} \cdot \frac{P}{C(P)} = \frac{C(P \pm \Delta P) - C(P)}{\Delta P} \cdot \frac{P}{C(P)} \quad [-] \quad [125]$$

- $SK(P)$  = Sensitivitätskoeffizient des Parameterwertes  $P$
- $\Delta C$  = Differenz der Radonkonzentration bei  $P \pm \Delta P$  und  $P$
- $\Delta P$  = Änderung des Parameterwertes  $P$ ; für eine Variation um 10% gilt z. B.  $\Delta P = 0,1P$
- $P$  = Parameterwert
- $C(P)$  = Konzentration als Ergebnis des Parameterwertes  $P$
- $C(P \pm \Delta P)$  = Konzentration als Ergebnis des Parameterwertes  $P \pm \Delta P$

Bei der Analyse wurden die in Tabelle 21 aufgeführten Parameterwerte eines Sandes nach van Bavel (1952, vgl. Tabelle 17) und eines Lehms nach Rogers et al. (1982, vgl. Tabelle 17) jeweils um +10% und -10% variiert. Ausgehend von einer Referenzsituation (Startwert) wird jeweils nur ein Parameter variiert.

Die Transportstrecke beträgt  $x = 2,2$  m. An der Basis der Transportstrecke (zwischen  $x = 2$  und  $2,2$  m) enthält der Porenraum neben Luft und Wasser noch eine NAPL (Tabelle 21). Für den Parameter  $S_{NAPL}$  erfolgt die Parametervariation nur im kontaminierten Bereich. Für den Parameter Oberflächenversiegelungsgrad ( $1-n_L$ ) erfolgt die Variation nur im obersten Kompartiment  $i = 1$ . Bei allen anderen Parametern erfolgt die Variation für jedes Kompar-

timent, d. h. über die gesamte Transportstrecke. In Abbildung 39 bis 43 sind die nach [125] berechneten SK(P) dargestellt. Aus später genannten Gründen sind die Ergebnisse der Parameter  $\varepsilon$ ,  $C_{Ra}$  und  $\rho$  von der graphischen Darstellung ausgenommen. Die Werte der SK(P) sind für 3 Horizonte in Tabelle 22 (gegen Ende dieses Kapitels) dargestellt und werden im dazugehörigen Abschnitt diskutiert. Zu den Abbildungen erfolgt zunächst eine allgemeine Beschreibung der Verläufe der SK in Abhängigkeit von der Tiefe. Wenn nachfolgend von SK gesprochen wird, dann sind immer die vom Vorzeichen unabhängigen absoluten Beträge der SK gemeint, soweit nicht explizit anders bezeichnet. Es sei darauf hingewiesen, dass die Skaleneinteilung der x-Achse in den Abbildungen verschieden ist. In Abbildung 39 und 40 liegt der Skalenbereich der Abszisse zwischen -5 und +5, in Abbildung 41 und 42 zwischen -1 und +1 und in Abbildung 43 zwischen -10 und 30.

**Tabelle 21:** Parameterwerte für die Sensitivitätsanalyse.

Parameter	Sand			Lehm		
	Startwert	+10%	-10%	Startwert	+10%	-10%
n [-]	0,4	0,44	0,36	0,5	0,55	0,45
n <sub>w</sub> [-]	0,14	0,154	0,126	0,38	0,418	0,342
<sup>a</sup> 1-n <sub>L</sub> [-]	0,9	0,99	0,81	0,9	0,99	0,81
D <sub>c</sub> [m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> ]	1,9 · 10 <sup>-6</sup>	2,09 · 10 <sup>-6</sup>	1,71 · 10 <sup>-6</sup>	3,0 · 10 <sup>-7</sup>	3,3 · 10 <sup>-7</sup>	2,7 · 10 <sup>-7</sup>
<sup>b</sup> S <sub>NAPL</sub> [-]	0,1	0,11	0,09	0,05	0,055	0,045
C <sub>Ra</sub> [Bq kg <sup>-1</sup> ]	100	110	90	100	110	90
ε [-]	0,3	0,33	0,27	0,3	0,33	0,27
ρ [kg m <sup>-3</sup> ]	1,59	1,749	1,431	1,59	1,749	1,431

<sup>a</sup> nur im Kompartiment i = 1 (oberer Rand)

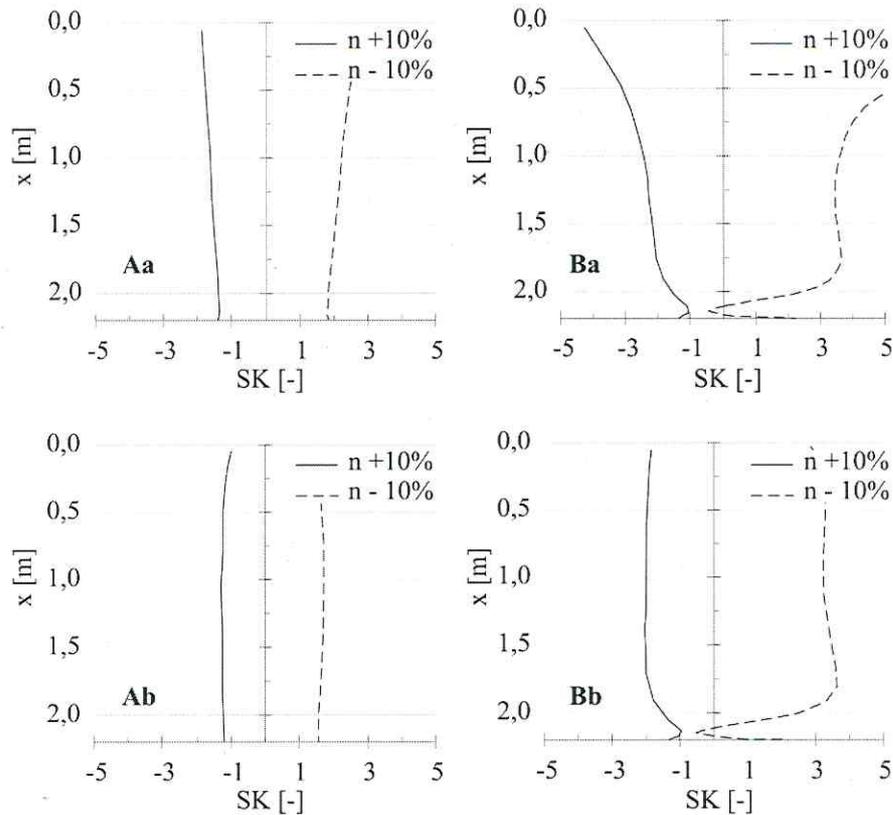
<sup>b</sup> nur zwischen x = 2 und 2,2 m (unterer Rand)

In Abbildung 39 sind die Tiefenprofile der Sensitivitätskoeffizienten für den Parameter Porosität n für den o. g. A) Sand und B) Lehm jeweils a) ohne und b) mit Versiegelung der Oberfläche dargestellt. Die Versiegelung beträgt 1-n<sub>L</sub> = 0,99. Eine Erhöhung der Startwerte des Parameters n um +10% führt immer zu negativen Werten von SK, d. h. zu einer Abnahme der Radonkonzentration; eine Verringerung um -10% führt immer zu positiven SK, d. h. zu einer Zunahme der Radonkonzentration.

Bei unversiegelter Oberfläche des Sandes (Aa) nehmen die SK von n ausgehend von maximalen Werten an der Oberfläche jeweils mit zunehmender Tiefe leicht ab.

Beim unversiegelten Lehm (Ba) gehen die SK bis zur Tiefe von etwa x = 1 m relativ stark zurück. Mit zunehmender Tiefe bis zum NAPL-kontaminierten Bereich ändern sich die SK

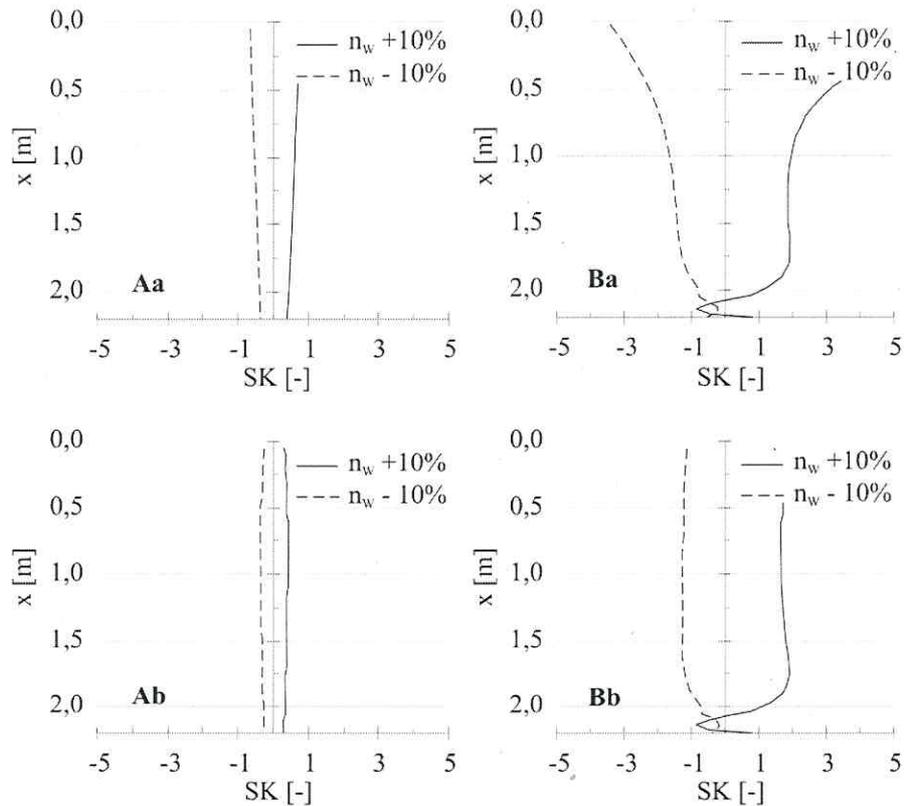
nur noch relativ wenig. Im kontaminierten Bereich kommt es jeweils zu einem stärkeren Rückgang der SK und es ändert sich die Richtung der Änderung der Konzentration.



**Abbildung 39:** Sensitivitätskoeffizient SK(x) bei Veränderung der Porosität n um  $\pm 10\%$  bei einem A) Sand und B) Lehm, ausgehend von a) einer unversiegelten und b) einer versiegelten Oberfläche ( $1-n_L = 0,99$ ).

Beim versiegelten Sand (Ab) sind die SK von n über die gesamte Transportstrecke etwa gleich. Bei Lehm (Bb) bleiben die SK von n bis zum kontaminierten Bereich etwa konstant. Im Bereich der Kontamination gehen die Beträge zurück bzw. es ändert sich die Richtung der Änderung der Konzentration.

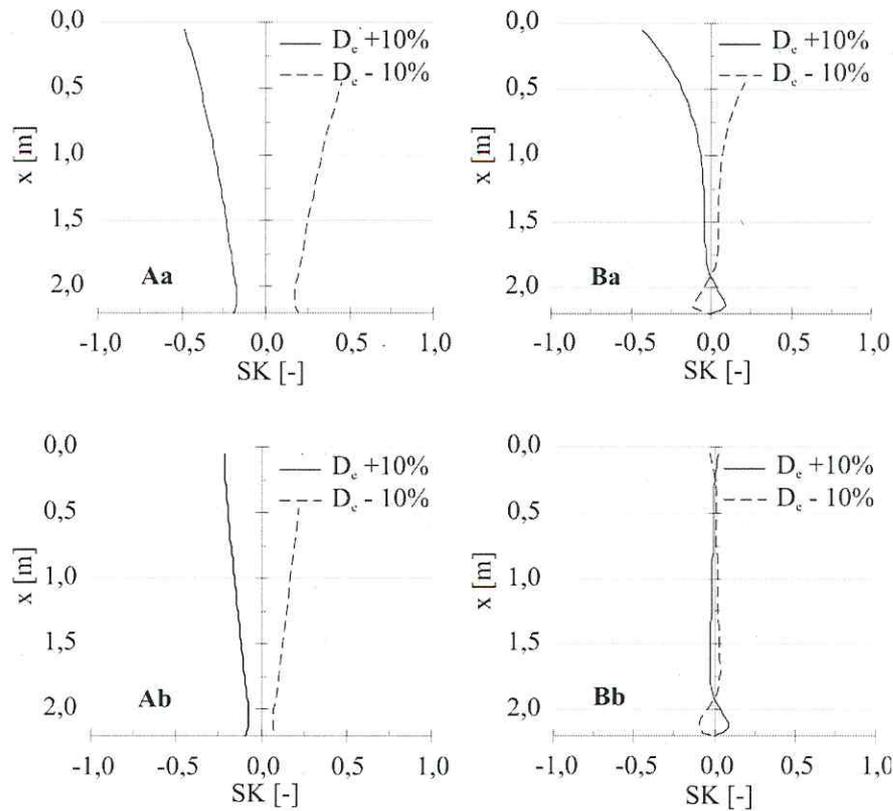
In Abbildung 40 sind die Tiefenprofile der Sensitivitätskoeffizienten für die Variation des Parameters Wassergehalt ( $n_w$ ) jeweils für A) den o. g. Sand und B) Lehm, jeweils a) ohne und b) mit Versiegelung der Oberfläche dargestellt. Die Versiegelung beträgt  $1-n_L = 0,99$ . Eine Erhöhung des Parameters  $n_w$  um +10% führt hier immer zu positiven Werten von SK, d. h. zur Zunahme der Radonkonzentration. Eine Verringerung von  $n_w$  um -10% führt immer zu negativen SK, d. h. zur Abnahme der Radonkonzentration.



**Abbildung 40:** Sensitivitätskoeffizient SK(x) bei Veränderung des Wassergehaltes  $n_w$  um  $\pm 10\%$  bei einem A) Sand und B) Lehm, ausgehend von a) einer unversiegelten und b) einer versiegelten Oberfläche ( $1-n_L = 0,99$ ).

Die SK von  $n_w$  bei Sand sind geringer als beim Lehm. Bei unversiegelter Oberfläche des Sandes (Aa) nehmen die SK mit zunehmendem Abstand von der Oberfläche leicht ab. Beim unversiegelten Lehm (Ba) gehen die SK, ausgehend von maximalen Werten an der Oberfläche bis zur Tiefe von etwa  $x = 1$  m relativ stark zurück und ändern sich dann bis zum NAPL-kontaminierten Bereich nur noch wenig. Im kontaminierten Bereich kommt es zu einem deutlichen Rückgang der SK bzw. es ändert sich die Richtung der Änderung der Konzentration. Bei versiegelter Oberfläche sind die SK von  $n_w$  bei Sand (Ab) über die gesamte Transportstrecke etwa konstant. Bei Lehm (Bb) bleiben die SK jeweils bis zum kontaminierten Bereich etwa konstant. Im Bereich der Kontamination gehen die SK zurück bzw. es ändert sich die Richtung der Änderung der Konzentration.

In Abbildung 41 sind die Tiefenprofile der Sensitivitätskoeffizienten für die Variation des Parameters Diffusionskoeffizient ( $D_e$ ) jeweils für den o. g. A) Sand und B) Lehm, jeweils a) ohne und b) mit Versiegelung der Oberfläche  $1-n_L = 0,99$  dargestellt

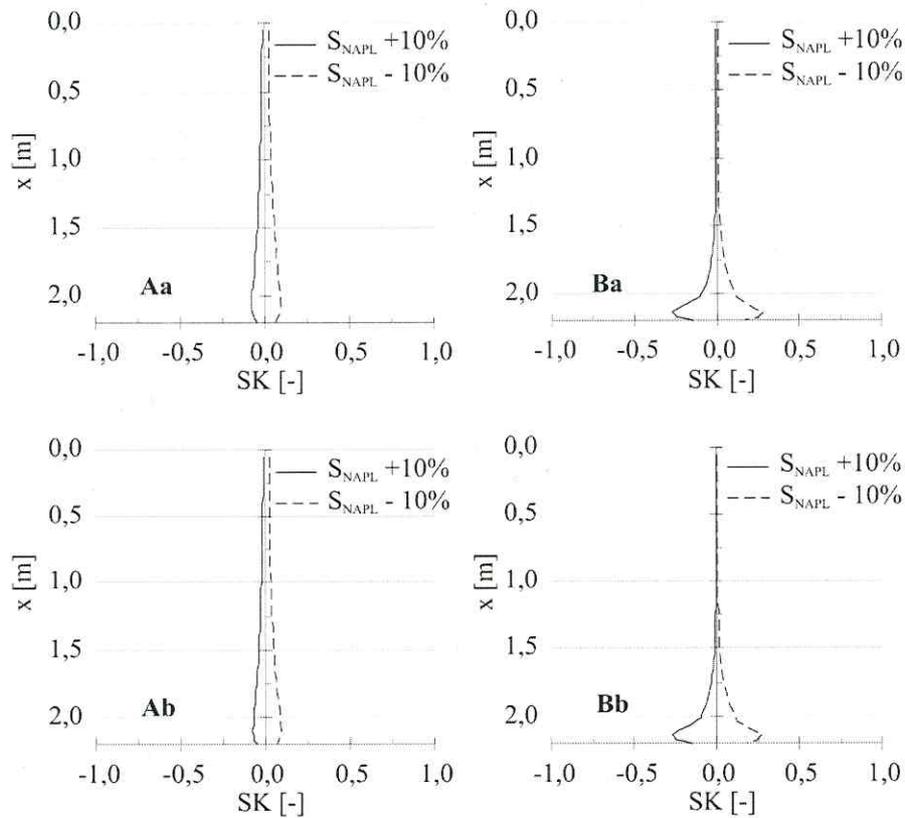


**Abbildung 41:** Sensitivitätskoeffizient  $SK(x)$  bei Veränderung des Diffusionskoeffizienten  $D_c$  um  $\pm 10\%$  bei einem A) Sand und B) Lehm, ausgehend von a) einer unversiegelten und b) einer versiegelten Oberfläche ( $1-n_L = 0,99$ ).

Eine Erhöhung der Startwerte des Parameters  $D_c$  um  $+10\%$  führt zu negativen Werten von  $SK$ , d. h. zur Abnahme der Radonkonzentration; eine Verringerung um  $-10\%$  führt jeweils zu positiven  $SK$ , d. h. zur Zunahme der Radonkonzentration. Bei unversiegelter Oberfläche des Sandes (Aa) nehmen die  $SK$  von  $D_c$  ausgehend von maximalen Werten an der Oberfläche jeweils mit zunehmender Tiefe leicht ab. Beim unversiegelten Lehm (Ba) gehen die  $SK$  bis zur Tiefe von etwa  $x = 1$  m relativ stark zurück. Mit zunehmender Tiefe bis zum NAPL-kontaminierten Bereich bleiben die  $SK$  dann etwa konstant. Im kontaminierten Bereich kommt es jeweils zu einem stärkeren Rückgang der  $SK$  bzw. es ändert sich die Richtung der Änderung der Konzentration. Beim versiegelten Sand (Ab) ergeben die  $SK$  von  $D_c$  über die gesamte Transportstrecke etwa ein ähnliches Bild wie bei Aa, wobei aber die  $SK$  bzw. deren Änderung mit der Tiefe insgesamt geringer sind. Bei Lehm (Bb) bleiben die  $SK$  von  $D_c$  bis zum kontaminierten Bereich etwa konstant. Im Bereich der Kontamination ändert sich dann die Richtung der Änderung der Konzentration.

In Abbildung 42 sind die Tiefenprofile der Sensitivitätskoeffizienten für die Variation des Parameters NAPL-Sättigung des Porenraums ( $S_{NAPL}$ ) jeweils für den A) Sand und B) Lehm, jeweils a) ohne und b) mit Versiegelung der Oberfläche dargestellt.

Eine Erhöhung des Parameters  $S_{NAPL}$  um +10% führt zu negativen Werten von SK d.h. zur Abnahme der Radonkonzentration. Eine Variation von  $n$  um -10% führt zu positiven SK, d. h. zur Zunahme der Radonkonzentration. In allen vier Varianten werden die größten SK im NAPL-haltigen Bereich beobachtet. Die SK nehmen jeweils ausgehend von minimalen Werten an der Oberfläche in Richtung der Kontamination leicht zu. Insgesamt sind die SK relativ gering.

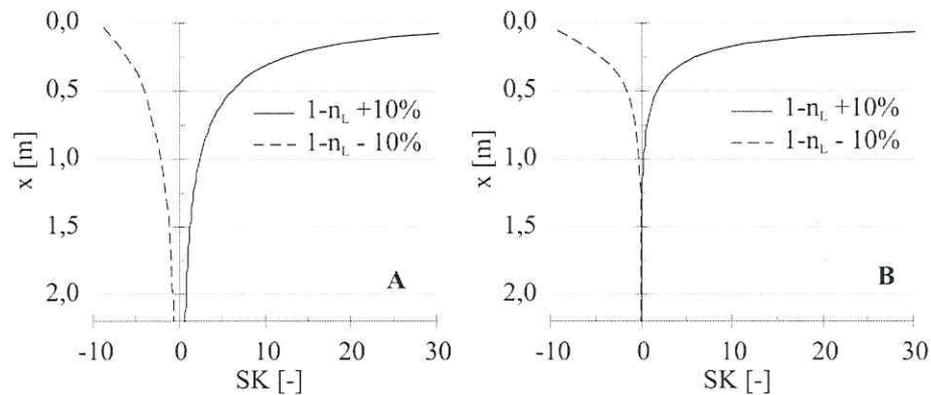


**Abbildung 42:** Sensitivitätskoeffizient SK(x) bei Veränderung der NAPL-Sättigung  $S_{NAPL}$  um  $\pm 10\%$  bei einem A) Sand und B) Lehm, ausgehend von a) einer unveriegelten und b) einer versiegelten Oberfläche ( $1-n_L = 0,99$ ).

In Abbildung 43 sind die Tiefenprofile der SK für die Variation des Parameters Versiegelungsgrad der Oberfläche ( $1-n_L$ ) jeweils für den o. g. A) Sand und B) Lehm dargestellt. Eine Erhöhung des Parameters  $1-n_L$  um 10% führt zu positiven SK-Werten bzw. zur Zunahme der

Radonkonzentration. Eine Verringerung um 10% führt zu negativen SK-Werten bzw. zur Abnahme der Radonkonzentration.

Die SK von  $1-n_L$  nehmen ausgehend von maximalen Werten an der Oberfläche mit zunehmender Tiefe rasch ab. Während beim Sand (A) die geringsten SK aber erst an der Basis der Transportstrecke ermittelt wurden, werden beim Lehm (B) bereits ab einer Tiefe von etwa  $x = 1$  m sehr geringe SK-Werte erreicht.



**Abbildung 43:** Sensitivitätskoeffizient  $SK(x)$  bei Veränderung des Versiegelungsgrades der Oberfläche  $1-n_L$  um  $\pm 10\%$  bei einem Startwert von  $1-n_L = 0,90$  und  $S_{NAPL} = 0,1$  zwischen  $x = 2$  und  $2,2$  m bei einem A) Sand und B) Lehm.

Tabelle 22 dokumentiert die nach [125] berechneten SK für drei Horizonte einer Bodensäule aus Sand bzw. Lehm. Darin sind neben den bereits besprochenen Parametern Porosität, Wassergehalt, Versiegelungsgrad, Diffusionskoeffizient und NAPL-Sättigung noch die Parameter Emanationskoeffizient  $\epsilon$ , Radiumkonzentration  $C_{Ra}$  und Lagerungsdichte  $\rho$  aufgeführt. SK von  $\epsilon$ ,  $C_{Ra}$  und  $\rho$  beträgt in jedem Fall unabhängig von der Tiefe und der Versiegelung 1,0. Eine Variation einer dieser Parameter um  $\pm 10\%$  führt also immer zu einer entsprechenden Variation der Radonkonzentration um  $\pm 10\%$ .

Bei unversiegelter Oberfläche wurden die größten SK mit 2,57 (Sand) bzw. 7,13 (Lehm) in Oberflächennähe ( $x = 0,3$ ) durch Variation des Parameters  $n$  ermittelt. In der Tiefe  $x = 2$  m gehen die  $SK(n)$  bis auf Werte von 1,40 (Sand) bzw. 1,53 (Lehm) zurück. Bei den Parametern  $n$ ,  $n_w$ , und  $D_e$  wurden die größten SK jeweils bei  $x = 0,3$  und die kleinsten bei  $x = 2,0$  m festgestellt. Bei  $S_{NAPL}$  werden demgegenüber die kleinsten SK bei  $x = 0,3$  und die größten bei  $x = 2,0$  m ermittelt. Bei  $\epsilon$ ,  $C_{Ra}$  und  $\rho$  betragen die jeweiligen SK immer 1,0.

Bei versiegelter Oberfläche wurden in Oberflächennähe ( $x = 0,3$ ) durch Variation des Parameters  $1-n_L$  für den Sand mit 10,47 und für den Lehm mit 4,49 jeweils die größten SK ermittelt. Bei Lehm gehen die  $SK(1-n_L)$  bis zur Tiefe  $x = 2$  m auf 0,01 bzw. bei Sand auf 0,8 zurück. Die SK der restlichen Parameter liegen bei Werten zwischen 0,0 und 1,70 (Sand) bzw. 0,0 und 3,26 (Lehm) und liegen für die einzelnen Parameter jeweils auf einem relativ gleichbleibenden Niveau.

**Tabelle 22:** Sensitivitätskoeffizient  $SK(x)$  [-] in Abhängigkeit von der Tiefe  $x$  [m] einer Bodensäule aus Sand bzw. Lehm. Die Parameter wurden jeweils um  $\pm 10\%$  geändert (vgl. Tabelle 21) und sind im Text bzw. in Abbildung 39 bis 43 definiert.

$x$ [m]	$n$	$n_w$	$1-n_L$	$D_e$	$S_{NAPL}$	$\epsilon, C_{Ra}, \rho$
Sand, unversiegelt						
0,3	-1,81 / +2,57	+0,71 / -0,63	-	-0,43 / +0,49	-0,02 / +0,02	+1,0 / -1,0
1,0	-1,62 / +2,21	+0,58 / -0,53	-	-0,33 / +0,33	-0,03 / +0,03	+1,0 / -1,0
2,0	-1,40 / +1,81	+0,41 / -0,39	-	-0,18 / +0,18	-0,08 / +0,09	+1,0 / -1,0
Sand, versiegelt						
0,3	-1,15 / +1,53	+0,38 / -0,34	+10,5 / -5,74	-0,21 / +0,23	-0,01 / +0,02	+1,0 / -1,0
1,0	-1,27 / +1,70	+0,41 / -0,38	+2,44 / -2,20	-0,16 / +0,16	-0,02 / +0,03	+1,0 / -1,0
2,0	-1,19 / +1,54	+0,32 / -0,30	+0,80 / -0,83	-0,07 / +0,07	-0,07 / +0,08	+1,0 / -1,0
Lehm, unversiegelt						
0,3	-3,57 / +7,13	+4,33 / -2,73	-	-0,27 / +0,30	0,00 / 0,00	+1,0 / -1,0
1,0	-2,46 / +3,56	+1,95 / -1,68	-	-0,06 / +0,06	0,00 / 0,00	+1,0 / -1,0
2,0	-1,53 / +2,39	+1,04 / -0,79	-	+0,04 / -0,04	-0,09 / +0,11	+1,0 / -1,0
Lehm, versiegelt						
0,3	-1,96 / +3,26	+1,69 / -1,25	+4,49 / -3,64	0,00 / 0,00	0,00 / 0,00	+1,0 / -1,0
1,0	-2,01 / +3,21	+1,67 / -1,28	+0,27 / -0,31	-0,01 / +0,01	0,00 / 0,00	+1,0 / -1,0
2,0	-1,47 / +2,37	+1,03 / -0,74	+0,01 / -0,01	+0,04 / -0,05	-0,09 / +0,11	+1,0 / -1,0

Für die Parameter  $n$ ,  $n_w$ ,  $1-n_L$  und  $D_e$  werden direkt über der NAPL ( $x = 2,0$  m) jeweils die geringsten und in Oberflächennähe ( $x = 0,3$ ) die höchsten SK ermittelt. Bei  $x = 2,0$  m wird also die Radonkonzentration der Bodenluft durch diese Bodenparameter nur in relativ geringem Ausmaß beeinflusst. Direkt über der Kontamination ist der Einfluss der NAPL-Kontamination dagegen am stärksten.

Bei Sand hat der Wassergehalt  $n_w$  mit  $SK(x)$ -Werten zwischen 0,30 und 0,71 einen geringeren Einfluss auf die Radonkonzentration der Bodenluft als bei Lehm. Hier liegen die SK mit Werten zwischen 0,74 und 4,33 auf einem deutlich höheren Niveau.

Aufbauend auf den Ergebnissen der Sensitivitätsanalyse ergeben sich folgende Rangfolgen hinsichtlich der möglichen maximalen Veränderung der Radonkonzentration der Bodenluft durch Variation verschiedener Parameter:

Sand, unversiegelt

$$n > \varepsilon, C_{Ra}, \rho > n_w > D_e > S_{NAPL}$$

Sand, versiegelt

$$1-n_L > n > \varepsilon, C_{Ra}, \rho > n_w > D_e > S_{NAPL}$$

Lehm, unversiegelt

$$n > n_w > \varepsilon, C_{Ra}, \rho > D_e > S_{NAPL}$$

Lehm, versiegelt

$$1-n_L > n > n_w > \varepsilon, C_{Ra}, \rho > S_{NAPL} > D_e$$

Bei unversiegeltem Boden ist insgesamt dem Parameter  $n$  über die betrachtete Transportstrecke die größte mögliche Beeinflussung der Radonkonzentration der Bodenluft zuzuschreiben. Durch eine starke Oberflächenversiegelung ( $1-n_L$ ) kann es jedoch zu noch größeren Veränderungen der Radonkonzentration kommen. Die geringsten Veränderungen werden durch Variation der Parameter  $D_e$  ( $SK(2) = 0,04$ ) und  $S_{NAPL}$  ( $SK(2) = 0,08$ ) hervorgerufen.

Bei der Bodenluftprobenahme im Rahmen des Radonverfahrens in natürlichen Böden muss also beachtet werden, dass einzelne Parameter einen unterschiedlich starken Einfluss auf den Messwert der Radonkonzentration haben können. Insbesondere aufgrund des relativ geringen Sensitivitätskoeffizienten von  $S_{NAPL}$  muss der Wassergehalt als zeitlich variabler Parameter vor allem bei schlecht durchlässigen Böden bei der Radonmessung mit berücksichtigt werden.

Als optimaler Probenahmehorizont ergibt sich aufgrund der Ergebnisse der Sensitivitätsanalyse sowie der vorangegangenen Modellrechnungen der Horizont direkt über der NAPL-Kontamination. Der Einfluss der NAPL-Kontamination auf den Messwert ist hier am größten und der Einfluss von Variationen der anderen Parameter gleichzeitig am geringsten.

## 10 Vorgehensweise bei der Radonkartierung und beim Monitoring von NAPL-Kontaminationen

Die Radon-Methode wurde bisher nur für einmalige Messungen zur NAPL-Lokalisierung herangezogen, ohne Vorgabe der Wahl des Probenahmehorizontes. Diese Vorgehensweise wird jedoch den unter natürlichen Verhältnissen häufig unterschiedlichen Standortbedingungen nicht gerecht. Nachfolgend wird ein Vorschlag für eine Vorgehensweise unterbreitet, die unterschiedliche Standortbedingungen adäquat berücksichtigen soll. Sie bezieht sich grundsätzlich auf Messungen der Radonkonzentration, die oberhalb einer NAPL-haltigen Schicht vorgenommen werden, und ist neben der einmaligen Messung zur NAPL-Lokalisierung insbesondere für wiederholte Messungen im Rahmen eines Monitorings von NAPL-Kontamination geeignet. Als Messgerät wird der Radonmonitor AlphaGUARD der Firma Genitron Instruments (Frankfurt/Main; Genrich, 1999) zu Grunde gelegt. Der AlphaGUARD sollte im Flussmodus mit einer minütlichen Datenregistrierung und einer Messzeit von mindestens 40 min betrieben werden. Als Bodenluftpumpe wird von der dazugehörigen AlphaPUMP ausgegangen. Als Bodenluftsonde wird die von der Firma Stitz (Gehrden) vertriebene Bodenluftsonde S-2387 zu Grunde gelegt.

Voraussetzung für die vorgeschlagene Vorgehensweise ist, dass Daten zu den Bodenparametern mit potenziellem Einfluss auf die Radonkonzentration, also Lagerungsdichte, Porosität, Wassergehalt, Diffusionskoeffizient von Radon im Boden, Radiumkonzentration der Mineralmatrix, Emanationskoeffizient und Oberflächenversiegelung, sowie ihrer räumlichen Verteilung mit hinreichender Genauigkeit abgeschätzt bzw. bestimmt werden können. Je nach Datenlage ist es dann eventuell notwendig, sie an einer für den Standort angemessenen Anzahl von Untersuchungspunkten zu bestimmen. Der Wassergehalt des Bodens ist zeitlich variabel und muss daher bei jeder Radonmessung mitbestimmt werden. Die anderen Bodenparameter können als zeitlich konstant betrachtet werden und müssen somit nur einmal bestimmt werden.

Die Lagerungsdichte  $\rho$ , die Porosität  $n$  und die Radiumkonzentration  $C_{Ra}$  die können anhand von Bodenproben ermittelt werden. Der Wassergehalt  $n_w$  kann im Feld mit einer TDR-Sonde im Messhorizont der Bodenluftsonde ermittelt werden. Der Diffusionskoeffizient wird nach der empirischen Gleichung von Currie (1965, [66]) ausgehend von der luftgefüllten Porosität  $n_L$  und den empirischen Parametern  $b$  und  $m$  berechnet;  $n_L$  wird aus  $n$  und  $n_w$  berechnet. Typische Werte von  $b$  und  $m$  sind für verschiedene Böden dokumentiert (Tabelle 17, Kapitel 6.2.3). Der Emanationskoeffizient  $\epsilon$  kann zunächst mit einem für verschiedene Böden typischen Wert von 0,22 (Nazaroff, 1992) berücksichtigt werden.

Die Radonkonzentration  $C_{Rn}$  im Bodenprofil wird an mehreren Punkten, z. B. eines gleichmäßigen Rasters über die zu untersuchende Fläche, in mehreren Tiefen (3 bis 5) bestimmt. An die Messwerte der Radonkonzentration wird dann mithilfe von Modellrechnungen eine Radontiefenverteilung angepasst. Die Rn-Konzentration an einer unversiegelten Oberfläche kann dabei immer mit  $C_0 = 0 \text{ Bq m}^{-3}$  angesetzt werden (constant concentration Randbedingung). Für den unteren Rand wird im Modell mit  $C_{n+1} = C_{inf}$  ebenfalls eine constant concentration Randbedingung angenommen. Als Verteilungskoeffizient  $K_{NAPL/L}$  wird der für das vorliegende NAPL-Gemisch zutreffende Wert verwendet (z. B.  $K_{Diesel/L} = 13,4$ ). Da die Verteilungskoeffizienten für verschiedene NAPL sehr ähnlich sind, kann mit deren Mittelwert von  $K_{NAPL/L} \approx 13$  gerechnet werden, falls der genaue Wert für die vorliegende NAPL nicht bekannt ist. Für die Berechnungen werden die ermittelten Werte der Bodenparameter als Eingangsparameter für das Modell verwendet. Aufgrund von kleinräumigen, natürlichen Variationen im Bodenaufbau und der dadurch bedingten Ungenauigkeit der Parameterwerte, müssen diese u. U. etwas verändert werden, um eine gute Modellanpassung zu erreichen.

Wenn sie nicht bekannt ist, kann bei Vorliegen einer Kontamination die NAPL-Sättigung  $S_{NAPL}$  in der betroffenen Schicht mithilfe des Modells abgeschätzt werden. Dazu wird in wiederholten Modellrechnungen der  $S_{NAPL}$ -Wert solange variiert, bis eine gute Übereinstimmung von gemessenen und berechneten  $C_{Rn}$ -Werten erzielt wird.

Verwendet man die angepassten Werte für die Bodenparameter, genügt bei späteren Radonmessungen eventuell ein Messpunkt je Standort, um das Radontiefenprofil bzw. eine Veränderung der NAPL-Sättigung mithilfe des Modells zu berechnen. Das reduziert den Aufwand für Radonmessungen erheblich. Wie bereits erwähnt, muss der Wassergehalt als zeitlich variable Größe jedoch stets mitbestimmt werden.

Insbesondere für Monitoring-Programme, die zumeist über einen Zeitraum von mehreren Jahren laufen, ist die eben beschriebene Vorgehensweise zweckmäßig. Durch die einmalige Bestimmung der räumlich variablen Bodenparameter (außer Wassergehalt) und ihre Verwendung im Modell kann außerdem grundsätzlich eine höhere Sicherheit bei der Interpretation von Daten aus den Radonmessungen gewährleistet werden.

Nachfolgend wird die eben skizzierte Vorgehensweise bei Radonkartierungen zur Lokalisierung bzw. zum Monitoring von NAPL-Kontaminationen beispielhaft für zwei kontaminierte und auf unterschiedliche Weise im Aufbau von einem unkontaminierten Referenzstandort abweichende Bodenprofile dargestellt. Ziel ist es, den NAPL-bedingten Rückgang der Radonkonzentration relativ zum unkontaminierten Profil zu ermitteln. Die Werte hier wurden in

Bodensäulen, die in das natürliche Erdreich eingebracht sind, ermittelt. Dadurch war es möglich, feldähnliche Bedingungen zu betrachten. Eine umfassende Beschreibung dieser Bodensäulen ist Schubert (1999) zu entnehmen. Als Boden wurde ein Sand/Tailings-Gemisch entsprechend Anlage Fd verwendet.

Tabelle 23 enthält die experimentell ermittelten Werte für die relevanten Bodenparameter in 5 Tiefen für ein nicht kontaminiertes und an der Oberfläche nicht versiegeltes Profil, das nachfolgend als Referenzprofil (R) bezeichnet wird.

**Tabelle 23:** Parameter des Referenzprofils (R).

Tiefe [m]	<sup>a</sup> C <sub>Rn</sub> [kBq m <sup>-3</sup> ]	<sup>b</sup> n [-]	<sup>c</sup> n <sub>w</sub> [-]	<sup>d</sup> C <sub>Ra</sub> [Bq kg <sup>-1</sup> ]	<sup>b</sup> ρ [kg m <sup>-3</sup> ]	<sup>e</sup> ε [-]	S <sub>NAPL</sub> [-]
0,35	882	0,45	0,04	250	1450	0,36	0,00
0,60	126	0,45	0,06	250	1450	0,36	0,00
1,00	189	0,45	0,07	250	1450	0,36	0,00
1,70	245	0,45	0,09	250	1450	0,36	0,00
2,10	266	0,45	0,12	250	1500	0,39	0,00

<sup>a</sup>gemessen, Probenahme und Messung wie in Kapitel 8.2 beschrieben

<sup>b</sup>durch bodenmechanische Untersuchung an einer Bodenprobe bestimmt und im Rahmen der Modellanpassung z. T. leicht verändert (vgl. Anhang Fc)

<sup>c</sup>gemessen mit einer TDR-Sonde je Tiefe (außer in 2,1 m, hier durch Modellanpassung angenähert)

<sup>d</sup>aus dem Mischungsverhältnis Sand/Tailings abgeleitet (vgl. Anlage Fd)

<sup>e</sup>durch Modellanpassung angenähert

Tabelle 24 enthält die ermittelten Parameterwerte in 5 Tiefen für ein kontaminiertes und an der Oberfläche nicht versiegeltes Profil mit heterogener C<sub>Ra</sub>-Verteilung, das nachfolgend mit KU bezeichnet wird. Für das kontaminierte Profil KU ist in 2,10 m Tiefe die Radiumkonzentration C<sub>Ra</sub> sehr viel geringer als im Boden darüber. Zudem liegt hier im Tiefenbereich 1,9 - 2,2 m eine partielle NAPL-Sättigung des Porenraumes vor. Ansonsten ist der Bodenaufbau weitgehend identisch mit dem am Referenzprofil R (vgl. Tabelle 23). Die Situation in dem kontaminierten Bodenprofil spiegelt somit einen Standort wieder, der neben der NAPL-Kontamination einen mit der Tiefe veränderten Parameter mit Einfluss auf die Radonkonzentration enthält, nämlich die Radiumkonzentration. Die Radonkonzentration in der Bodensäule wird also sowohl durch unterschiedliche Radiumkonzentrationen C<sub>Ra</sub> als auch durch einen Horizont mit deutlicher NAPL-Sättigung S<sub>NAPL</sub> beeinflusst. Der NAPL-bedingte Rückgang der Radonkonzentration C<sub>Rn</sub> im kontaminierten Profil kann somit durch eine Messung der Radonkonzentration allein nicht eindeutig bestimmt werden, da diese hier auch durch die abweichende Radiumkonzentration C<sub>Ra</sub> beeinflusst wird. Er kann aber mithilfe des numerischen Modells ermittelt werden. Das wird nachfolgend anhand von Abbildung 44 erläutert.

**Tabelle 24:** Parameter des kontaminierten Profils mit heterogener  $C_{Ra}$ -Verteilung (KU).

Tiefe [m]	<sup>a</sup> $C_{Rn}$ [kBq m <sup>-3</sup> ]	<sup>b</sup> $n$ [-]	<sup>c</sup> $n_w$ [-]	<sup>d</sup> $C_{Ra}$ [Bq kg <sup>-1</sup> ]	<sup>b</sup> $\rho$ [kg m <sup>-3</sup> ]	<sup>e</sup> $\varepsilon$ [-]	$S_{NAPL}$ [-]
0,35	60	0,45	0,02	250	1450	0,48	0,00
0,60	107	0,45	0,03	250	1480	0,48	0,00
1,00	153	0,45	0,03	250	1480	0,48	0,00
1,70	177	0,45	0,02	250	1480	0,48	0,00
2,10	169	0,43	0,02	5	1500	0,20	<sup>f</sup> 0,17

<sup>a</sup> gemessen, Probenahme und Messung wie in Kapitel 8.2 beschrieben

<sup>b</sup> durch bodenmechanische Untersuchung an einer Bodenprobe bestimmt und im Rahmen der Modellanpassung z. T. leicht verändert (vgl. Anhang Fc)

<sup>c</sup> gemessen mit einer TDR-Sonde je Tiefe (außer in 2,1 m, hier durch Modellanpassung angenähert)

<sup>d</sup> aus dem Mischungsverhältnis Sand/Tailings abgeleitet (vgl. Anlage Fd)

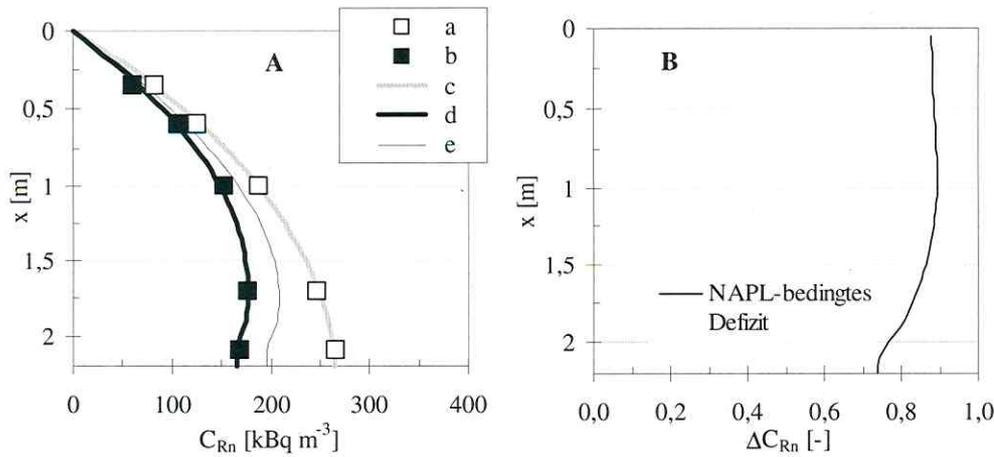
<sup>e</sup> durch Modellanpassung angenähert

<sup>f</sup> NAPL-Kontamination von 1,9 bis 2,2 m Tiefe

Hier sind zum einen die gemessenen Radonkonzentration dargestellt (Aa und Ab). Daraus ist zu entnehmen, dass ohne NAPL-Kontamination (Aa) die Konzentrationen höher sind als bei vorhandener Kontamination (Ab). Des Weiteren ist die jeweils mit dem numerischen Modell berechnete Tiefenverteilung der Radonkonzentration dargestellt (Ac und Ad). Die dazu verwendeten Werte für die Bodenparameter (vgl. oben) sind Anlage Be zu entnehmen. Sie basieren auf vor Ort gemessenen Werten, die im Rahmen der Simulation leicht verändert wurden, um eine bessere Übereinstimmung zwischen gemessenen und berechneten Rn-Konzentrationen zu erhalten. Im vorliegenden Fall war  $S_{NAPL}$  bekannt, hätte aber auch, wie oben beschrieben, mithilfe des Modells abgeschätzt werden können.

Im kontaminierten Profil KU kommt es zum einen durch die Kontamination und zum anderen durch die geringere Radiumkonzentration in 1,9 - 2,2 m Tiefe (bei sonst gleichen Bedingungen) zu einem Konzentrationsrückgang gegenüber dem unkontaminierten Referenzprofil R. Setzt man nun den für die kontaminierte Schicht im Profil KU ermittelten Wert für  $S_{NAPL}$  in die gleiche Schicht des Referenzprofils R ein und führt damit einen Simulationslauf durch, erhält man die in Abbildung 44 A mit e bezeichnete Kurve. Sie stellt das Radontiefenprofil des Referenzprofils R dar, wenn dieses an der gleichen Stelle und in gleicher Höhe kontaminiert wäre wie das Profil KU und repräsentiert damit den ausschließlich durch den NAPL-Einfluss veränderten Verlauf der Radonkonzentration im kontaminierten Profil KU.

Der Quotient aus den Radontiefenprofilen e und c in Abbildung 44 A ergibt die Tiefenverteilung des Defizitfaktors  $\Delta C$  in B. Der Defizitfaktor  $\Delta C$  nimmt in Richtung Geländeoberfläche zunächst zu, ändert sich dann aber ab einer Tiefe von 1,0 m bis zur Oberfläche kaum noch.



**Abbildung 44:** A) In Bodensäulen gemessene und numerisch berechnete Radonkonzentrationen ( $C_{Rn}$  [ $\text{kBq m}^{-3}$ ]) der Bodenluft ( $x$  = Tiefe).  
 a: gemessene Werte für das Referenzprofil (R),  
 b: gemessene Werte für das kontaminierte Profil mit heterogener  $C_{Ra}$ -Verteilung (KU),  
 c: numerisch berechnete Werte für das Referenzprofil (R),  
 d: numerisch berechnete Werte für das kontaminierte Profil mit heterogener  $C_{Ra}$ -Verteilung (KU),  
 e: numerisch berechnete Werte für das Referenzprofil (R), aber mit der gleichen  $S_{NAPL}$  in 1,9 - 2,2 m Tiefe wie im Profil KU.  
 B) Radondefizitfaktor  $\Delta C_{Rn}$  [-] als Quotient der Werte aus e und c aus A.

Direkt über der Kontamination ( $x = 1,9$  m) ist der NAPL-bedingte Rückgang der Radonkonzentration außerhalb des kontaminierten Bereichs mit etwa 20% ( $\Delta C_{Rn} = 0,8$ ) am größten. Dies unterstreicht die Empfehlung eines optimalen Probenahmehorizontes direkt über NAPL-Kontamination.

Die Zielstellung der Identifikation eines NAPL-bedingten Rückgangs der Radonkonzentration wurde mithilfe des numerischen Modells erreicht. Nachfolgend wird die oben erläuterte Vorgehensweise an einem weiteren Beispiel demonstriert.

Tabelle 25 enthält die ermittelten Parameterwerte in 5 Tiefen für ein kontaminiertes Profil mit den Eigenschaften wie in Tabelle 24, aber zusätzlicher Versiegelung (100%) der Oberfläche, im Folgenden KV genannt. Die Radonkonzentration der Bodensäule wird hier im Vergleich zum Referenzprofil R also durch drei Faktoren beeinflusst: Kontamination, heterogene Radiumkonzentration und Versiegelung. Der NAPL-bedingte Rückgang der Radonkonzentration kann somit durch eine Messung der Radonkonzentration allein wieder nicht eindeutig bestimmt werden.

**Tabelle 25:** Bodenparameter des kontaminierten Profils mit heterogener  $C_{Ra}$ -Verteilung und versiegelter Oberfläche (KV).

Tiefe [m]	<sup>a</sup> $C_{Rn}$ [kBq m <sup>-3</sup> ]	<sup>b</sup> n [-]	<sup>c</sup> $n_w$ [-]	<sup>d</sup> $C_{Ra}$ [Bq kg <sup>-1</sup> ]	<sup>b</sup> $\rho$ [kg m <sup>-3</sup> ]	<sup>e</sup> $\varepsilon$ [-]	$S_{NAPL}$ [-]
0,35	373	0,45	0,02	250	1450	0,48	0,00
0,60	378	0,45	0,03	250	1480	0,48	0,00
1,00	370	0,45	0,03	250	1480	0,48	0,00
1,70	345	0,45	0,02	250	1480	0,48	0,00
2,10	308	0,43	0,02	5	1500	0,20	<sup>f</sup> 0,17

<sup>a</sup> gemessen, Probenahme und Messung wie in Kapitel 8.2 beschrieben

<sup>b</sup> durch bodenmechanische Untersuchung an einer Bodenprobe bestimmt und im Rahmen der Modellanpassung z. T. leicht verändert (vgl. Anhang Fc)

<sup>c</sup> gemessen mit einer TDR-Sonde je Tiefe (außer in 2,1 m, hier durch Modellanpassung angenähert)

<sup>d</sup> aus dem Mischungsverhältnis Sand/Tailings abgeleitet (vgl. Anlage Fd)

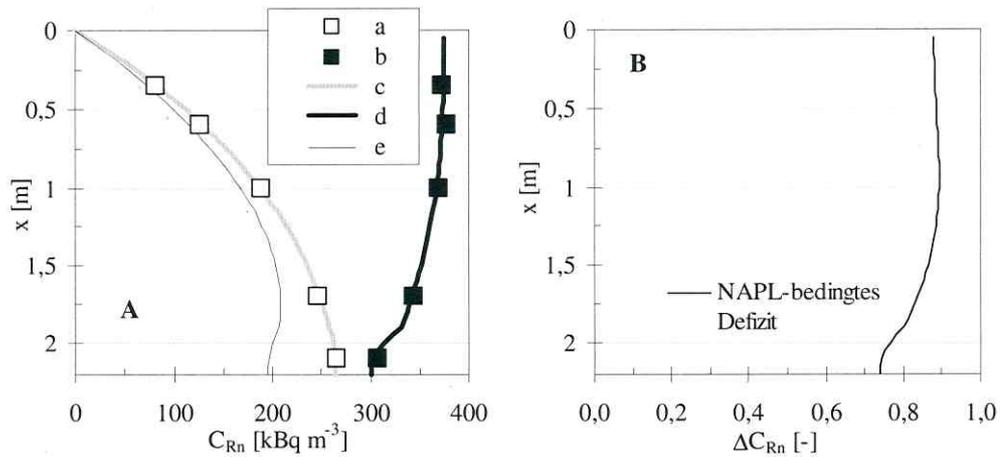
<sup>e</sup> durch Modellanpassung angenähert

<sup>f</sup> NAPL-Kontamination von 1,9 bis 2,2 m Tiefe

Abbildung 45 A zeigt, dass hier die gemessenen Rn-Konzentrationen im Profil R ohne Kontamination (Aa) niedriger sind als im Profil KV mit Kontamination aber Versiegelung der Oberfläche (Ab). Man würde somit anhand der Messwerte nicht zwangsläufig auf eine NAPL-Kontamination bei KV schließen, da eine solche in der Regel verringerte Rn-Konzentrationen zur Folge hat. Das wird hier aber durch die Versiegelung der Oberfläche überdeckt, die ein Entweichen von Radon aus der Bodensäule verhindert und somit trotz Kontamination zu höheren Konzentrationen am Profil KV als am Referenzprofil R führt.

Die Linien Ac und Ad zeigen die Tiefenverteilungen der Radonkonzentration, die mit dem numerischen Modell berechnet wurden. Es wurden wiederum gemessene Bodenparameter zu Grunde gelegt, die teilweise zwecks besserer Modellanpassung leicht verändert wurden (Anlage Hc). Eine Anpassung für das Profil KV war nur dann möglich, wenn in 1,9 - 2,2 m Tiefe eine NAPL-Kontamination in Höhe des in Tabelle 25 aufgeführten Wertes für  $S_{NAPL}$  eingesetzt wurde. Das belegt, dass man mit dem Modell eine vorliegende Kontamination erkennen und quantitativ einschätzen kann. Um die Linie Ae und anschließend die Tiefenverteilung des Defizitfaktors zu erhalten, wurde wieder verfahren wie für KU beschrieben. Da am Profil KV die gleiche Kontamination vorlag wie in der Säule KU, ist die Linie Ae und die Tiefenverteilung des Rn-Defizitfaktors (Abbildung 45B) für beide Fälle gleich.

Die oben genannten Ausführungen zeigen, dass der Einfluss von Parametern, die neben der NAPL einen Einfluss auf die Radonkonzentration der Bodenluft haben, durch Simulationsrechnungen mit dem entwickelten numerischen Modell berücksichtigt werden kann. Das ermöglicht eine sicherere Interpretation von Daten aus Radonmessungen.



**Abbildung 45:** A) In Bodensäulen gemessene und numerisch berechnete Radonkonzentrationen ( $C_{Rn}$  [ $\text{kBq m}^{-3}$ ]) der Bodenluft ( $x$  = Tiefe).  
a: gemessene Werte für das Referenzprofil (R),  
b: gemessene Werte für das kontaminierte Profil mit heterogener  $C_{Ra}$ -Verteilung und versiegelter Oberfläche (KV),  
c: numerisch berechnete Werte für das Referenzprofil (R),  
d: numerisch berechnete Werte für das kontaminierte Profil mit heterogener  $C_{Ra}$ -Verteilung und versiegelter Oberfläche (KV),  
e: numerisch berechnete Werte für das Referenzprofil (R), aber mit der gleichen  $S_{NAPL}$  in 1,9 - 2,2 m Tiefe wie im Profil KV.  
B) Radondefizitfaktor  $\Delta C_{Rn}$  [-] als Quotient der Werte aus e und c aus A.

Das Modell kann außerdem zum Erkennen einer Kontamination beitragen. Voraussetzung ist, dass ausreichend Informationen zum Bodenaufbau bzw. den Parametern, die diesen beschreiben, vorliegen. Bei Verwendung des Modells mit den entsprechenden Eingabeparametern reduziert sich der Aufwand für spätere Radonmessungen, z. B. im Rahmen eines Monitorings, erheblich. Die vorgelegten Ergebnisse unterstreichen weiterhin die Zweckmäßigkeit der Probenahme unmittelbar über der Kontamination, wo das Radondefizit im unkontaminierten Bereich am stärksten ist.

Die hier dargelegten Überlegungen zur Vorgehensweise basieren auf ersten Experimenten und Simulationen und sollten durch weitere Untersuchungen unter Feldbedingungen bekräftigt werden. Hierzu werden unter anderem weitere Experimente in den in Schubert (1999) beschriebenen Bodensäulen vorgeschlagen, die insbesondere den Einfluss unterschiedlicher Wassergehalte als zeitlich variable Einflussgrößen auf die Radonmesswerte beleuchten. Das hier entwickelte nicht-stationäre Modell ist für diese Experimente ein geeignetes Instrument zur Planung und Auswertung.

## **11 Abschließende Diskussion und Ausblick**

Ausgangspunkt der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen war die Frage, in welchem Maße die Messung der Radonkonzentration in der Bodenluft für die indirekte Quantifizierung von NAPL-Kontaminationen in der ungesättigten Bodenzone im Rahmen einer Lokalisierung bzw. eines Monitorings geeignet ist.

Mit Blick auf eine sichere Datenauswertung von Radonmessungen im Feld ist es zunächst nötig, die Eignung der Radonmethode für die vorliegenden Standortgegebenheiten genau einzuschätzen. Dabei sind zwei wesentliche Kriterien zu beachten.

Eine grundlegende Voraussetzung für eine erfolgreiche Nutzung des Radons zur Erfassung einer NAPL-Verunreinigung ist, dass die natürliche Radonhintergrundkonzentration in der Bodenluft im Bereich der Kontamination ausreichend hoch sein muss, um signifikante Unterschiede zu einem nachweislich unkontaminierten Bereich des untersuchten Standortes erkennbar machen zu können. Diese Unterschiede wurden in der vorliegenden Arbeit, wie auch in der Praxis üblich, nicht als absolute Radonkonzentration, sondern als relative Änderung der Radonkonzentration zu einem lokalen Hintergrundwert dargestellt. Da die Radon-Absorption in eine NAPL grundsätzlich eine Abnahme gegenüber der Hintergrundkonzentration bewirkt, wird diese Änderung als Radondefizit bezeichnet.

Standortfaktoren wie Lagerungsdichte, Porosität, Wassergehalt, Oberflächenversiegelung, Diffusionskoeffizient von Radon im Boden, Radiumkonzentration der Mineralmatrix oder Emanationskoeffizient, die neben der NAPL Einfluss auf die Radonkonzentration haben, können gegenüber der Hintergrundkonzentration auch höhere oder niedrigere Konzentrationen bewirken. Als zweite Voraussetzung für die Dateninterpretation ist daher zu nennen, dass die Einflüsse dieser Standortfaktoren quantitativ erfassbar bzw. mit hinreichender Genauigkeit abschätzbar sein müssen. So muss beispielsweise bei der Aufnahme eines Radonverteilungsmusters in der Bodenluft klar nachvollziehbar sein, inwieweit ein lokales Radondefizit gegebenenfalls nicht nur durch die NAPL, sondern durch eine lokale Änderung des Bodenaufbaus begründet ist.

In der Literatur wird die Radonmigration in der Bodenluft bzw. die Absorption von Radon in eine NAPL meist nur theoretisch besprochen und im Ergebnis dieser Betrachtungen auf die potenzielle Eignung von Radon als natürlich vorhandener Tracer hingewiesen. Zur Verifizierung der theoretischen Betrachtungen wurden einzelne Laborversuche mit meist einfachem experimentellen Aufbau durchgeführt. Darüber hinaus sind in der Literatur auch einige Feldexperimente dokumentiert, die Radon als natürlichen Tracer in der Bodenluft nutzen. Eine

systematische Berücksichtigung der o. g. Standortfaktoren bei der Dateninterpretation fehlte in diesem Zusammenhang jedoch bislang. Für die Auswertung der in Feldversuchen gewonnenen Daten standen dem Anwender somit keine geeigneten Vorgehensweisen zur Verfügung, um individuelle Gegebenheiten vor Ort zu berücksichtigen. Aus diesem Grund kam es zu Unsicherheiten bei der Dateninterpretation, die z. T. die Methode selbst in Frage stellten. Die Ergebnisse der bisher durchgeführten Feldexperimente sind zwar insgesamt sehr vielversprechend, die Einschränkungen bei der Auswertung ließen jedoch bisher keine Etablierung in der Praxis zu. Aufgabe der vorliegenden Arbeit war es daher, eine systematische Vorgehensweise zur Berücksichtigung der Standortfaktoren zu erarbeiten. Dadurch wurden die Möglichkeiten und Grenzen der Nutzung von Radon als natürlichem Tracer zur indirekten Quantifizierung von NAPL in der ungesättigten Bodenzone aufgezeigt.

Eine Möglichkeit, um den Einfluss verschiedener Standortfaktoren auf die Radonkonzentration quantitativ zu betrachten, bietet ein eindimensionales numerisches Transportmodell, das zu diesem Zweck im Rahmen dieser Arbeit entwickelt wurde. Eine eindimensionale Betrachtungsweise ist hier geeignet, da der Radontransport in der ungesättigten Bodenzone hauptsächlich eindimensional nach oben gerichtet stattfindet. Der Konzentrationsgradient an der Grenzfläche Boden/Atmosphäre treibt den für den Radontransport dominierenden vertikalen Transport durch Diffusion in Richtung Atmosphäre an. NAPL-Kontaminationen, die dem Grundwasser als Phase aufschwimmen sind zudem meist flächig in der ungesättigten Zone ausgebildet. In residualen NAPL-Sättigungsbereichen des Porenraumes löst sich Radon aus der Bodenluft in der NAPL.

Während bei homogenem Bodenaufbau mit der Tiefe unterschiedliche Radonkonzentrationen direkt auf unterschiedliche NAPL-Mengen im Boden rückführbar sind, können bei heterogenen Standorten neben der NAPL auch veränderte Standortfaktoren (vgl. oben) einen Einfluss auf die Radonkonzentration ausüben.

Zeitliche Veränderungen in der NAPL-Menge oder der NAPL-Zusammensetzung bzw. weiterer Parameter, spielen bei einer Probenahme, die typischerweise nur wenige Minuten dauert, keine Rolle. Die durch natürlichen NAPL-Abbau oder aktive Sanierung zu erwartende Veränderungen in den relevanten Parametern vollziehen sich meist über einen Zeitraum von mehreren Wochen bis Jahren und können somit im Rahmen der hier durchgeführten Interpretation eines Messergebnisses vernachlässigt werden. Im Fall einer zeitlich unabhängigen Betrachtung spricht man auch von stationären Bedingungen (steady state). Aus den o. g. Gründen würde hier ein solches numerisches Modell genügen. Um jedoch in Bodensäulen-

experimenten auch Zeitreihen der Radonkonzentration betrachten zu können, wurde im Rahmen dieser Arbeit ein nichtstationäres (non-steady state) Modell entwickelt. Die Berechnung des stationären Zustandes mit einem instationären Modell ist möglich. Sie erfolgt durch eine genügend lange Laufzeit, nach der sich das Ergebnis nicht mehr ändert, d. h. der Gleichgewichtszustand des betrachteten Systems erreicht wird. Da heutige Computer ausreichend Leistung bieten, um auch lange Zeitreihen mit geringen Zeitschritten, d. h. vielen Rechenschritten in kürzester Zeit (Sekunden) zu berechnen, ist der Zeitaufwand des nichtstationären Modells am Ende nur unbedeutend größer, als der des stationären. Das entwickelte eindimensionale Modell wurde in einem VisualBASIC Computercode erstellt und kann bedienerfreundlich benutzt werden.

Die Verifizierung des Modells erfolgte unter anderem anhand der analytischen Lösung der Transportgleichung für eine homogene Transportstrecke mit konstanten Randbedingungen. Des Weiteren erfolgte ein Vergleich der Modellergebnisse mit gemessenen Radontiefenprofilen aus Säulenexperimenten mit definierten Anfangs- und Randbedingungen. Dafür wurde innerhalb einer Bodensäule eine definierte Kontamination, wie sie prinzipiell auch unter Feldbedingungen möglich ist, eingebaut. Die Ergebnisse des analytischen Modells sowie die Radontiefenprofile der Bodensäulenexperimente konnten mit dem numerischen Modell nachvollzogen werden. Das Modell lieferte somit richtige Ergebnisse bei der Simulation von Radontransportprozessen im Boden. Es sei betont, dass in den Experimenten und Modellrechnungen mit konstanten Werten der Bodenparameter für einen homogenen Boden gearbeitet wurde. In Felduntersuchungen ist dagegen von einer natürlichen Variabilität verschiedener Parameterwerte einschließlich der Radonkonzentration der Bodenluft auszugehen. Mit dem numerischen Modell können inhomogene Verhältnisse jedoch berücksichtigt werden.

In Modellrechnungen wurden häufige Fragen beleuchtet, die bei Felduntersuchungen bzw. deren Auswertung entstehen. Dabei wurde ein breites Spektrum typischer Fälle abgedeckt. Die Berechnungen erfolgten für verschiedene Bodenarten jeweils für typische Werte der Dicke der NAPL-Schicht, der NAPL-Sättigung, der Mächtigkeit der Überdeckung der NAPL-Schicht und des Versiegelungsgrades der Oberfläche.

Anhand der Modellergebnisse konnte gezeigt werden, dass das Produkt von NAPL-Schichtdicke und NAPL-Sättigung, das die Höhe der Kontamination als einflussnehmenden Parameter zum Ausdruck bringt und hier als NAPL-Menge bezeichnet wird, die Radonkonzentration beeinflusst. Eine Differenzierung der jeweiligen Einflüsse der NAPL-Schichtdicke und

des NAPL-Gehaltes auf die Radonkonzentration ist in der Praxis nicht möglich. In der Literatur sind zwar Fälle dokumentiert, in denen eine Abschätzung der NAPL-Sättigung aufgrund von Radonmesswerten durchgeführt wurde, jedoch ist unter Berücksichtigung der vorliegenden Ergebnisse keine Abschätzung hinsichtlich der NAPL-Sättigung allein möglich (außer wenn die Dicke der NAPL-haltigen Schicht bekannt ist). Dies ist auch ausgeschlossen, wenn die Probenahme in der NAPL-kontaminierten Schicht stattfindet. Die stärkste NAPL-bedingte Abnahme der Radonkonzentration ist zwar immer innerhalb der NAPL-haltigen Schicht zu verzeichnen, jedoch ist auch hier der NAPL-Sättigungsgrad in Verbindung mit der jeweiligen Dicke der NAPL-Schicht, also die NAPL-Menge, ausschlaggebend für den Messwert. (In mächtigeren Schichten mit homogener NAPL-Sättigung kann sich, unabhängig von den Konzentrationsgradienten an den Rändern der Schicht, in der Mitte eine Gleichgewichtskonzentration einstellen, die unabhängig von der Dicke einen Rückschluss auf  $S_{\text{NAPL}}$  zulassen würde. Dieser eher theoretisch anzunehmende Fall kann unter realen Bedingungen nicht vorausgesetzt werden.)

Gegenüber der Konzentration des angrenzenden NAPL-freien Bodens kommt es in der NAPL-Schicht kleinräumig zu einer sehr starken (NAPL-bedingten) Verringerung der Radonkonzentration der Bodenluft. Über der jeweiligen NAPL-Schicht, also im unbelasteten Boden, treten auf kurze Distanzen keine so starken Veränderungen auf wie in der NAPL-Schicht, wobei direkt über der NAPL-Schicht das Konzentrationsdefizit im NAPL-freien Boden am stärksten ist. In Abhängigkeit vom Diffusionskoeffizienten von Radon im Boden nimmt das Defizit in Richtung der Oberfläche wieder ab. Als optimaler Messhorizont lässt sich somit der NAPL-freie Bereich, direkt über der NAPL-haltigen Schicht ableiten. Anhand einer Sensitivitätsanalyse konnte gezeigt werden, dass der Einfluss der NAPL gegenüber den Einflüssen anderer Parameter hier am größten ist. Zudem ist an dieser Stelle der Einfluss einer möglichen Versiegelung der Oberfläche am geringsten. Eine NAPL-Kontamination bewirkt in diesem Horizont letztlich den stärksten Rückgang der Radonkonzentration. Eine Messung der Radonkonzentration im kontaminierten Bereich wird nicht empfohlen, da hier kleinräumig starke Unterschiede der Radonkonzentrationen auftreten können, die reproduzierbare Messungen verhindern würden.

Zusammenfassend können für die Messung der Radonkonzentration zur Detektion bzw. zum Monitoring von NAPL-Kontaminationen in der ungesättigten Zone folgende Schlussfolgerungen formuliert werden:

- Grundsätzlich kann das Radondefizit für die Interpretation von NAPL-Kontaminationen im Rahmen einer Lokalisierung und eines Monitorings herangezogen werden, wenn die NAPL-Kontamination zu einem Rückgang der Radonkonzentration führt, der größer ist, als die natürliche Variabilität der Radonkonzentration.
- Die Löslichkeiten des Radons in typischen, bei realen Schadensfällen auftretenden NAPL-Gemischen (Benzin, Diesel, Petroleum) sind ähnlich und lassen aus diesem Grund keine Unterscheidung dieser Gemische bei einer Radonkartierung zu.
- Eine Differenzierung des Einflusses von NAPL-Schichtdicke und NAPL-Gehalt auf die Radonkonzentration ist in der Praxis nicht möglich. Die Höhe der Kontamination als einflussnehmender Parameter wird durch das Produkt von NAPL-Schichtdicke und NAPL-Gehalt bestimmt, das hier als NAPL-Menge bezeichnet wird.
- Der Einfluss verschiedener Bodenparameter, wie z. B. der Porosität, auf die Radonkonzentration der Bodenluft ist abhängig von der Bodentiefe und nimmt mit zunehmender Tiefe ab. Die Änderung verschiedener Bodenparameter um den gleichen relativen Betrag führt zudem zu unterschiedlichen relativen Änderungsbeträgen der Radonkonzentration. Das Verhältnis zwischen der Änderung eines Parameters und der Änderung der Radonkonzentration wird als Sensitivität bezeichnet. Der Parameter NAPL-Sättigung zeigte im Vergleich zu anderen Bodenparametern eine relativ geringe Sensitivität, d. h. die Radonkonzentration wird durch diesen Parameter relativ wenig beeinflusst.
- Im unkontaminierten ungesättigten Bereich direkt über der Kontamination ist der Einfluss der NAPL-Kontamination auf den Messwert am größten und der Einfluss von Variationen der anderen Parameter demgegenüber am geringsten. Eine Bodenluft-Probenahme sollte daher dort stattfinden. Nur so sind reproduzierbare Messungen möglich.
- In der kontaminierten Schicht ist der Einfluss der NAPL gegenüber den Einflüssen anderer Parameter, einschließlich der Versiegelung der Oberfläche, auf die Radonkonzentration der Bodenluft zwar am größten, eine repräsentative Bodenluft-Probenahme ist jedoch nur schwer möglich, da im kontaminierten Bereich auf kurze Distanzen starke Veränderungen der Radonkonzentration auftreten, die eine solche Probenahme verhindern.
- Für eine statistisch sichere Identifikation von unterschiedlichen Radonkonzentrationen in der Bodenluft sollte bei einem Messtakt von 1 min mit dem verwendeten mobilen Messgerät (Alpha-GUARD) eine Messzeit von etwa 40 min pro Bodenluftprobe eingehalten werden.

- Es wurde ein numerisches Modell für den eindimensionalen Radontransport im Boden entwickelt und in ein VisualBASIC-Computerprogramm überführt. Damit kann Radontransport simuliert und die Einflüsse unterschiedlicher Bodenparameterwerte auf den Messwert der Radonkonzentrationen in NAPL-kontaminierten Böden berücksichtigt werden. Es wurde eine entsprechende Vorgehensweise vorgeschlagen.

Die in dieser Arbeit erreichten Ergebnisse lassen einen positiven Schluss hinsichtlich der Eignung der Radonkonzentration der Bodenluft zur Lokalisierung und zum Monitoring von NAPL-Kontaminationen in der ungesättigten Bodenzone zu. Um die vorgeschlagene Vorgehensweise, die zunächst nur von einem modellhaft aufgebauten Boden ausgeht, auch für natürliche Böden anwenden zu können, sind weitere Untersuchungen in folgenden Punkten notwendig:

- In den Modellrechnungen wurden hier nur über die Tiefe konstante Wassergehalte untersucht; in realen Böden verteilt sich das Porenwasser entsprechend der Saugspannung als Funktion der Tiefe. In weiteren Modellrechnungen muss daher der Einfluss mit der Tiefe variierender Wassergehalte betrachtet werden. Die theoretischen Erkenntnisse müssen dann anhand von gemessenen Daten überprüft werden (siehe nächster Punkt).
- Um die vorgeschlagenen Modellrechnungen für reale Böden zu verifizieren, sollten zunächst Experimente in Bodensäulen nach Schubert (1999) durchgeführt werden. In diesen kann der Radontransport im Boden in Abhängigkeit vom Wasser- bzw. NAPL-Gehalt an realen Bodenkörpern (Monolithen) unter Feldbedingungen untersucht werden. Darauf aufbauend werden für verschiedene Böden Feldexperimente vorgeschlagen. Dabei bietet es sich an, Monitoringmaßnahmen von NAPL-Kontaminationen bzw. -Sanierungen zu begleiten.
- Des Weiteren wird vorgeschlagen, für die Modellierung des Radontransportes und zur Verifizierung von Literaturdaten den Diffusionskoeffizienten von Radon in verschiedenen Böden zu untersuchen und gegebenenfalls eine verbesserte empirische Korrelationsfunktion zu dessen Berechnung zu entwickeln.

## 12 Literatur

- Andrews JN, Wood DF (1972) Mechanism of radon release in rock matrices and entry into groundwaters, *Transactions of the Institution of Mining and Metallurgy* B81, 198-209.
- ARAL (2000) Info-Zapfsäule, Typische Bandbreite von Kennwerten marktüblicher Markenkraftstoffe, ARAL AG; [<http://www.aral.de/kraft/index0.htm>]; Zugriff 15.02.2000.
- Ball BC (1981) Modeling of soil pores as tubes using gas permeabilities, gas diffusivities and water release, *Journal of Soil Science* 32, 465–481.
- Barton AFM (1991) CRC handbook of solubility parameters and other cohesion parameters, 2nd edition, CRC Press, Boca Raton Florida.
- Battino R (1978) in Clever HL (Hrsg.) (1979)
- Bear J (1972) *Dynamics of fluids in porous media*, Elsevier, New York.
- Bear J (1979) *Hydraulics of groundwater*, McGraw-Hill Series in Water Resources and Environmental Engineering, New York.
- Bird RB, Stewart WE, Lightfoot EN (1960) *Transport phenomena*, Wiley, New York.
- Bürkin (2006) Genitron Instruments GmbH, Frankfurt/M, persönliche Mitteilung.
- Busch K-F, Luckner L, Tiemer K (1993) *Geohydraulik*, 3. neubearbeitete Auflage, Borntraeger, Berlin.
- Clever HL (Hrsg.) (1979) *Solubility data series, Volume 2: Krypton, Xenon and Radon - gas solubilities*, Pergamon Press, Oxford.
- Cothem CR (1987) Estimating the health risks of radon in drinking water, *Journal of the American Water Works Association*, 79, 153-158.
- Crank J, Nicolson P (1947) A practical method for numerical evaluation of solutions of partial differential equations of the heat-conduction type, *Mathematical Proceedings of the Cambridge Philosophical Society* 43, 50-67.
- Currie JA (1960a) Gaseous diffusion in porous media, part 1: a non-steady state method, *British Journal of Applied Physics* 11, 314-317.
- Currie JA (1960b) Gaseous diffusion in porous media, part 2: dry granular materials, *British Journal of Applied Physics* 11, 318–324.

- Currie JA (1961) Gaseous diffusion in porous media, part 3 - wet granular materials. *British Journal of Applied Physics* 12, 275 – 281.
- Currie JA (1965) Diffusion within soil microstructure - a structural parameter for soils. *European Journal of Soil Science* 16, 279–289.
- Doerfel K (1990) *Statistik in der analytischen Chemie*, 5. Auflage, Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, Leipzig.
- Freeze RA und Cherry JA (1979) *Groundwater*, Prentice Hall, Englewood Cliffs.
- Freyer K, Treutler HC, Dehnert J, Nestler W (1997) Sampling and measurement of radon-222 in water, *Environmental Radioactivity* 37, 327-337.
- Gast H, Stolz W (1982) Beziehungen zwischen meteorologischen Bedingungen und der Radonkonzentration von Bodenluft, *Isotopenpraxis* 18, 250-253.
- Gelhar LW, Welty C, Rehfeldt KR (1992) A critical review of data on field-scale dispersion in aquifers, *Water Resources Research* 28, 1955-1974.
- Genrich V (1999) Alpha-Guard PQ 2000 / MC 50 multiphase radon monitor – characterisation of its physical properties under normal climatic and severe environmental conditions, Genitron Instruments GmbH, Frankfurt/M..
- Hildebrand J (1929) Solubility, XII. Regular solutions, *Journal of the American Chemical Society*, 66-80.
- Hillel D (1998) *Environmental soil physics*, Academic Press, San Diego.
- Hirst W, Harrison GE (1939) The diffusion of radon gas mixtures, *Proceedings of the Royal Society of London* 14, 573-586.
- Höhener P, Surbeck H (2004) Radon-222 as a tracer for non-aqueous phase liquids in the vadose zone, *Vadose Zone Journal* 3, 1276-1285.
- Hoffmann B (2004) *Experimentelle und theoretische Untersuchungen über die Emanation und Migration von Radon in Baustoffen und Bauwerksabdichtungen*, Dissertation, Naturwissenschaftlich-Technische Fakultäten der Universität des Saarlandes.
- Hunkeler D, Hoehn E, Höhener P, Zeyer J (1997) Radon-222 as a partitioning tracer to detect diesel fuel contamination in aquifers: laboratory study and field observations, *Environmental Science and Technology* 31, 3180-3187.

- Lai SH, Tiedje JM, Erickson AE (1976) In situ measurement of gas diffusion coefficient in soils, *Soil Science Society of America Journal* 40, 3-6.
- Lau S, Schubert M, Meißner R (2004) Ein neues Verfahren zur Lokalisierung von Bodenkontaminationen durch Mineralöle, *Wasserwirtschaft* 4, 27-30.
- Lewis C, Hopke PK, Stukel J (1987) Solubility of radon in selected perfluorocarbon compounds and water, *Industrial Engineering and Chemical Research* 26, 356-359.
- Lurie (1910) in Clever HL (Hrsg.) (1979)
- Marshall TJ (1959) The diffusion of gases through porous media, *Journal of Soil Science* 10, 79-82.
- Megumi K, Mamuro T (1974) Emanation and exhalation of radon and thoron gases from soil particles, *Journal of Geophysical Research* 79, 3357-3360.
- Megumi K, Mamuro T (1977) Concentration of uranium series nuclides in soil particles in relation to their size, *Journal of Geophysical Research* 82, 353-356.
- Mercer JW, Cohen RM (1990) A review of immiscible fluids in the subsurface: properties, models, characterization and remediation, *Journal of Contaminant Hydrology* 6, 107-163.
- Merck KgaA (2000) Persönliche Mitteilung.
- Millington RJ (1959) Gas diffusion in porous media, *Science* 130, 100-102.
- Nazaroff WW (1992) Radon transport from soil to air, *Reviews of Geophysics* 30, 137-160.
- Paschke A, Ptáček J, Bittrich HJ (1985) Diffusionskoeffizienten in einigen binären, flüssigen Nichteletrolytmischungen, *Zeitschrift für physikalische Chemie* 266, Leipzig, 844-848.
- Penman HL (1940) Gas and vapor movement in soil: The diffusion of vapors through porous solids, *The Journal of Agricultural Science* 30, 437-462.
- Prausnitz JM, und Shair FH (1961) A thermodynamic correlation of gas solubilities, *American Institute of Chemical Engineers Journal* 7, 682-687.
- Prausnitz JM, Lichtenthaler RE, de Azevedo EG (1986) *Molecular thermodynamics of fluid phase equilibria*, 2nd edition, Prentice Hall, Englewood Cliffs.

- Purtscheller F, Pirchel T, Sieder G, Stingl V, Tessadri T, Brunner P, Ennemoser O, Schneider P (1995) Radon emanation from giant landslides of Koefels (Tyrol, Austria) and Langtang Himal (Nepal), *Environmental Geology* 26, 32-38.
- Rehs B (1999) Der Einfluss meteorologischer Parameter auf den Radontransport im Boden, Dissertation, Mathematisch-Naturwissenschaftliche Fakultäten der Georg-August-Universität Göttingen.
- Richter J und Anlauf R (1988) Modelle für Prozesse im Boden: Programme und Übungen, Enke Verlag, Stuttgart.
- Rösler HJ (1984) Lehrbuch der Mineralogie, Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, Leipzig.
- Rogers VC, Nielson KK, Rich DC, Sandquist GM, Mauch ML (1982) Radon attenuation with earthen covers, Annual Report to the US Department of Energy on UMTRAP Technology Development, RAE-33-14, Rogers and Associates Engineering, Salt Lake City, Utah.
- Rogers VC und Nielson KK (1991) Correlations for predicting air permeabilities and radon-diffusion coefficients in soils, *Health Physics* 61, 225-230.
- Sachs L (1992) Angewandte Statistik, 7. Auflage, Springer Verlag, Berlin.
- Sallam A, Jury WA, Letey J (1984) Measurement of the gas diffusion coefficient under relatively low air-filled porosity, *Soil Science Society of America Journal* 48, 3-6.
- Sasaki T, Gunji Y, Okuda T (2004) Theoretical study of high radon emanation, *Journal of Nuclear Science and Technology* 42, 242-249 (February 2005).
- Scatchard G (1931) Equilibria in non-electrolyte solutions in relation to vapor pressure and densities of the components, *Chemical Review* 8, 321-333.
- Schubert M (1999) Der Gas-Migrations-Simulator, *Umweltmagazin* 10, 36.
- Schubert M (2001) Erfassung von Untergrundkontaminationen durch Non-Aqueous Phase-Liquids (NAPLs) mithilfe der Bestimmung des Radongehalts der Bodenluft. Dissertation, Mathematisch-Naturwissenschaftliche Fakultäten der Georg-August-Universität Göttingen.
- Schubert M, Schulz H (2002) Diurnal radon variations in the upper soil layers and at the soil-air interface related to meteorological parameters, *Health Physics* 83, 91-96.

- Schubert M (2003) Helmholtz-Zentrum für Umweltforschung – UFZ Leipzig, persönliche Mitteilung.
- Schubert M, Paschke A, Lau S, Geyer W, Knöller K (2007) Radon as a naturally occurring tracer for the assessment of residual NAPL contamination of aquifers, *Environmental Pollution*.
- Schubert M (2006) Radon in der Bodenluft und Grundwasser als natürlicher Tracer zur Beantwortung umweltrelevanter und geowissenschaftlicher Fragestellungen Habilitationsschrift, Universität Leipzig, Leipzig.
- Schütz M (1994) Der Einfluss meteorologischer und geogener Parameter auf die Radonmigration im Erdboden, Dissertation, Naturwissenschaftlich-Technische Fakultäten der Universität des Saarlandes, Saarbrücken.
- Schumann RR, Gundersen LCS (1996) Geologic and climatic controls on the radon emanation coefficient, *Environmental International* 22, 439-446.
- Serdyokova AS, Kapitanov YT (1978) Radon isotopes and short lived products and their disintegration in nature, US Department of the Interior, Bureau of Mines, Washington D.C.
- Stein L (1983) The chemistry of radon, *Radiochimica Acta* 32, 163-71.
- Steinberg , Manowitz B (1959) Recovery of fission product noble gases, *Industrial Engineering and Chemical Research* 51, 47-50.
- Stranden E, Kolstad AK, Lind B (1984) Radon exhalation: moisture and temperature dependence, *Health Physics* 47, 480-484.
- StrlSchV Strahlenschutzverordnung, Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen vom 20. Juli 2001.
- Tanner AB (1980) Radon migration in the ground: a supplementary review, in: Proceedings of the International Symposium on the Natural Radiation Environment; TF Gesell, WM Lowder (Hrsg.), US Department of Commerce, National Technical Information Service, Springfield, Virginia.
- Thomas LH (1949) Elliptic problems in linear difference equations over a network, Watson Science Computer Laboratory Report, Columbia University, New York.
- Treutler HC (2002) Helmholtz-Zentrum für Umweltforschung – UFZ Leipzig, persönliche Mitteilung.

- Uchdorf W (1990) Experimentelle Untersuchungen zur diffusiven und konvektiven Radonmigration im ariden Klimabereich, Dissertation, Mathematische und Naturwissenschaftliche Fakultät der Technischen Universität Berlin.
- van Bavel CHM (1952) Gaseous diffusion and porosity in porous media, *Soil Science* 73, 91-104.
- van der Spoel WH, van der Graaf ER, de Meijer RJ (1999) Diffusive transport of radon in a column of moisturized sand, *Health Physics* 77, 163-177.
- Wang HF, Anderson MP (1980) Introduction to groundwater modelling: finite difference and finite element methods, Academic Press, London.
- Weigel F (1978) Radon, *Chemiker-Zeitung* 102, 287-299.
- Wesseling J (1962) Some solutions of the steady state diffusion of carbon dioxide through soils, *Netherlands Journal of Agricultural Science* 10, 109-117.
- Wilkening M (1990) Radon in the environment. *Studies in Environmental Science* 40, Elsevier, Amsterdam.
- Yaws CL (1999) *Chemical Properties Handbook: physical, thermodynamic, environmental, transport, safety, and health related properties for organic and inorganic chemicals*, McGraw-Hill, New York.

### 13 Abkürzungsverzeichnis

Parameter	Bedeutung	Einheit
A	Aktivität	[Bq]
A	Fließquerschnitt (in Kapitel 6)	[m <sup>2</sup> ]
A <sub>Ra</sub>	Radiumaktivität	[Bq]
A <sub>Rn</sub>	Radonaktivität	[Bq]
BTEX	Benzol, Toluol, Etylbenzol, Xylole	/
B	empirische Konstante	[-]
C	Radonkonzentration	[Bq m <sup>-3</sup> ]
C <sub>F</sub>	Stoffkonzentration in der Phase F	[kg m <sup>-3</sup> ]
C <sub>FL</sub> <sup>∞</sup>	Radongleichgewichtskonzentration in der Flüssigkeit	[Bq m <sup>-3</sup> ]
C <sub>i</sub>	Konzentration am Knoten i	[Bq m <sup>-3</sup> ]
C <sub>inf</sub>	Konzentration am unteren Rand einer Bodensäule	[Bq m <sup>-3</sup> ]
C <sub>L</sub>	Radonkonzentration in der Porenluft	[Bq m <sup>-3</sup> ]
C <sub>L</sub> <sup>∞</sup>	Radongleichgewichtskonzentration in der Porenluft	[Bq m <sup>-3</sup> ]
C <sub>korrigiert</sub>	korrigierter Messwert von C <sub>L</sub>	[Bq m <sup>-3</sup> ]
C <sub>L1</sub>	Radonkonzentration der Luft in Schritt 1 im DE	[Bq m <sup>-3</sup> ]
C <sub>L2</sub>	Radonkonzentration der Luft in Schritt 2 im DE	[Bq m <sup>-3</sup> ]
C <sub>N</sub>	Konzentration am Knoten N	[Bq m <sup>-3</sup> ]
C <sub>NAPL</sub>	Radonkonzentration in der NAPL	[Bq m <sup>-3</sup> ]
C <sub>Ra</sub>	Radiumaktivität der Mineralmatrix	[Bq kg <sup>-1</sup> ]
C <sub>Szin</sub>	szintillatorspezifischer Verteilungskoeffizient	[-]
C <sub>t</sub>	Radonkonzentration zum Zeitpunkt t	[Bq m <sup>-3</sup> ]
C <sub>w0</sub>	Radonkonzentration im als Radonquellmaterial verwendeten Wasser	[Bq l <sup>-1</sup> ]
C <sub>w1</sub>	Radonkonzentration des Wassers in Schritt 1	[Bq l <sup>-1</sup> ]
C <sub>wX</sub>	Radonkonzentration des Wassers im Verteilungsgleichgewicht mit der NAPL X	[Bq l <sup>-1</sup> ]
C(P)	Konzentration als Ergebnis des Parameterwertes P	[Bq l <sup>-1</sup> ]
C(P+ΔP)	Konzentration als Ergebnis des Parameterwertes P+ΔP	[Bq l <sup>-1</sup> ]
C(P-ΔP)	Konzentration als Ergebnis des Parameterwertes P-ΔP	[Bq l <sup>-1</sup> ]
C(x)	Radonkonzentration der Bodenluft in der Tiefe x	[Bq m <sup>-3</sup> ]
ΔC(x)	tiefenabhängiger Radondefizitfaktor	[-]
CPM	Counts per minute minus Hintergrundwert	[cpm]
c	Dichte der Kohäsionsenergie	[J m <sup>-3</sup> ]
c <sub>1</sub>	Dichte der Kohäsionsenergie von Stoff 1	[J m <sup>-3</sup> ]
c <sub>2</sub>	Dichte der Kohäsionsenergie von Stoff 2	[J m <sup>-3</sup> ]
c <sub>1,2</sub>	geometrisches Mittel der Energiedichte der Stoffe 1 und 2	[J m <sup>-3</sup> ]
D	Diffusions-Dispersionskoeffizient	[m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> ]
D <sub>Disp,F</sub>	longitudinaler Dispersionskoeffizient der Phase F	[m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> ]
D <sub>Disp,L</sub>	longitudinaler Dispersionskoeffizient in der Luftphase	[m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> ]
D <sub>Disp,NAPL</sub>	longitudinaler Dispersionskoeffizient in der NAPL-Phase	[m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> ]
D <sub>Disp,W</sub>	longitudinaler Dispersionskoeffizient in der Wasserphase	[m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> ]
D <sub>e</sub>	effektiver Diffusionskoeffizient eines Stoffes	[m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> ]
D <sub>e,F</sub>	effektiver Diffusionskoeffizient eines Stoffes in der Phase F	[m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> ]
D <sub>e,L</sub>	effektiver Diffusionskoeffizient eines Stoffes in der Bodenluft	[m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> ]
D <sub>e,NAPL</sub>	effektiver Diffusionskoeffizient in der NAPL	[m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> ]
D <sub>e,W</sub>	effektiver Diffusionskoeffizient in Wasser	[m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> ]
D <sub>h</sub>	hydrodynamischer Dispersionskoeffizient	[m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> ]
D <sub>L</sub>	Diffusionskoeffizient in Luft	[m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> ]
D <sub>W</sub>	Diffusionskoeffizient in Wasser	[m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> ]
DE	Durchströmungsexperiment	/
DNAPL	dense non-aqueous phase liquid	/
d	Klassenbreite	
d <sub>i</sub>	Abstand zwischen zwei Knotenpunkten	[cm]

Parameter	Bedeutung	Einheit
E	Zählereffizienz	[cpm dpm <sup>-1</sup> ]
f	Freiheitsgrad	/
g	stoffspezifische Konstante	/
h	Häufigkeit	/
h <sub>a</sub>	absolute Häufigkeit	/
h <sub>t</sub>	theoretische Häufigkeit	/
ΔH <sub>v</sub>	molare Verdampfungsenthalpie des Lösungsmittels	[J mol <sup>-1</sup> ]
I	Zerfallsrate	[Bq m <sup>-3</sup> s <sup>-1</sup> ]
J	Stoffflussdichte	[kg m <sup>-2</sup> s <sup>-1</sup> ]
J <sub>in</sub>	Stoffflussdichte in das SV hinein	[kg m <sup>-2</sup> s <sup>-1</sup> ]
J <sub>out</sub>	Stoffflussdichte aus dem SV heraus	[kg m <sup>-2</sup> s <sup>-1</sup> ]
J <sub>h</sub>	hydrodynamische Stoffflussdichte	[kg m <sup>-2</sup> s <sup>-1</sup> ]
J <sub>a</sub>	advective Stoffflussdichte	[kg m <sup>-2</sup> s <sup>-1</sup> ]
J <sub>a,F</sub>	advective Stoffflussdichte in der Phase F	[kg m <sup>-2</sup> s <sup>-1</sup> ]
J <sub>Diff,F</sub>	diffusive Stoffflussdichte in der Phase F	[kg m <sup>-2</sup> s <sup>-1</sup> ]
J <sub>Disp,F</sub>	dispersive Stoffflussdichte in der Phase F	[kg m <sup>-2</sup> s <sup>-1</sup> ]
K	Verteilungskoeffizient	[-]
K <sub>Benzin/L</sub>	Radon-Verteilungskoeffizient zwischen Benzin und Luft	[-]
K <sub>Diesel/L</sub>	Radon-Verteilungskoeffizient zwischen Diesel und Luft	[-]
K <sub>FL/L</sub>	Radon-Verteilungskoeffizient zwischen Flüssigkeit und Luft	[-]
K <sub>NAPL/L</sub>	Radon-Verteilungskoeffizient zwischen NAPL und Luft	[-]
K <sub>NAPL/W</sub>	Radon-Verteilungskoeffizient zwischen NAPL und Wasser	[-]
K <sub>Petroleum/L</sub>	Radon-Verteilungskoeffizient zwischen Petroleum und Luft	[-]
K <sub>Szin/W</sub>	Radon-Verteilungskoeffizient zwischen Szintillator und Luft	[-]
K <sub>Toluol/L</sub>	Radon-Verteilungskoeffizient zwischen Toluol und Luft	[-]
K <sub>W/L</sub>	Radon-Verteilungskoeffizient zwischen Wasser und Luft	[-]
KF	Korrekturfaktor	[-]
KF1	Korrekturfaktor für den Zerfall während einer Messung	[-]
KF2	Umrechnungsfaktor von pCi l <sup>-1</sup> in Bq m <sup>-3</sup>	[-]
KF3	Anzahl der Alpha-Emitter: Radon, Thoron, Actinon	[-]
KF4	Umrechnungsfaktor von dpm zu pCi	[-]
KF5	Korrekturfaktor für den Zerfall zwischen Probenahme und Start des Intervalls	[-]
k	Leitfähigkeit des Mediums für das Fluid	[m s <sup>-1</sup> ]
k <sub>F</sub>	Leitfähigkeit des Mediums für die Phase F	[m s <sup>-1</sup> ]
L	Fließstrecke	[m]
LNAPL	light non-aqueous phase liquid	/
LHKW	leichtflüchtige halogenierte Kohlenwasserstoffe	/
m	empirische Konstante	/
N	Anzahl der radioaktiven Atome,	/
N	Anzahl der Kompartimente (in Kapitel 7)	/
N <sub>0</sub>	Anzahl der radioaktiven Atome zum Zeitpunkt t = 0	/
N <sup>e</sup>	Anzahl der emanierenden Radonotope	/
N <sup>p</sup>	Anzahl der produzierten Radonotope	/
N <sub>Ra</sub>	Anzahl der Radiumotope	/
N <sub>Rn</sub>	Anzahl der Radonotope	/
N <sub>t</sub>	Anzahl der radioaktiven Atome zum Zeitpunkt t	/
NAPL	non-aqueous phase liquid	/
n	Porosität	[m <sup>3</sup> <sub>Poren</sub> m <sup>-3</sup> <sub>Medium</sub> ]
n	Zahl aller Messungen (in Kapitel 5)	/
n <sub>c</sub>	scheinbare Porosität	[-]
n <sub>F</sub>	mit einer Fluidphase F gefüllte Porosität	[m <sup>3</sup> <sub>Fluid</sub> m <sup>-3</sup> <sub>Medium</sub> ]

Parameter	Bedeutung	Einheit
$n_{FL}$	flüssigkeitsgefüllte Porosität	$[m^3_{Flüssigkeit} m^{-3}_{Medium}]$
$n_L$	luftgefüllte Porosität	$[m^3_{Luft} m^{-3}_{Medium}]$
$n_{NAPL}$	NAPL-gefüllte Porosität	$[m^3_{NAPL} m^{-3}_{Medium}]$
P	Wahrscheinlichkeit bei zweiseitiger Fragestellung (in Kapitel 5) Luftdruck in (Kapitel 6.2.3) kapillare Druckhöhe (in Kapitel 9.1) Parameterwert (in Kapitel 9.4)	[-], [%] [Pa] [m]
$\bar{P}$	Wahrscheinlichkeit bei einseitiger Fragestellung	[-], [%]
Q	Fluidfluss	$[m^3 s^{-1}]$
q	Fluidflux	$[m^3 s^{-1} m^{-2} = m s^{-1}]$
$q_F$	Fluidflux der Phase F	$[m^3 s^{-1} m^{-2} = m s^{-1}]$
R	Retardationskoeffizient (in Kapitel 6) Gaskonstante in [20]	$[J K^{-1} mol^{-1}]$ [-]
S	Porensättigung	$[m^3 m^{-3}]$
$S_W$	Wasser-Sättigungsgrad	$[m^3_W m^{-3}_{Poren}]$
$S_{NAPL}$	NAPL-Sättigungsgrad	$[m^3_{NAPL} m^{-3}_{Poren}]$
$S_F$	Sättigung der Fluidphase	$[m^3_{Fluid} m^{-3}_{Poren}]$
$S_{FL}$	Flüssigkeits-Sättigung	$[m^3_{Flüssigkeit} m^{-3}_{Poren}]$
$S_L$	Luft-Sättigung	$[m^3_{Luft} m^{-3}_{Poren}]$
$S_{Oliv}$	Olivenöl-Sättigung	$[m^3_{Oliv} m^{-3}_{Poren}]$
SK(P)	Sensitivitätskoeffizient des Parameterwertes P	[-]
STP	Koeffizient bei Standardbedingungen (P = 101,3 kPa, T = 273,15 K) /	
s	Standardabweichung	$[Bq m^{-3}]$
$s_{xi}$	Unsicherheit beim AlphaGUARD	$[Bq m^{-3}]$
T	Temperatur	[K] [°C]
t	Zeit	[s] [min] [h] [d] [a]
$t_{1/2}$	Halbwertszeit (für Rn: 3,8235 d)	[s]
u	Anzahl der Phasen in [9] Abzissenwert der Normalverteilung in Tabelle 14	/
U	Quellen- und Senkenterm	$[Bq m^{-3}]$
V	Volumen	[l] $[m^3]$
$V_F$	von einer Fluidphase eingenommenes Porenvolumen	$[m^3_{Fluid}]$
$V_{L1}$	Luftvolumen in Schritt 1 im DE	[l]
$V_{L2}$	Luftvolumen in Schritt 2 im DE	[l]
$V_m$	molares Volumen	$[m^3 mol^{-1}]$
$V_{Medium}$	Gesamtvolumen des Mediums	$[m^3_{Medium}]$
$V_{NAPL}$	NAPL-Volumen	[l]
$V_{Poren}$	Gesamtvolumen der Poren	$[m^3_{Poren}]$
$V_{Szín}$	Szintillator-Volumen	[l]
$V_W$	Wasser-Volumen	[l]
v	mittlere Fließgeschwindigkeit des Fluids	$[m s^{-1}]$
$v_F$	Fließgeschwindigkeit der Phase F	$[m s^{-1}]$
w	Anzahl der Wiederholungen	/
x	Entfernung, Tiefe	[m]
$x_{ob}$	Klassenobergrenze	$[Bq m^{-3}]$

Parameter	Bedeutung	Einheit
$x_i$	einzelne Messwerte (in Kapitel 5)	[Bq m <sup>-3</sup> ]
	Tiefe am Knotenpunkt i (in Kapitel 7)	[m]
$\bar{x}$	Mittel aller Messwerte $x_i$	[Bq m <sup>-3</sup> ]
$\alpha$	longitudinale Dispersivität	[m]
$\delta$	Hildebrand-Parameter	[(J m <sup>-3</sup> ) <sup>1/2</sup> ] [Pa <sup>1/2</sup> ]
$\bar{\delta}$	Hildebrand-Parameter für Mehrkomponentengemische	[(J m <sup>-3</sup> ) <sup>1/2</sup> ] [Pa <sup>1/2</sup> ]
$\epsilon$	Emanationskoeffizient	[-]
$\eta$	Faktor zur zeitlichen Diskretisierung	/
$\lambda$	Zerfallskonstante	[Z s <sup>-1</sup> ]
$\lambda_{Ra}$	Zerfallskonstante von Radium	[Z s <sup>-1</sup> ]
$\lambda_{Rn}$	Zerfallskonstante von Radon	[Z s <sup>-1</sup> ]
$\mu_0$	theoretisch abgeleiteter Wert im t-Test	/
$\rho$	Dichte des Mediums bzw. Fluids	[g cm <sup>-3</sup> ]
$\Phi$	Emanationsrate	[Bq m <sup>-3</sup> s <sup>-1</sup> ]
$\Psi$	Fluid-Potential, als Energie je Gewichtseinheit	[m]

## **Anhang**

### A) Thomas-Algorithmus

Der Thomas Algorithmus ist eine Form des Gausschen Eliminationsverfahrens zur Lösung von Matrizen mit einer tridiagonalen Koeffizientenmatrix. Die tridiagonale Matrix hat die Form:

$$\left( \begin{array}{c|ccccccc|c} b_0 & c_0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ a_1 & b_1 & c_1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & a_2 & b_2 & c_2 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \hline 0 & 0 & a_{i-1} & b_{i-1} & c_{i-1} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & a_i & b_i & c_i & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & a_{i+1} & b_{i+1} & c_{i+1} & 0 \\ \hline 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & a_N & b_N & c_N \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & a_{N+1} & b_{N+1} \end{array} \right) \times \begin{pmatrix} C_0 \\ C_1 \\ C_2 \\ \vdots \\ C_{i-1} \\ C_i \\ C_{i+1} \\ \vdots \\ C_N \\ C_{N+1} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} R_0 - U_0 \\ R_1 - U_1 \\ R_2 - U_2 \\ \vdots \\ R_{i-1} - U_{i-1} \\ R_i - U_i \\ R_{i+1} - U_{i+1} \\ \vdots \\ R_N - U_N \\ R_{N+1} - U_{N+1} \end{pmatrix} \quad [1]$$

Für die Knoten  $i = 1$  bis  $i = N$  gilt die allgemeine Form [2] bzw. [3]:

$$a_i C_{i-1} + b_i C_i + c_i C_{i+1} + U_i = R_i \quad [2]$$

bzw.

$$a_i C_{i-1} + b_i C_i + c_i C_{i+1} = R_i - U_i \quad [3]$$

mit:

$$\begin{aligned}
 a_i &= \alpha_{i-1} \eta \\
 b_i &= (\alpha_{i-1} + \alpha_i + \beta_i) \eta + 1 \\
 c_i &= -(\alpha_i + \beta_i) \eta \\
 R_i &= ar C_{i-1} + br C_i + cr C_{i+1} \\
 \text{mit: } ar &= \alpha_{i-1} (1 - \eta) \\
 br &= -(\alpha_{i-1} + \alpha_i + \beta_i) (1 - \eta) + 1 \\
 cr &= (\alpha_i + \beta_i) (1 - \eta)
 \end{aligned}$$

Zur Lösung des lineares Gleichungssystem für  $i = N - 2$  Knoten ( $i = 1$  bis  $i = N$ ) müssen Gleichungen für  $i = N$  Unbekannte für jeden Zeitschritt  $t + 1$  gelöst werden. Der oberste und der unterste Knoten wird durch die Festlegung von Anfangs- und Randbedingungen diskretisiert. Die zu lösende Gleichung für den obersten Knoten lautet:

$$b_0C_0 + c_0C_1 = R_0 - U_0 \quad [4]$$

$$\begin{aligned} \text{mit: } bl_0 &= (\alpha_0 + \beta_0)\eta + 1 \\ cl_0 &= -(\alpha_0 + \beta_0)\eta \\ R_0 &= brC_0 + crC_0 \\ \text{mit: } br &= -(\alpha_0 + \beta_0)(1 - \eta) + 1 \\ cr &= (\alpha_0 - \beta_0)(1 - \eta) \end{aligned}$$

Die zu lösende Gleichung des untersten Knotens lautet somit:

$$a_N C_N + b_{N+1} C_{N+1} = R_{N+1} - U_{N+1} \quad [5]$$

$$\begin{aligned} \text{mit: } al_{N+1} &= -\alpha_N \eta \\ bl_{N+1} &= (\alpha_N + \alpha_{N+1} + \beta_{N+1})\eta + 1 \\ R_{N+1} &= arC_N + brC_{N+1} \\ \text{mit: } ar &= \alpha_N(1 - \eta) \\ br &= -(\alpha_N + \alpha_{N+1} + \beta_{N+1})(1 - \eta) + 1 \end{aligned}$$

Ziel des Algorithmus ist ein systematisches Lösen der Knotengleichungen durch eine Transformation des originalen tridiagonalen Gleichungssystems der allgemeinen Form [6] bis [8]

$$b_0C_0 + c_0C_1 = R_0 - U_0 \quad [6]$$

$$a_i C_{i-1} + b_i C_i + c_i C_{i+1} = R_i - U_i \quad [7]$$

$$a_{N+1} C_N + b_{N+1} C_{N+1} = R_{N+1} - U_{N+1} \quad [8]$$

in ein äquivalentes diagonales Gleichungssystem der Form:

$$C_0 + e_0 C_1 = f_0 \quad [9]$$

$$C_{i-1} + e_i C_i = f_i \quad [10]$$

$$C_i + e_{i+1} C_{i+1} = f_{i+1} \quad [11]$$

$$C_{N+1} = f_{N+1} \quad [12]$$

Durch diese Transformation wird eine Diagonale der tridiagonalen Matrix eliminiert, wodurch nur noch zwei C-Terme gekoppelt sind.  $C_{N+1}$  kann dann direkt aus der letzten Zeile berechnet werden.

Nach Umstellen von [10] für die inneren Knoten  $i$  erhält man den Ansatz zur Berechnung der Konzentrationen entsprechend einer Rücksubstitution gemäß [13].

$$C_{i-1} = e_i C_i + f_i \quad [13]$$

setzt man [13] in [7] ein erhält man:

$$a_i(e_i C_i + f_i) + b_i C_i + c_i C_{i+1} = R_i - U_i \quad [14]$$

Nach Isolation von  $C_i$  erhält man:

$$C_i (a_i e_i + b_i) = -c_i C_{i+1} + (R_i - U_i) - a_i f_i \quad [15]$$

Schließlich ergibt sich nach Division durch den Koeffizienten  $(a_i e_i + b_i)$ :

$$C_i = \frac{-c_i}{a_i e_i + b_i} C_{i+1} + \frac{(R_i - U_i) - a_i f_i}{a_i e_i + b_i} \quad [16]$$

Die Werte für  $e_{i+1}$  und  $f_{i+1}$  werden aufsteigend rekursiv aus den Werten der Knoten  $i$  bis  $N$  gemäß [17] und [18] berechnet. ([16] ist von der gleichen Form, wie [13])

$$e_{i+1} = \frac{-c_i}{(a_i e_i + b_i)} \quad [17]$$

$$f_{i+1} = \frac{((R_i - U_i) - a_i f_i)}{(a_i e_i + b_i)} \quad [18]$$

Wenn  $e_1$  und  $f_1$  formal gleich Null gesetzt werden, erfolgt die Lösung des Systems von Gleichungen für die Knoten  $i = N$  bis  $i = 2$  durch systematischen rückwärtigen Austausch entsprechend [13].

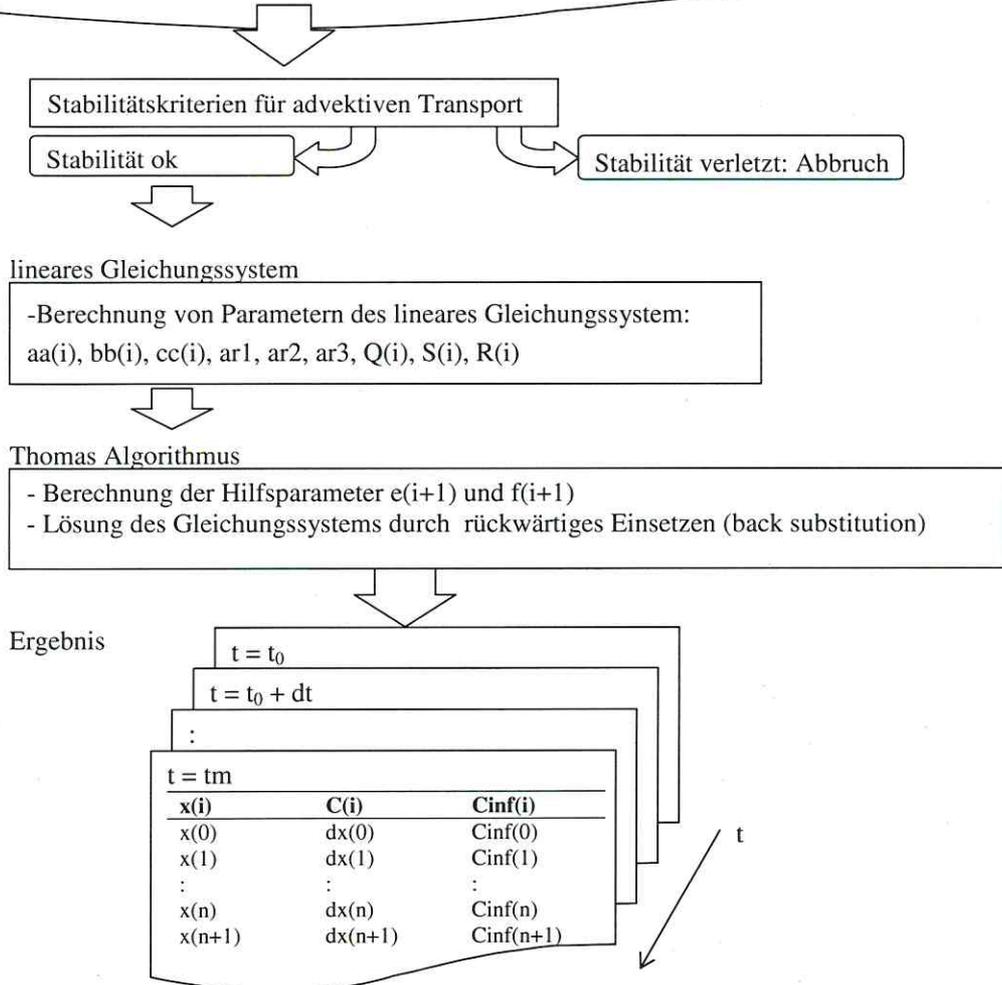
## B) Allgemeiner Ablaufplan des Computerprogramms

Daten-Input

- konstante Parameter:	$\lambda, b, \epsilon, D_L, K_{W/L}, K_{NAPL/L}, m, v$
- variable Parameter bei $t_0$ :	$dx(i), C(i), P(i), nfp(i), wfp(i), ni(i), A_{Ra}(i), rho(i), Disp(i), x(i), n_L(i), S_w(i), S_L(i), n_L(i), RTF(i), D_f(i), D_s(i)$

Modellgebiet zum Startzeitpunkt  $t_0$ :

$dx(i)$	$x(i)$	$P(i)$	$C(i)$	$S_n(i)$	$S_w(i)$	$S_L(i)$	$n_i(i)$	$n_L(i)$	$RTF(i)$	$D_f(i)$	$Eps(i)$	$A_{Ra}(i)$	$rho(i)$	$Disp(i)$	$D_s(i)$
$dx(0)$	$x(0)$	$P(0)$	$C(0)$	$S_n(0)$	$S_w(0)$	$S_L(0)$	$n_i(0)$	$n_L(0)$	$RTF(0)$	$D_f(0)$	$Eps(0)$	$A_{Ra}(0)$	$rho(0)$	$Disp(0)$	$D_s(0)$
$dx(1)$	$x(1)$	$P(1)$	$C(1)$	$S_n(1)$	$S_w(1)$	$S_L(1)$	$n_i(1)$	$n_L(1)$	$RTF(1)$	$D_f(1)$	$Eps(1)$	$A_{Ra}(1)$	$rho(1)$	$Disp(1)$	$D_s(1)$
:	:	:	:	:	:	:	:	:	:	:	:	:	:	:	:
$dx(n)$	$x(n)$	$P(n)$	$C(n)$	$S_n(n)$	$S_w(n)$	$S_L(n)$	$n_i(n)$	$n_L(n)$	$RTF(n)$	$D_f(n)$	$Eps(n)$	$A_{Ra}(n)$	$rho(n)$	$Disp(n)$	$D_s(n)$
$dx$	$x$	$P$	$C$	$S_n$	$S_w$	$S_L$	$n_i$	$n_L$	$RTF$	$D_f$	$eps$	$A_{Ra}$	$rho$	$Disp$	$D_s$
$(n+1)$	$(n+1)$	$(n+1)$	$(n+1)$	$(n+1)$	$(n+1)$	$(n+1)$	$(n+1)$	$(n+1)$	$(n+1)$	$(n+1)$	$(n+1)$	$(n+1)$	$(n+1)$	$(n+1)$	$(n+1)$



C) Struktur des VisualBasic - Computerprogramms in Microsoft Excel

Prozedur ModellMakro	
Variablen deklarieren	
Variable	Datentyp
nmax	Const
Mappe	Workbook
Blatt, ParameterBlatt, AusgangsBlatt, ErgebnisBlatt,	Worksheet
Zelle1 bis Zelle 18	Object
Schritt, Spalte, SpalteLauf, ZeileLauf, i, n	Integer
MappenName	String
IstBlatt	Boolean
t, tt, ar1, ar2, ar3, eta, lamda, b, m, Kn, Kw, dt, tm, v, DL	Double
eps, A, rho, Ds, ni, SN, SW, nL, SL, C, dx, De, ne, Cinf, Df, Disp, k, p, qq,	Double
ww, aa, bb, cc, Q, S, R, e, f, RTF, x	Double
Vereinbarung für Excel-Tabellenblatt-Namen	
Lesen von Werten zum Zeitpunkt t = 0	
Variable	Datentyp
konstant (für alle i und t): eta, lambda, DL, Kn, Kw, dt, tm, Schritt, v, m, b	Numeric
variabel (für i = 0 bis nmax und alle t): dx(i), x(i), S <sub>NAPL</sub> (i), S <sub>w</sub> (i), S <sub>L</sub> (i), S <sub>L</sub> (i), n <sub>i</sub> (i), n <sub>L</sub> (i), RTF(i), D <sub>f</sub> (i), eps(i), A(i), rho(i), Disp(i), D <sub>s</sub> (i)	Numeric
variabel (für i = 0 bis nmax und t = 0): C(i, t <sub>0</sub> )	Numeric
Indizierte Schleife (Raumindex i)	
Kompartiment i = 0	
Für i = 1 bis n	
Berechnung der Variablen C <sub>inf</sub> (i), k(i), p(i)	
Stabilitätskriterien für advektiven Radontransport	
erfüllt	nicht erfüllt
Lineares Gleichungssystem	Abbruch
Indizierte Schleife (Zeitindex t)	
Zeitpunkt t = 0	
Für t = 0 bis t <sub>max</sub>	
Indizierte Schleife (Raumindex i)	
Für i = 1 bis n	
Berechnung der Parameter aa(i), bb(i), cc(i), ar1, ar2, ar3, Q(i), S(i), R(i) des lineares Gleichungssystem	
Berechnung der Parameter R(1), R(n), e(1) und f(1)	

Indizierte Schleife (Raumindex i) Für i = 1 bis n	Berechnung der Parameter $e(i+1)$ und $f(i+1)$ zur Lösung des linearen Gleichungssystems
Berechnung von $C(n)$	
Indizierte Schleife (Raumindex i) Für i = n bis 2	Berechnung des Parameters $C(i-1)$ (back substitution)
Alternative Bedingung: wenn $t > t_{\max} + dt/2 - (dt \cdot \text{Anzahl der anzuzeigenden letzten Zeitschritte})$ dann	
Indizierte Schleife (Raumindex i) Für i = 1 bis n+1	Darstellung der Parameter $x(i)$ , $C(i)$ und $C_{\text{inf}}(i)$
Festlegung der oberen ( $C(0)$ ) und unteren Randbedingung ( $C(n+1)$ )	

## D) Beschreibung des VisualBASIC-Computer Programms

- 2 Überschrift
- 5 Anweisung für Prozedur "ModellMakro"
- 8 Teil-Überschrift
- 11 Festlegung der maximalen Anzahl der Kompartimente als konstanter Wert
- 14 Teil-Überschrift
- 16 Variable Mappe als Datentyp Workbook deklarieren
- 17-20 Variablen Blatt, Ausgangsblatt, Ergebnisblatt und Parameterblatt als Datentyp Worksheet deklarieren
- 21 Variable MappenName als Datentyp String deklarieren
- 22 Variable IstBlatt als Datentyp Boolean deklarieren
- 23-40 Variablen Zelle 1 bis 18 als Datentyp Objekt deklarieren
- 41-46 Variablen Schritt, Spalte, SpalteLauf und ZeileLauf als Datentyp Integer deklarieren
- 47-61 Variablen als Datentyp Double deklarieren
- 63 Teilüberschrift
- 65-95 Definition eindimensionaler Datenfelder für räumlich variable Parameter und Deklaration als Datentyp Double
- 98 Teil-Überschrift
  
- 101 Variable MappenName erhält den Namen der aktiven Excel-Arbeitsmappe

### 103-117 Vereinbarungen für Excel-Tabellenblatt Parameter

- 103 Variable IstBlatt erhält den Wert Falsch
- 104 For-Anweisung für jedes Tabellenblatt der aktiven Arbeitsmappe
- 105 Beginn der If-Anweisung für alternative Bedingung: wenn der Tabellenblatt-Name Parameter heißt, dann
- 106 Variable IstBlatt erhält den Wert Wahr
- 107 Variable ParameterBlatt ist Tabellenblatt mit dem Namen Parameter
- 108 Ende der For-Anweisung
- 109 Ende der If-Anweisung
- 110 zum nächsten Tabellenblatt wechseln
- 111 Beginn der If-Anweisung für Alternative Bedingung: wenn Tabellenblatt fehlt, dann
- 112 Anzeige der Nachricht „Tabellenblatt 'Parameter' fehlt. Programmabbruch.“
- 113 gehe zum Ende der Prozedur
- 114 Ende der If-Anweisung
- 116 Tabellenblatt Parameter auswählen
- 117 Auswahl der Zellen im aktiven Tabellenblatt

### 119-133 Vereinbarungen für Excel-Tabellenblatt Ausgangswerte

- 119 Variable IstBlatt erhält den Wert Falsch
- 120 For-Anweisung für jedes Tabellenblatt der aktiven Arbeitsmappe
- 121 Beginn der If-Anweisung für alternative Bedingung: wenn der Tabellenblatt-Name Ausgangswerte heißt, dann
- 122 Variable IstBlatt erhält den Wert Wahr
- 123 Variable AusgangsBlatt ist Tabellenblatt mit dem Namen Parameter
- 124 Ende der For-Anweisung
- 125 Ende der If-Anweisung
- 126 zum nächsten Tabellenblatt wechseln
- 127 Beginn der If-Anweisung für Alternative Bedingung: wenn Tabellenblatt fehlt, dann
- 128 Anzeige der Nachricht „Tabellenblatt 'Ausgangswerte' fehlt. Programmabbruch.“

- 129 gehe zum Ende der Prozedur
- 130 Ende der If-Anweisung
- 132 Tabellenblatt Ausgangswerte auswählen
- 133 Auswahl der Zellen im aktiven Tabellenblatt

136 Teilüberschrift

**139-158 Vereinbarungen für Excel-Tabellenblatt Ergebnis**

- 139 Variable IstBlatt erhält den Wert Falsch
- 140 For-Anweisung für jedes Tabellenblatt der aktiven Arbeitsmappe
- 141 Beginn der If-Anweisung für alternative Bedingung: wenn der Tabellenblatt-Name Ergebnis heißt, dann
- 142 Variable IstBlatt erhält den Wert Wahr
- 143 Variable ErgebnisBlatt ist Tabellenblatt mit dem Namen Parameter
- 144 Auswahl des Tabellenblattes Ergebnis
- 145 Zellen auswählen
- 146 Inhalte im Auswahl-Bereich löschen
- 147 Ende der For-Anweisung
- 148 Ende der If-Anweisung
- 149 zum nächsten Tabellenblatt wechseln
- 150 Beginn der If-Anweisung für Alternative Bedingung: wenn Tabellenblatt fehlt, dann
- 151 Ein Tabellenblatt einfügen
- 152 das eingefügte Tabellenblatt heißt Ergebnis
- 153 Variable ErgebnisBlatt ist aktives Tabellenblatt
- 154 Ende der If-Anweisung
- 155 Zellauswahl im Tabellenblatt Ergebnis mit der Formatierung der Schrift als Fett erhält den Wert wahr
- 156 Zellauswahl im Tabellenblatt Ergebnis mit der Formatierung der Schrift als Arial erhält den Wert wahr
- 157 Zellen auswählen
- 158 Auswahl der Zellen im aktiven Tabellenblatt

161 Teilüberschrift

163 Teilüberschrift

**166-172 Vereinbarungen über das Einlesen des Wertes von eta**

- 166 Variable Zelle1 wird der Zelle in der 2. Zeile und 3. Spalte des Tabellenblattes Parameter zugeordnet
- 167 Beginn der If-Anweisung für Alternative Bedingung: wenn die Zelle leer ist oder keine Variable des Datentyps numeric enthält, dann
- 168 Anzeige der Nachricht "Parameter 'Faktor zur zeitlichen Diskretisierung' fehlt. Programmabbruch."
- 169 gehe zum Ende der Prozedur
- 170 Else-Anweisung für optionale alternative Bedingung
- 171 Variable eta erhält den Wert des Zelle1 zugewiesenen Bereichs
- 172 Ende der If-Anweisung

**174-180 Vereinbarungen über das Einlesen des Wertes von lambda**

- 174 Variable Zelle1 wird der Zelle in der 3. Zeile und 5. Spalte des Tabellenblattes Parameter zugeordnet

175 Beginn der If-Anweisung für Alternative Bedingung: wenn die Zelle leer ist oder  
keine Variable des Datentyps numeric enthält, dann  
176 Anzeige der Nachricht "Parameter Zerfallskonstante' fehlt. Programmabbruch."  
177 gehe zum Ende der Prozedur  
178 Else-Anweisung für optionale alternative Bedingung  
179 Variable lambda erhält den Wert des Zelle1 zugewiesenen Bereichs  
180 Ende der If-Anweisung

**182-188 Vereinbarung über das Einlesen des Wertes von DL**

182 Variable Zelle1 wird der Zelle in der 4. Zeile und 3. Spalte des Tabellenblattes  
Parameter zugeordnet  
183 Beginn der If-Anweisung für alternative Bedingung: wenn die Zelle leer ist oder  
keine Variable des Datentyps numeric enthält, dann  
184 Anzeige der Nachricht "Parameter Zerfallskonstante' fehlt. Programmabbruch."  
185 gehe zum Ende der Prozedur  
186 Else-Anweisung für optionale alternative Bedingung  
187 Variable DL erhält den Wert des Zelle1 zugewiesenen Bereichs  
188 Ende der If-Anweisung

**190-196 Vereinbarung über das Einlesen des Wertes von Kn**

190 Variable Zelle1 wird der Zelle in der 5. Zeile und 3. Spalte des Tabellenblattes  
Parameter zugeordnet  
191 Beginn der If-Anweisung für alternative Bedingung: wenn die Zelle leer ist oder  
keine Variable des Datentyps numeric enthält, dann  
192 Anzeige der Nachricht " Parameter 'Rn-Verteilungskoeffizient zwischen Olivenöl  
und Luft' fehlt. Programmabbruch."  
193 gehe zum Ende der Prozedur  
194 Else-Anweisung für optionale alternative Bedingung  
195 Variable Kn erhält den Wert des Zelle1 zugewiesenen Bereichs  
196 Ende der If-Anweisung

**198-204 Vereinbarung über das Einlesen des Wertes von Kw**

198 Variable Zelle1 wird der Zelle in der 6. Zeile und 3. Spalte des Tabellenblattes  
Parameter zugeordnet  
199 Beginn der If-Anweisung für alternative Bedingung: wenn die Zelle leer ist oder  
keine Variable des Datentyps numeric enthält, dann  
200 Anzeige der Nachricht " Parameter 'Rn-Verteilungskoeffizient zwischen Wasser und  
Luft' fehlt. Programmabbruch."  
201 gehe zum Ende der Prozedur  
202 Else-Anweisung für optionale alternative Bedingung  
203 Variable Kw erhält den Wert des Zelle1 zugewiesenen Bereichs  
204 Ende der If-Anweisung

**206-212 Vereinbarung über das Einlesen des Wertes von dt**

206 Variable Zelle1 wird der Zelle in der 7. Zeile und 3. Spalte des Tabellenblattes  
Parameter zugeordnet  
207 Beginn der If-Anweisung für alternative Bedingung: wenn die Zelle leer ist oder  
keine Variable des Datentyps numeric enthält, dann  
208 Anzeige der Nachricht " Parameter 'Zeitschritt' fehlt. Programmabbruch."  
209 gehe zum Ende der Prozedur  
210 Else-Anweisung für optionale alternative Bedingung

- 211 Variable dt erhält den Wert des Zelle1 zugewiesenen Bereichs
- 212 Ende der If-Anweisung

**214-220 Vereinbarung über das Einlesen des Wertes von tm**

- 214 Variable Zelle1 wird der Zelle in der 8. Zeile und 3. Spalte des Tabellenblattes  
Parameter zugeordnet
- 215 Beginn der If-Anweisung für alternative Bedingung: wenn die Zelle leer ist oder  
keine Variable des Datentyps numeric enthält, dann
- 216 Anzeige der Nachricht " Parameter 'Laufzeit' fehlt. Programmabbruch."  
217 gehe zum Ende der Prozedur
- 218 Else-Anweisung für optionale alternative Bedingung
- 219 Variable tm erhält den Wert des Zelle1 zugewiesenen Bereichs
- 220 Ende der If-Anweisung

**222-228 Vereinbarung über das Einlesen des Wertes von Schritt**

- 222 Variable Zelle1 wird der Zelle in der 9. Zeile und 3. Spalte des Tabellenblattes  
Parameter zugeordnet
- 223 Beginn der If-Anweisung für alternative Bedingung: wenn die Zelle leer ist oder  
keine Variable des Datentyps numeric enthält, dann
- 224 Anzeige der Nachricht " Parameter 'Anzahl der anzuzeigenden letzten Schritte' fehlt.  
Programmabbruch."  
225 gehe zum Ende der Prozedur
- 226 Else-Anweisung für optionale alternative Bedingung
- 227 Variable Schritt erhält den Wert des Zelle1 zugewiesenen Bereichs
- 228 Ende der If-Anweisung

**230-236 Vereinbarung über das Einlesen des Wertes von v**

- 230 Variable Zelle1 wird der Zelle in der 10. Zeile und 3. Spalte des Tabellenblattes  
Parameter zugeordnet
- 231 Beginn der If-Anweisung für alternative Bedingung: wenn die Zelle leer ist oder  
keine Variable des Datentyps numeric enthält, dann
- 232 Anzeige der Nachricht " Parameter 'mittlere Fließgeschwindigkeit' fehlt.  
Programmabbruch."  
233 gehe zum Ende der Prozedur
- 234 Else-Anweisung für optionale alternative Bedingung
- 235 Variable Schritt erhält den Wert des Zelle1 zugewiesenen Bereichs
- 236 Ende der If-Anweisung

**238-244 Vereinbarung über das Einlesen des Wertes von m**

- 238 Variable Zelle1 wird der Zelle in der 11. Zeile und 3. Spalte des Tabellenblattes  
Parameter zugeordnet
- 239 Beginn der If-Anweisung für alternative Bedingung: wenn die Zelle leer ist oder  
keine Variable des Datentyps numeric enthält, dann
- 240 Anzeige der Nachricht " Parameter 'emp. Konstante m' fehlt. Programmabbruch."  
241 gehe zum Ende der Prozedur
- 242 Else-Anweisung für alternative Bedingung
- 243 Variable m erhält den Wert des Zelle1 zugewiesenen Bereichs
- 244 Ende der If-Anweisung

**246-252 Vereinbarung über das Einlesen des Wertes von b**

- 246 Variable Zelle1 wird der Zelle in der 12. Zeile und 3. Spalte des Tabellenblattes Parameter zugeordnet
- 247 Beginn der If-Anweisung für alternative Bedingung: wenn die Zelle leer ist oder keine Variable des Datentyps numeric enthält, dann
- 248 Anzeige der Nachricht " Parameter 'emp. Konstante m' fehlt. Programmabbruch."
- 249 gehe zum Ende der Prozedur
- 250 Else-Anweisung für optionale alternative Bedingung
- 251 Variable m erhält den Wert des Zelle1 zugewiesenen Bereichs
- 252 Ende der If-Anweisung
  
- 255 Teilüberschrift
  
- 258 Zähler i um 1 zurücksetzen
- 260 Zähler ZeileLauf auf 3 setzen

**262-320 Vereinbarung über das Einlesen von räumlich variablen Parametern**

- 262 der Variablen Zelle1 wird im Tabellenblatt Ausgangswerte der Bereich der Zellen in der Zeile mit dem Wert für ZeileLauf und der Spalte 1 zugeordnet
- 263 Beginn While-Anweisungsblock: solange Zelle1 nicht leer ist
- 264 der Variablen Zelle2 wird im Tabellenblatt Ausgangswerte der Bereich der Zellen in der Zeile mit dem Wert für ZeileLauf und der Spalte 2 zugeordnet
- 265 der Variablen Zelle3 wird im Tabellenblatt Ausgangswerte der Bereich der Zellen in der Zeile mit dem Wert für ZeileLauf und der Spalte 3 zugeordnet
- 266 der Variablen Zelle4 wird im Tabellenblatt Ausgangswerte der Bereich der Zellen in der Zeile mit dem Wert für ZeileLauf und der Spalte 4 zugeordnet
- 267 der Variablen Zelle5 wird im Tabellenblatt Ausgangswerte der Bereich der Zellen in der Zeile mit dem Wert für ZeileLauf und der Spalte 5 zugeordnet
- 268 der Variablen Zelle6 wird im Tabellenblatt Ausgangswerte der Bereich der Zellen in der Zeile mit dem Wert für ZeileLauf und der Spalte 6 zugeordnet
- 269 der Variablen Zelle7 wird im Tabellenblatt Ausgangswerte der Bereich der Zellen in der Zeile mit dem Wert für ZeileLauf und der Spalte 7 zugeordnet
- 270 der Variablen Zelle8 wird im Tabellenblatt Ausgangswerte der Bereich der Zellen in der Zeile mit dem Wert für ZeileLauf und der Spalte 8 zugeordnet
- 271 der Variablen Zelle9 wird im Tabellenblatt Ausgangswerte der Bereich der Zellen in der Zeile mit dem Wert für ZeileLauf und der Spalte 9 zugeordnet
- 272 der Variablen Zelle10 wird im Tabellenblatt Ausgangswerte der Bereich der Zellen in der Zeile mit dem Wert für ZeileLauf und der Spalte 10 zugeordnet
- 273 der Variablen Zelle11 wird im Tabellenblatt Ausgangswerte der Bereich der Zellen in der Zeile mit dem Wert für ZeileLauf und der Spalte 11 zugeordnet
- 274 der Variablen Zelle12 wird im Tabellenblatt Ausgangswerte der Bereich der Zellen in der Zeile mit dem Wert für ZeileLauf und der Spalte 12 zugeordnet
- 275 der Variablen Zelle13 wird im Tabellenblatt Ausgangswerte der Bereich der Zellen in der Zeile mit dem Wert für ZeileLauf und der Spalte 13 zugeordnet
- 276 der Variablen Zelle14 wird im Tabellenblatt Ausgangswerte der Bereich der Zellen in der Zeile mit dem Wert für ZeileLauf und der Spalte 14 zugeordnet
- 277 der Variablen Zelle15 wird im Tabellenblatt Ausgangswerte der Bereich der Zellen in der Zeile mit dem Wert für ZeileLauf und der Spalte 15 zugeordnet
- 278 der Variablen Zelle16 wird im Tabellenblatt Ausgangswerte der Bereich der Zellen in der Zeile mit dem Wert für ZeileLauf und der Spalte 16 zugeordnet

279 der Variablen Zelle17 wird im Tabellenblatt Ausgangswerte der Bereich der Zellen  
in der Zeile mit dem Wert für ZeileLauf und der Spalte 17 zugeordnet  
280 der Variablen Zelle18 wird im Tabellenblatt Ausgangswerte der Bereich der Zellen  
in der Zeile mit dem Wert für ZeileLauf und der Spalte 18 zugeordnet  
281 Beginn der If-Anweisung für alternative Bedingung: wenn Zelle1 leer ist oder keine  
Variable des Datentyps numeric enthält, oder  
282 wenn Zelle2 leer ist oder keine Variable des Datentyps numeric enthält, oder  
283 wenn Zelle3 leer ist oder keine Variable des Datentyps numeric enthält, oder  
284 wenn Zelle4 leer ist oder keine Variable des Datentyps numeric enthält, oder  
285 wenn Zelle5 leer ist oder keine Variable des Datentyps numeric enthält, oder  
286 wenn Zelle6 leer ist oder keine Variable des Datentyps numeric enthält, oder  
287 wenn Zelle7 leer ist oder keine Variable des Datentyps numeric enthält, oder  
288 wenn Zelle8 leer ist oder keine Variable des Datentyps numeric enthält, oder  
289 wenn Zelle9 leer ist oder keine Variable des Datentyps numeric enthält, oder  
290 wenn Zelle10 leer ist oder keine Variable des Datentyps numeric enthält, oder  
291 wenn Zelle11 leer ist oder keine Variable des Datentyps numeric enthält, oder  
292 wenn Zelle12 leer ist oder keine Variable des Datentyps numeric enthält, oder  
293 wenn Zelle13 leer ist oder keine Variable des Datentyps numeric enthält, oder  
294 wenn Zelle14 leer ist oder keine Variable des Datentyps numeric enthält, oder  
295 wenn Zelle15 leer ist oder keine Variable des Datentyps numeric enthält, oder  
296 wenn Zelle16 leer ist oder keine Variable des Datentyps numeric enthält, oder  
297 wenn Zelle17 leer ist oder keine Variable des Datentyps numeric enthält, oder  
298 wenn Zelle18 leer ist oder keine Variable des Datentyps numeric enthält, dann  
299 Anzeige der Nachricht "Ausgangswert in Zeile: Zeilennummer fehlt oder falsch.  
Programmabbruch."  
300 gehe zum Ende der Prozedur  
301 Else-Anweisung für optionale alternative Bedingung  
302 Zähler i um 1 vorsetzen  
303 Variable dx(i) erhält den Wert des Zelle1 zugewiesenen Bereichs  
304 Variable x(i) erhält den Wert des Zelle2 zugewiesenen Bereichs  
305 Variable P(i) erhält den Wert des Zelle3 zugewiesenen Bereichs  
306 Variable C(i) erhält den Wert des Zelle4 zugewiesenen Bereichs  
307 Variable SN(i) erhält den Wert des Zelle5 zugewiesenen Bereichs  
308 Variable nN(i) erhält den Wert des Zelle6 zugewiesenen Bereichs  
309 Variable SW(i) erhält den Wert des Zelle7 zugewiesenen Bereichs  
310 Variable nW(i) erhält den Wert des Zelle8 zugewiesenen Bereichs  
311 Variable SL(i) erhält den Wert des Zelle9 zugewiesenen Bereichs  
312 Variable n(i) erhält den Wert des Zelle10 zugewiesenen Bereichs  
313 Variable nL(i) erhält den Wert des Zelle11 zugewiesenen Bereichs  
314 Variable RTF(i) erhält den Wert des Zelle12 zugewiesenen Bereichs  
315 Variable Df(i) erhält den Wert des Zelle13 zugewiesenen Bereichs  
316 Variable eps(i) erhält den Wert des Zelle14 zugewiesenen Bereichs  
317 Variable A(i) erhält den Wert des Zelle15 zugewiesenen Bereichs  
318 Variable rho(i) erhält den Wert des Zelle16 zugewiesenen Bereichs  
319 Variable Disp(i) erhält den Wert des Zelle17 zugewiesenen Bereichs  
320 Variable Ds(i) erhält den Wert des Zelle18 zugewiesenen Bereichs  
  
322 Berechnung von Cinf(i)  
324 Berechnung von k(i)  
325 Berechnung von p(i)

327-331 Vereinbarungen für Stabilitätskriterien (nicht aktiv)

- 333 Ende der If-Anweisung
- 334 Zähler ZeileLauf um 1 vorsetzen
- 335 Variable Zelle1 wird den Zellen in der Zeile Zeilelauf und der 1. Spalte des Tabellenblattes Ausgangswerte zugeordnet
- 336 Ende der While-Anweisung, gehe zurück zum Beginn der While-Anweisung
- 338 Die Anzahl der Schichten n erhält den Wert des Zählers i-1

**342-411 Vereinbarungen für Zeitschleife**

- 342 Zähler SpalteLauf auf Null setzen
- 343 Zähler tt auf Null setzen
- 345 Beginn indizierte Schleife mit For-Anweisung, Zeit-Index t, Zählschritt ist dt
- 346 Zähler ZeileLauf auf 3 setzen
- 348-360 Vereinbarungen für indizierte Schleife, Kompartiment-Index i
  - 348 For-Anweisung, Beginn Kompartiment-Schleife: Für jedes i von 1 bis n
  - 349-359 Berechnung der Parameter aa(i), bb(i), cc(i), ar1, ar2, ar3, Q(i), S(i), R(i) des lineares Gleichungssystem
  - 360 Ende der Kompartimentschleife, gehe zurück zum Beginn der Schleife
  - 362-365 Berechnung der Parameter R(1), R(n), e(1) und f(1) des lineares Gleichungssystems
- 367-370 Vereinbarungen für indizierte Schleife, Kompartiment-Index i
  - 367 For-Anweisung, Beginn Kompartiment-Schleife: Für jedes i von 1 bis n
  - 368-369 Berechnung der Parameter e(i+1) und f(i+1) zur Lösung des linearen Gleichungssystems
  - 370 Ende der Kompartimentschleife, gehe zurück zum Beginn der Schleife
- 372 C(n) wird der Wert von f(n+1) zugeordnet
- 374-376 Vereinbarungen für indizierte Schleife, Kompartiment-Index i
  - 374 For-Anweisung, Beginn Kompartiment-Schleife: Für jedes i von n bis 2, Zählschritt ist -1
  - 375 Lösung des Gleichungssystems und Berechnung des Parameters C(i-1) durch rückwärtiges Einsetzen (back substitution)
  - 376 Ende der Kompartimentschleife, gehe zurück zum Beginn der Schleife
- 378-397 Vereinbarungen für indizierte Schleife, Kompartiment-Index i
  - 378 For-Anweisung, Beginn Kompartiment-Schleife: Für jedes i von 0 bis n+1
  - 379 Beginn der If-Anweisung für alternative Bedingung: wenn der Zähler t größer als tm-Term, dann
  - 380 Beginn der If-Anweisung für alternative Bedingung: wenn der Zähler tt größer bzw. kleiner als t, dann
  - 381 Zähler tt erhält den Wert des Zählers t
  - 382 Zähler Spaltelauf um 1 vorsetzen
  - 383 Zähler Spalte erhält den Wert des Terms (Schritt – Spaltelauf) \* 7
  - 384 im Tabellenblatt Ergebnis wird der Spalte Spalte+1 die Breite 7 zugeordnet
  - 385 im Tabellenblatt Ergebnis wird den Zellen der 3. Zeile und der Spalte Spalte+1 das Schriftart-Format Fett zugewiesen

- 386 im Tabellenblatt Ergebnis wird den Zellen der 3. Zeile und der Spalte Spalte+1 der Text „x(i)“ zugewiesen
- 388 im Tabellenblatt Ergebnis wird den Zellen der Spalte Spalte+2 das Zahlen-Format 0000000 zugewiesen
- 389 im Tabellenblatt Ergebnis wird der Spalte Spalte+1 die Breite 15 zugewiesen
- 390 im Tabellenblatt Ergebnis wird den Zellen der 3. Zeile und der Spalte Spalte+2 das Schriftart-Format Fett zugewiesen
- 391 im Tabellenblatt Ergebnis wird den Zellen der 3. Zeile und der Spalte Spalte+2 der Text „C(i)“ zugewiesen
  
- 393 im Tabellenblatt Ergebnis wird den Zellen der Spalte Spalte+3 das Zahlen-Format 0000000 zugewiesen
- 394 im Tabellenblatt Ergebnis wird den Zellen der Spalte Spalte+3 die Breite 15 zugewiesen
- 395 im Tabellenblatt Ergebnis wird den Zellen der 3. Zeile und der Spalte Spalte+3 das Schriftart-Format Fett zugewiesen
- 396 im Tabellenblatt Ergebnis wird den Zellen der 3. Zeile und der Spalte Spalte+3 der Text „Cinf(i)“ zugewiesen
- 397 Ende der If-Anweisung
  
- 399 Zähler ZeileLauf um 1 vorsetzen
  
- 401 Im Tabellenblatt Ergebnis wird den Zellen der Zeile ZeileLauf und der Spalte Spalte+1 der Wert von x(i) zugeordnet
- 402 Im Tabellenblatt Ergebnis wird den Zellen der Zeile ZeileLauf und der Spalte Spalte+1 der Wert von C(i) zugeordnet
- 403 Im Tabellenblatt Ergebnis wird den Zellen der Zeile ZeileLauf und der Spalte Spalte+1 der Wert von Cinf(i) zugeordnet
- 405 Ende der If-Anweisung
  
- 406 Ende der Kompartimentschleife, gehe zurück zum Beginn der Schleife
  
- 408 Anweisung für C(0) (obere Randbedingung) (inaktiv)
- 409 Anweisung für C(n+1) (untere Randbedingung)
- 411 Ende Zeitschleife, nächster Zeitschritt
- 413 Auswahl und Anzeige des Tabellenblatts „Ergebnis“
- 415 Anzeige der Nachricht „fertig“
- 419, 423 Ende der Prozedur

E) VisualBASIC-Computerprogramm zur Berechnung des nichtstationären eindimensionalen Radontransportes

```
1  '-----
2  ' Radontransportmodell - Advektion und Dispersion
3  '-----
4
5  Sub ModellMakro()
6
7  '-----
8  ' Vereinbarungsteil
9  '-----
10
11  Const nmax = 3000 ' Maximale Anzahl der Kompartimente
12
13  '-----
14  ' Konstante Parameter
15  '-----
16  Dim Mappe As Workbook ' Excel-Arbeitsmappe
17  Dim Blatt As Worksheet ' Excel- Tabellenblatt
18  Dim AusgangsBlatt As Worksheet ' Excel-Tabellenblatt "Ausgangswerte"
19  Dim ErgebnisBlatt As Worksheet ' Excel-Tabellenblatt "Ergebnis"
20  Dim ParameterBlatt As Worksheet ' Excel-Tabellenblatt "Parameter"
21  Dim MappenName As String 'Name der Arbeitsmappe
22  Dim IstBlatt As Boolean 'Wert für Tabellenblatt-Vereinbarung
23  Dim Zelle1 As Object
24  Dim Zelle2 As Object
25  Dim Zelle3 As Object
26  Dim Zelle4 As Object
27  Dim Zelle5 As Object
28  Dim Zelle6 As Object
29  Dim Zelle7 As Object
30  Dim Zelle8 As Object
31  Dim Zelle9 As Object
32  Dim Zelle10 As Object
33  Dim Zelle11 As Object
34  Dim Zelle12 As Object
35  Dim Zelle13 As Object
36  Dim Zelle14 As Object
37  Dim Zelle15 As Object
38  Dim Zelle16 As Object
39  Dim Zelle17 As Object
40  Dim Zelle18 As Object
41  Dim Schritt As Integer 'Anzahl der anzuzeigenden letzten Zeitschritte
42  Dim Spalte As Integer 'Tabellenspalte zur Ergebnisdarstellung
43  Dim SpalteLauf As Integer 'Spalten-Zähler
44  Dim ZeileLauf As Integer 'Zeilen-Zähler
45  Dim i As Integer 'Kompartiment-Zähler
46  Dim n As Integer 'Anzahl der Kompartimente
47  Dim eta As Double 'Faktor zur zeitlichen Diskretisierung [-]
48  Dim lambda As Double 'Zerfallskonstante [1/h]
49  Dim b As Double 'empirische Konstante
50  Dim m As Double 'empirische Konstante
51  Dim Kn As Double 'Rn-Verteilungskoeffizient zwischen Olivenöl und Luft [-]
52  Dim Kw As Double 'Rn-Verteilungskoeffizient zwischen Wasser und Luft [-]
53  Dim dt As Double 'Zeitschritt [h]
54  Dim tm As Double 'Gesamtzeit [h]
55  Dim v As Double 'mittlere Fließgeschwindigkeit [m/s]
56  Dim DL As Double 'Diffusionskoeffizient von Radon in Luft [m²/s]
57  Dim t As Double 'Zeit [h]
58  Dim tt As Double 'Hilfsvariable für anzuzeigende letzte Schritte
```

59	Dim ar1	As Double	'Koeffizient des linearen Gleichungssystems
60	Dim ar2	As Double	'Koeffizient des linearen Gleichungssystems
61	Dim ar3	As Double	'Koeffizient des linearen Gleichungssystems
62	-----		
63	' Räumlich variable Parameter		
64	-----		
65	Dim ni(0 To nmax + 1)	As Double	'integrale bzw. Gesamt-Porosität des Bodens [l/l]
66	Dim SN(0 To nmax + 1)	As Double	'NAPL-Sättigung des Porenraumes [l NAPL/l Poren]
67	Dim SW(0 To nmax + 1)	As Double	'Wassersättigung des Porenraumes [l Wasser/l Poren]
68	Dim nL(0 To nmax + 1)	As Double	'luftgefüllte Porosität [l Luft/l Boden]
69	Dim SL(0 To nmax + 1)	As Double	'Luftsättigung des Porenraums [l Luft/l Poren]
70	Dim A(0 To nmax + 1)	As Double	'Radiumkonzentration der Mineralmatrix [Bq/kg]
71	Dim eps(0 To nmax + 1)	As Double	'Emanationskoeffizient [-]
72	Dim rho(0 To nmax + 1)	As Double	'Lagerungsdichte des Bodens [kg/m³]
73	Dim C(0 To nmax + 1)	As Double	'Radonkonzentration der Bodenluft [Bq/m³]
74	Dim dx(0 To nmax + 1)	As Double	'Abstand zwischen Knotenpunkten
75	Dim De(0 To nmax + 1)	As Double	'effektiver Diffusionskoeffizient (Df/RTF)
76	Dim ne(0 To nmax + 1)	As Double	'scheinbare Porosität [-]
77	Dim Cinf(0 To nmax + 1)	As Double	'Radonkonzentration der Bodenluft im abgeschlossenen
78	System		
79	Dim Df(0 To nmax + 1)	As Double	'Diffusionskoeffizient von Rn im Boden [m²/s]
80	Dim Ds(0 To nmax + 1)	As Double	'Dispersionskoeffizient von Rn in Wasser [m²/s]
81	Dim Disp(0 To nmax + 1)	As Double	'Dispersivität [m]
82	Dim P(0 To nmax+1)	As Double	'Druckhöhe [m]
83	Dim k(0 To nmax + 1)	As Double	'Hilfsvariable (alpha)
84	Dim p(0 To nmax + 1)	As Double	'Hilfsvariable (beta)
85	Dim qq(0 To nmax + 1)	As Double	'Stabilitätskriterium 1
86	Dim ww(0 To nmax + 1)	As Double	'Stabilitätskriterium 2
87	Dim aa(0 To nmax + 1)	As Double	'Koeffizient des linearen Gleichungssystems
88	Dim bb(0 To nmax + 1)	As Double	'Koeffizient des linearen Gleichungssystems
89	Dim cc(0 To nmax + 1)	As Double	'Koeffizient des linearen Gleichungssystems
90	Dim Q(0 To nmax + 1)	As Double	'Quellenterm
91	Dim S(0 To nmax + 1)	As Double	'Senkenterm
92	Dim R(0 To nmax + 1)	As Double	'Koeffizient des linearen Gleichungssystems
93	Dim e(0 To nmax + 1)	As Double	'Koeffizient des Thomas Algorithmus
94	Dim f(0 To nmax + 1)	As Double	'Koeffizient des Thomas Algorithmus
95	Dim RTF(0 To nmax + 1)	As Double	'Retardationsfaktor
96	Dim x(0 To nmax + 1)	As Double	'Tiefe [m]
97	-----		
98	-----		
99	'Anweisungen für Tabellenblätter mit Eingangs-Parametern		
100	-----		
101			
102	MappenName = ActiveWorkbook.Name		
103			
104	IstBlatt = False		
105	For Each Blatt In ActiveWorkbook.Worksheets		
106	If Blatt.Name = "Parameter" Then		
107	IstBlatt = True		
108	Set ParameterBlatt = Blatt		
109	Exit For		
110	End If		
111	Next Blatt		
112	If Not IstBlatt Then		
113	MsgBox "Tabelleblatt 'Parameter' fehlt. Programmabbruch."		
114	GoTo Ende_Sub		
115	End If		
116			
117	ParameterBlatt.Select		
118	ActiveSheet.Cells(1, 1).Select		
119			
120	IstBlatt = False		

```
121 For Each Blatt In ActiveWorkbook.Worksheets
122     If Blatt.Name = "Ausgangswerte" Then
123         IstBlatt = True
124         Set AusgangsBlatt = Blatt
125         Exit For
126     End If
127 Next Blatt
128 If Not IstBlatt Then
129     MsgBox "Tabellenblatt 'Ausgangswerte' fehlt. Programmabbruch."
130     GoTo Ende_Sub
131 End If
132
133 AusgangsBlatt.Select
134 ActiveSheet.Cells(1, 1).Select
135
136 '-----
137 'Anweisungen für Tabellenblatt mit Ergebnissen
138 '-----
139
140 IstBlatt = False
141 For Each Blatt In ActiveWorkbook.Worksheets
142     If Blatt.Name = "Ergebnis" Then
143         IstBlatt = True
144         Set ErgebnisBlatt = Blatt
145         ErgebnisBlatt.Select
146         Cells.Select
147         Selection.Clear
148         Exit For
149     End If
150 Next Blatt
151 If Not IstBlatt Then
152     Sheets.Add After:=Sheets(1)
153     ActiveSheet.Name = "Ergebnis"
154     Set ErgebnisBlatt = ActiveSheet
155 End If
156 ErgebnisBlatt.Cells(1, 1).Font.Bold = True
157 ErgebnisBlatt.Cells(1, 1).Font.Italic = True
158 Cells.Select
159 ActiveSheet.Cells(1, 1).Select
160
161 '-----
162 'Einlesen der Eingangs-Parameter
163 '-----
164 '    konstante Parameter
165 '-----
166
167 Set Zelle1 = ParameterBlatt.Cells(2, 3)
168 If IsEmpty(Zelle1) Or (Not IsNumeric(Zelle1)) Then
169     MsgBox "Parameter 'Faktor zur zeitlichen Diskretisierung' fehlt. " + _ "Programmabbruch."
170     GoTo Ende_Sub
171 Else
172     eta = Zelle1.Value
173 End If
174
175 Set Zelle1 = ParameterBlatt.Cells(3, 5)
176 If IsEmpty(Zelle1) Or (Not IsNumeric(Zelle1)) Then
177     MsgBox "Parameter 'Zerfallskonstante' unvollständig oder fehlt. " + _ "Programmabbruch."
178     GoTo Ende_Sub
179 Else
180     lambda = Zelle1.Value
181 End If
182
```

```
183 Set Zelle1 = ParameterBlatt.Cells(4, 3)
184 If IsEmpty(Zelle1) Or (Not IsNumeric(Zelle1)) Then
185     MsgBox "Parameter 'Diffusionskoeffizient von Radon in Luft' " + _"fehlt. Programmabbruch."
186     GoTo Ende_Sub
187 Else
188     DL = Zelle1.Value
189 End If
190
191 Set Zelle1 = ParameterBlatt.Cells(5, 3)
192 If IsEmpty(Zelle1) Or (Not IsNumeric(Zelle1)) Then
193     MsgBox "Parameter 'Rn-Verteilungskoeffizient zwischen Olivenöl und Luft' fehlt.
194 Programmabbruch."
195     GoTo Ende_Sub
196 Else
197     Kn = Zelle1.Value
198 End If
199
200 Set Zelle1 = ParameterBlatt.Cells(6, 3)
201 If IsEmpty(Zelle1) Or (Not IsNumeric(Zelle1)) Then
202     MsgBox "Parameter 'Rn-Verteilungskoeffizient zwischen Wasser und Luft' fehlt. Programmabbruch."
203     GoTo Ende_Sub
204 Else
205     Kw = Zelle1.Value
206 End If
207
208 Set Zelle1 = ParameterBlatt.Cells(7, 3)
209 If IsEmpty(Zelle1) Or (Not IsNumeric(Zelle1)) Then
210     MsgBox "Parameter 'Zeitschritt' fehlt. Programmabbruch."
211     GoTo Ende_Sub
212 Else
213     dt = Zelle1.Value
214 End If
215
216 Set Zelle1 = ParameterBlatt.Cells(8, 3)
217 If IsEmpty(Zelle1) Or (Not IsNumeric(Zelle1)) Then
218     MsgBox "Parameter 'Gesamtzeit' fehlt. Programmabbruch."
219     GoTo Ende_Sub
220 Else
221     tm = Zelle1.Value
222 End If
223
224 Set Zelle1 = ParameterBlatt.Cells(9, 3)
225 If IsEmpty(Zelle1) Or (Not IsNumeric(Zelle1)) Then
226     MsgBox "Parameter 'Anzahl der anzuzeigenden letzten Schritte' fehlt. Programmabbruch."
227     GoTo Ende_Sub
228 Else
229     Schritt = Zelle1.Value
230 End If
231
232 Set Zelle1 = ParameterBlatt.Cells(10, 3)
233 If IsEmpty(Zelle1) Or (Not IsNumeric(Zelle1)) Then
234     MsgBox "Parameter 'mittlere Fließgeschwindigkeit' fehlt. Programmabbruch."
235     GoTo Ende_Sub
236 Else
237     v = Zelle1.Value
238 End If
239
240 Set Zelle1 = ParameterBlatt.Cells(11, 3)
241 If IsEmpty(Zelle1) Or (Not IsNumeric(Zelle1)) Then
242     MsgBox "emp. Konstante m fehlt. Programmabbruch."
243     GoTo Ende_Sub
244 Else
```

```
245     m = Zelle1.Value
246 End If
247
248 Set Zelle1 = ParameterBlatt.Cells(12, 3)
249 If IsEmpty(Zelle1) Or (Not IsNumeric(Zelle1)) Then
250     MsgBox "emp. Konstante b fehlt. Programmabbruch."
251     GoTo Ende_Sub
252 Else
253     b = Zelle1.Value
254 End If
255
256 -----
257     räumlich variable Parameter zum Startzeitpunkt
258 -----
259
260 i = i - 1
261
262 ZeileLauf = 3
263
264 Set Zelle1 = AusgangsBlatt.Cells(ZeileLauf, 1)
265 While Not IsEmpty(Zelle1)
266     Set Zelle2 = AusgangsBlatt.Cells(ZeileLauf, 2)
267     Set Zelle3 = AusgangsBlatt.Cells(ZeileLauf, 3)
268     Set Zelle4 = AusgangsBlatt.Cells(ZeileLauf, 4)
269     Set Zelle5 = AusgangsBlatt.Cells(ZeileLauf, 5)
270     Set Zelle6 = AusgangsBlatt.Cells(ZeileLauf, 6)
271     Set Zelle7 = AusgangsBlatt.Cells(ZeileLauf, 7)
272     Set Zelle8 = AusgangsBlatt.Cells(ZeileLauf, 8)
273     Set Zelle9 = AusgangsBlatt.Cells(ZeileLauf, 9)
274     Set Zelle10 = AusgangsBlatt.Cells(ZeileLauf, 10)
275     Set Zelle11 = AusgangsBlatt.Cells(ZeileLauf, 11)
276     Set Zelle12 = AusgangsBlatt.Cells(ZeileLauf, 12)
277     Set Zelle13 = AusgangsBlatt.Cells(ZeileLauf, 13)
278     Set Zelle14 = AusgangsBlatt.Cells(ZeileLauf, 14)
279     Set Zelle15 = AusgangsBlatt.Cells(ZeileLauf, 15)
280     Set Zelle16 = AusgangsBlatt.Cells(ZeileLauf, 16)
281     Set Zelle17 = AusgangsBlatt.Cells(ZeileLauf, 17)
282     Set Zelle18 = AusgangsBlatt.Cells(ZeileLauf, 18)
283     If IsEmpty(Zelle1) Or (Not IsNumeric(Zelle1)) Or _
284         IsEmpty(Zelle2) Or (Not IsNumeric(Zelle2)) Or _
285         IsEmpty(Zelle3) Or (Not IsNumeric(Zelle3)) Or _
286         IsEmpty(Zelle4) Or (Not IsNumeric(Zelle4)) Or _
287         IsEmpty(Zelle5) Or (Not IsNumeric(Zelle5)) Or _
288         IsEmpty(Zelle6) Or (Not IsNumeric(Zelle6)) Or _
289         IsEmpty(Zelle7) Or (Not IsNumeric(Zelle7)) Or _
290         IsEmpty(Zelle8) Or (Not IsNumeric(Zelle8)) Or _
291         IsEmpty(Zelle9) Or (Not IsNumeric(Zelle9)) Or _
292         IsEmpty(Zelle10) Or (Not IsNumeric(Zelle10)) Or _
293         IsEmpty(Zelle11) Or (Not IsNumeric(Zelle11)) Or _
294         IsEmpty(Zelle12) Or (Not IsNumeric(Zelle12)) Or _
295         IsEmpty(Zelle13) Or (Not IsNumeric(Zelle13)) Or _
296         IsEmpty(Zelle14) Or (Not IsNumeric(Zelle14)) Or _
297         IsEmpty(Zelle15) Or (Not IsNumeric(Zelle15)) Or _
298         IsEmpty(Zelle16) Or (Not IsNumeric(Zelle16)) Or _
299         IsEmpty(Zelle17) Or (Not IsNumeric(Zelle17)) Or _
300         IsEmpty(Zelle18) Or (Not IsNumeric(Zelle18)) Then
301         MsgBox "Ausgangswert in Zeile: " + Str(Lauf1) fehlt oder falsch. Programmabbruch."
302         GoTo Ende_Sub
303     Else
304         i = i + 1
305         dx(i) = Zelle1.Value
306         x(i) = Zelle2.Value
```

```
307 P(i) = Zelle3.Value
308 C(i) = Zelle4.Value
309 SN(i) = Zelle5.Value
310 nN(i) = Zelle6.Value
311 SW(i) = Zelle7.Value
312 nW(i) = Zelle8.Value
313 SL(i) = Zelle9.Value
314 ni(i) = Zelle10.Value
315 nL(i) = Zelle11.Value
316 RTF(i) = Zelle12.Value
317 Df(i) = Zelle13.Value
318 eps(i) = Zelle14.Value
319 A(i) = Zelle15.Value
320 rho(i) = Zelle16.Value
321 Disp(i) = Zelle17.Value
322 Ds(i) = Zelle18.Value
323
324 Cinf(i) = (eps(i) * A(i) * rho(i)) / (ni(i) * (SL(i) + Kw * SW(i) + Kn * SN(i)))
325
326 k(i) = dt * ((Ds(i) + Df(i)) / RTF(i)) / (dx(i) ^ 2) * 3600
327 p(i) = (v / RTF(i) * dt) / dx(i) * 3600
328
329 'qq(i) = (2 * dx(i)) / v
330 'ww(i) = (v * dt) / (2 * dx(i)) * 3600
331 'If (ww(i) > dt) Or (qq(i) < 1) Then
332 'MsgBox "Stabilität in Zeile: " + Str(Lauf1) + " verletzt."
333 'End If
334
335 End If
336 ZeileLauf = ZeileLauf + 1
337 Set Zelle1 = AusgangsBlatt.Cells(ZeileLauf, 1)
338 Wend
339
340 n = i - 1
341
342 -----
343
344 SpalteLauf = 0
345 tt = 0
346
347 For t = dt To tm + dt / 2 Step dt
348 ZeileLauf = 3
349
350 For i = 1 To n
351 aa(i) = -k(i - 1) * eta
352 bb(i) = (k(i - 1) + k(i) + p(i)) * eta + 1
353 cc(i) = -(k(i) + p(i)) * eta
354
355 Q(i) = lambda * dt * Cinf(i)
356 S(i) = lambda * dt * C(i)
357
358 ar1 = k(i - 1) * (1 - eta)
359 ar2 = -(k(i - 1) + k(i) + p(i)) * (1 - eta) + 1
360 ar3 = (k(i) + p(i)) * (1 - eta)
361 R(i) = ar1 * C(i - 1) + ar2 * C(i) + ar3 * C(i + 1) + Q(i) - S(i)
362 Next i
363
364 R(1) = R(1) - aa(1) * C(0)
365 R(n) = R(n) - cc(n) * C(n + 1)
366 e(1) = 0
367 f(1) = 0
368
```

```
369 For i = 1 To n
370     e(i + 1) = -cc(i) / (aa(i) * e(i) + bb(i))
371     f(i + 1) = (R(i) - aa(i) * f(i)) / (aa(i) * e(i) + bb(i))
372 Next i
373
374 C(n) = f(n + 1)
375
376 For i = n To 2 Step -1
377     C(i - 1) = e(i) * C(i) + f(i)
378 Next i
379
380 For i = 0 To n + 1
381     If t > tm + dt / 2 - (dt * Schritt) Then
382         If tt <> t Then
383             tt = t
384             SpalteLauf = SpalteLauf + 1
385             Spalte = (Schritt - SpalteLauf) * 7
386             ErgebnisBlatt.Columns(Spalte + 1).ColumnWidth = 7
387             ErgebnisBlatt.Cells(3, Spalte + 1).Font.Bold = True
388             ErgebnisBlatt.Cells(3, Spalte + 1).Value = "x(i)"
389
390             ErgebnisBlatt.Columns(Spalte + 2).NumberFormat = "0000000"
391             ErgebnisBlatt.Columns(Spalte + 2).ColumnWidth = 15
392             ErgebnisBlatt.Cells(3, Spalte + 2).Font.Bold = True
393             ErgebnisBlatt.Cells(3, Spalte + 2).Value = "C(i)"
394
395             ErgebnisBlatt.Columns(Spalte + 3).NumberFormat = "0000000"
396             ErgebnisBlatt.Columns(Spalte + 3).ColumnWidth = 15
397             ErgebnisBlatt.Cells(3, Spalte + 3).Font.Bold = True
398             ErgebnisBlatt.Cells(3, Spalte + 3).Value = "Cinf(i)"
399         End If
400
401         ZeileLauf = ZeileLauf + 1
402
403         ErgebnisBlatt.Cells(ZeileLauf, Spalte + 1) = x(i)
404         ErgebnisBlatt.Cells(ZeileLauf, Spalte + 2) = C(i)
405         ErgebnisBlatt.Cells(ZeileLauf, Spalte + 3) = Cinf(i)
406
407     End If
408 Next i
409
410 'C(0) = C(1)
411 C(n + 1) = C(n)
412
413 Next t
414
415 ErgebnisBlatt.Select
416
417 MsgBox "fertig"
418
419 '-----
420
421 Ende_Sub:
422
423 '-----
424
425 End Sub
```

**F) Parameter der Modellböden**

- a) Porosität und Trockendichte des Sand/Tailings-Gemisches in den Glaszylindern (Zylinder I bis V)

	Zylinder I	Zylinder II	Zylinder III	Zylinder IV	Zylinder V
mBoden [kg]	16,378	16,844	16,507	16,813	17,137
VZylinder [l]	11,4	11,4	11,4	11,4	11,4
$\rho_{\text{Boden}}$ [g cm <sup>-3</sup> ]	1,44	1,48	1,45	1,47	1,5
n	0,46	0,44	0,45	0,44	0,43

$$\rho_{\text{Boden}} = \frac{m_{\text{Boden}}}{V_{\text{Zylinder}}} \quad [19]$$

$\rho_{\text{Boden}}$  = Trockendichte des Bodens [g cm<sup>-3</sup>]

mBoden = Masse des Bodens [g]

VZylinder = Innenvolumen des Zylinders [cm<sup>3</sup>]

$$n = \frac{V_{\text{Zylinder}} - \frac{m_{\text{Boden}}}{\rho_{\text{Quarz}}}}{V_{\text{Zylinder}}} \quad [20]$$

n = Bodenporosität [-]

VZylinder = Innenvolumen des Zylinders [cm<sup>3</sup>]

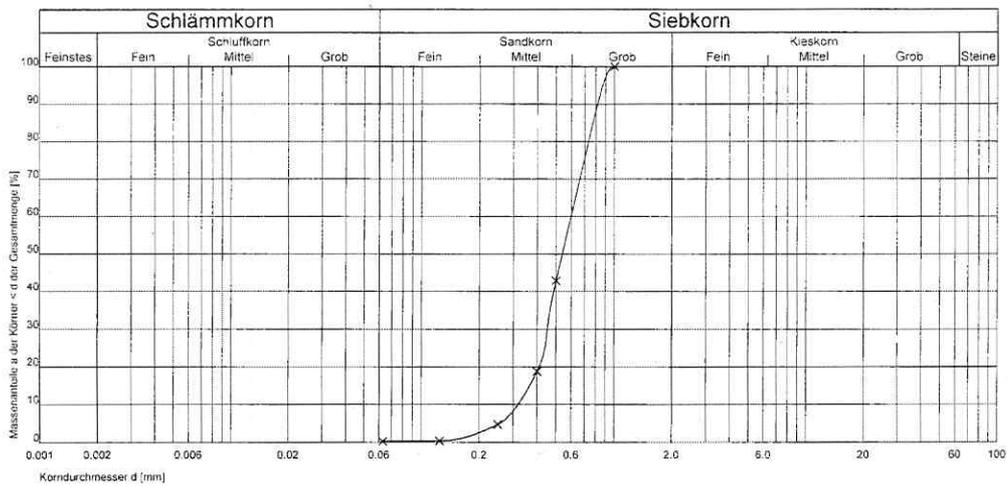
mBoden = Masse des Bodens [g]

$\rho_{\text{Quarz}}$  = Dichte von Quarz [g cm<sup>-3</sup>] (2,65 g cm<sup>-3</sup> nach Rösler, 1984)

b) Dichtezustand, Trockendichte, Porosität und exemplarische Sieblinien des Sandes in den Diffusionsgefäßen

Dichtezustand	Trockendichte [g cm <sup>-3</sup> ]	n [%]
lockerste Lagerung:	1,36	48,3
Proctorverdichtung [%]		
90	1,43	45,7
95	1,51	42,6
97	1,54	41,5
100	1,59	39,6

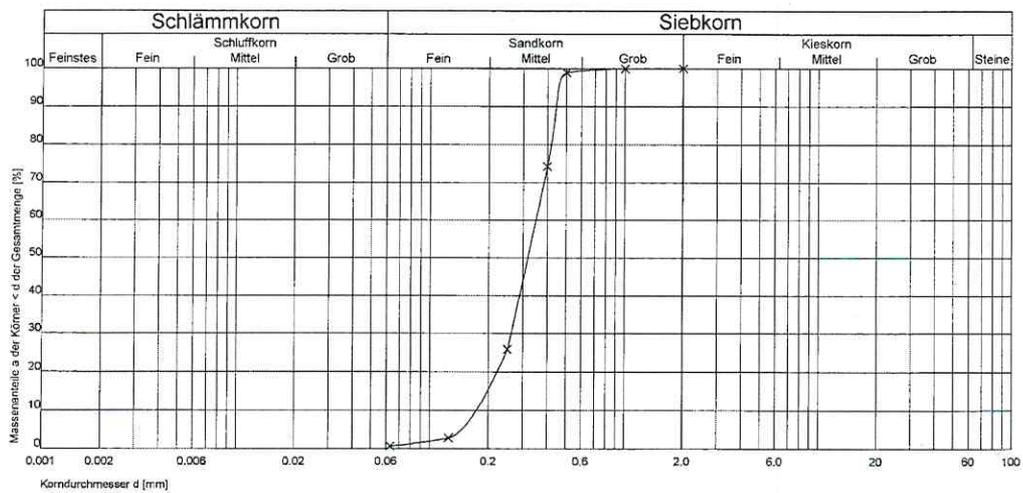
Korngrößenverteilung:



- c) Dichtezustand, Trockendichte, Porosität und exemplarische Sieblinien des Sandes in den Bodensäulen (GAMS) nach Schubert (1999)

Dichtezustand	Trockendichte [g cm <sup>-3</sup> ]	n [%]
lockerste Lagerung:	1,35	48,7
Proctorverdichtung [%]		
90	1,42	46,1
95	1,50	43,0
97	1,53	41,9
100	1,58	40,0

Korngrößenverteilung:



d) Resultierende Radiumkonzentration des Sand/Tailings-Gemisches

In Glasschliffflaschen und Diffusionsgefäßen:

**Mischungsverhältnis Sand/Tailing 20:1**

21 Teile = 100% bzw. 1,0

1 Teil =  $1/21 = 4,76\%$  bzw. 0,0476

20 Teile =  $20/21 = 95,23\%$  bzw. 0,9523

Resultierende Radiumkonzentration des Gemisches:

$$5 \text{ Bq kg}^{-1} \cdot 0,9523 + 2700 \text{ Bq kg}^{-1} \cdot 0,0476 = 133 \text{ Bq kg}^{-1}$$

In Bodensäulen nach Schubert (1999; GAMS):

**Mischungsverhältnis Sand/Tailing 10:1**

11 Teile = 100% bzw. 1,0

1 Teil =  $1/11 = 9,09\%$  bzw. 0,0909

10 Teile =  $10/11 = 90,91\%$  bzw. 0,9091

Resultierende Radiumkonzentration des Gemisches:

$$5 \text{ Bq kg}^{-1} \cdot 0,9091 + 2700 \text{ Bq kg}^{-1} \cdot 0,0909 = 250 \text{ Bq kg}^{-1}$$

G) Korrekturfaktoren A und C für die Lukaszellen

Time	A			C		
	Minutes	Hours	Days	Hours	Minutes	
0	1,00000	1,0000	1,00000			
1	0,99987	0,9925	0,83431		1,00378	
2	0,99975	0,9850	0,69607		1,00757	
3	0,99962	0,9776	0,58074		1,01136	
4	0,99950	0,9703	0,48451		1,01517	
5	0,99937	0,9630	0,40423		1,01899	
6	0,99925	0,9557	0,33726		1,02281	
7	0,99912	0,9485	0,26138		1,02665	
8	0,99899	0,9414	0,23475		1,03050	
9	0,99887	0,9343	0,19586		1,03435	
10	0,99874	0,9273	0,16341		1,03821	
11	0,99862	0,9203	0,13633		1,04209	
12	0,99849	0,9134	0,11374		1,04597	
13	0,99837	0,9065	0,09490		1,04986	
14	0,99824	0,8997	0,07917		1,05377	
15	0,99811	0,8930	0,06605		1,05768	1,00094
16	0,99799	0,8862	0,05511		1,06160	
17	0,99786	0,8796	0,04598		1,06553	
18	0,99774	0,8730	0,03836		1,06947	
19	0,99761	0,8664	0,03200		1,07342	
20	0,99749	0,8599	0,02670		1,07738	
21	0,99736	0,8534	0,02228		1,08135	
22	0,99724	0,8470	0,01859		1,08532	
23	0,99711	0,8406	0,01551		1,08931	
24	0,99699	0,8343	0,01294		1,09331	
25	0,99686	0,8280	0,01079		1,09732	
26	0,99673	0,8218	0,00901		1,10133	
27	0,99661	0,8156	0,00751		1,10536	
28	0,99648	0,8095	0,00627		1,10939	
29	0,99636	0,8034	0,00523		1,11344	
30	0,99623	0,7974	0,00436		1,11749	1,00188
31	0,99611	0,7914	0,00364		1,12155	
32	0,99598	0,7854	0,00304		1,12562	
33	0,99586	0,7795	0,00253		1,12971	
34	0,99573	0,7737	0,00211		1,13380	
35	0,99561	0,7678	0,00176		1,13790	
36	0,99548	0,7621	0,00147		1,14201	
37	0,99536	0,7563	0,00123		1,14613	
38	0,99523	0,7506	0,00102		1,15026	
39	0,99511	0,7450	0,00085		1,15440	
40	0,99498	0,7394	0,00071		1,15854	
41	0,99486	0,7338	0,00059		1,16270	
42	0,99473	0,7283	0,00050		1,16687	
43	0,99461	0,7228	0,00041		1,17105	
44	0,99448	0,7174	0,00035		1,17523	
45	0,99435	0,7120	0,00029		1,17943	1,02830
46	0,99423	0,7067	0,00024		1,18363	
47	0,99410	0,7013	0,00020		1,18784	
48	0,99398	0,6961	0,00017		1,19207	
49	0,99385	0,6908	0,00014		1,19630	
50	0,99373	0,6856	0,00012		1,20054	
51	0,99360	0,6805	0,00010		1,20479	
52	0,99348	0,6754	0,00008		1,20905	
53	0,99335	0,6703	0,00007		1,21332	
54	0,99323	0,6653	0,00006		1,21760	
55	0,99310	0,6603	0,00005		1,22189	
56	0,99298	0,6553	0,00004		1,22619	
57	0,99286	0,6504	0,00003		1,23050	

## H) Anfangs- und Randbedingungen

### a) Diffusionsgefäße

Folgende räumlich und zeitlich konstante Parameter werden für Berechnungen in allen Diffusionsgefäßen herangezogen:

Faktor zur zeitlichen Diskretisierung $\eta$	= 0,5
Zeitschritt $\Delta t$	= 0,167 [h]
Gesamtlaufzeit $t_{\max}$	= 1000 [h]
Anzahl der anzuzeigenden letzten Zeitschritte	= 2
Zerfallskonstante $\lambda$	= $2,1 \cdot 10^{-6}$ [Z h <sup>-1</sup> ]
mittlere Fließgeschwindigkeit $v$	= 0,0 [m s <sup>-1</sup> ]
Diffusionskoeffizient von Radon in Luft $D_{e,L}$	= $1,2 \cdot 10^{-5}$ [m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> ]
Rn-Verteilungskoeffizient zwischen Olivenöl und Luft $K_{Oliv/L}$	= 10,9
Rn-Verteilungskoeffizient zwischen Wasser und Luft $K_{W/L}$	= 0,26

*Diffusionsgefäß ohne Öl*

Folgende Parameter werden für Berechnungen des Diffusionskoeffizienten von Radon im geschlossenen Diffusionsgefäß ohne Öl herangezogen:

Oberfläche	empirische Konstante		$D_{e,L} \cdot 10^{-6}$ [m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> ]
	b	m	
geschlossen	0,2	1,9	0,52
offen	1,15	1,0	6,21

Folgende räumlich variable Parameter werden sowohl für Berechnungen im geschlossenen, als auch offenen Diffusionsgefäß ohne Olivenöl zum Startzeitpunkt herangezogen. Es sei betont, dass der Wert von  $n_L$  des Kompartimentes  $i = 0$  (vgl. unten) nur im geschlossenen (nicht vollständig versiegelten) Gefäß 0,03 beträgt, im offenen Gefäß dagegen 0,446.

i	C	$\Delta x$	$S_{NAPL}$	$S_W$	$n_i$	$n_L$	$C_{Ra}$	$\epsilon$	$\rho$
[-]	[Bq m <sup>-3</sup> ]	[m]	[-]	[-]	[-]	[-]	[Bq kg <sup>-1</sup> ]	[-]	[kg m <sup>-3</sup> ]
0	0	0,05	0	0,01	0,45	0,030	130	0,638	1400
1	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	130	0,638	1400
2	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	130	0,638	1400
3	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	135	0,638	1450
4	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	135	0,638	1450
5	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	135	0,638	1450
6	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	135	0,638	1450
7	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	135	0,638	1450
8	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	135	0,638	1450
9	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	135	0,638	1450
10	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	135	0,638	1450
11	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	135	0,638	1450
12	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	135	0,638	1450
13	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	135	0,638	1450
14	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	135	0,638	1450
15	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	135	0,638	1450
16	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	135	0,638	1450
17	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	135	0,638	1450
18	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	135	0,638	1450
19	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	135	0,638	1450
20	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	135	0,638	1450
21	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	135	0,638	1450
22	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	135	0,638	1450
23	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	135	0,638	1450
24	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	130	0,638	1420
25	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	130	0,638	1420
26	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	130	0,638	1420
27	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	130	0,638	1420
28	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	130	0,638	1420
29	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	130	0,638	1420
30	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	130	0,638	1420

*Diffusionsgefäß mit Öl*

Folgende Parameter werden für Berechnungen des Diffusionskoeffizienten von Radon im geschlossenen Diffusionsgefäß mit Öl herangezogen:

Oberfläche	empirische Konstante		S <sub>NAPL</sub> [-]	D <sub>e,L</sub> ·10 <sup>-6</sup> [m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> ]
	b	m		
geschlossen	1,0	1,0	0,0	5,35
			0,2	4,27
offen	1,025	1,0	0,0	5,48
			0,2	4,37

Folgende räumlich variable Parameter werden sowohl für Berechnungen im geschlossenen, als auch offenen Diffusionsgefäß mit Olivenöl zum Startzeitpunkt herangezogen. Es sei betont, dass der Wert von n<sub>L</sub> des Kompartimentes i = 0 (vgl. unten) nur im geschlossenen (nicht vollständig versiegelten) Gefäß 0,000725 beträgt, im offenen dagegen Gefäß 0,446.

i	C	Δx	S <sub>NAPL</sub>	S <sub>W</sub>	n <sub>i</sub>	n <sub>L</sub>	C <sub>Ra</sub>	ε	ρ
[-]	[Bq m <sup>-3</sup> ]	[m]	[-]	[-]	[-]	[-]	[Bq kg <sup>-1</sup> ]	[-]	[kg m <sup>-3</sup> ]
0	0	0,05	0	0,01	0,45	0,000725	130	0,638	1420
1	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	130	0,638	1420
2	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	130	0,638	1420
3	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	130	0,638	1420
4	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	130	0,638	1420
5	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	133	0,638	1450
6	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	133	0,638	1450
7	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	133	0,638	1450
8	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	133	0,638	1450
9	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	133	0,638	1450
10	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	133	0,638	1450
11	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	133	0,638	1450
12	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	133	0,638	1450
13	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	133	0,638	1450
14	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	133	0,638	1450
15	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	133	0,638	1450
16	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	133	0,638	1450
17	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	133	0,638	1450
18	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	133	0,638	1450
19	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	133	0,638	1450
20	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	133	0,638	1450
21	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	133	0,638	1450
22	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	133	0,638	1450
23	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	133	0,638	1450
24	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	133	0,638	1450
25	0	0,05	0	0,01	0,45	0,446	133	0,638	1450
26	0	0,05	0,2	0,01	0,45	0,356	133	0,638	1450
27	0	0,05	0,2	0,01	0,45	0,356	133	0,638	1450
28	0	0,05	0,2	0,01	0,45	0,356	133	0,638	1450
29	0	0,05	0,2	0,01	0,45	0,356	133	0,638	1450
30	0	0,05	0,2	0,01	0,45	0,356	133	0,638	1450

b) Modellrechnungen

Als obere Randbedingung wird in jedem Fall die constant concentration Randbedingung  $C(0) = 0$  verwendet.

Als untere Randbedingung wird in jedem Fall die no flow Bedingung  $C(n+1) = C(n)$  verwendet.

Folgende räumlich und zeitlich konstante Parameter werden für alle Modellrechnungen herangezogen:

Faktor zur zeitlichen Diskretisierung $\eta$	= 0,5
Zeitschritt $\Delta t$	= 0,167 [h]
Gesamtlaufzeit $t_{\max}$	= 1000 [h]
Anzahl der anzuzeigenden letzten Zeitschritte	= 2
Zerfallskonstante $\lambda$	= $2,1 \cdot 10^{-6}$ [Z h <sup>-1</sup> ]
mittlere Fließgeschwindigkeit $v$	= 0,0 [m s <sup>-1</sup> ]
Diffusionskoeffizient von Radon in Luft $D_{e,L}$	= $1,2 \cdot 10^{-5}$ [m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> ]
Rn-Verteilungskoeffizient zwischen Olivenöl und Luft $K_{Oliv/L}$	= 10,9
Rn-Verteilungskoeffizient zwischen Wasser und Luft $K_{W/L}$	= 0,26

Folgende Parameter werden für Berechnungen des Diffusionskoeffizienten von Radon bei homogener Wasserverteilung herangezogen:

Substrat	empirische Konstante		$n_w$ [-]	$D_{e,L} \cdot 10^{-6}$ [m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> ]
	<b>b</b>	<b>m</b>		
Lehm	0,92	1,7	0,38	0,3
Sand	0,61	1,0	0,14	1,9

Es sei betont, dass der Wert von  $n_w$  bei homogener Wasserverteilung in jedem Kompartiment 0,38 (Lehm) bzw. 0,14 (Sand) beträgt.

Anfangsbedingungen Lehm:

i	dx	P	C	S <sub>N</sub>	S <sub>w</sub>	n <sub>w</sub>	S <sub>L</sub>	n <sub>i</sub>	RTF	D <sub>e</sub>	ε	C <sub>Ra</sub>	ρ
	[m]	[cm]	[Bq m <sup>-3</sup> ]	[-]	[-]	[-]	[-]	[-]	[-]	[m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> ]	[-]	[Bq kg <sup>-1</sup> ]	[kg m <sup>-3</sup> ]
0	0,05	231	0	0,00	0,79	0,39	0,21	0,5	1,88	2,48E-07	0,3	100	1325
1	0,05	226	0	0,00	0,79	0,39	0,21	0,5	1,89	2,44E-07	0,3	100	1325
2	0,05	221	0	0,00	0,79	0,39	0,21	0,5	1,90	2,41E-07	0,3	100	1325
3	0,05	216	0	0,00	0,79	0,40	0,21	0,5	1,91	2,37E-07	0,3	100	1325
4	0,05	211	0	0,00	0,79	0,40	0,21	0,5	1,92	2,34E-07	0,3	100	1325
5	0,05	206	0	0,00	0,79	0,40	0,21	0,5	1,93	2,30E-07	0,3	100	1325
6	0,05	201	0	0,00	0,80	0,40	0,20	0,5	1,94	2,27E-07	0,3	100	1325
7	0,05	196	0	0,00	0,80	0,40	0,20	0,5	1,95	2,23E-07	0,3	100	1325
8	0,05	191	0	0,00	0,80	0,40	0,20	0,5	1,96	2,19E-07	0,3	100	1325
9	0,05	186	0	0,00	0,80	0,40	0,20	0,5	1,98	2,15E-07	0,3	100	1325
10	0,05	181	0	0,00	0,80	0,40	0,20	0,5	1,99	2,11E-07	0,3	100	1325
11	0,05	176	0	0,00	0,81	0,40	0,19	0,5	2,00	2,07E-07	0,3	100	1325
12	0,05	171	0	0,00	0,81	0,40	0,19	0,5	2,02	2,03E-07	0,3	100	1325
13	0,05	166	0	0,00	0,81	0,41	0,19	0,5	2,03	1,99E-07	0,3	100	1325
14	0,05	161	0	0,00	0,81	0,41	0,19	0,5	2,05	1,95E-07	0,3	100	1325
15	0,05	156	0	0,00	0,82	0,41	0,18	0,5	2,07	1,91E-07	0,3	100	1325
16	0,05	151	0	0,00	0,82	0,41	0,18	0,5	2,08	1,86E-07	0,3	100	1325
17	0,05	146	0	0,00	0,82	0,41	0,18	0,5	2,10	1,82E-07	0,3	100	1325
18	0,05	141	0	0,00	0,82	0,41	0,18	0,5	2,12	1,77E-07	0,3	100	1325
19	0,05	136	0	0,00	0,83	0,41	0,17	0,5	2,14	1,73E-07	0,3	100	1325
20	0,05	131	0	0,00	0,83	0,41	0,17	0,5	2,17	1,68E-07	0,3	100	1325
21	0,05	126	0	0,00	0,83	0,42	0,17	0,5	2,19	1,63E-07	0,3	100	1325
22	0,05	121	0	0,00	0,84	0,42	0,16	0,5	2,22	1,58E-07	0,3	100	1325
23	0,05	116	0	0,00	0,84	0,42	0,16	0,5	2,25	1,53E-07	0,3	100	1325
24	0,05	111	0	0,00	0,84	0,42	0,16	0,5	2,28	1,48E-07	0,3	100	1325
25	0,05	106	0	0,00	0,85	0,42	0,15	0,5	2,31	1,42E-07	0,3	100	1325
26	0,05	101	0	0,00	0,85	0,42	0,15	0,5	2,35	1,37E-07	0,3	100	1325
27	0,05	96	0	0,00	0,85	0,43	0,15	0,5	2,39	1,31E-07	0,3	100	1325
28	0,05	91	0	0,00	0,86	0,43	0,14	0,5	2,43	1,25E-07	0,3	100	1325
29	0,05	86	0	0,00	0,86	0,43	0,14	0,5	2,48	1,19E-07	0,3	100	1325
30	0,05	81	0	0,00	0,86	0,43	0,14	0,5	2,53	1,13E-07	0,3	100	1325
31	0,05	76	0	0,00	0,87	0,43	0,13	0,5	2,60	1,07E-07	0,3	100	1325
32	0,05	71	0	0,00	0,87	0,44	0,13	0,5	2,66	1,01E-07	0,3	100	1325
33	0,05	66	0	0,00	0,88	0,44	0,12	0,5	2,74	9,39E-08	0,3	100	1325
34	0,05	61	0	0,00	0,88	0,44	0,12	0,5	2,83	8,71E-08	0,3	100	1325
35	0,05	56	0	0,00	0,89	0,44	0,11	0,5	2,94	8,00E-08	0,3	100	1325
36	0,05	51	0	0,00	0,90	0,45	0,10	0,5	3,06	7,28E-08	0,3	100	1325
37	0,05	46	0	0,00	0,90	0,45	0,10	0,5	3,21	6,54E-08	0,3	100	1325
38	0,05	41	0	0,00	0,91	0,45	0,09	0,5	3,40	5,78E-08	0,3	100	1325
39	0,05	36	0	0,00	0,92	0,46	0,08	0,5	3,63	5,00E-08	0,3	100	1325
40	0,05	31	0	0,00	0,92	0,46	0,08	0,5	3,94	4,21E-08	0,3	100	1325
41	0,05	0	0	0,00	1,00	0,50	0,00	0,5	1,00	1,00E-11	0,3	100	1325
42	0,05	0	0	0,00	1,00	0,50	0,00	0,5	1,00	1,00E-11	0,3	100	1325
43	0,05	0	0	0,00	1,00	0,50	0,00	0,5	1,00	1,00E-11	0,3	100	1325
44	0,05	0	0	0,00	1,00	0,50	0,00	0,5	1,00	1,00E-11	0,3	100	1325

Anfangsbedingungen Sand:

i	dx [m]	P [cm]	C [Bq m <sup>-3</sup> ]	S <sub>N</sub> [-]	S <sub>w</sub> [-]	n <sub>w</sub> [-]	S <sub>L</sub> [-]	n <sub>i</sub> [-]	RTF [-]	D <sub>e</sub> [m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> ]	eps [-]	C <sub>Ra</sub> [Bq kg <sup>-1</sup> ]	rho [kg m <sup>-3</sup> ]
0	0,05	209	0	0,00	0,25	0,10	0,75	0,4	1,08	2,18E-06	0,3	100	1590
1	0,05	204	0	0,00	0,26	0,10	0,74	0,4	1,08	2,17E-06	0,3	100	1590
2	0,05	199	0	0,00	0,26	0,10	0,74	0,4	1,08	2,17E-06	0,3	100	1590
3	0,05	194	0	0,00	0,26	0,11	0,74	0,4	1,09	2,16E-06	0,3	100	1590
4	0,05	189	0	0,00	0,27	0,11	0,73	0,4	1,09	2,15E-06	0,3	100	1590
5	0,05	184	0	0,00	0,27	0,11	0,73	0,4	1,09	2,14E-06	0,3	100	1590
6	0,05	179	0	0,00	0,27	0,11	0,73	0,4	1,09	2,13E-06	0,3	100	1590
7	0,05	174	0	0,00	0,28	0,11	0,72	0,4	1,09	2,12E-06	0,3	100	1590
8	0,05	169	0	0,00	0,28	0,11	0,72	0,4	1,09	2,11E-06	0,3	100	1590
9	0,05	164	0	0,00	0,28	0,11	0,72	0,4	1,09	2,10E-06	0,3	100	1590
10	0,05	159	0	0,00	0,29	0,11	0,71	0,4	1,10	2,09E-06	0,3	100	1590
11	0,05	154	0	0,00	0,29	0,12	0,71	0,4	1,10	2,08E-06	0,3	100	1590
12	0,05	149	0	0,00	0,29	0,12	0,71	0,4	1,10	2,07E-06	0,3	100	1590
13	0,05	144	0	0,00	0,30	0,12	0,70	0,4	1,10	2,05E-06	0,3	100	1590
14	0,05	139	0	0,00	0,30	0,12	0,70	0,4	1,10	2,04E-06	0,3	100	1590
15	0,05	134	0	0,00	0,31	0,12	0,69	0,4	1,11	2,02E-06	0,3	100	1590
16	0,05	129	0	0,00	0,31	0,13	0,69	0,4	1,11	2,01E-06	0,3	100	1590
17	0,05	124	0	0,00	0,32	0,13	0,68	0,4	1,11	1,99E-06	0,3	100	1590
18	0,05	119	0	0,00	0,32	0,13	0,68	0,4	1,12	1,98E-06	0,3	100	1590
19	0,05	114	0	0,00	0,33	0,13	0,67	0,4	1,12	1,96E-06	0,3	100	1590
20	0,05	109	0	0,00	0,34	0,13	0,66	0,4	1,12	1,94E-06	0,3	100	1590
21	0,05	104	0	0,00	0,34	0,14	0,66	0,4	1,13	1,92E-06	0,3	100	1590
22	0,05	99	0	0,00	0,35	0,14	0,65	0,4	1,13	1,90E-06	0,3	100	1590
23	0,05	94	0	0,00	0,36	0,14	0,64	0,4	1,13	1,88E-06	0,3	100	1590
24	0,05	89	0	0,00	0,37	0,15	0,63	0,4	1,14	1,85E-06	0,3	100	1590
25	0,05	84	0	0,00	0,38	0,15	0,62	0,4	1,15	1,82E-06	0,3	100	1590
26	0,05	79	0	0,00	0,39	0,15	0,61	0,4	1,15	1,79E-06	0,3	100	1590
27	0,05	74	0	0,00	0,40	0,16	0,60	0,4	1,16	1,76E-06	0,3	100	1590
28	0,05	69	0	0,00	0,41	0,16	0,59	0,4	1,17	1,73E-06	0,3	100	1590
29	0,05	64	0	0,00	0,42	0,17	0,58	0,4	1,18	1,69E-06	0,3	100	1590
30	0,05	59	0	0,00	0,44	0,18	0,56	0,4	1,19	1,64E-06	0,3	100	1590
31	0,05	54	0	0,00	0,46	0,18	0,54	0,4	1,20	1,59E-06	0,3	100	1590
32	0,05	49	0	0,00	0,48	0,19	0,52	0,4	1,22	1,54E-06	0,3	100	1590
33	0,05	44	0	0,00	0,50	0,20	0,50	0,4	1,24	1,47E-06	0,3	100	1590
34	0,05	39	0	0,00	0,52	0,21	0,48	0,4	1,27	1,39E-06	0,3	100	1590
35	0,05	34	0	0,00	0,56	0,22	0,44	0,4	1,30	1,30E-06	0,3	100	1590
36	0,05	29	0	0,00	0,60	0,24	0,40	0,4	1,35	1,18E-06	0,3	100	1590
37	0,05	24	0	0,00	0,65	0,26	0,353	0,4	1,44	1,03E-06	0,3	100	1590
38	0,05	19	0	0,00	0,72	0,29	0,285	0,4	1,60	8,33E-07	0,3	100	1590
39	0,05	14	0	0,00	0,82	0,33	0,184	0,4	2,06	5,39E-07	0,3	100	1590
40	0,05	9	0	0,00	0,99	0,39	0,013	0,4	19,23	3,81E-08	0,3	100	1590
41	0,05	0	0	0,00	1,00	1,00	0,000	0,4	1,00	1,00E-10	0,3	100	1590
42	0,05	0	0	0,00	1,00	1,00	0,000	0,4	1,00	1,00E-10	0,3	100	1590
43	0,05	0	0	0,00	1,00	1,00	0,000	0,4	1,00	1,00E-10	0,3	100	1590
44	0,05	0	0	0,00	1,00	1,00	0,000	0,4	1,00	1,00E-10	0,3	100	1590

Modellrechnungen zur NAPL-Schichtdicke und NAPL-Sättigung

Schematischer Aufbau der Bodensäule mit der NAPL-Schichtdicke 0,1 m und der NAPL-Sättigung 0,05:

2,0 m Sand;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = FK$

**0,1 m Sand;  $S_{NAPL} = 0,05$ ;  $S_W = FK$**

0,1 m Sand;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = 1$



Anfangsbedingungen ( $\epsilon(i)$ ,  $CRa(i)$  und  $\rho(i)$  wie oben bei Sand):

i	dx	C	$S_N$	$n_N$	$S_W$	$n_W$	$S_L$	$n_i$	$n_L$	RTF	De
[-]	[m]	[Bq m <sup>-3</sup> ]	[-]	[-]	[-]	[-]	[-]	[-]	[-]	[-]	[m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> ]
0	0,05	0	0,00	0,00	0,35	0,14	0,65	0,4	0,26	1,13	1,90E-06
1	0,05	0	0,00	0,00	0,35	0,14	0,65	0,4	0,26	1,13	1,90E-06
:	:	:	:	:	:	:	:	:	:	:	:
38	0,05	0	0,00	0,00	0,35	0,14	0,65	0,4	0,26	1,13	1,90E-06
39	0,04	0	0,00	0,00	0,35	0,14	0,65	0,4	0,26	1,13	1,90E-06
40	0,03	0	0,00	0,00	0,35	0,14	0,65	0,4	0,26	1,13	1,90E-06
41	0,02	0	0,00	0,00	0,35	0,14	0,65	0,4	0,26	1,13	1,90E-06
42	0,01	0	0,00	0,00	0,35	0,14	0,65	0,4	0,26	1,13	1,90E-06
43	0,01	0	0,05	0,02	0,35	0,14	0,60	0,4	0,240	2,26	1,76E-06
44	0,02	0	0,05	0,02	0,35	0,14	0,60	0,4	0,240	2,26	1,76E-06
45	0,02	0	0,05	0,02	0,35	0,14	0,60	0,4	0,240	2,26	1,76E-06
46	0,02	0	0,05	0,02	0,35	0,14	0,60	0,4	0,240	2,26	1,76E-06
47	0,02	0	0,05	0,02	0,35	0,14	0,60	0,4	0,240	2,26	1,76E-06
48	0,01	0	0,05	0,02	0,35	0,14	0,60	0,4	0,240	2,26	1,76E-06
49	0,01	0	0,00	0,00	1	0,40	0,00	0,4	0,00	1,00	1,00E-10
50	0,02	0	0,00	0,00	1	0,40	0,00	0,4	0,00	1,00	1,00E-10
51	0,03	0	0,00	0,00	1	0,40	0,00	0,4	0,00	1,00	1,00E-10
52	0,04	0	0,00	0,00	1	0,40	0,00	0,4	0,00	1,00	1,00E-10

In den folgenden Fällen ändern sich die Parameterwerte außerhalb der NAPL-haltigen Schicht nicht. Aus diesem Grund wird nachfolgend jeweils nur der NAPL-haltige Bereich dargestellt.

Schematischer Aufbau der Bodensäule mit der NAPL-Schichtdicke 0,1 m und der NAPL-Sättigung 0,1:

2,0 m Sand;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = FK$

0,1 m Sand;  $S_{NAPL} = 0,1$ ;  $S_W = FK$

0,1 m Sand;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = 1$



Anfangsbedingungen ( $\epsilon(i)$ ,  $CRa(i)$  und  $\rho(i)$  wie oben bei Sand):

i	dx	C	$S_N$	$n_N$	$S_W$	$n_W$	$S_L$	$n_i$	$n_L$	RTF	$D_e \cdot 10^{-6}$
43	0,01	0	0,10	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61
44	0,02	0	0,10	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61
45	0,02	0	0,10	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61
46	0,02	0	0,10	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61
47	0,02	0	0,10	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61
48	0,01	0	0,10	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61

Schematischer Aufbau der Bodensäule mit der NAPL-Schichtdicke 0,1 m und der NAPL-Sättigung 0,2:

2,0 m Sand;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = FK$

0,1 m Sand;  $S_{NAPL} = 0,2$ ;  $S_W = FK$

0,1 m Sand;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = 1$



Anfangsbedingungen ( $\epsilon(i)$ ,  $CRa(i)$  und  $\rho(i)$  wie oben bei Sand):

i	dx	C	$S_N$	$n_N$	$S_W$	$n_W$	$S_L$	$n_i$	$n_L$	RTF	$D_e \cdot 10^{-6}$
43	0,01	0	0,20	0,08	0,35	0,14	0,45	0,4	0,18	7,14	1,32
44	0,02	0	0,20	0,08	0,35	0,14	0,45	0,4	0,18	7,14	1,32
45	0,02	0	0,20	0,08	0,35	0,14	0,45	0,4	0,18	7,14	1,32
46	0,02	0	0,20	0,08	0,35	0,14	0,45	0,4	0,18	7,14	1,32
47	0,02	0	0,20	0,08	0,35	0,14	0,45	0,4	0,18	7,14	1,32
48	0,01	0	0,20	0,08	0,35	0,14	0,45	0,4	0,18	7,14	1,32

Schematischer Aufbau der Bodensäule mit der NAPL-Schichtdicke 0,2 m und der NAPL-Sättigung 0,05:

2,0 m Sand;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = FK$

**0,2 m Sand;  $S_{NAPL} = 0,05$ ;  $S_W = FK$**

0,1 m Sand;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = 1$



Anfangsbedingungen ( $\epsilon(i)$ ,  $C_{Ra}(i)$  und  $\rho(i)$  wie oben bei Sand):

i	dx	C	$S_{NAPL}$	$n_{NAPL}$	$S_W$	$n_W$	$S_L$	$n_i$	$n_l$	RTF	$D_c \cdot 10^{-6}$
44	0,01	0	0,05	0,02	0,35	0,14	0,60	0,4	0,24	2,26	1,76
45	0,02	0	0,05	0,02	0,35	0,14	0,60	0,4	0,24	2,26	1,76
46	0,03	0	0,05	0,02	0,35	0,14	0,60	0,4	0,24	2,26	1,76
47	0,04	0	0,05	0,02	0,35	0,14	0,60	0,4	0,24	2,26	1,76
48	0,04	0	0,05	0,02	0,35	0,14	0,60	0,4	0,24	2,26	1,76
48	0,03	0	0,05	0,02	0,35	0,14	0,60	0,4	0,24	2,26	1,76
49	0,02	0	0,05	0,02	0,35	0,14	0,60	0,4	0,24	2,26	1,76
50	0,01	0	0,05	0,02	0,35	0,14	0,60	0,4	0,24	2,26	1,76

Schematischer Aufbau der Bodensäule mit der NAPL-Schichtdicke 0,2 m und der NAPL-Sättigung 0,1:

2 m Sand;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = FK$

**0,2 m Sand;  $S_{NAPL} = 0,1$ ;  $S_W = FK$**

0,1 m Sand;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = 1$



Anfangsbedingungen ( $\epsilon(i)$ ,  $C_{Ra}(i)$  und  $\rho(i)$  wie oben bei Sand):

i	dx	C	$S_{NAPL}$	$n_{NAPL}$	$S_W$	$n_W$	$S_L$	$n_i$	$n_l$	RTF	$D_c \cdot 10^{-6}$
44	0,01	0	0,10	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61
45	0,02	0	0,10	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61
46	0,03	0	0,10	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61
47	0,04	0	0,10	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61
48	0,04	0	0,10	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61
48	0,03	0	0,10	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61
49	0,02	0	0,10	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61
50	0,01	0	0,10	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61

Schematischer Aufbau der Bodensäule mit der NAPL-Schichtdicke 0,2 m und der NAPL-Sättigung 0,2:

2,0 m Sand;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = FK$

**0,2 m Sand;  $S_{NAPL} = 0,2$ ;  $S_W = FK$**

0,1 m Sand;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = 1$



Anfangsbedingungen ( $\epsilon(i)$ ,  $C_{Ra}(i)$  und  $\rho(i)$  wie oben bei Sand):

i	dx	C	$S_N$	$n_N$	$S_W$	$n_W$	$S_L$	$n_i$	$n_L$	RTF	$D_c \cdot 10^{-6}$
43	0,01	0	0,20	0,08	0,35	0,14	0,45	0,4	0,18	7,14	1,32
44	0,02	0	0,20	0,08	0,35	0,14	0,45	0,4	0,18	7,14	1,32
45	0,03	0	0,20	0,08	0,35	0,14	0,45	0,4	0,18	7,14	1,32
46	0,04	0	0,20	0,08	0,35	0,14	0,45	0,4	0,18	7,14	1,32
47	0,04	0	0,20	0,08	0,35	0,14	0,45	0,4	0,18	7,14	1,32
48	0,03	0	0,20	0,08	0,35	0,14	0,45	0,4	0,18	7,14	1,32
49	0,02	0	0,20	0,08	0,35	0,14	0,45	0,4	0,18	7,14	1,32
50	0,01	0	0,20	0,08	0,35	0,14	0,45	0,4	0,18	7,14	1,32

Schematischer Aufbau der Bodensäule mit der NAPL-Schichtdicke 0,5 m und der NAPL-Sättigung 0,05:

2,0 m Sand;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = FK$

**0,5 m Sand;  $S_{NAPL} = 0,05$ ;  $S_W = FK$**

0,1 m Sand;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = 1$



Anfangsbedingungen ( $\epsilon(i)$ ,  $C_{Ra}(i)$  und  $\rho(i)$  wie oben bei Sand):

i	dx	C	$S_N$	$n_N$	$S_W$	$n_W$	$S_L$	$n_i$	$n_L$	RTF	$D_c \cdot 10^{-6}$
43	0,01	0	0,05	0,02	0,35	0,14	0,60	0,4	0,240	2,26	1,76
44	0,02	0	0,05	0,02	0,35	0,14	0,60	0,4	0,240	2,26	1,76
45	0,03	0	0,05	0,02	0,35	0,14	0,60	0,4	0,240	2,26	1,76
46	0,04	0	0,05	0,02	0,35	0,14	0,60	0,4	0,240	2,26	1,76
47	0,05	0	0,05	0,02	0,35	0,14	0,60	0,4	0,240	2,26	1,76
48	0,05	0	0,05	0,02	0,35	0,14	0,60	0,4	0,240	2,26	1,76
49	0,05	0	0,05	0,02	0,35	0,14	0,60	0,4	0,240	2,26	1,76
50	0,05	0	0,05	0,02	0,35	0,14	0,60	0,4	0,240	2,26	1,76
51	0,05	0	0,05	0,02	0,35	0,14	0,60	0,4	0,240	2,26	1,76
52	0,05	0	0,05	0,02	0,35	0,14	0,60	0,4	0,240	2,26	1,76
53	0,04	0	0,05	0,02	0,35	0,14	0,60	0,4	0,240	2,26	1,76
54	0,03	0	0,05	0,02	0,35	0,14	0,60	0,4	0,240	2,26	1,76
55	0,02	0	0,05	0,02	0,35	0,14	0,60	0,4	0,240	2,26	1,76
56	0,01	0	0,05	0,02	0,35	0,14	0,60	0,4	0,240	2,26	1,76

Schematischer Aufbau der Bodensäule mit der NAPL-Schichtdicke 0,5 m und der NAPL-Sättigung 0,1:

2,0 m Sand;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = FK$

**0,5 m Sand;  $S_{NAPL} = 0,1$ ;  $S_W = FK$**

0,1 m Sand;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = 1$



Anfangsbedingungen ( $\epsilon(i)$ ,  $C_{Ra}(i)$  und  $\rho(i)$  wie oben bei Sand):

i	dx	C	$S_N$	$n_N$	$S_W$	$n_W$	$S_L$	$n_i$	$n_L$	RTF	$D_c \cdot 10^{-6}$
43	0,01	0	0,10	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61
44	0,02	0	0,10	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61
45	0,03	0	0,10	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61
46	0,04	0	0,10	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61
47	0,05	0	0,10	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61
48	0,05	0	0,10	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61
49	0,05	0	0,10	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61
50	0,05	0	0,10	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61
51	0,05	0	0,10	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61
52	0,05	0	0,10	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61
53	0,04	0	0,10	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61
54	0,03	0	0,10	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61
55	0,02	0	0,10	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61
56	0,01	0	0,10	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61

Schematischer Aufbau der Bodensäule mit der NAPL-Schichtdicke 0,5 m und der NAPL-Sättigung 0,2:

2,0 m Sand;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = FK$

**0,5 m Sand;  $S_{NAPL} = 0,2$ ;  $S_W = FK$**

0,1 m Sand;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = 1$



Anfangsbedingungen ( $\epsilon(i)$ ,  $C_{Ra}(i)$  und  $\rho(i)$  wie oben bei Sand):

i	dx	C	$S_N$	$n_N$	$S_W$	$n_W$	$S_L$	$n_i$	$n_L$	R	$D_c \cdot 10^{-6}$
43	0,01	0	0,20	0,08	0,35	0,14	0,45	0,4	0,18	7,14	1,32
44	0,02	0	0,20	0,08	0,35	0,14	0,45	0,4	0,18	7,14	1,32
45	0,03	0	0,20	0,08	0,35	0,14	0,45	0,4	0,18	7,14	1,32
46	0,04	0	0,20	0,08	0,35	0,14	0,45	0,4	0,18	7,14	1,32
47	0,05	0	0,20	0,08	0,35	0,14	0,45	0,4	0,18	7,14	1,32
48	0,05	0	0,20	0,08	0,35	0,14	0,45	0,4	0,18	7,14	1,32
49	0,05	0	0,20	0,08	0,35	0,14	0,45	0,4	0,18	7,14	1,32
50	0,05	0	0,20	0,08	0,35	0,14	0,45	0,4	0,18	7,14	1,32
51	0,05	0	0,20	0,08	0,35	0,14	0,45	0,4	0,18	7,14	1,32
52	0,05	0	0,20	0,08	0,35	0,14	0,45	0,4	0,18	7,14	1,32
53	0,04	0	0,20	0,08	0,35	0,14	0,45	0,4	0,18	7,14	1,32
54	0,03	0	0,20	0,08	0,35	0,14	0,45	0,4	0,18	7,14	1,32
55	0,02	0	0,20	0,08	0,35	0,14	0,45	0,4	0,18	7,14	1,32
56	0,01	0	0,20	0,08	0,35	0,14	0,45	0,4	0,18	7,14	1,32

Schematischer Aufbau der Bodensäule aus Lehm mit der NAPL-Schichtdicke 0,1 m und der NAPL-Sättigung 0,05:

2,0 m Lehm;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = FK$

**0,1 m Lehm;  $S_{NAPL} = 0,05$ ;  $S_W = FK$**

0,1 m Lehm;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = 1$



Anfangsbedingungen ( $\varepsilon(i)$ ,  $C_{Ra}(i)$  und  $\rho(i)$  wie oben bei Lehm):

i	dx	C	$S_N$	$n_N$	$S_W$	$n_W$	$S_L$	$n_i$	$n_L$	RTF	$D_e$
[-]	[m]	[Bq m <sup>-3</sup> ]	[-]	[-]	[-]	[-]	[-]	[-]	[-]	[-]	[m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> ]
0	0,05	0	0,00	0,00	0,76	0,38	0,24	0,5	0,120	1,13	3,0·10 <sup>-7</sup>
1	0,05	0	0,00	0,00	0,76	0,38	0,24	0,5	0,120	1,13	3,0·10 <sup>-7</sup>
:	:	:	:	:	:	:	:	:	:	:	:
38	0,05	0	0,00	0,00	0,76	0,38	0,24	0,5	0,120	1,13	3,0·10 <sup>-7</sup>
39	0,04	0	0,00	0,00	0,76	0,38	0,24	0,5	0,120	1,13	3,0·10 <sup>-7</sup>
40	0,03	0	0,00	0,00	0,76	0,38	0,24	0,5	0,120	1,13	3,0·10 <sup>-7</sup>
41	0,02	0	0,00	0,00	0,76	0,38	0,24	0,5	0,120	1,13	3,0·10 <sup>-7</sup>
42	0,01	0	0,00	0,00	0,76	0,38	0,24	0,5	0,120	1,13	3,0·10 <sup>-7</sup>
43	0,01	0	0,05	0,03	0,76	0,38	0,19	0,5	0,095	5,49	2,02·10 <sup>-7</sup>
44	0,02	0	0,05	0,03	0,76	0,38	0,19	0,5	0,095	5,49	2,02·10 <sup>-7</sup>
45	0,02	0	0,05	0,03	0,76	0,38	0,19	0,5	0,095	5,49	2,02·10 <sup>-7</sup>
46	0,02	0	0,05	0,03	0,76	0,38	0,19	0,5	0,095	5,49	2,02·10 <sup>-7</sup>
47	0,02	0	0,05	0,03	0,76	0,38	0,19	0,5	0,095	5,49	2,02·10 <sup>-7</sup>
48	0,01	0	0,05	0,03	0,76	0,38	0,19	0,5	0,095	5,49	2,02·10 <sup>-7</sup>
49	0,01	0	0,00	0,00	1,00	0,50	0,00	0,5	0,000	1,00	1,00·10 <sup>-11</sup>
50	0,02	0	0,00	0,00	1,00	0,50	0,00	0,5	0,000	1,00	1,00·10 <sup>-11</sup>
51	0,03	0	0,00	0,00	1,00	0,50	0,00	0,5	0,000	1,00	1,00·10 <sup>-11</sup>
52	0,04	0	0,00	0,00	1,00	0,50	0,00	0,5	0,000	1,00	1,00·10 <sup>-11</sup>

Schematischer Aufbau der Bodensäule aus Lehm mit der NAPL-Schichtdicke 0,1 m und der NAPL-Sättigung 0,1:

2,0 m Lehm;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = FK$

**0,1 m Lehm;  $S_{NAPL} = 0,1$ ;  $S_W = FK$**

0,1 m Lehm;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = 1$



Anfangsbedingungen ( $\varepsilon(i)$ ,  $C_{Ra}(i)$  und  $\rho(i)$  wie oben bei Lehm):

i	dx	C	$S_N$	$n_N$	$S_W$	$n_W$	$S_L$	$n_i$	$n_L$	RTF	$D_e \cdot 10^{-7}$
43	0,01	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2
44	0,02	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2
45	0,02	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2
46	0,02	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2
47	0,02	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2
48	0,01	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2

Schematischer Aufbau der Bodensäule aus Lehm mit der NAPL-Schichtdicke 0,1 m und der NAPL-Sättigung 0,2:

2,0 m Lehm;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = FK$

**0,1 m Lehm;  $S_{NAPL} = 0,2$ ;  $S_W = FK$**

0,1 m Lehm;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = 1$



Anfangsbedingungen ( $\epsilon(i)$ ,  $C_{Ra}(i)$  und  $p(i)$ ) wie oben bei Lehm):

i	dx	C	$S_N$	$n_N$	$S_W$	$n_W$	$S_L$	$n_i$	$n_L$	RTF	$D_c \cdot 10^{-8}$
43	0,01	0	0,20	0,10	0,76	0,38	0,04	0,5	0,02	72,56	1,43
44	0,02	0	0,20	0,10	0,76	0,38	0,04	0,5	0,02	72,56	1,43
45	0,02	0	0,20	0,10	0,76	0,38	0,04	0,5	0,02	72,56	1,43
46	0,02	0	0,20	0,10	0,76	0,38	0,04	0,5	0,02	72,56	1,43
47	0,02	0	0,20	0,10	0,76	0,38	0,04	0,5	0,02	72,56	1,43
48	0,01	0	0,20	0,10	0,76	0,38	0,04	0,5	0,02	72,56	1,43

Schematischer Aufbau der Bodensäule aus Lehm mit der NAPL-Schichtdicke 0,2 m und der NAPL-Sättigung 0,05:

2,0 m Lehm;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = FK$

**0,2 m Lehm;  $S_{NAPL} = 0,05$ ;  $S_W = FK$**

0,1 m Lehm;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = 1$



Anfangsbedingungen ( $\epsilon(i)$ ,  $C_{Ra}(i)$  und  $p(i)$ ) wie oben bei Lehm):

i	dx	C	$S_N$	$n_N$	$S_W$	$n_W$	$S_L$	$n_i$	$n_L$	RTF	$D_c \cdot 10^{-7}$
43	0,01	0	0,05	0,03	0,76	0,38	0,19	0,5	0,095	5,49	2,02
44	0,02	0	0,05	0,03	0,76	0,38	0,19	0,5	0,095	5,49	2,02
45	0,03	0	0,05	0,03	0,76	0,38	0,19	0,5	0,095	5,49	2,02
46	0,04	0	0,05	0,03	0,76	0,38	0,19	0,5	0,095	5,49	2,02
47	0,04	0	0,05	0,03	0,76	0,38	0,19	0,5	0,095	5,49	2,02
48	0,03	0	0,05	0,03	0,76	0,38	0,19	0,5	0,095	5,49	2,02
49	0,02	0	0,05	0,03	0,76	0,38	0,19	0,5	0,095	5,49	2,02
50	0,01	0	0,05	0,03	0,76	0,38	0,19	0,5	0,095	5,49	2,02

Schematischer Aufbau der Bodensäule aus Lehm mit der NAPL-Schichtdicke 0,2 m und der NAPL-Sättigung 0,1:

2,0 m Lehm;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = FK$

**0,2 m Lehm;  $S_{NAPL} = 0,1$ ;  $S_W = FK$**

0,1 m Lehm;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = 1$



Anfangsbedingungen ( $\epsilon(i)$ ,  $C_{Ra}(i)$  und  $\rho(i)$  wie oben bei Lehm):

i	dx	C	$S_N$	$n_N$	$S_W$	$n_W$	$S_L$	$n_i$	$n_L$	RTF	$D_e \cdot 10^{-7}$
43	0,01	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2
44	0,02	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2
45	0,03	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2
46	0,04	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2
47	0,04	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2
48	0,03	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2
49	0,02	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2
50	0,01	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2

Schematischer Aufbau der Bodensäule aus Lehm mit der NAPL-Schichtdicke 0,2 m und der NAPL-Sättigung 0,2:

2,0 m Lehm;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = FK$

**0,2 m Lehm;  $S_{NAPL} = 0,2$ ;  $S_W = FK$**

0,1 m Lehm;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = 1$



Anfangsbedingungen ( $\epsilon(i)$ ,  $C_{Ra}(i)$  und  $\rho(i)$  wie oben bei Lehm):

i	dx	C	$S_N$	$n_N$	$S_W$	$n_W$	$S_L$	$n_i$	$n_L$	RTF	$D_e \cdot 10^{-8}$
43	0,01	0	0,20	0,10	0,76	0,38	0,04	0,5	0,02	72,56	1,43
44	0,02	0	0,20	0,10	0,76	0,38	0,04	0,5	0,02	72,56	1,43
45	0,03	0	0,20	0,10	0,76	0,38	0,04	0,5	0,02	72,56	1,43
46	0,04	0	0,20	0,10	0,76	0,38	0,04	0,5	0,02	72,56	1,43
47	0,04	0	0,20	0,10	0,76	0,38	0,04	0,5	0,02	72,56	1,43
48	0,03	0	0,20	0,10	0,76	0,38	0,04	0,5	0,02	72,56	1,43
49	0,02	0	0,20	0,10	0,76	0,38	0,04	0,5	0,02	72,56	1,43
50	0,01	0	0,20	0,10	0,76	0,38	0,04	0,5	0,02	72,56	1,43

Schematischer Aufbau der Bodensäule aus Lehm mit der NAPL-Schichtdicke 0,5 m und der NAPL-Sättigung 0,05:

2,0 m Lehm;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = FK$

**0,5 m Lehm;  $S_{NAPL} = 0,05$ ;  $S_W = FK$**

0,1 m Lehm;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = 1$



Anfangsbedingungen ( $\epsilon(i)$ ,  $C_{Ra}(i)$  und  $p(i)$  wie oben bei Lehm):

i	dx	C	$S_N$	$n_N$	$S_W$	$n_W$	$S_L$	$n_i$	$n_L$	RTF	$D_c \cdot 10^{-7}$
43	0,01	0	0,05	0,03	0,76	0,38	0,19	0,5	0,095	5,49	2,02
44	0,02	0	0,05	0,03	0,76	0,38	0,19	0,5	0,095	5,49	2,02
45	0,03	0	0,05	0,03	0,76	0,38	0,19	0,5	0,095	5,49	2,02
46	0,04	0	0,05	0,03	0,76	0,38	0,19	0,5	0,095	5,49	2,02
47	0,05	0	0,05	0,03	0,76	0,38	0,19	0,5	0,095	5,49	2,02
48	0,05	0	0,05	0,03	0,76	0,38	0,19	0,5	0,095	5,49	2,02
49	0,05	0	0,05	0,03	0,76	0,38	0,19	0,5	0,095	5,49	2,02
50	0,05	0	0,05	0,03	0,76	0,38	0,19	0,5	0,095	5,49	2,02
51	0,05	0	0,05	0,03	0,76	0,38	0,19	0,5	0,095	5,49	2,02
52	0,05	0	0,05	0,03	0,76	0,38	0,19	0,5	0,095	5,49	2,02
53	0,04	0	0,05	0,03	0,76	0,38	0,19	0,5	0,095	5,49	2,02
54	0,03	0	0,05	0,03	0,76	0,38	0,19	0,5	0,095	5,49	2,02
55	0,02	0	0,05	0,03	0,76	0,38	0,19	0,5	0,095	5,49	2,02
56	0,01	0	0,05	0,03	0,76	0,38	0,19	0,5	0,095	5,49	2,02

Schematischer Aufbau der Bodensäule aus Lehm mit der NAPL-Schichtdicke 0,5 m und der NAPL-Sättigung 0,1:

2,0 m Lehm;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = FK$

**0,5 m Lehm;  $S_{NAPL} = 0,1$ ;  $S_W = FK$**

0,1 m Lehm;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = 1$



Anfangsbedingungen ( $\epsilon(i)$ ,  $C_{Ra}(i)$  und  $p(i)$  wie oben bei Lehm):

i	dx	C	$S_N$	$n_N$	$S_W$	$n_W$	$S_L$	$n_i$	$n_L$	RTF	$D_c \cdot 10^{-7}$
43	0,01	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2
44	0,02	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2
45	0,03	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2
46	0,04	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2
47	0,05	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2
48	0,05	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2
49	0,05	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2
50	0,05	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2
51	0,05	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2
52	0,05	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2
53	0,04	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2
54	0,03	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2
55	0,02	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2
56	0,01	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2

Schematischer Aufbau der Bodensäule aus Lehm mit der NAPL-Schichtdicke 0,5 m und der NAPL-Sättigung 0,2:

2,0 m Lehm;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = FK$

**0,5 m Lehm;  $S_{NAPL} = 0,2$ ;  $S_W = FK$**

0,1 m Lehm;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = 1$



Anfangsbedingungen ( $\epsilon(i)$ ,  $C_{Ra}(i)$  und  $\rho(i)$  wie oben bei Lehm):

i	dx	C	$S_N$	$n_N$	$S_W$	$n_W$	$S_L$	$n_l$	$n_L$	RTF	$D_e \cdot 10^{-8}$
43	0,01	0	0,2	0,05	0,76	0,38	0,04	0,5	0,02	72,57	1,43
44	0,02	0	0,2	0,05	0,76	0,38	0,04	0,5	0,02	72,57	1,43
45	0,03	0	0,2	0,05	0,76	0,38	0,04	0,5	0,02	72,57	1,43
46	0,04	0	0,2	0,05	0,76	0,38	0,04	0,5	0,02	72,57	1,43
47	0,05	0	0,2	0,05	0,76	0,38	0,04	0,5	0,02	72,57	1,43
48	0,05	0	0,2	0,05	0,76	0,38	0,04	0,5	0,02	72,57	1,43
49	0,05	0	0,2	0,05	0,76	0,38	0,04	0,5	0,02	72,57	1,43
50	0,05	0	0,2	0,05	0,76	0,38	0,04	0,5	0,02	72,57	1,43
51	0,05	0	0,2	0,05	0,76	0,38	0,04	0,5	0,02	72,57	1,43
52	0,05	0	0,2	0,05	0,76	0,38	0,04	0,5	0,02	72,57	1,43
53	0,04	0	0,2	0,05	0,76	0,38	0,04	0,5	0,02	72,57	1,43
54	0,03	0	0,2	0,05	0,76	0,38	0,04	0,5	0,02	72,57	1,43
55	0,02	0	0,2	0,05	0,76	0,38	0,04	0,5	0,02	72,57	1,43
56	0,01	0	0,2	0,05	0,76	0,38	0,04	0,5	0,02	72,57	1,43

*Modellrechnungen zur Auflagendicke und zum Versiegelungsgrad bei einer NAPL-Schichtdicke von 0,2 m und einer NAPL-Sättigung von 0,1*

Schematischer Aufbau der Bodensäule aus Sand mit der Auflagendicke 1 m und dem Versiegelungsgrad  $1-n_L(0) = 0,74$ :

**$1-n_L(0) = 0,74$ ; 1,0 m Sand;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = FK$**

0,2 m Sand;  $S_{NAPL} = 0,1$ ;  $S_W = FK$

0,1 m Sand;  $S_{NAPL} = 0,0$ ;  $S_W = 1$



Anfangsbedingungen ( $\epsilon(i)$ ,  $C_{Ra}(i)$  und  $\rho(i)$ ) wie oben bei Sand):

i	dx	C	$S_N$	$n_N$	$S_W$	$n_W$	$S_L$	$n_i$	$n_L$	RTF	Df
[-]	[m]	[Bq m <sup>-3</sup> ]	[-]	[-]	[-]	[-]	[-]	[-]	[-]	[-]	[m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> ]
0	0,05	0	0,00	0,00	0,35	0,14	0,65	0,4	0,26	1,13	1,9·10 <sup>-6</sup>
1	0,05	0	0,00	0,00	0,35	0,14	0,65	0,4	0,26	1,13	1,9·10 <sup>-6</sup>
:	:	:	:	:	:	:	:	:	:	:	:
18	0,05	0	0,00	0,00	0,35	0,14	0,65	0,4	0,26	1,13	1,9·10 <sup>-6</sup>
19	0,04	0	0,00	0,00	0,35	0,14	0,65	0,4	0,26	1,13	1,9·10 <sup>-6</sup>
20	0,03	0	0,00	0,00	0,35	0,14	0,65	0,4	0,26	1,13	1,9·10 <sup>-6</sup>
21	0,02	0	0,00	0,00	0,35	0,14	0,65	0,4	0,26	1,13	1,9·10 <sup>-6</sup>
22	0,01	0	0,00	0,00	0,35	0,14	0,65	0,4	0,26	1,13	1,9·10 <sup>-6</sup>
23	0,01	0	0,1	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61·10 <sup>-6</sup>
24	0,02	0	0,1	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61·10 <sup>-6</sup>
25	0,03	0	0,1	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61·10 <sup>-6</sup>
26	0,04	0	0,1	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61·10 <sup>-6</sup>
27	0,04	0	0,1	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61·10 <sup>-6</sup>
28	0,03	0	0,1	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61·10 <sup>-6</sup>
29	0,02	0	0,1	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61·10 <sup>-6</sup>
30	0,01	0	0,1	0,04	0,35	0,14	0,55	0,4	0,22	3,59	1,61·10 <sup>-6</sup>
31	0,01	0	0,00	0,00	1	0,40	0,00	0,4	0,00	1,00	1,0·10 <sup>-10</sup>
32	0,02	0	0,00	0,00	1	0,40	0,00	0,4	0,00	1,00	1,0·10 <sup>-10</sup>
33	0,03	0	0,00	0,00	1	0,40	0,00	0,4	0,00	1,00	1,0·10 <sup>-10</sup>
34	0,04	0	0,00	0,00	1	0,40	0,00	0,4	0,00	1,00	1,0·10 <sup>-10</sup>

In den weiteren Fällen ändern sich die Werte der NAPL-haltigen Schicht und der wassergesättigten Schicht an der Basis nicht, lediglich die Anzahl der Schichten i mit  $dx = 0,5$  über der NAPL-Schicht wird vervielfacht, so dass zusätzlich die Auflagendicken 2 m und 5 m erreicht werden. Zudem wird jeweils der Wert für  $n_L$  so verändert, dass  $1-n_L$  den Wert 0,95 bzw. 0,99 annimmt.

Schematischer Aufbau der Bodensäule aus Lehm mit der Auflagedicke 1 m und dem Versiegelungsgrad  $1-n_L(0) = 0,88$ .

**1-n<sub>L</sub>(0) = 0,88; 1,0 m Lehm; S<sub>NAPL</sub> = 0,0; S<sub>w</sub> = FK**

0,2 m Lehm; S<sub>NAPL</sub> = 0,1; S<sub>w</sub> = FK

0,1 m Lehm; S<sub>NAPL</sub> = 0,0; S<sub>w</sub> = 1



Anfangsbedingungen ( $\epsilon(i)$ ,  $C_{Ra}(i)$  und  $\rho(i)$  wie oben bei Lehm):

i	dx	C	S <sub>N</sub>	n <sub>N</sub>	S <sub>w</sub>	n <sub>w</sub>	S <sub>L</sub>	n <sub>i</sub>	n <sub>L</sub>	RTF	D <sub>e</sub>
[-]	[m]	[Bq m <sup>-3</sup> ]	[-]	[-]	[-]	[-]	[-]	[-]	[-]	[-]	[m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> ]
0	0,05	0	0,00	0,00	0,76	0,38	0,24	0,5	0,12	1,76	3,0·10 <sup>-7</sup>
1	0,05	0	0,00	0,00	0,76	0,38	0,24	0,5	0,12	1,76	3,0·10 <sup>-7</sup>
:	:	:	:	:	:	:	:	:	:	:	:
18	0,05	0	0,00	0,00	0,76	0,38	0,24	0,5	0,12	1,76	3,0·10 <sup>-7</sup>
19	0,04	0	0,00	0,00	0,76	0,38	0,24	0,5	0,12	1,76	3,0·10 <sup>-7</sup>
20	0,03	0	0,00	0,00	0,76	0,38	0,24	0,5	0,12	1,76	3,0·10 <sup>-7</sup>
21	0,02	0	0,00	0,00	0,76	0,38	0,24	0,5	0,12	1,76	3,0·10 <sup>-7</sup>
22	0,01	0	0,00	0,00	0,76	0,38	0,24	0,5	0,12	1,76	3,0·10 <sup>-7</sup>
23	0,01	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2·10 <sup>-7</sup>
24	0,02	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2·10 <sup>-7</sup>
25	0,03	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2·10 <sup>-7</sup>
26	0,04	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2·10 <sup>-7</sup>
27	0,04	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2·10 <sup>-7</sup>
28	0,03	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2·10 <sup>-7</sup>
29	0,02	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2·10 <sup>-7</sup>
30	0,01	0	0,1	0,05	0,76	0,38	0,14	0,5	0,07	11,87	1,2·10 <sup>-7</sup>
31	0,01	0	0,00	0,00	1	0,50	0,00	0,5	0,00	1,00	1,0·10 <sup>-11</sup>
32	0,02	0	0,00	0,00	1	0,50	0,00	0,5	0,00	1,00	1,0·10 <sup>-11</sup>
33	0,03	0	0,00	0,00	1	0,50	0,00	0,5	0,00	1,00	1,0·10 <sup>-11</sup>
34	0,04	0	0,00	0,00	1	0,50	0,00	0,5	0,00	1,00	1,0·10 <sup>-11</sup>

In den weiteren Fällen ändern sich die Werte der NAPL-haltigen Schicht und der wassergesättigten Schicht an der Basis nicht, lediglich die Anzahl der Schichten i mit  $dx = 0,05$  über der NAPL-Schicht wird vervielfacht, so dass zusätzlich die Auflagedicken 2 m und 5 m erreicht werden. Zudem wird jeweils der Wert für  $n_L$  so verändert, dass  $1-n_L$  den Wert 0,95 bzw. 0,99 annimmt.

## **Danksagung**

Diese Arbeit ist durch die Unterstützung zahlreicher Personen zustande gekommen. Ihnen allen gilt mein Dank.

Ein großer Dank gilt Herrn Professor Ralph Meissner, der mich mit der Radon/NAPL - Thematik einst in Kontakt brachte und mir sämtliche Türen öffnete, die zur erfolgreichen Durchführung der Arbeit notwendig waren.

Herrn Professor H. Borg sei gedankt für die stets engagierte Unterstützung und hervorragende Betreuung dieser Arbeit, die sich durch zahlreiche wertvolle Anregungen und eine motivierende Arbeitsatmosphäre auszeichnete.

Mein besonderer Dank sei an Herrn Dr. Michael Schubert gerichtet. Er hat in unzähligen Diskussionen zum Verständnis mindestens genauso vieler Fragen beigetragen. Die Zusammenarbeit war von Anfang an nicht nur durch die fachliche Unterstützung, sondern auch durch das in mich gesetzte Vertrauen äußerst hilfreich.

Ebenso danke ich den Mitgliedern der Arbeitsgruppe Umweltradioisotope: Axel Schmidt, Katja Lehmann, Hans-Christian Treutler, Antje Böhnke und Steve Gomell für die Unterstützung und gute Zusammenarbeit.

Für die Bereitstellung von Messdaten aus Bodensäulenexperimenten danke ich Melitta Stratschka und Robert Lüdtkke. Axel Schmidt und Katja Lehmann sei an dieser Stelle ausdrücklich für die engagierte Mithilfe bei der Befüllung der Bodensäulen gedankt.

Mein besonderer Dank gilt Axel Schmidt für die Durchsicht früherer Manuskripte und die freundschaftliche Zusammenarbeit.

Michael Wurmstich sei gedankt für die gute Zusammenarbeit bei der Finanzierung des Forschungsvorhabens durch die Investitionsbank Sachsen-Anhalt. Bernd Krone, Dr. Martin Lauterbach, Dr. Uwe Stahl, Volker Böhme und Roland Koch von der Firma IHU-Geologie und Analytik GmbH in Stendal sei für die geleistete Unterstützung und unkomplizierte Zusammenarbeit gedankt.

Meiner Mutter, Anneliese Lau, meiner Schwester, Stefanie Lau sowie Mathias Wiedemann gilt mein ganz besonderer Dank für den familiären Rückhalt.

## *Curriculum vitae*

Name	Lau
Vorname	Steffen
Geboren am	14.12.1975 in Stendal
<b>Ausbildung</b>	
1982 – 1990	Grund- und Hauptschule
1990 – 1994	Dr. Frank Gymnasium, Staßfurt
1995 – 2002	Studium der Agrarwissenschaften an der Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg, Vertiefungsrichtung „Bodenschutz und Landschaftsgestaltung, Halle
2000 - 2002	Diplomarbeit „Einfluss der Luftfeuchtigkeit auf die Wasserdampfleitfähigkeit isolierter Kutikulas von Süßkirschenfrüchten ( <i>Prunus avium</i> L.)“ am Institut für Acker- und Pflanzenbau der Martin- Luther-Universität Halle-Wittenberg, Halle
2002 – andauernd	Angestellter bei der Firma IHU Geologie und Analytik GmbH, Stendal

Titel der Dissertation: „Radon als Indikator für Non-Aqueous Phase Liquids (NAPL)  
in der ungesättigten Bodenzone: Entwicklung und Eichung eines  
numerischen eindimensionalen Radontransportmodells“

## **Publikationen**

- Beyer M, Lau S, Knoche M (2005) Studies on water transport through the sweet cherry fruit surface: IX. Comparing permeability in water uptake and transpiration, *Planta* 220, 474-485.
- Lau S, Schubert M, Meißner R (2004) Ein neues Verfahren zur Lokalisierung von Bodenkontaminationen durch Mineralöle, *Wasserwirtschaft* 4, 27-30.
- Schubert M, Lau S, Geyer W, Knöller K (2006) Radon as a naturally occurring tracer for the assessment of residual NAPL contamination of aquifers. *Environmental Pollution* 45, 920-927.

## **Vorträge**

- Lau S. Radon als Indikator für Non-Aqueous Phase Liquids in der ungesättigten Bodenzone: Entwicklung und Eichung eines numerischen eindimensionalen Radontransportmodells (2005). Doktorandenkonferenz, Helmholtz Zentrum für Umweltforschung UFZ, Leipzig.
- Lau S. Radon als Indikator für NAPL-Kontaminationen in Böden (2007) Bodenphysik Seminar, Helmholtz Zentrum für Umweltforschung UFZ, Falkenberg.

### **Eigenständigkeitserklärung**

Hiermit erkläre ich, dass diese Arbeit von mir angefertigt wurde.

Es wurden keine anderen, als in der Literatur zitierten Hilfsmittel benutzt.

Halle/Saale, den 19.05.2008

Steffen Lau

## ERKLÄRUNG

Hiermit erkläre ich, dass mit dieser wissenschaftlichen Arbeit noch keine vergeblichen Promotionsversuche unternommen wurden.

Des Weiteren erkläre ich, dass keine Strafverfahren gegen mich anhängig sind.

Halle/Saale, den 20.05.2008

