



UFZ-Bericht

UFZ-UMWELTFORSCHUNGSZENTRUM LEIPZIG-HALLE GMBH

Nr. 1/2001

Dissertation

Erfassung von Untergrundkontaminationen durch Non-Aqueous Phase-Liquids (NAPLs) mit Hilfe der Bestimmung des Radongehalts der Bodenluft

Michael Schubert

ISSN 0948-9452

**Erfassung von Untergrundkontaminationen durch
Non-Aqueous Phase-Liquids (NAPLs)
mit Hilfe der Bestimmung des Radongehalts der Bodenluft**

Dissertation
zur Erlangung des Doktorgrades
der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultäten
der Georg-August-Universität zu Göttingen

Archiv

vorgelegt von
Michael Schubert
aus Leipzig

Göttingen 2000

UFZ-Umweltforschungszentrum
Leipzig-Halle GmbH
Zentralbibliothek
Permoserstraße 15
04318 Leipzig

01-0246

D7

Referent: Prof. Dr. H. Heinrichs

Korreferent: Prof. Dr. J. Schneider

Tag der mündlichen Prüfung: 01.11.2000

Diese Arbeit wurde in der Zeit von Juni 1998 bis September 2000 mit Unterstützung der Deutschen Bundesstiftung Umwelt an der Sektion Analytik des UFZ – Umweltforschungszentrums Leipzig – Halle GmbH und an der Fakultät für Geowissenschaften der Universität Göttingen angefertigt. Die Arbeit wurde von Herrn Prof. Dr. Hartmut Heinrichs am Geochemischen Institut und Herrn Prof. Dr. Jürgen Schneider am Institut für Geologie und Dynamik der Lithosphäre der Universität Göttingen betreut.

Inhalt

1	EINLEITUNG UND ARBEITSTHESE	1
2	THEORETISCHE GRUNDLAGEN	3
2.1	Radon als natürlicher Bestandteil der Bodenluft	3
2.1.1	^{219}Rn , ^{220}Rn und ^{222}Rn als Glieder natürlicher radioaktiver Zerfallsreihen	3
2.1.2	Die Folgeprodukte des Radons	5
2.1.3	Radon als allgegenwärtiger Bestandteil der Bodenluft	6
2.1.4	Physikalisch-chemische Eigenschaften des Radons	7
2.1.5	Die Radonkonzentration der Bodenluft im Rahmen geowissenschaftlicher Anwendungen	10
2.1.5.1	Der Einsatz von Radonmessungen bei der Uranprospektion	10
2.1.5.2	Der Einsatz von Radonmessungen bei der Erdbebenvorhersage	10
2.1.5.3	Der Einsatz von Radonmessungen zur Detektion von geologischen Störungszonen	11
2.1.5.4	Die Untersuchung des Gesundheitsrisikos durch eine erhöhte Radonexposition in Gebäuden	12
2.1.5.5	Der Einsatz von Radonmessungen bei der Kohlenwasserstoffprospektion	13
2.2	Der Boden als Drei-Phasen-System und seine physikalischen Kenngrößen	15
2.2.1	Der Boden als Drei-Phasen-System	15
2.2.2	Die Bodengasadvektion und ihre Kenngrößen	16
2.2.2.1	Gaspermeabilität, advective Flußdichte und Advektionslänge	16
2.2.2.2	Die Abhängigkeit der Gaspermeabilität von der Bodenart und der Bodenstruktur	17
2.2.2.3	Die Abhängigkeit der Gaspermeabilität von der Bodenfeuchte	17
2.2.2.4	Typische Gaspermeabilitäten häufiger Bodentypen	19
2.2.3	Die Bodengasdiffusion und ihre Kenngrößen	20
2.2.3.1	Diffusionskoeffizient, diffusive Flußdichte und Diffusionslänge	20
2.2.3.2	Die Abhängigkeit des Diffusionskoeffizienten von Bodenfeuchte Bodenart und Bodenstruktur	21
2.2.3.3	Die Abhängigkeit des Diffusionskoeffizienten von der Bodentemperatur	23
2.2.3.4	Typische Diffusionskoeffizienten häufiger Bodentypen	24
2.3	Die Radonemanation	25
2.3.1	Der Emanationskoeffizient	25
2.3.2	Das Prinzip der Emanation	26
2.3.3	Abhängigkeit des Emanationskoeffizienten von bodenspezifischen Parametern	27
2.3.3.1	Die Radiumverteilung in den Bodenpartikeln	28
2.3.3.2	Die effektive innere Oberfläche der Mineralmatrix	28
2.3.3.3	Die Porosität des Bodens	29
2.3.3.4	Die Bodenfeuchte	30
2.3.3.4.1	Die Bremswirkung des Porenwassers	30
2.3.3.4.2	Die Verringerung der Adsorptionsfähigkeit der mineralischen Matrix	31

2.3.4	Die Radon-Gleichgewichtskonzentration im Boden	32
2.3.4.1	Die Radon-Gleichgewichtskonzentration in trockenen Böden	32
2.3.4.2	Die Radon-Gleichgewichtskonzentration in feuchten Böden	32
2.4	Die Radonmigration im luftgefüllten Porenraum	34
2.4.1	Die Radonflußdichte im Boden	35
2.4.1.1	Die diffusive Radonflußdichte	35
2.4.1.2	Die advective Radonflußdichte	35
2.4.1.3	Der Gesamtfluß	36
2.4.2	Herleitung der allgemeinen Migrationsgleichung	36
2.4.3	Lösung der allgemeinen Migrationsgleichung	39
2.4.4	Die Radonmigration bei Vernachlässigung der Advektion	41
2.4.5	Die Radonmigration unter Einbeziehung der Advektion	44
2.5	Die Radonexhalation	46
2.5.1	Die Radonexhalation bei Vernachlässigung der Advektion	46
2.5.2	Die Radonexhalation unter Einbeziehung der Advektion	47
2.5.3	Der komplexe Einfluß der Bodenfeuchte auf die Exhalationsrate	48
2.6	Natürliche und anthropogene Beeinflussungen des Radontiefenprofils	50
2.6.1	Der Einfluß meteorologischer Parameter	50
2.6.1.1	Grundgedanken	50
2.6.1.2	Abhängigkeit des Radontiefenprofils von der Temperatur	51
2.6.1.3	Abhängigkeit des Radontiefenprofils vom atmosphärischen Luftdruck	52
2.6.1.4	Abhängigkeit des Radontiefenprofils von der Windgeschwindigkeit	53
2.6.1.5	Abhängigkeit des Radontiefenprofils von Niederschlägen und Bodenfrost	54
2.6.2	Der Einfluß von Eingriffen in das natürliche Bodenprofil	55
2.6.3	Der Einfluß von NAPL-Kontaminationen	56
2.6.3.1	Theoretischer Hintergrund	56
2.6.3.1.1	Der Einfluß von NAPLs auf die Radonkonzentration des Grundwassers	57
2.6.3.1.2	Der Einfluß von NAPLs auf die Radonkonzentration der Bodenluft	58
2.6.3.2	Radon als Tracer bei der Detektion von NAPL-Kontaminationen in Aquiferen	61
2.6.3.3	Radon als Tracer bei der Detektion von NAPL-Kontaminationen in Böden	61
3	EXPERIMENTELLE ARBEITEN	64
3.1	Laborexperimente zur Bestimmung von Radon-Verteilungskoeffizienten	64
3.1.1	Problemstellung	64
3.1.2	Experimentelle Herangehensweise	65
3.1.2.1	Durchführung der Mischungsexperimente	66
3.1.2.2	Durchführung der Durchströmungsexperimente	67
3.1.3	Ergebnisdiskussion	68
3.2	Großmaßstäbliche Experimente zur Radonmigration in definierten Bodensäulen	69
3.2.1	Problemstellung	69
3.2.2	Experimentelle Herangehensweise	69
3.2.2.1	Der Gasmigrationssimulator (GAMS)	69

3.2.2.2	Versuchsreihen zur Ermittlung des unbeeinflussten Radontiefenprofils	73
3.2.2.3	Versuchsreihen zur Abhängigkeit des Radontiefenprofils von meteorologischen Einflüssen	74
3.2.2.4	Versuchsreihen zur Abhängigkeit des Radontiefenprofils von NAPL-Kontaminationen des Untergrundes	74
3.2.3	Ergebnisdiskussion	75
3.2.3.1	Das unbeeinflusste Radontiefenprofil	75
3.2.3.2	Der Tagesgang der Radonkonzentration der Bodenluft	76
3.2.3.3	Meteorologische Einflüsse als Ursache des Tagesganges der Radonkonzentration der Bodenluft	80
3.2.3.3.1	Der Einfluß der Temperatur	81
3.2.3.3.2	Der Einfluß der Windgeschwindigkeit	85
3.2.3.3.3	Der Einfluß des atmosphärischen Luftdrucks	87
3.2.3.3.4	Der Einfluß der Bodenfeuchte	88
3.2.3.4	Der Einfluß von Niederschlägen und Grundwasserspiegelschwankungen auf die Radonkonzentration der Bodenluft	89
3.2.3.5	Der Einfluß von NAPL-Kontaminationen des Untergrundes auf die Radonkonzentration der Bodenluft	91
3.2.3.5.1	Das Benzinexperiment	91
3.2.3.5.2	Das Dieselexperiment	95
3.2.3.5.3	Zusammenfassung der Ergebnisse der NAPL-Experimente	97
3.3	Feldexperimente	98
3.3.1	Problemstellung	98
3.3.2	Experimentelle Herangehensweise	98
3.3.2.1	Erarbeitung einer Feldtechnologie	98
3.3.2.2	Auswahl der Standorte	102
3.3.2.2.1	Standort 1	103
3.3.2.2.2	Standort 2	104
3.3.2.2.3	Standort 3	105
3.3.3	Ergebnisdiskussion	106
3.3.3.1	Standort 1	106
3.3.3.2	Standort 2	108
3.3.3.3	Standort 3	111
4	EIGNUNG DER RADONKONZENTRATION DER BODENLUFT ALS INDIKATOR FÜR NAPL-KONTAMINATIONEN DES UNTERGRUNDES	116
5	AUSBLICK	118
6	ZUSAMMENFASSUNG	119
7	LITERATUR	122
8	ANHANG	130

Verwendete Abkürzungen

A	Aktivitätskonzentration $[Bq/kg]$
C_{Rn}	Radonkonzentration in der Bodenluft $[kBq/m^3]$
C_0	Radonkonzentration in der Bodenluft in der Tiefe $z = 0$ $[kBq/m^3]$
C_L	Radonkonzentration in der Bodenluft in der Tiefe $z = L$ $[kBq/m^3]$
C_∞	von Migrationsprozessen und NAPL-Verunreinigungen unbeeinflusste Radon-Gleichgewichtskonzentration in der Bodenluft $[kBq/m^3]$
C_{Rn}^{BL}	Radonkonzentration in der Bodenluft im Verteilungsgleichgewicht $[kBq/m^3]$
C_{Rn}^{NAPL}	Radonkonzentration in einer NAPL im Verteilungsgleichgewicht $[kBq/m^3]$
C_{Rn}^W	Radonkonzentration im Wasser im Verteilungsgleichgewicht $[kBq/m^3]$
C_{Rn}^{W+NAPL}	Radonkonzentration im Wasser- NAPL-gefüllten Porenraum $[kBq/m^3]$
$C_{t=0}$	Radonaustragskonzentration bei den NAPL-Experimenten $[kBq/m^3]$
d	durchschnittlicher Korndurchmesser einer Bodenmatrix $[mm]$
D	Diffusionskoeffizient $[m^2/s]$
D_e	effektiver Diffusionskoeffizient des Bodens für Radon $[m^2/s]$
D_i	integraler Diffusionskoeffizient des Bodens für Radon $[m^2/s]$
D_L	Diffusionskoeffizient für Radon in Luft $[m^2/s]$
$D_{L(15)}$	Diffusionskoeffizient für Radon in Luft bei 15°C $[D_{L(15)} = 1,2 \times 10^{-5} m^2/s]$
D_W	Diffusionskoeffizient für Radon in Wasser bei Raumtemperatur $[D_W = 10^{-9} m^2/s]$
D_M	Diffusionskoeffizient für Radon in einer Mineralstruktur $[m^2/s]$
$EEDC_{222}$	Aktivitätskonzentration der kurzlebigen Radonfolgeprodukte in Luft $[kBq/m^3]$
F_{BL}	Querschnittsfläche der effektiv für die Gasmigration verfügbaren luftgefüllten Poren $[m^2]$
$F_{W/BL}$	für einen Gasaustausch nutzbaren Grenzfläche zwischen Luft und Wasser $[m^2]$
F_t	Wasseranteil eines Bodenvolumens bezogen sein Trockengewicht $[dimensionslos]$
J_a	advektive Flußdichte $[kBq/m^2s]$
$J_{a,e}$	effektive advektive Flußdichte $[kBq/m^2s]$
$J_{a,i}$	integrale advektive Flußdichte $[kBq/m^2s]$
J_d	diffusive Flußdichte $[kBq/m^2s]$
$J_{d,e}$	effektive diffusive Flußdichte $[kBq/m^2s]$
$J_{d,i}$	integrale diffusive Flußdichte $[kBq/m^2s]$
k	Gaspermeabilität des Bodens $[m^2]$
k'	auf d und n normierte Gaspermeabilität $[m^2]$
$K_{NAPL/BL}$	Radon-Verteilungskoeffizient zwischen einer NAPL und der Bodenluft $[dimensionslos]$
$K_{NAPL/W}$	Radon-Verteilungskoeffizient zwischen einer NAPL und Wasser $[dimensionslos]$
$K_{W/BL}$	Radon-Verteilungskoeffizient zwischen Wasser der Bodenluft $[dimensionslos]$
l_{diff}	von Radonatomen diffusiv zurückzulegende Strecke $[m]$
ℓ_a	Advektionslänge des Radons $[m]$
ℓ_d	Diffusionslänge des Radons $[m]$
L	Mächtigkeit einer Bodenschicht $[m]$
n	Bodenporosität $[dimensionslos]$

n_e	effektive luftgefüllte Bodenporosität mit Berücksichtigung der Radonlöslichkeit im Bodenwasser [<i>dimensionslos</i>]
M	Migrationslänge des Radons [<i>m</i>]
N	Anzahl der zum Zeitpunkt t vorhandenen Atome [<i>Bq/kg</i>], [<i>kBq/m³</i>]
N^0	Anzahl der ursprünglich, d.h. zum Zeitpunkt $t = 0$ vorhandenen Atome [<i>Bq/kg</i>], [<i>kBq/m³</i>]
N^e	Anzahl der aus der mineralischen Matrix emanierenden Radonotope [<i>Bq/kg</i>]
N_d^e	Anzahl diffusiv migrierender Radonotope [<i>Bq/m³</i>]
N_a^e	Anzahl advektiv migrierender Radonotope [<i>Bq/m³</i>]
N^p	Anzahl der in der mineralischen Matrix produzierten Radonotope [<i>Bq/kg</i>]
P	Luftdruck [<i>hPa</i>]
S_{BL}	bodenluftgefüllter Porenanteil [<i>dimensionslos</i>]
S_W	wassergefüllter Porenanteil [<i>dimensionslos</i>]
S_{NAPL}	NAPL-gefüllter Porenanteil [<i>dimensionslos</i>]
S_F	mit Flüssigphase gefüllter Porenanteil ($S_{NAPL} + S_W$) [<i>dimensionslos</i>]
STD	Standardabweichung
t	Zeit [<i>s</i>], [<i>min</i>], [<i>d</i>], [<i>a</i>]
$t_{1/2}$	Halbwertszeit [<i>s</i>], [<i>d</i>], [<i>a</i>]
t_{GG}	Zeit zur Einstellung eines Verteilungsgleichgewichts [<i>s</i>]
T	Temperatur [<i>°C</i>]
v	Abstandsgeschwindigkeit des migrierenden Fluids [<i>m/s</i>]
V_{BL}	Bodenluftanteil am Gesamtvolumen eines Bodenkörpers [<i>m³</i>]
V_{ges}	Gesamtvolumen eines Bodenkörpers [<i>m³</i>]
V_P	Porenanteil am Gesamtvolumen eines Bodenkörpers [<i>m³</i>]
V_M	mineralische Anteil am Gesamtvolumen eines Bodenkörpers [<i>m³</i>]
V_W	Porenwasseranteil am Gesamtvolumen eines Bodenkörpers [<i>m³</i>]
$V_{W/BL}$	in den Gasaustausch einbezogenes Wasser-Luft-Volumen [<i>m³</i>]
z	Bodentiefe ($z \leq 0$) [<i>m</i>]
X_{NAPL}	NAPL-Anteil an S_F (S_{NAPL} / S_F) [<i>dimensionslos</i>]
δ	Hildebrandscher Löslichkeitsparameters [$\sqrt{MPa}$]
$\Delta\alpha_{pb}(z)$	²¹⁰ Pb-Defizit in der Tiefe z [<i>Bq/kg</i>]
ε	Emanationskoeffizient der mineralischen Matrix [<i>dimensionslos</i>]
η	Viskosität des Bodengases [<i>Pa s</i>]
κ	Radon-Adsorptionskoeffizient für feuchten Boden [<i>dimensionslos</i>]
κ_r	Radon-Adsorptionskoeffizient für völlig wasserfreien Boden [<i>dimensionslos</i>]
λ	Zerfallskonstante des Radons ($\lambda = 2,1 \times 10^{-6} s^{-1}$)
ρ_d	Trockendichte eines Bodenvolumens [<i>kg/m³</i>]
τ	durchschnittliche Lebenszeit eines Radonatoms [$\tau = 5,5161 d$]
Φ	Radonproduktionsrate des Bodens [<i>kBq/m³</i>]
Φ_W	Radonproduktionsrate des Bodens bzgl. des wassergefüllten Porenraums [<i>kBq/m³</i>]
Φ_{BL}	Radonproduktionsrate des Bodens bzgl. des luftgefüllten Porenraums [<i>kBq/m³</i>]
Ω_{GG}	Gleichgewichtsfaktor zwischen $EEDC_{222}$ und A_{Rn} in der Luft [<i>dimensionslos</i>]
∇C	Konzentrationsgradient ($\partial C / \partial z$)
∇P	Druckgradient ($\partial P / \partial z$)

1 Einleitung und Arbeitsthese

Ein bekanntes und weitverbreitetes Problem bei der Einschätzung alter Industriestandorte hinsichtlich des von ihnen ausgehenden Gefährdungspotentials sind Untergrundkontaminationen durch „Non-Aqueous Phase-Liquids“ (NAPLs) wie beispielsweise Kraftstoffe oder Öle. Zur Lokalisierung von Untergrundverunreinigungen durch NAPLs werden herkömmlicherweise Rammkernsondierungen abgeteuft oder Grundwassermeßstellen errichtet, welche möglichst in Bereiche bekannter Kontaminationsherde bzw. potentieller Kontaminationsfahnen gelegt werden. Die an diesen Aufschlusspunkten gewonnenen Boden- bzw. Grundwasserproben werden *direkt* auf die jeweils relevanten Schadstoffe untersucht (Bundt, 1993).

Da sowohl das Abteufen von Rammkernsondierungen als auch die Installation von Grundwassermeßstellen vergleichsweise aufwendig sind, wird die Anzahl der letztlich zur Verfügung stehenden Probenahmepunkte zumeist durch finanzielle Vorgaben oder infrastrukturelle Gegebenheiten limitiert. Aufgrund der somit häufig unzureichenden Anzahl an Probenahmepunkten kann die Ausdehnung von NAPL-Kontaminationen des Untergrundes oft nur ungenau eingegrenzt werden. Das hat unter Umständen Fehlentscheidungen bei der Sanierungsplanung zur Folge. Aus diesem Grund sollte eine Methode zur Erkundung von NAPL-Kontaminationen entwickelt werden, die bei geringerem Aufwand eine höhere Dichte an Probenahme- bzw. Beobachtungspunkten zuläßt. Aufgrund des sowohl stofflich als auch räumlich häufig sehr uneinheitlichen Auftretens von NAPL-Kontaminationen im Untergrund ist hierbei ein einfach zu bestimmender Indikator wünschenswert, der eine *indirekte* Detektion der NAPLs als Summenparameter nicht nur punktuell, sondern raumintegrierend ermöglicht.

Das in der Bodenluft natürlich vorhandene radioaktive Edelgas Radon ist sehr präzise detektierbar. Zudem weist es eine sehr markante Löslichkeit in den verschiedensten NAPLs auf. Im Verteilungsgleichgewicht liegt im allgemeinen in einer NAPL eine zwölfmal höhere Radonkonzentration vor, als in der mit der NAPL im Kontakt stehenden Luft. Diese NAPL-spezifische Löslichkeit des Radons kann für jede NAPL mit Hilfe eines Radon-Verteilungskoeffizienten ausgedrückt werden. Aufgrund der guten Löslichkeit des Radons in NAPLs und vor dem Hintergrund des oben angesprochenen Problems bei der Lokalisierung von NAPL-Kontaminationen des Untergrundes wurde die folgende Arbeitsthese aufgestellt.

Infolge der sehr hohen Löslichkeit von Radon in NAPLs zieht eine in der grundwasserungesättigten Bodenzone vorliegende NAPL-Kontamination oder eine dem Grundwasser aufschwimmende NAPL-Phase aufgrund der Akkumulation des Radons in der NAPL eine lokale Verringerung der Radonkonzentration der Bodenluft innerhalb und in der Umgebung dieser Kontamination nach sich. Ist dieser Akkumulationseffekt, das heißt die durch die NAPL-Kontamination induzierte lokale Verringerung der Radonkonzentration der Bodenluft, auch in Oberflächennähe von signifikantem Ausmaß, ist es möglich, Aussagen zur Kontur der Kontamination auf Grundlage von Radonmessungen zu machen, welche auf dem fraglichen Gelände in einem ausreichend dichten Raster durchgeführt werden.

Da Radonmessungen vergleichsweise unkompliziert, wenig zeitaufwendig und sehr präzise durchführbar sind, würde die Lokalisierung von NAPL-Kontamination durch eine Radonkartierung eine deutlich höhere Messpunktzahl als die konventionelle Erkundung durch Rammkernsondierungen und Grundwassermeßstellen zulassen. Damit würde eine wesentlich

genauere Eingrenzung von NAPL-Kontaminationen möglich. Aufbauend auf einer solchen Radonkartierung könnten zudem die Rammkernsondierungen und Grundwassermeßstellen, die zum direkten Nachweis der Kontamination notwendig sind, zielgerichteter positioniert und somit in ihrer Anzahl optimiert werden.

Ziel der hier dokumentierten Arbeiten war es, die Signifikanz des vermuteten Zusammenhangs zwischen dem in der Bodenluft natürlich vorkommenden Radon und NAPL-Kontaminationen des Untergrundes zu untersuchen. Davon ausgehend sollten Aussagen zur Eignung des Radons als Indikator für NAPL-Kontaminationen des Untergrundes gemacht und eine feldtaugliche Technologie zur Durchführung von Radonkartierungen erarbeitet werden. Zur umfassenden Bearbeitung dieser Problemstellung wurden die im folgenden aufgeführten Arbeitsschwerpunkte festgelegt.

1. problemorientierte Darstellung der Theorie der Radonmigration im Boden
2. experimentelle Untersuchung von kurzzeitigen natürlichen Schwankungen der Radonkonzentration der Bodenluft mit besonderem Augenmerk auf deren Tagesgang; Untersuchung der Ursachen des Radontagesganges; insbesondere Untersuchung des Einflusses meteorologischer Parameter
3. experimentelle Untersuchung der spezifischen Affinität des Radons zu umweltrelevanten NAPLs
4. experimentelle Untersuchung des Einflusses von NAPL-Kontaminationen des Bodens auf die Radonkonzentration der Bodenluft; Feststellung der Signifikanz des NAPL-Einflusses im Vergleich zu den kurzzeitigen natürlichen Schwankungen der Radonkonzentration der Bodenluft
5. Erarbeitung einer feldtauglichen Meßtechnologie aufbauend auf den Ergebnissen der theoretischen und experimentellen Arbeiten
6. experimentelle Verifizierung der Arbeitsthese und Überprüfung der Feldtauglichkeit der Meßtechnologie durch Untersuchungen an drei real kontaminierten Standorten unterschiedlicher Ausdehnung

Das von der Deutschen Bundesstiftung Umwelt geförderte Forschungsvorhaben wurde am UFZ - Umweltforschungszentrum Leipzig-Halle GmbH und an der Georg-August-Universität Göttingen durchgeführt. Im Rahmen der Untersuchungen kam es zu einer engen Zusammenarbeit mit den Firmen Geophysik GGD – Gesellschaft für Geowissenschaftliche Dienste Leipzig mbH und IAF – Radioökologie Dresden GmbH. Die Ergebnisse der Untersuchungen werden mit dieser Arbeit vorgelegt.

2 Theoretische Grundlagen

2.1 Radon als natürlicher Bestandteil der Bodenluft

2.1.1 ^{219}Rn , ^{220}Rn und ^{222}Rn als Glieder natürlicher radioaktiver Zerfallsreihen

Radon (Rn) ist ein natürlich auftretendes radioaktives Edelgas. Das Mutternuklid des Radons ist das Radium (Ra), aus dem das Radon durch α -Zerfall hervorgeht. Das Radon selbst zerfällt ebenfalls durch α -Zerfall in das sehr kurzlebige Polonium (Po). Die drei natürlich vorkommenden Isotope des Radons sind das Radon (^{222}Rn), das Thoron (^{220}Rn) und das Actinon (^{219}Rn). Sie sind Glieder der natürlichen radioaktiven Zerfallsreihen des Urans-238 (^{238}U), des Thoriums (^{232}Th) bzw. des Urans-235 (^{235}U). Eine Besonderheit des Radons gegenüber allen anderen Gliedern der einzelnen Zerfallsreihen ist, daß es gasförmig ist und somit die Möglichkeit hat sich im Porenraum des Bodens oder Gesteins, in welchem es gebildet wurde, vom Ort seiner Entstehung fortzubewegen.

Die im hier besprochenen Zusammenhang relevanten Glieder der drei genannten natürlichen radioaktiven Zerfallsreihen sind in der folgenden Tab. 2-1. 1 aufgeführt (Wahl, 1996).

Tab. 2-1. 1: Ausgewählte Glieder der natürlichen Zerfallsreihen des ^{238}U , ^{232}Th und ^{235}U .

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

In Tab. 2-1. 1 sind die Halbwertszeiten $t_{1/2}$ der einzelnen Radionuklide angegeben. Die Halbwertszeit eines Radionuklids ist über das allgemeine Zerfallsgesetz

$$N = N^0 e^{-\lambda t}$$

GL 2-1. 1

als die Zeit t definiert, in der die Anzahl der ursprünglich vorhandenen Atome N^0 um die Hälfte, d.h. auf $N/N^0 = 0,5$ abnimmt. Mit GL 2-1. 1 ergibt sich die Halbwertszeit des Radons über dessen Zerfallskonstante ($\lambda_{\text{Rn}} = 2,1 \times 10^{-6} \text{ s}^{-1}$) zu 3,8235 Tagen. Die Zerfallskonstante des Radons λ_{Rn} wird im weiteren mit λ bezeichnet.

Aufgrund der sehr unterschiedlichen Halbwertszeiten der drei natürlichen Radonisotope und aufgrund der unterschiedlichen Häufigkeiten ihrer jeweiligen Mutternuklide in natürlichen Böden spielen die drei Radonisotope bei der Diskussion der Radonkonzentration der Bodenluft unterschiedliche Rollen. Da das ^{235}U nur etwa 0,71 % des gesamten natürlich vorkommenden Urans ausmacht und da das ^{219}Rn , als Radon-Glied der entsprechenden Zerfallsreihe, nur eine sehr geringe Halbwertszeit von etwa $t_{1/2} = 4\text{ s}$ aufweist, ist das ^{219}Rn bezüglich der Radonbilanz der Bodenluft praktisch zu vernachlässigen.

Die beiden anderen Radonisotope ^{220}Rn und ^{222}Rn treten in der Bodenluft eines durchschnittlichen Bodens in deutlich höheren Konzentrationen als das ^{219}Rn auf. ^{220}Rn und ^{222}Rn werden in der mineralischen Bodenmatrix in etwa gleichen Raten produziert. Zwar kommt das ^{232}Th , als Mutterisotop des ^{220}Rn , in der Erdkruste etwa vier mal häufiger vor als das ^{238}U , als Mutterisotop des ^{222}Rn (Mason & Moore, 1985), jedoch ist die Halbwertszeit des ^{232}Th fast vier mal größer als die des ^{238}U und seine Zerfallswahrscheinlichkeit damit etwa vier mal geringer. Aufgrund der somit im Normalfall etwa gleichen Produktionsraten von ^{220}Rn und ^{222}Rn im Boden und aufgrund der vergleichsweise langen Halbwertszeiten der beiden Radonisotope, kann somit sowohl das ^{220}Rn als auch das ^{222}Rn oder auch deren Summe zur Charakterisierung des Radonhaushalts eines Bodens herangezogen werden. Aufgrund seiner deutlich längeren Halbwertszeit ist das ^{222}Rn hierfür jedoch grundsätzlich am besten geeignet.

Die Ergebnisse der hier vorliegenden Arbeit beziehen sich ausschließlich das Radonisotop ^{222}Rn . Auf das Isotop ^{220}Rn wird nur in einzelnen Fällen eingegangen. Das ^{219}Rn wird völlig vernachlässigt. Im weiteren Verlauf wird mit "Radon" das Isotop ^{222}Rn und mit "Thoron" das Isotop ^{220}Rn bezeichnet.

Da in feldtauglichen Radonmonitoren (Genrich, 1999; Folkerts, 1991; Porstendörfer et al., 1978) die Messung sowohl von Radon als auch von Thoron über die Registrierung ihrer α -Zerfälle erfolgt, können die beiden Isotope bei der Untersuchung einer Bodenluftprobe nicht separat registriert werden, sondern werden zunächst in Summe detektiert. Soll sich die Interpretation der Meßergebnisse allein auf das Radon beziehen, muß gewährleistet werden, daß das Thoron vor der eigentlichen Meßwertaufnahme nahezu vollständig zerfallen ist. Die folgende Abb. 2-1. 1 zeigt beispielhaft die Entwicklung des Gehaltes einer frisch gewonnenen Bodenluftprobe an Radon und Thoron als Summenparameter (reale Messung mit Radonmonitor Alpha-GUARD, siehe Kapitel 3.3.2.1).

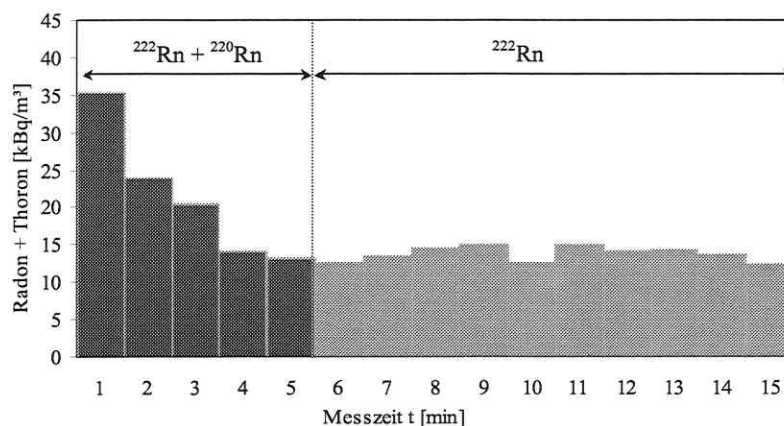


Abb. 2-1. 1: Entwicklung des Gehaltes einer frisch gewonnenen Bodenluftprobe an Gesamt-Radon in der Meßkammer eines Radonmonitors (reale Messung mit Alpha-GUARD).

Bei der in Abb. 2-1. 1 beispielhaft dargestellten Messung ist der Gehalt der Bodenluftprobe an ^{219}Rn bereits unmittelbar nach der Probenahme vernachlässigbar gering. Zum Zeitpunkt $t = 0 \text{ min}$ sind Radon und Thoron zu etwa gleichen Teilen in der Bodenluftprobe vorhanden. Sobald sich die Bodenluftprobe in der Meßkammer des Radonmonitors befindet und somit nicht mehr im Kontakt mit der radonproduzierenden mineralischen Bodenmatrix steht, wird das in der Bodenluft vorherrschende Gleichgewicht zwischen Radonproduktion und Radonzerfall gestört. Während die Konzentration des Radons aufgrund seiner vergleichsweise langen Halbwertszeit von 3,8 Tagen während der nächsten Stunden praktisch konstant bleibt, zerfällt das Thoron innerhalb der nächsten 5 Minuten (entspricht ca. $5 t_{1/2}$ des Thorons) zu etwa 97 %. Die nachfolgend registrierte Aktivitätskonzentration der Bodenluftprobe kann somit als reine ^{222}Rn -Konzentration interpretiert werden.

2.1.2 Die Folgeprodukte des Radons

Das Isotop Radon zerfällt, wie in Tab. 2-1. 1 dargestellt, durch α -Zerfall in das kurzlebige ^{218}Po ($t_{1/2} = 3,05 \text{ min}$). Die beiden nachfolgenden Glieder der Uranium-Zerfallsreihe sind das ^{214}Pb (β -Zerfall, $t_{1/2} = 26,8 \text{ min}$) und das ^{214}Bi (β -Zerfall, $t_{1/2} = 19,9 \text{ min}$). Die drei unmittelbaren Folgeprodukte des Radons haben somit deutlich kürzere Halbwertszeiten als das Radon selbst. Aufgrund dieser Halbwertszeiten stehen sie mit dem Radon in einem säkularen Gleichgewicht. Ein säkulares Gleichgewicht bedeutet, daß die Halbwertszeit des Mutterisotops im Vergleich zur Halbwertszeit des Tochterisotops sehr viel größer ist und somit das Tochterisotop, bezogen auf die Halbwertszeit des Mutterisotops, quasi sofort zerfällt. Das heißt, daß in einem bestimmten Zeitintervall immer nur so viele Tochterisotope zerfallen können, wie durch den Zerfall von Mutterisotopen gebildet werden und somit die Aktivitätskonzentrationen von Mutter- und Tochterisotop gleich sind. Dabei kann die Aktivitätskonzentration des Mutterisotops bezogen auf die Halbwertszeit des Tochterisotops als konstant angesehen werden. Da die Halbwertszeit des Radiums im Vergleich zur Halbwertszeit des Radons auch sehr groß ist, liegt zwischen Radium und Radon ebenfalls ein säkulares Gleichgewicht vor.

Die Aktivitätskonzentrationen der drei kurzlebigen Folgeprodukte des Radons werden als gewichtete Summe zur Equilibrium-Equivalent Decay-Product Concentration $EEDC_{222}$ zusammengefaßt. Die Wichtung der einzelnen Aktivitätskonzentrationen A erfolgt dabei auf Grundlage ihrer Halbwertszeiten und Zerfallsenergien. Die $EEDC_{222}$ ergibt sich über GL 2-1. 2 (z.B. Nero, 1988) zu

$$EEDC_{222} = 0,106 A_{218-\text{Po}} + 0,513 A_{214-\text{Pb}} + 0,381 A_{214-\text{Bi}} .$$

GL 2-1. 2

Da die Folgeprodukte des Radons im Gegensatz zum Radon selbst nicht gasförmig sind, lagern sie sich nach ihrer Entstehung an Festkörper oder Aerosole an und werden somit der Gasphase wieder entzogen. Aufgrund dessen liegt in der Raum- oder Atmosphärenluft im Regelfall kein Gleichgewicht zwischen der Radonaktivität A_{Rn} und der Aktivität seiner kurzlebigen Folgeprodukten $EEDC_{222}$ vor. Der Gleichgewichtsfaktor zwischen $EEDC_{222}$ und A_{Rn}

$$\Omega_{\text{GG}} = \frac{EEDC_{222}}{A_{\text{Rn}}}$$

GL 2-1. 3

liegt in der Außenluft im Mittel bei etwa 0,25 und in Raumluft im Mittel bei etwa 0,35, wobei hier die Raumdurchlüftung, das heißt die Luftwechselzahl eine große Rolle spielt (Keller et al., 1984).

2.1.3 Radon als allgegenwärtiger Bestandteil der Bodenluft

Wieviel Radon in der mineralischen Matrix eines Bodenvolumens produziert wird hängt direkt vom ^{226}Ra -Gehalt der mineralischen Matrix, also von deren Aktivitätskonzentration A_{Ra} ab. Einige Beispiele für mittlere ^{226}Ra -Gehalte von Gesteinen sind in Tab. 2-1. 2 zusammengefaßt.

Verschiedene Gesteinstypen weisen unterschiedliche Gehalte an Uran und Thorium und damit auch an Radium auf. Bei magmatischen Gesteinen sind, mit Ausnahme der Alkali-Feldspat-Gesteine, hohe Uran- und Thoriumgehalte im allgemeinen an hohe Glimmergehalten gebunden. Ursache hierfür ist, daß in den Glimmern, hier besonders in Biotiten, eingewachsene Zirkone auftreten, welche ihrerseits Wirtsminerale für Uran und Thorium sind. Dabei wird das Zirkonium diadoch durch Uran und Thorium ersetzt, wodurch in Zirkonen bis zu 12 % ThO_2 und 1,5% U_3O_8 angetroffen werden können (Rösler, 1984). Aufgrund des radioaktiven Zerfalls sind Zirkone oft isotropisiert und undurchsichtig bzw. weisen Biotite pleochroitische Höfe um die eingeschlossenen Zirkone auf (Strunz, 1982).

Wie viele andere inkompatible Elemente (Ba, Cs, Hf, K, Nb, Rb, Sr, Ta, Tl, Zr, REE) sind Uran und Thorium auch in Alkali-Feldspat-Gesteinen angereichert. Die Inkompatibilität von Uran und Thorium ist dabei, ähnlich dem Niob (Nb^{5+}) und dem Zirkon (Zr^{4+}), weniger durch ihre Größe, als vielmehr durch ihre hohe Ionenladung (+4) begründet (Gill, 1993). In Alkali-Feldspat-Gesteinen tritt auch der Zirkon häufig akzessorisch auf. Hohe Uran- und Thoriumgehalte werden hier weiterhin in den akzessorisch vorhandenen Mineralen Apatit, Allanit, Magnetit und Titanit festgestellt (Beuge, 2000). Zudem können auch reine Uranminerale wie Uraninit vorkommen (Seim, 1990). Die in Tab. 2-1. 2 aufgeführten Diskrepanzen der Radiumgehalte zwischen Syenit bzw. Phonolit und den anderen aufgeführten Gesteinen, sind jedoch nicht allein mit Hilfe der Uran- bzw. Thoriumgehalte zu erklären.

Aus den in Tab. 2-1. 2 aufgeführten Radiumkonzentrationen geht die in Gesteinen angetroffene Variationsbreite von A_{Ra} hervor. Ein entsprechendes Spektrum an Radiumgehalten wird in den Böden angetroffen, die durch Verwitterung aus den jeweiligen Gesteinen hervorgehen. Da Radium somit ein allgegenwärtiges Spurenelement in Böden ist, wird auch das Radon praktisch immer in der Bodenluft angetroffen. Das macht Radon zu einem natürlichen und allgegenwärtigen Bestandteil der Bodenluft.

Tab. 2-1. 2: Mittlere ^{226}Ra -Gehalte beispielhafter Gesteine verschiedener Gesteinsklassen (Nazaroff et al., 1988).

Gestein	Gesteinsklasse	A_{Ra} (Mittel) [Bq/kg]
Syenit	Alkali-Feldspat-Tiefengestein	692
Phonolit	Alkali-Feldspat-Ergußgestein	368
Granit	saures Tiefengestein	78
Rhyolit	saures Ergußgestein	71
Diorit	intermediäres Tiefengestein	40
Andesit	intermediäres Ergußgestein	26
Gabbro	basisches Tiefengestein	10
Basalt	basisches Ergußgestein	11
Schwarzschiefer	klastisches Sedimentgestein	73
Kalkstein	Evaporit	25

2.1.4 Physikalisch-chemische Eigenschaften des Radons

Die physikalisch-chemischen Eigenschaften des Radons sind in der Literatur umfangreich beschrieben worden. Als Beispiele seien hier Wilkening (1990) und Weigel (1978) genannt. Auf eine wiederholte Aufzählung allgemeiner Eigenschaften des Radons wird daher im Rahmen dieser Arbeit verzichtet. Das Augenmerk soll vielmehr auf die physikalisch-chemischen Besonderheiten des Radons gelenkt werden, welche im Rahmen des hier diskutierten Themas von Relevanz sind.

Neben der Besonderheit, daß Radon im Gegensatz zu allen anderen Gliedern der Zerfallsreihe des ^{238}U gasförmig ist und somit den Ort seiner Entstehung verlassen und im Porenraum des Bodens migrieren kann, weist es noch zwei weitere Eigenschaften auf, die es für seine in dieser Arbeit diskutierte Anwendung prädestinieren. Zum einen ist Radon nahezu chemisch inert und zum anderen zeigt es sehr markante Löslichkeiten in den verschiedensten organischen Flüssigphasen. Diese beiden Besonderheiten des Radons sollen im folgenden kurz diskutiert werden.

Daß Radon nahezu chemisch inert ist, liegt in seiner stabilen Elektronenkonfiguration begründet. In seiner Eigenschaft als Edelgas kann Radon durch den Porenraum eines Bodens migrieren, ohne chemische Bindungen einzugehen oder von Mikroorganismen metabolisiert zu werden.

Obwohl das Radon bei der Migration durch den Porenraum eines Bodens im Normalfall ein konservatives Verhalten zeigt, wurden in Laborversuchen verschiedene chemische Bindungen des Radons festgestellt. Durch Weigel (1978) wurden das RnF_2 und andere Fluorverbindungen als mögliche stabile Radonverbindungen genannt. Andere chemische Bindungen des Radons außer jenen, bei denen es mit fluoraktiven Stoffen reagiert, sind nach Weigel (1978) nicht bekannt. Neben diesen chemischen Verbindungen wird aber auch die Lösung des Radons in bzw. dessen Adsorption an verschiedensten Fluorverbindungen beschrieben. Aus diesen Bindungen ist das Radon thermisch nur sehr schwer wieder freizusetzen. Des weiteren wurde eine adsorptive Bindung des Radons an Kieselgele oder Aktivkohle beschrieben (Richter & Roßbander, 1997; Schütz, 1994). Vergleichbar damit kann es auch in sehr trockenen Böden zu einer adsorptiven Anlagerung des Radons an die Bodenmatrix kommen (Nazaroff, 1992; Schery & Whittlestone, 1989). Weiterhin sind Einlagerungsverbindungen in Chlathrate möglich. Durch Weigel (1978) werden hierbei besonders phenolische Chlathrate genannt.

Neben den genannten Verbindungen wird Radon auch strukturell in organischen Flüssigphasen eingebaut. Diese Tatsache führt unmittelbar zur zweiten der oben genannten wichtigen Besonderheiten des Radons, seiner sehr guten Löslichkeit in organischen Flüssigphasen bzw. Non-Aqueous Phase-Liquids (NAPLs). Im weiteren Verlauf dieser Arbeit werden organische Flüssigphasen zusammenfassend als NAPLs bezeichnet, da sich diese Bezeichnung in der internationalen Literatur immer stärker durchsetzt (Semprini et al., 2000; Schaefer et al., 1998; Hunkeler et al., 1997a und b; Guffraz & Redman, 1995; Wilson & Mackay, 1995; Tasker, 1995; Hopkins, 1995; DeRyck et al., 1993).

Die spezifische Löslichkeit des Radons in einer NAPL kann durch den Verteilungskoeffizient des Radons zwischen der jeweiligen NAPL und Luft

$$K_{NAPL/BL} = \frac{C_{Rn}^{NAPL}}{C_{Rn}^{BL}}$$

GL 2-1. 4

quantifiziert werden. Dabei ist C_{Rn}^{NAPL} die Radonkonzentration in der jeweiligen NAPL und C_{Rn}^{BL} die Radonkonzentration in der mit der NAPL im Kontakt stehenden Luft (Bodenluft). Einige Werte für $K_{NAPL/BL}$ sind Abb. 2-1. 2 zu entnehmen. Für einen großen Teil der untersuchten NAPLs nimmt $K_{NAPL/BL}$ Werte zwischen 10 und 20 ein (Clever et al., 1979), was die sehr gute Löslichkeit des Radons in den NAPLs belegt.

Da der entsprechende Verteilungskoeffizient von Radon zwischen Wasser und Luft $K_{W/BL}$ über ein weites Temperaturspektrum sehr gut untersucht und dokumentiert ist (Clever et al., 1979), kann $K_{NAPL/BL}$ auch über den Verteilungskoeffizient des Radons zwischen der NAPL und Wasser $K_{NAPL/W}$ und eine anschließende Umrechnung nach

$$K_{NAPL/BL} = K_{NAPL/W} K_{W/BL}$$

GL 2-1. 5

bestimmt werden. Die markante Löslichkeit des Radons in NAPLs ist die im hier diskutierten Zusammenhang entscheidende Eigenschaft des Radons. Aus diesem Grund soll das Löslichkeitsverhalten des Radons in NAPLs im folgenden etwas genauer betrachtet werden.

Radonatome sind aufgrund ihres Atomdurchmessers bzw. der Größe ihrer Elektronenhülle relativ gut polarisierbar (Lide, 1992). Daher ist es Molekülen polarer Flüssigkeiten möglich, in Radonatomen Dipolmomente zu induzieren und so mit ihnen in elektrostatische Wechselwirkung treten. Der sich dadurch ergebende Energiegewinn wird als Solvatationswärme bezeichnet. Eine ähnliche elektrostatische Anziehung ist auch zwischen Radonatomen und unpolaren Flüssigkeitsmolekülen möglich (Prausnitz et al., 1986). Ursache hierfür sind die Londonschen Dispersionskräfte, durch die eine temporäre Polarisierung im Zeitmittel unpolarer Moleküle hervorgerufen wird.

Da es derzeit noch keine allgemeingültige Theorie zur *quantitativen* Erfassung der in Flüssigkeiten auftretenden Wechselwirkungen gibt (Prausnitz et al., 1986), soll zur Beschreibung des Verteilungsverhaltens von Radon zwischen NAPLs und der Bodenluft auf die von Hildebrand und Scatchard in der ersten Hälfte des 20. Jahrhunderts entwickelte „Theorie der regulären Lösung“ zurückgegriffen werden. Das Modell nutzt als Maß für die zwischenatomaren bzw. zwischenmolekularen Wechselwirkungen in der Flüssigphase die Dichte der Kohäsionsenergie, welche als Quotient aus Verdampfungsenergie und molarem Volumen einer (reinen) Flüssigkeit leicht zugänglich ist. Die Wurzel aus diesem Quotienten wird als Hildebrandscher Löslichkeitsparameter, oder kurz Hildebrand-Parameter δ , bezeichnet und ist inzwischen zu einer fundamentalen Größe bei der Beschreibung vieler physikochemischer Vorgänge in Flüssigkeiten geworden (Barton, 1991, Prausnitz et al., 1986).

Auch Korrelationen zwischen den Löslichkeiten von Edelgasen in verschiedenen Lösungsmitteln und den jeweiligen Hildebrand-Parametern wurden beschrieben (Lewis et al., 1987; Steinberg & Manowitz, 1959; Jolley et al., 1958). Bei der Betrachtung der Lösung von Gasen in Flüssigkeiten

kann generell 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).

In Abb. 2-1.2 sind aus der Literatur entnommene Radon-Verteilungskoeffizienten verschiedener (reiner) NAPLs ($K_{NAPL/BL}$) und der Radon-Verteilungskoeffizient des Wassers $K_{W/BL}$ (Lewis et al., 1987; Clever et al., 1979) gegen deren Hildebrand-Parameter aufgetragen. Man erkennt, daß das Maximum der Radon-Verteilungskoeffizienten etwa im Bereich der Flüssigkeiten liegt, deren Hildebrand-Parameter dem des Radons ($\delta = 18,1 \text{ MPa}^{1/2}$; Prausnitz & Shair, 1961) sehr ähnlich sind. Die aliphatischen Alkohole scheinen hierbei eine Ausnahme zu bilden. Die hierfür publizierten Löslichkeitsdaten sind allerdings auch am unsichersten.

Über spezielle Berechnungsvorschriften für einen mittleren Hildebrand-Parameter sind die genannten Beziehungen auch zur Beschreibung der Gaslöslichkeit in Mischungen aus 2 oder 3 verschiedenen Flüssigkeiten anwendbar (Prausnitz et al., 1986; Linford & Hildebrand, 1969). Einer Ausdehnung dieser Betrachtung auf komplexere NAPL-Gemische wie z.B. Benzin, Diesel oder Petroleum steht jedoch entgegen, daß man zum einen deren Zusammensetzung nicht genau kennt bzw. diese stark schwankt, und man zum anderen auf Grund spezieller Mischungseffekte welche, noch nicht generell theoretisch erfaßt sind, auf prinzipielle Schwierigkeiten trifft (Barton 1991). In solchen (realen) Fällen hilft nur eine experimentelle Bestimmung der jeweiligen Radon-Verteilungskoeffizienten weiter.

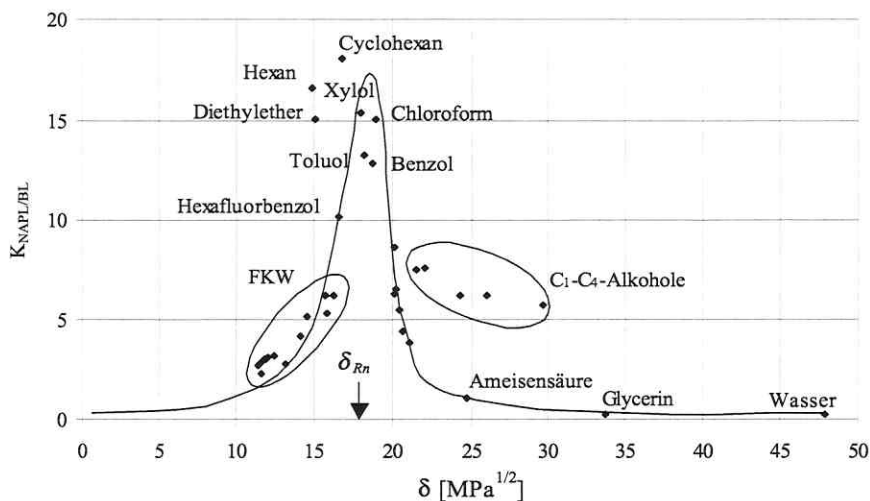


Abb. 2-1.2 Radon-Verteilungskoeffizienten verschiedener (reiner) NAPLs $K_{NAPL/BL}$ und des Wassers $K_{W/BL}$ bei 15-25 °C (Lewis et al., 1987; Clever et al., 1979) vs. Hildebrand-Parameter δ der Flüssigkeiten bei $T = 25$ °C (Barton, 1991). Die nichtbezeichneten Datenpunkte repräsentieren verschiedene organische Säuren, Nitrobenzol und Anilin. Der Hildebrand-Parameter des Radons ist mit δ_{Rn} gekennzeichnet.

Es soll erwähnt werden, daß die zitierten Korrelationen zwischen Radon-Verteilungskoeffizient und Hildebrand-Parameter nur in dem angegebenen Temperaturbereich, das heißt in Nähe der Raumtemperatur, Gültigkeit haben und wegen der prinzipiellen Temperaturabhängigkeit thermodynamischer Größen nicht zur Vorhersage von Radon-Verteilungskoeffizient über weite Temperaturbereiche genutzt werden können.

2.1.5 Die Radonkonzentration der Bodenluft im Rahmen geowissenschaftlicher Anwendungen

Da Radon, wie oben diskutiert, ein allgegenwärtiger Bestandteil der Bodenluft ist und sich durch eine sehr präzise und selektive Detektierbarkeit auszeichnet, zieht es seit mehreren Jahrzehnten die Aufmerksamkeit der Geowissenschaftler auf sich. Die wichtigsten geowissenschaftlichen Anwendungen, welche die Radonkonzentration der Bodenluft als zentrale Meßgröße heranziehen, sollen in den folgenden Abschnitten kurz vorgestellt werden.

2.1.5.1 Der Einsatz von Radonmessungen bei der Uranprospektion

Eine seit den 1920er Jahren diskutierte geowissenschaftliche Anwendung von Radonmessungen ist der Einsatz von flächendeckenden Radonkartierungen zur Uranprospektion (Telford, 1983; Mogro-Campero & Fleischer, 1977; Warren, 1977; Gaucher, 1976; Peacock & Williamson, 1961). Dabei werden Radonmaxima in der oberflächennahen Bodenluft als Indikatoren für Uranerzvorkommen im Untergrund interpretiert. Der Vorteil der Radon-Methode gegenüber der Uranprospektion mit Hilfe der an der Erdoberfläche auftretenden Gamma-Strahlung liegt darin, daß die Radonkonzentration der Bodenluft ein charakteristischeres Signal-Background-Verhältnis als die oberflächige Gamma-Strahlung zeigt und somit signifikanter auf das Vorhandensein von Uranerz im Untergrund reagiert (Tanner, 1980).

Als Ursache der Radonmaxima über Uranlagerstätten wird allgemein die Diffusion des in der Lagerstätte entstehenden Radons in die oberflächennahe Bodenluft genannt. Bei einem zu großen Abstand der Lagerstätte von der Erdoberfläche wird das von der Lagerstätte ausgehende Radonsignal allerdings von der Radoneigenproduktion des Oberbodens überdeckt, wenn der diffusive Radontransport aus der Tiefe nicht durch eine advective, aufwärtsgerichtete Bodengasströmung unterstützt wird (Mogro-Campero & Fleischer, 1977). Ebenso ist die Detektion von Uranlagerstätten, die unterhalb des Grundwasserspiegels liegen, aufgrund der nur sehr langsamen Diffusion des Radons in Wasser bei einem rein diffusiven Radontransport nicht möglich. Auch hier ist nur dann ein positives Radonsignal in der oberflächennahen Bodenluft zu erwarten, wenn Radon bzw. Radium durch aufsteigende Formationswässer aus dem Bereich der Lagerstätte in das oberflächennahe Grundwasser transportiert werden.

Bis in welche Tiefe es möglich ist, Uranlagerstätten durch Radonmaxima in der oberflächennahen Bodenluft zu lokalisieren, wird in der Literatur kontrovers diskutiert. Nach Mogro-Campero & Fleischer (1977) kann die advective, aufwärtsgerichtete Bodengasströmung durch jahreszeitlich bedingte Temperaturinversionen im Oberboden unterbrochen werden, was die Interpretation von Radonkartierungen erschwert. Durch Tanner (1964, 1980) wird eine Vielzahl weiterer Literaturzitate genannt, in welchen Radonmaxima im Bereich von Uranlagerstätten beschrieben werden.

2.1.5.2 Der Einsatz von Radonmessungen bei der Erdbebenvorhersage

Ein weiteres wichtiges, wenn auch wesentlich jüngerer geowissenschaftliches Anwendungsgebiet von Radonmessungen ist die Erdbebenvorhersage. Von zahlreichen Autoren wurden erhöhte

Radonkonzentrationen sowohl in Grund- bzw. Quellwässern als auch in der Bodenluft im Vorfeld von größeren Erdbeben oder Vulkanausbrüchen beschrieben. Erste diesbezügliche Beobachtungen wurden in den 1960er Jahren in der ehemaligen Sowjetunion gemacht und werden durch Tanner (1980) zusammenfassend zitiert. Kontinuierliche Messungen der Radonkonzentration der Bodenluft in der Nähe potentieller Erdbebenherde in Kalifornien erbrachten in den 1970er Jahren vergleichbare Ergebnisse (Birchard & Libby, 1980; King, 1978).

Als eine Ursache der erhöhten Radonkonzentrationen der Bodenluft im Vorfeld seismischer Aktivitäten werden in der Literatur hochfrequente Vibrationen im Boden genannt, welche die Freisetzung von Radium und Radon aus der Mineralmatrix unterstützen. Die erhöhte Freisetzung von Radium und Radon wird dabei auf die Entstehung von Mikrorissen in den mineralischen Bodenpartikeln und die damit einhergehende Vergrößerung der inneren Oberfläche der Mineralmatrix zurückgeführt. Als weitere seismisch induzierte Ursachen werden der Aufstieg radiumhaltiger Formationswässer, elektromagnetische Einflüsse, die das Adsorptionsverhalten des Radons an die Mineralmatrix ändern und die Erhöhung der Gas- bzw. Wasserdurchlässigkeiten des Bodens genannt. Fleischer & Mogro-Campero (1985) postulierten nach der Untersuchung einer Vielzahl von seismischen Ereignissen in Alaska und den nordöstlichen Vereinigten Staaten, daß die Ursachen einer Beeinflussung der Radonkonzentration der Bodenluft durch Erdbeben in erster Linie mechanischer Natur sind. Mogro-Campero & Fleischer (1977) bemerkten, daß ein Langzeitmonitoring von Radonkonzentrationen der Bodenluft zur Erdbebenvorhersage mit Hilfe von ortsfesten Meßstationen zu irreführenden Ergebnissen führen kann, da seismisch induzierte Radonquellen im Untergrund nicht ortsfest sind. Durch Schmid & Wiegand (1998) wurde der artverwandte Einfluß von verkehrsinduzierten Bodenvibrationen auf das Radonpotential des Bodens untersucht. Eine Vielzahl weiterer wichtiger Literaturzitate zur Beziehung zwischen temporären Änderungen der Radonkonzentration der Bodenluft und lokalen seismischen Aktivitäten wurde z.B. durch Fleischer & Mogro-Campero (1985) und Tanner (1980) zusammengestellt.

2.1.5.3 Der Einsatz von Radonmessungen zur Detektion von geologischen Störungszonen

Vergleichbar mit der oben beschriebenen Prospektion von Uranlagerstätten können auch überdeckte Kluftsysteme oder geologische Störungszonen im Untergrund einen Einfluß auf die Radonkonzentration der Bodenluft oberflächennaher Bodenhorizonte haben. Dabei können Radonmaxima als Indikator dienen, da die mineralische Füllung einer Störungzone zumeist eine höhere Gasdurchlässigkeit und eine größere innere Matrixoberfläche als das umgebende Gestein aufweist. Eine weitere Ursache kann der bevorzugte Aufstieg radiumhaltiger Tiefenwässer in einer solchen Störungzone sein. Nach Tanner (1964) wird beim Zusammentreffen von in Kluftsystemen aufsteigenden Tiefenwässern und oberflächennahem Grundwasser Radium ausgefällt und im Bereich des Kluftsystems angereichert. Das wiederum führt zu erhöhten Radonkonzentrationen sowohl des Grundwassers als auch der Bodenluft in der Umgebung des Kluftsystems. Durch Tanner (1964) und Schiffer (1996) wird eine Vielzahl von Literaturzitaten zum Einsatz von Radonmessungen zur Detektion von geologischen Störungszonen genannt.

2.1.5.4 Die Untersuchung des Gesundheitsrisikos durch eine erhöhte Radonexposition in Gebäuden

Im Zusammenhang mit dem natürlichen Radonpotential des Bodens rückt die Gefährdung der menschlichen Gesundheit durch eine erhöhte Radonexposition seit den späten 1970er Jahren immer stärker in das Zentrum der Diskussion. Das Interesse gilt dabei in erster Linie erhöhten Radonkonzentrationen in der Raumluft von Wohnhäusern. Dabei geht das Problem der natürlichen Radonbelastung nicht vom Radon selber, sondern von seinen kurzlebigen Folgeprodukten aus. Im Gegensatz zum chemisch inerten Edelgas Radon, welches kaum im Körper akkumuliert wird, sind seine kurzlebigen Folgeprodukte chemisch reaktiv und werden zum Teil durch das Zellgewebe resorbiert, sobald sie inhaled werden. Der nachfolgende radioaktive Zerfall der Nuklide schädigt das Gewebe in unmittelbarer Nachbarschaft und erhöht so das Krebsrisiko.

Das Ausmaß des Problems der natürlichen Radonbelastung kann nach Nazaroff (1992) mit drei Punkten charakterisiert werden: (1) die Gesamtstrahlungsbelastung, die ein Mensch während seines Lebens erfährt, wird zum größten Teil durch die Inhalation der kurzlebigen Radonfolgeprodukte repräsentiert, (2) vereinzelt sind Menschen natürlichen Radonkonzentrationen ausgesetzt, welche die durchschnittliche Radonbelastung um eine oder zwei Größenordnungen übersteigen und (3) aus medizinischer Sicht wird ein deutlicher Zusammenhang von erhöhter Radonexposition und Lungenkrebs oder Leukämie gesehen.

Während noch in den 1970er Jahren davon ausgegangen wurde, daß Radon in erster Linie aufgrund der Diffusion durch Fundamente aus dem Boden in die Kellerräume von Gebäuden gelangt, ist heute bekannt, daß die Radondiffusion durch ein Fundament viel zu langsam ist, um alleinige Ursache für erhöhte Radonkonzentrationen der Raumluft zu sein (Lindmark & Rosen, 1985). Vielmehr geht man heute davon aus, daß die Radonbelastung in Wohnräumen hauptsächlich durch den advektiven Eintritt von Bodenluft durch Risse oder andere Öffnungen in Fundamenten hervorgerufen wird. Dieser Eintritt der Bodenluft wird seinerseits von Druckgradienten gesteuert, die sich zwischen dem luftgefüllten Porenraum des Bodens und den Kellerräumen der betroffenen Gebäude ausbilden. Für diese These spricht unter anderem, daß bei Raumluftmessungen in geschlossenen Kellerräumen sehr kurzfristig starke Schwankungen der Radonkonzentration festgestellt wurden, was durch einen bevorzugt diffusiven Eintrag nicht zu erklären wäre.

Die ausschlaggebenden Faktoren der Radonbelastung in Wohnhäusern sind somit das Radonpotential des Bodens in dem das Haus gegründet wurde, die Dichtheit des Fundamentes gegenüber Radondiffusion und Bodengasadvektion, die Belüftung des Gebäudes sowie der Effekt von Heizungs- oder Klimaanlage. Auch der Einfluß von meteorologischen Parametern wie Lufttemperatur, Luftdruck oder Windgeschwindigkeit auf den Radontransport, spielt eine große Rolle und wird gegenwärtig unter den verschiedensten Aspekten untersucht. In der Literatur existieren mittlerweile zahlreiche Veröffentlichungen zur Radonbelastung in Wohnräumen. Stellvertretend seien hier Publikationen von Reineking (1998), Nielson et al. (1994), Nazaroff (1992), Nazaroff & Sextro (1989), Mowris & Fisk (1988), Nazaroff (1988) und Bruno (1983) genannt.

2.1.5.5 Der Einsatz von Radonmessungen bei der Kohlenwasserstoffprospektion

Die letzte geowissenschaftliche Anwendung, welche im Rahmen dieses Kapitels angesprochen werden soll, ist die Prospektion von Kohlenwasserstofflagerstätten mit Hilfe von Radonanomalien in der oberflächennahen Bodenluft. Auf den ersten Blick scheint zwischen der Nutzung der Radonkonzentration der Bodenluft zur Lokalisierung von Erdöllagerstätten und der im Rahmen dieser Arbeit behandelten Nutzung der Radonkonzentration der Bodenluft zur Lokalisierung von NAPL-Kontaminationen des Untergrundes ein enger Zusammenhang zu bestehen. Um zu verdeutlichen, daß dieser Zusammenhang grundsätzlich *nicht* besteht und vor dem Hintergrund, daß die Annahme eines solchen Zusammenhangs bei der Erkundung von NAPL-Schadensfällen durch Radonkartierungen gravierende Fehlinterpretationen der Meßergebnisse zur Folge haben kann, soll der Zusammenhang zwischen Kohlenwasserstofflagerstätten und der Radonkonzentration der Bodenluft im folgenden etwas genauer beleuchtet werden.

Die Idee, Erdöllagerstätten mit Hilfe der Radonkonzentration der Bodenluft zu lokalisieren wird seit der ersten Hälfte des 20. Jahrhunderts verfolgt und auch erfolgreich angewandt. Bei der Diskussion des Phänomens wurden die Wechselwirkungen zwischen den Kohlenwasserstoffen im Untergrund und dem Radon in der Bodenluft jedoch von Beginn an sehr kontrovers besprochen und nicht nur quantitativ sondern auch qualitativ unterschiedlich interpretiert. So wurden sowohl Radonmaxima als auch Radonminima der Bodenluft als Indikatoren für Erdöllagerstätten herangezogen, wobei jedoch die Fallbeispiele, bei denen Radonmaxima auftraten, deutlich überwiegen. Eine sehr umfangreiche Zusammenstellung und Diskussion der bis zu diesem Zeitpunkt verfügbaren Publikationen wurde durch Armstrong & Heemstra (1973) vorgelegt.

Bei der Betrachtung der publizierten Daten und Interpretationsversuche wird klar, daß der beobachtete Zusammenhang nicht mit einer einfachen, direkten Kausalität zwischen dem Erdölvorkommen und dem Radon in der Bodenluft begründet werden kann, sondern daß es sich vielmehr um ein komplexes Phänomen handelt, welches durch verschiedene Parameter gesteuert wird und in Abhängigkeit der Einflußstärke dieser einzelnen Parameter sowohl zu quantitativ als auch zu qualitativ unterschiedlichen Resultaten führen kann. Die einflußnehmenden Parameter sind dabei geochemischer, tektonischer und geologischer Natur (Tanner, 1964).

Ein erster geochemischer Aspekt ist, daß sich Kohlenwasserstoffe und Uran im Zuge der Lagerstättenbildung in einer ähnlichen reduzierenden Fazies akkumulieren. Das hat zur Folge, daß sowohl Uran als auch seine Folgeprodukte in Erdölvorkommen angereichert auftreten. Ein zweiter geochemischer Aspekt ist das Verteilungsverhalten von Radium zwischen dem Erdöl einer Lagerstätte und den das Erdölvorkommen umströmenden Formationswässern. Da Radium eine stärkere Affinität zu Wasser als zu Erdöl hat, wird es durch Formationswässer, die in Kontakt mit dem Erdöl kommen, aus dem Öl extrahiert und somit im Wasser angereichert (Morse et al., 1982). Da Radium das Mutternuklid des Radons ist, liegt folglich auch das Radon in diesen Formationswässern angereichert vor.

Ein rein diffusiver Aufstieg des Radons bis in Oberflächennähe ist aufgrund der Halbwertszeit des Radons und der Tiefe der Lagerstätte zumeist nicht möglich. Um das in den Formationswässern

angereicherte Radon bzw. Radium in die Nähe der Erdoberfläche zu bringen, ist vielmehr ein konvektiver Aufstieg der Formationswässer notwendig (Morse et al., 1982). Wie schnell dieser Aufstieg der radium- und radonhaltigen Tiefenwässer erfolgt, hängt von den geothermischen Gegebenheiten, den Wegsamkeiten für die migrierenden Wässer und von gegebenenfalls vorliegenden seismischen Aktivitäten ab. Wo die radium- und radonhaltigen Wässer in Bezug auf die Lokalität der Lagerstätte in oberflächennahe Aquifere eintreten, ist in erster Linie durch die lokale tektonische Situation bestimmt. Letztlich wird sich dort ein Radonmaximum in der oberflächennahen Bodenluft herausbilden, wo die aufsteigenden Formationswässer das Grundwasser speisen und somit eine verstärkte Entgasung von Radon aus dem Grundwasser hervorrufen. Einerseits kann das direkt über der Lagerstätte sein, was auch ein Radonmaximum *über* der Lagerstätte zu Folge hätte, andererseits kann es aber auch zu einem Aufstieg der Formationswässer in Kluftsystemen kommen, die tangential zur Lagerstätte angeordnet sind, was ein Radonmaximum *um* die Lagerstätte und somit ein relatives Radonminimum direkt über der Lagerstätte nach sich ziehen würde (Morse et al., 1982).

Ein weiteres Erklärungsmodell schlugen Morse & Rana (1983) vor. Danach werden durch hochvolatile Kohlenwasserstoffe, die in Kluftsystemen aus dem reduzierenden Milieu einer Kohlenwasserstofflagerstätte in das oxidierende Milieu eines oberflächennahen Aquifers aufsteigen, im Grundwasser gelöste Radionuklide in karbonatischen Sekundärmineralen ausgefällt und lokal angereichert. Somit können Kohlenwasserstofflagerstätten indirekt durch radiometrische Anomalien, welche Sekundärmineralanreicherungen zur Ursache haben, lokalisiert werden.

Andererseits beschreiben Morse & Zinke (1995) ein Modell, nachdem mobiles, gut wasserlösliches, sechswertiges Uran durch aufsteigende hochvolatile Kohlenwasserstoffe zu immobilem, vierwertigen Uran reduziert wird. Diese Reduktion des Urans verhindert dessen Aufstieg mit Formationswässern und hat verringerte Urangehalte des Bodens in Oberflächennähe zur Folge. Das wiederum zieht verringerte Radonkonzentrationen im Oberboden nach sich.

Durch Morse (1989) und Morse et al. (1982) wird auch die Möglichkeit der Unterstützung der aufwärtsgerichteten Radonmigration durch aus einer Kohlenwasserstofflagerstätte aufsteigende Gase genannt. Als sogenannte „Carrier Gase“ nennt Morse (1989) Kohlendioxid, Helium und die Gruppe der BTEX.

Der vorangegangene Abschnitt sollte verdeutlichen, daß sowohl positive als auch negative Radonanomalien im Oberboden, die in Verbindung mit Kohlenwasserstofflagerstätten auftreten können, keineswegs das Kohlenwasserstoffvorkommen allein zur Ursache haben, sondern vielmehr an die gesamte Lagerstätte als komplexe geologisch / geochemische Struktur gebunden sind. Aus diesem Grund ist das Prinzip der Detektion von Kohlenwasserstofflagerstätten mit Hilfe von Radonmaxima der Bodenluft als Indikator keinesfalls unmodifiziert auf die Lokalisierung von NAPL-Kontaminationen des Untergrundes übertragbar, da hier eine völlig andere Situation vorliegt.

2.2 Der Boden als Drei-Phasen-System und seine physikalischen Kenngrößen

2.2.1 Der Boden als Drei-Phasen-System

Ein Boden kann als natürliches Gemisch aus Lithosphären-, Atmosphären-, Hydrosphären- und Biosphärenbestandteilen definiert werden. Dabei repräsentieren die mineralische Bodenmatrix, die Bodenluft im Porenraum, die Flüssigphase im Porenraum (im Normalfall Bodenwasser) und die Humusbestandteile die einzelnen Phasen des Bodens (Ahl et al., 1991; Schachtschabel et al., 1989). Mit zunehmender Bodentiefe geht der Humusanteil des Bodens stark zurück, so daß im Falle der hier diskutierten Problemstellung Bodenhorizonte in größeren Tiefen, das heißt unterhalb des humosen Bodenhorizontes, als Drei-Phasen-System betrachtet werden können. In der hier vorliegenden Arbeit wird der Boden als ein solches Drei-Phasen-System mit mineralischer Phase, Flüssigphase und Gasphase angesehen.

Für den Fall, daß die Flüssigphase des Bodens ausschließlich durch Bodenwasser repräsentiert wird (Normalfall), gilt für die einzelnen Volumenanteile der drei genannten Phasen am Gesamtvolumen eines Bodenkörpers V_{ges} die Beziehung

$$V_{ges} = V_M + V_P \quad \text{GL 2-2. 1}$$

mit

$$V_P = V_W + V_{BL} \quad \text{GL 2-2. 2}$$

wobei der mineralische Anteil am Bodenvolumen mit V_M , der Porenanteil mit V_P , der Porenwasseranteil mit V_W und der Bodenluftanteil mit V_{BL} bezeichnet wird. Die dimensionslose Porosität n eines Bodens ergibt sich dementsprechend über GL 2-2. 3. In Tab. 2-2.1 sind typische Porositäten verschiedener Bodentypen angegeben.

$$n = \frac{V_P}{V_{ges}} \quad \text{GL 2-2. 3}$$

Die dimensionslose Wassersättigung des Porenraums wird mit

$$S_W = \frac{V_W}{V_P} = 1 - S_{BL} \quad \text{GL 2-2. 4}$$

definiert, wobei S_{BL} der bodenluftgefüllte Porenanteil ist. Die Wassersättigung des Porenraums S_W wird auch als Bodenfeuchte und der maximale gegen die Einwirkung der Schwerkraft in einem Bodenvolumen festgehaltene Anteil an S_W als Feldkapazität des Bodens bezeichnet.

Das Bodenwasser ist nur teilweise frei beweglich. Dieser frei bewegliche Anteil tritt als Grund-, Stau- bzw. Sickerwasser auf. Das gegen die Schwerkraft an die mineralische Bodenmatrix gebundene, und somit nicht frei bewegliche Bodenwasser, wird in das Adsorptions- und das Kapillarwasser unterteilt. Der Anteil des Adsorptionswassers, also des adsorbtiv an die Oberfläche

der mineralischen Matrixpartikel gebundenen Wassers an S_W steigt mit abnehmender mittlerer Korngröße des Bodens, d.h. mit zunehmender innerer Matrixoberfläche pro Volumeneinheit (Schachtschabel et al., 1989). Die Dicke dieser adsorbtiv gebundenen Wasserschicht beträgt etwa 1 nm (Schachtschabel et al., 1989). Das ebenfalls fest an die Mineralmatrix gebundene Kapillarwasser lagert sich in feinen Kapillaren oder in Zwickeln der mineralischen Bodenmatrix unter Ausbildung von Menisken ab. Wie auch das Adsorptionswasser hat das Kapillarwasser gegenüber dem frei beweglichen Wasser einen geringeren Dampfdruck, wobei sich der Dampfdruck mit kleiner werdendem Kapillardurchmesser verringert. Das bedeutet, je kleiner die Kapillardurchmesser in einem Bodengefüge sind, um so mehr Energie wird zur Mobilisierung des Kapillarwassers benötigt. Generell gilt daher, je feinkörniger ein Boden ist, um so größer ist bei einer gegebenen Bodenfeuchte S_W der Anteil an fest an die Bodenmatrix gebundenem Wasser (Haftwasser) und um so geringer ist der frei bewegliche Wasseranteil an S_W . In Abb. 2-2.1 ist die Beziehung zwischen Gesamtporenraum und Haftwasseranteil am Porenraum dargestellt (Hölting, 1989)

Tab. 2-2.1: Typische Porositäten verschiedener Bodentypen (Schachtschabel et al., 1989).

Material	Porosität n [%]
Sandböden	46 ± 10
Schluffböden	47 ± 9
Lehmböden	43 ± 12
Tonböden	50 ± 15

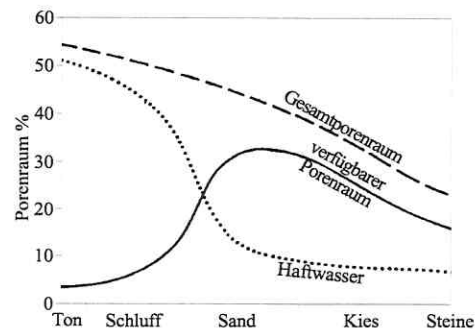


Abb. 2-2.1: Beziehung zwischen Gesamtporenraum und Haftwasseranteil am Porenraum (Hölting, 1989).

2.2.2 Die Bodengasadvektion und ihre Kenngrößen

2.2.2.1 Gaspermeabilität, advective Flußdichte und Advektionslänge

Eine der im hier besprochenen Zusammenhang wichtigsten bodenphysikalischen Kenngrößen ist die Gaspermeabilität k des Bodens. Die Gaspermeabilität ist maßgeblich dafür, mit welcher Abstandsgeschwindigkeit v bzw. mit welcher advectiven Flußdichte J_a ein Gas bei einem gegebenen Druckgradienten ∇P durch einen Bodenkörper strömt.

Da in einem trockenen Boden nur der bodenluftgefüllte Porenraum n effektiv für die Bodengasadvektion zur Verfügung steht, wird bei der advectiven Flußdichte J_a zwischen der effektiven Flußdichte $J_{a,e}$ und der integralen Flußdichte $J_{a,i}$ unterschieden. Die sich nur auf die Querschnittsfläche des bodenluftgefüllten Porenraums beziehende effektive advective Flußdichte steht mit der sich auf die gesamte Querschnittsfläche des durchströmten Bodenvolumens beziehenden integralen advectiven Flußdichte über

$$J_{a,i} = n J_{a,e}$$

GL 2-2. 5

in Beziehung.

Die Strecke, die ein Radonatom während seiner durchschnittlichen Lebenszeit τ bei einer gegebenen Abstandsgeschwindigkeit der Bodenluft zurücklegen kann, wird als Advektionslänge des Radons bezeichnet. Die durchschnittliche Lebenszeit eines Radonatoms ist über die Zerfallskonstante des Radons λ mit

$$\tau = \lambda^{-1}$$

GL 2-2. 6

definiert und beträgt 5,5161 Tage. Die Advektionslänge des Radons ergibt sich somit durch die Abstandsgeschwindigkeit der Bodenluft und die durchschnittliche Lebenszeit eines Radonatoms zu

$$\ell_a = v \tau = \frac{v}{\lambda}.$$

GL 2-2. 7

2.2.2.2 Die Abhängigkeit der Gaspermeabilität von der Bodenart und der Bodenstruktur

In lufttrockenen Böden, d.h. in Böden ohne frei bewegliches Bodenwasser, zeigt die Gaspermeabilität eine starke Abhängigkeit von der Größe, der Form, der Anzahl und der Ausrichtung der Bodenporen (Nazaroff, 1992). Bindige Böden, d.h. Böden die sich bevorzugt aus Tonen oder Schluffen zusammensetzen, weisen im allgemeinen eine geringere Gaspermeabilität als rollige Böden, wie beispielsweise Sandböden auf. Ursache hierfür ist zum einen der in bindigen Böden höhere Volumenanteil an fest an die mineralische Matrix gebundenem Bodenwasser, welches potentielle Gasmigrationswege blockiert und zum anderen der höhere Reibungswiderstand, den die strömende Bodenluft in einer feinkörnigen Matrix zu überwinden hat.

Aufgrund der Struktur eines Bodens kann es zudem zu einem anisotropen Verhalten der Gaspermeabilität kommen. Solche Anisotropien werden besonders häufig in bindigen Böden angetroffen. Einerseits können parallel zur Ausrichtung der Tonminerale (meist horizontal) höhere Gaspermeabilitäten auftreten als senkrecht dazu (Bowles, 1979; Rice et al., 1970), andererseits kann es in bindigen Böden durch Trockenrisse (Lindmark & Rosen, 1985; Holford et al., 1993) zu einer bevorzugten Gasmigration parallel zu diesen Rissen kommen (meist vertikal). Einen vergleichbaren Effekt wie Trockenrisse können Wurzelkanäle oder Grabgänge haben (Nazaroff, 1992; Topp et al., 1980).

In jedem Fall erschweren Anisotropien oder strukturellen Inhomogenitäten eines Bodens die Einschätzung seiner Gaspermeabilität. Bei der Modellierung von Gasmigrationsprozessen in Böden werden bezüglich k zumeist homogene und isotrope Bedingungen vorausgesetzt.

2.2.2.3 Die Abhängigkeit der Gaspermeabilität von der Bodenfeuchte

Da eine in-situ-Analyse oder eine laborative Bestimmung von k vergleichsweise aufwendig ist, wurde durch verschiedene Autoren versucht, die Gaspermeabilität eines Bodens über leichter zugängliche und direkt mit der Gaspermeabilität im Zusammenhang stehende Bodenparameter zu ermitteln. Zusammenfassende Betrachtungen zu solchen Versuchen finden sich u.a. bei Nazaroff (1992) oder Scheidegger (1974).

Im Falle lufttrockener Böden werden als für die Gaspermeabilität maßgebliche bodenphysikalische Parameter im allgemeinen die Porosität, die Porenform, der Korndurchmesser, die spezifische

innere Oberfläche der Bodenmatrix und die Tortuosität der Bodenmatrix als Maß für den Windungsgrad der durchströmten Kanäle herangezogen. Neben diesen kurzfristig invarianten Einflußgrößen kommt im Falle feuchter Böden die Wassersättigung und die damit einhergehende Blockierung des Porenraums als wichtige variable Einflußgröße hinzu.

In sandigen Böden erfolgt die Bodengasmigration bevorzugt in den großen Bodenporen. Eine maßgebliche Beeinflussung von k durch S_w wird daher in sandigen Böden erst dann festgestellt, wenn sich diese größeren Poren mit Wasser zu füllen beginnen (Nazaroff 1988). Rogers & Nielson (1991) fanden bei der Untersuchung von 137 verschiedenen sandigen Böden, das bis zu Wassersättigungen von etwa $S_w = 0,4$ kaum Änderungen der Gaspermeabilität auftraten, wohingegen ein weiteres Ansteigen von S_w ein drastisches Absinken von k zur Folge hatte. Ein ähnliches Verhalten beschreibt Nazaroff (1988) für einen lehmigen Sand, der bis zu einer Wassersättigung von $S_w = 0,42$ etwa konstante Gaspermeabilitäten aufwies. Singh & Virk (1996) ermittelten als für die Gaspermeabilität kritische Wassergehalte für einen Sand $S_w = 0,26$ und für einen natürlichen, nicht näher definierten Boden $S_w = 0,21$. Nazaroff (1988) vermutet, daß die Gaspermeabilität sandiger Böden generell kaum durch den Wassergehalt beeinflusst wird, solange dieser unterhalb der Feldkapazität des Bodens bleibt. In bindigen Böden kann es laut Nazaroff (1988) hingegen schon bei Wassergehalten weit unterhalb der Feldkapazität zu einer maßgeblichen Verringerung von k kommen, da hier aufgrund der geringeren Porendurchmesser wichtige Gasmigrationswege schon bei wesentlich geringeren Wassergehalten blockiert werden.

Ein Versuch zur Herleitung von k aus einfach zu bestimmenden Bodenparametern wurde von Rogers & Nielson (1991) vorgelegt. Dabei gingen neben S_w die Porosität n und der durchschnittliche Korndurchmesser der Bodenmatrix d in die Gleichung ein. Beim Versuch der empirischen Quantifizierung eines Zusammenhangs wurden zunächst in lufttrockenen Böden Proportionalitäten zwischen k und n^2 bzw. k und $d^{4/3}$ festgestellt. Zur Eliminierung der Einflüsse von n und d , das heißt zur Normierung des jeweiligen Bodens auf einen Standardboden, wurde die sogenannte normierte Gaspermeabilität k' mit

$$k' = k \frac{500^2}{d^{4/3} n^2}$$

GL 2-2. 8

eingeführt. Eine Betrachtung der Abhängigkeit dieser normierten Gaspermeabilität k' von S_w erbrachte letztlich die empirische Korrelationsfunktion

$$k' = \exp(-12 S_w^4)$$

GL 2-2. 9

bzw.

$$k = d^{4/3} \left(\frac{n}{500} \right)^2 \exp(-12 S_w^4) .$$

GL 2-2. 10

Die durch GL 2-2. 10 beschriebene Abhängigkeit der Gaspermeabilität k von S_w ist in Abb. 2-2. 2 für die Korngrößen $d = 0,2 \text{ mm}$ (Kornklassengrenze Mittelsand / Feinsand) und $d = 0,063 \text{ mm}$ (Kornklassengrenze Feinsand / Grobschluff) bei einer gegebenen Porosität von $n = 0,4$ dargestellt. Die beiden Modellkurven zeigen zum einen, daß der feinkörnige Boden immer eine geringere

Gaspermeabilität aufweist als der grobkörnige und zum anderen, daß die Gaspermeabilität relativ unempfindlich auf den Porenwassergehalt S_w reagiert, solange dieser nicht ca. 40 % übersteigt. Diese Aussagen decken sich mit den Beobachtungen der oben genannten Autoren.

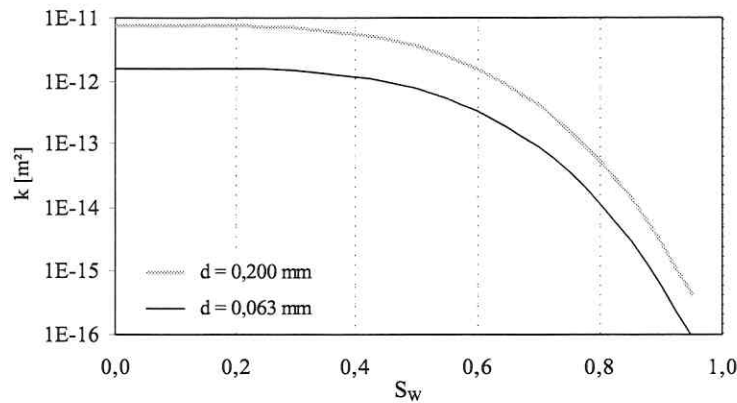


Abb. 2-2. 2: Modellhafte Abhängigkeit der Gaspermeabilität k von S_w für die Korngrößen $d = 0,200 \text{ mm}$ und $d = 0,063 \text{ mm}$ bei einer gegebenen Porosität von $n = 0,4$ (nach GL 2-2. 10).

2.2.2.4 Typische Gaspermeabilitäten häufiger Bodentypen

Der Wertebereich von in natürlichen Böden angetroffenen Gaspermeabilitäten überdeckt fast neun Größenordnungen. In der folgenden Tab. 2-2. 2 sind typische Gaspermeabilitäten für verschiedene Bodenarten zusammengestellt. Die Werte gelten für ideale Böden, das heißt für Böden die nicht von Trockenrissen oder ähnlichen bodenstrukturellen Inhomogenitäten durchsetzt sind.

Tab. 2-2. 2: Typische Gaspermeabilitäten verschiedener Bodentypen (Nazaroff 1988).

Material	Gaspermeabilität $k \text{ [m}^2\text{]}$
Gewaschener Kies	$10^{-7} - 10^{-9}$
Gleichförmiger Grobsand	$7,5 \times 10^{-10}$
Gleichförmiger Mittelsand	10^{-10}
Gewaschenes Sand – Kies – Gemisch	$10^{-9} - 10^{-12}$
Gewaschenes, gut abgestuftes Sand – Kies – Gemisch	10^{-11}
Gleichförmiger Feinsand	$6,0 \times 10^{-12}$
Gut abgestuftes, schluffiges Sand – Kies – Gemisch	$7,5 \times 10^{-13}$
Schluffiger Sand	10^{-13}
Gleichförmiger Schluff	$7,5 \times 10^{-14}$
Sehr feine Sande, Schluffe, Sand-Schluff-Ton-Gemische	$10^{-12} - 10^{-16}$
Sandiger Ton	$7,5 \times 10^{-15}$
Schluffiger Ton	10^{-15}
Ton	10^{-16}
Homogene Tone	$< 10^{-16}$

Während in hochpermeablen Böden die advective Gasmigration, also die Bodengasströmung dominiert, überwiegt in geringpermeablen Böden die diffusive Gasmigration. Durch Nazaroff (1992) wurde als Gaspermeabilität, welche zwischen bevorzugt advektiver und bevorzugt diffusiver Migration des Radons unterscheidet ein Wert von etwa $k = 10^{-11} \text{ m}^2$ genannt. Die Abhängigkeit des diffusiven Gasflusses von verschiedenen bodenphysikalischen Kenngrößen wird im folgenden Kapitel 2.2.3 besprochen.

2.2.3 Die Bodengasdiffusion und ihre Kenngrößen

2.2.3.1 Diffusionskoeffizient, diffusive Flußdichte und Diffusionslänge

So wie die Gaspermeabilität der maßgebliche Parameter für die advective Bodengasmigration im Porenraum eines Bodens ist, so bestimmt der Diffusionskoeffizient D des Bodens mit welcher diffusiven Flußdichte ein Gas bei einem gegebenen Konzentrationsgradient dieses Gases ∇C durch den Bodenkörper diffundiert.

Der Diffusionskoeffizient D ist sowohl von der diffundierenden Komponente als auch von dem Material abhängig, durch welches die jeweilige Komponente diffundiert. Im hier besprochenen Zusammenhang handelt es sich in beiden Fällen um Gase, nämlich um die Bodenluft als durchströmtes Fluid und das Radon als diffundierende Substanz.

Die diffusive Flußdichte des Radons in einem Bodenkörper J_d kann sich auf die gesamte Querschnittsfläche des durchströmten Bodenvolumens oder nur auf die effektiv für die Diffusion verfügbare Querschnittsfläche der miteinander in Verbindung stehenden gasgefüllten Bodenporen beziehen. Weiterhin kann der Konzentrationsgradient ∇C_{Rn} auf die tatsächliche, von der Tortuosität des Bodens bestimmte Wegstrecke im Porenraum oder auf die kürzeste Verbindung zwischen den beiden betrachteten Punkten bezogen werden. Zumeist wird bei der Diskussion der diffusiven Flußdichte des Radons die Diffusion durch die effektiv zu Verfügung stehende Porenquerschnittsfläche entlang des Konzentrationsgradienten, der sich über die kürzeste Verbindung der beiden betrachteten Punkte aufbaut, betrachtet. Diese Flußdichte wird als die effektive diffusive Flußdichte bezeichnet und analog zu $J_{a,e}$ mit $J_{d,e}$ bezeichnet. Ihr liegt der sich auf die durchströmte Querschnittsfläche der luftgefüllten Bodenporen beziehende effektive Diffusionskoeffizient D_e zu Grunde. Soll die sich auf die gesamte Querschnittsfläche des Bodens beziehende Flußdichte betrachtet werden, ist der integrale Diffusionskoeffizient D_i zugrunde zu legen. Diese Betrachtungsweise wird zum Beispiel bei der Beschreibung der Radonexhalation aus der Erdoberfläche herangezogen. Die auf den Gesamtquerschnitt bezogene integrale diffusive Flußdichte wird analog zu $J_{a,i}$ mit $J_{d,i}$ bezeichnet. In einem trockenem Boden steht $J_{d,i}$ mit $J_{d,e}$ über

$$J_{d,i} = n J_{d,e}$$

GL 2-2. 11

in Beziehung. Dementsprechend kann in einem trockenem Boden der integrale Diffusionskoeffizient D_i über

$$D_i = n D_e$$

GL 2-2. 12

in den sich nur auf die Querschnittsfläche der gasgefüllten Bodenporen beziehenden effektiven Diffusionskoeffizient D_e umgerechnet werden.

Aufgrund der beschriebenen Vielfältigkeit der möglichen Betrachtung der Bodengasdiffusion, kommt es in der Literatur häufig zu Unstimmigkeiten bezüglich des Diffusionskoeffizienten (Nazaroff, 1992; Strong & Lewins, 1982). Oft bleibt bei der Diskussion von Ergebnissen oder bei der Modellierung von Szenarien unklar, ob von D_e oder D_i die Rede ist.

Die Diffusionslänge des Radons ist, entsprechend der im späteren Kapitel 2.4.3. besprochenen allgemeinen Migrationsgleichung, als die Wegstrecke definiert, auf der sich die Radonausgangskonzentration bei der Diffusion des Radons durch ein nichtradonproduzierendes Medium aufgrund des radioaktiven Zerfalls des Radons um den Faktor $(1-e^{-1})$ verringert (Nazaroff et al., 1988; Tanner, 1964). Sie ist in einem lufttrockenem Boden mit

$$\ell_d = \sqrt{\frac{D_e}{\lambda}}$$

GL 2-2. 13

durch die Zerfallskonstante des Radons λ und den effektiven Diffusionskoeffizient des Bodens D_e bestimmt. Durch Tanner (1964) werden für die Diffusionslänge des Radons im Boden die in der folgenden Tab. 2-2. 3 aufgeführten überschlägigen Werte gegeben.

Tab. 2-2. 3: Typische Diffusionslängen des Radons für Böden verschiedener Feuchte (Tanner, 1964).

Material	Diffusionslänge ℓ_d [m]
Trockener Boden	2
Feuchter Boden	0,5
Nasser Boden	0,04
Wassergesättigter Boden	0,02

2.2.3.2 Die Abhängigkeit des Diffusionskoeffizienten von Bodenfeuchte, Bodenart und Bodenstruktur

Der Diffusionskoeffizient für Radon in Luft beträgt bei einer Temperatur von 15°C nach Hirst & Harrison (1939) $D_{L(15)} = 1,2 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$. Dieser Wert entspricht dem bei normalen Temperaturen theoretisch maximal im Boden möglichen Diffusionskoeffizienten. Der Diffusionskoeffizient für Radon in Wasser bei Raumtemperatur D_W ist mit $D_W = 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ (Andrews & Wood, 1972; Bird et al., 1960) um etwa vier Größenordnungen kleiner als D_L . Über GL 2-2. 13 ergibt sich als Diffusionslänge des Radons in Luft $\ell_d = 2,390 \text{ m}$, während es in Wasser nur $\ell_d = 0,022 \text{ m}$ sind. Das bedeutet, daß im Wasser kaum eine diffusive Ausbreitung des Radons möglich ist und für die diffusive Migration des Radons im Boden praktisch nur der bodenluftgefüllte Porenraum $n S_{BL}$ zur Verfügung steht. Da sich bei zunehmender Wassersättigung eines Bodens der luftgefüllte Porenanteil S_{BL} zugunsten des wassergefüllten Porenanteils S_W verringert, hat die Wassersättigung des Porenraums einen starken Einfluß auf den Diffusionskoeffizient eines Bodens.

In der grundwassergesättigten Bodenzone ist die Radondiffusion aufgrund der geringen Diffusionslänge des Radons in Wasser als Transportmechanismus praktisch zu vernachlässigen.

Nach Andrews & Wood (1972) ist schon eine Grundwasserfließgeschwindigkeit von 10^{-5} cm/s für den Radontransport effektiver als eine reine Diffusion des Radons im Grundwasser.

Da es aufwendig ist, den Diffusionskoeffizient eines Bodens in situ oder laborativ direkt zu bestimmen, gibt es Bestrebungen D über andere, leichter zugängliche Bodenkenngößen zu ermitteln, welche in direktem Zusammenhang mit D stehen. Durch Rogers & Nielson (1991) wurde aufbauend auf verschiedenen bis dahin aus der Literatur bekannten Modellierungsversuchen und auf Grundlage eines den Autoren vorliegenden Datensatzes von insgesamt 1073 an verschiedensten Bodentypen bestimmten Diffusionskoeffizienten, eine empirische Korrelationsfunktion zwischen D_L und D_e publiziert, welche als maßgebliche Größen die Porosität n und die Wassersättigung des Porenraums S_w heranzieht. Die Gleichung ist mit GL 2-2. 14 vorgestellt.

$$D_e = D_L n \exp(-6 S_w n - 6 S_w^{14n})$$

GL 2-2. 14

Der Porositätsterm $D_L n$ in GL 2-2. 14 berücksichtigt die Tortuosität des Bodens. Je mehr Feinkornanteile in einem sandigen Boden vorliegen, das heißt je kleiner n ist, um so gewundener ist der effektive Diffusionsweg und um so geringer wird das D_e des Bodens im Vergleich zu D_L . Das zeigt sich auch in Abb. 2-2. 3, welche die durch GL 2-2. 14 beschriebene Abhängigkeit illustriert. In der Abbildung liegt der Diffusionskoeffizient des Bodens mit der geringeren Porosität ($n = 0,3$) immer unterhalb der des Bodens mit der höheren Porosität ($n = 0,6$).

Der Exponentialterm $\exp(-6 S_w n - 6 S_w^{14n})$ in GL 2-2. 14 quantifiziert die Abhängigkeit des Diffusionskoeffizienten von S_w . Für geringe Wassersättigungen von etwa $S_w < 0,4$ wird D_e durch den Term $6 S_w n$ bestimmt. Erst bei höheren Wassersättigungen von etwa $S_w > 0,4$ wird der Kurvenverlauf von dem Term $6 S_w^{14n}$ beeinflusst, der sich bis $S_w = 0,4$ etwa konstant verhält.

Abb. 2-2. 3 ist zu entnehmen, daß ähnlich der Gaspermeabilität auch der Diffusionskoeffizient relativ unsensibel auf den Bodenwassergehalt reagiert, solange dieser nicht etwa 40 % übersteigt.

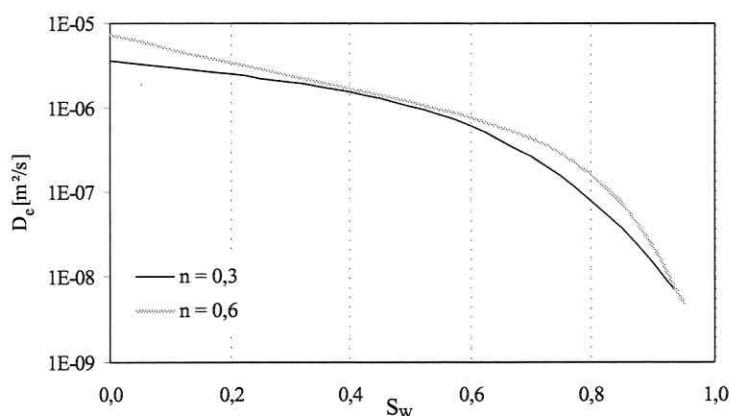


Abb. 2-2. 3: Modellhafte Abhängigkeit des Diffusionskoeffizienten D_e von S_w für die beiden beispielhaften Porositäten $n = 0,3$ und $n = 0,6$ (nach GL 2-2. 14).

Neben dem Einfluß des Bodenwassers kann es, wie auch im Falle der Gaspermeabilität, aufgrund von strukturellen Inhomogenitäten des Bodengefüges zu einem anisotropen Verhalten des Diffusionskoeffizienten kommen. Bei der Modellierung von Diffusionsprozessen in der Bodenluft werden zumeist homogene und isotrope Bedingungen vorausgesetzt.

2.2.3.3 Die Abhängigkeit des Diffusionskoeffizienten von der Bodentemperatur

Neben der beschriebenen Abhängigkeit des Diffusionskoeffizienten von S_W besteht auch eine, wenn auch weitaus weniger ausschlaggebende Abhängigkeit des Diffusionskoeffizienten von der Bodentemperatur T . Aufgrund der Zunahme der thermischen Energie und der Abnahme der Dichte der Bodenluft, kommt es mit steigender Temperatur theoretisch zu einer Erhöhung des Diffusionskoeffizienten. Durch Rehs (1999) wird die Temperaturabhängigkeit des Radon-Diffusionskoeffizienten D_L mit Hilfe des Diffusionskoeffizienten für Radon in Luft bei 15°C $D_{L(15)}$ als Bezugsgröße durch die Korrelationsfunktion

$$D_L = D_{L(15)} \left(\frac{T}{288} \right)^{\frac{3}{2}}$$

GL 2-2. 15

beschrieben. Dabei geht T als Lufttemperatur in Kelvin in die Gleichung ein. Der Zusammenhang ist in Abb. 2-2. 4 illustriert. In der Abbildung wird deutlich, daß die temperaturbedingte Änderung des Diffusionskoeffizienten in dem für Bodenluft relevanten Temperaturbereich von etwa 5°C bis 20°C im Vergleich zur oben diskutierten Abhängigkeit von S_W vernachlässigbar gering ist. Da die Bodenlufttemperaturen in Bodentiefen ab etwa 50 cm kaum mehr kurzfristigen Schwankungen unterliegen, kann die Temperatur als relevante Einflußgröße auf den Diffusionskoeffizienten des Bodens ab dieser Tiefe ausgeschlossen werden.

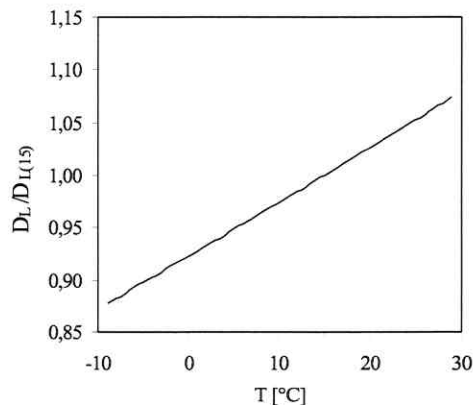


Abb. 2-2. 4: Modellhafte Abhängigkeit des Diffusionskoeffizienten für Radon in Luft von der Temperatur (nach GL 2-2. 15).

2.2.3.4 Typische Diffusionskoeffizienten häufiger Bodentypen

Der Wertebereich effektiver Diffusionskoeffizienten für Radon in verschiedenen Böden reicht von etwa $D_e = 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ bis zu dem maximal im Boden möglichen Wert von $D_L = 1,2 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$, wobei insbesondere variierende Wassergehalte S_W erheblichen Einfluß auf den Diffusionskoeffizient haben (Currie 1961, Tanner 1964). In der folgenden Tab. 2-2. 4 sind typische Diffusionskoeffizienten für Radon in verschiedenen Böden zusammengestellt.

Tab. 2-2. 4: Typische Diffusionskoeffizienten verschiedener Bodentypen (Tanner, 1964; Nazaroff et al., 1988; Nazaroff, 1992); $Ft.$ = Wasseranteil in % Trockengewicht; n = Porosität; S_W = Wasseranteil am Porenraum.

Material	Diffusionskoeffizient D_e [m^2/s]
Trockene Uran Tailings	$(5,4 - 7,1) \times 10^{-6}$
Schluffiger bis sandiger Ton ($Ft. = 1,5$)	$2,7 \times 10^{-6}$
Schluffiger bis sandiger Ton ($Ft. = 10,5$)	$2,5 \times 10^{-7}$
Schluffiger bis sandiger Ton ($Ft. = 17,3$)	$6,0 \times 10^{-8}$
Verdichtete schluffige Sande ($n = 0,29 - 0,41$; $Ft. = 5 - 34$)	$(3,0 \pm 1,3) \times 10^{-6}$
Verdichtete tonige Sande ($n = 0,32 - 0,39$; $Ft. = 9 - 55$)	$(3,2 \pm 1,5) \times 10^{-6}$
Verdichtete mineralische Tone ($n = 0,32 - 0,43$, $Ft. = 6 - 34$)	$(2,5 \pm 1,0) \times 10^{-6}$
Trockene Lehme	8×10^{-7}
Nasser Schlamm ($S_W = 0,37$)	$5,7 \times 10^{-10}$
Nasser Schlamm ($S_W = 0,85$)	$2,2 \times 10^{-10}$

2.3 Die Radonemanation

2.3.1 Der Emanationskoeffizient

Voraussetzung für die Migration des Radons im Porenraum eines Bodens ist, daß die im Mineralgerüst entstehenden Radonatome aus der kristallinen Matrix austreten und in den luft- oder wassergefüllten Porenraum gelangen. Dieser Vorgang wird als Emanation bezeichnet. Das Prinzip der Emanation und die Einflüsse der bodenphysikalischen Kenngrößen werden in Kapitel 2.3.2 behandelt. Im folgenden Abschnitt wird zunächst der Emanationskoeffizient, das heißt der grundlegende Parameter der Emanation vorgestellt.

Die Stärke der Emanation eines Bodens ist durch das Verhältnis der Anzahl der in den Porenraum emanierenden (N^e) zur Gesamtzahl der durch ^{226}Ra -Zerfall in der mineralischen Matrix produzierten Radonatome (N^p) gegeben. Die Emanationsstärke wird durch den bodenspezifischen dimensionslosen Emanationskoeffizienten

$$\varepsilon = N^e / N^p$$

GL 2-3. 1

beschrieben. Emanationskoeffizienten für verbreitet vorkommende Gesteine und Böden liegen in der weiten Spanne zwischen $\varepsilon = 0,05$ und $\varepsilon = 0,7$. Durch zahlreiche Autoren wurden Experimente zur Bestimmung der Emanationskoeffizienten verschiedenster Böden oder auch anderer mineralischer Materialien durchgeführt. Eine Zusammenstellung von Ergebnissen solcher Experimente wurde durch Nazaroff (1992) gegeben. Um eine Vorstellung von für Böden und andere mineralische Materialien typischen Emanationskoeffizienten zu geben, ist eine Auswahl der in Nazaroff (1992) zitierten Daten in der folgenden Tab. 2-3. 1 zusammengestellt.

Tab. 2-3. 1: Emanationskoeffizienten ε nicht näher definierter Böden und mineralischer Materialien (Nazaroff, 1992). Ft = Wassergehalt in % Trockengewicht; STD = Standardabweichung

Material	Emanationskoeffizient ε (Mittelwert $\pm$ STD)
Boden, bei 200°C über 90 h getrocknet / mit $Ft = 13$	0,09 / 0,68
Boden, bei 105°C über 24 h getrocknet	0,25
Boden, lufttrocken	0,41
Boden, mit $Ft = 4$	0,38
Boden, mit $Ft = 13$ / mit $Ft = 20$	0,22 / 0,32
Verschiedene Böden	0,22 $\pm$ 0,07
Apatitkristalle, trocken	0,09 $\pm$ 0,14
Monazitkristalle	0,07 $\pm$ 0,07
Uraninitkristalle	0,019
Verschiedene Uranerzproben	0,26 $\pm$ 0,18
Uran-Tailings, bei 110° C getrocknet / bei Sättigungsfeuchte	0,072 / 0,310 0,067 / 0,290

2.3.2 Das Prinzip der Emanation

Dem Austritt eines Radonatoms aus der Mineralmatrix liegt das folgende Prinzip zugrunde. Ein Radonatom wird bei seiner Entstehung mit einer Rückstoßenergie von etwa 100 keV beschleunigt (Gast & Stolz, 1982; Tanner, 1964). Nach Gast & Stolz (1982) können die in der Kristallstruktur entstandenen Radonatome aufgrund dieser Rückstoßenergie etwa 100 Kristallgitterebenen durchschlagen, was Rückstoßlängen zwischen $0,02\ \mu\text{m}$ und $0,07\ \mu\text{m}$ entspricht (Tanner 1980). Durch Andrews & Wood (1972) wurde für ein künstliches Na-Ca-Si-Glas, welches in seinen relevanten Eigenschaften etwa denen von gesteinsbildenden Mineralen entsprach, eine Rückstoßlänge des Radons von $0,036\ \mu\text{m}$ gemessen.

Da diese einmalige Beschleunigung des Radonatoms unmittelbar nach seiner Entstehung für das Atom praktisch die einzige Möglichkeit darstellt, die kristalline Matrix zu verlassen, bestimmt der Abstand des zerfallenden Radiumatoms von der Kornoberfläche, ob und mit welcher Geschwindigkeit das beim Zerfall entstehende Radonatom aus dem Mineralkorn austritt. Die potentiell zur Emanation beitragenden Radiumatome beschränken sich somit auf jene, welche innerhalb der etwa $0,07\ \mu\text{m}$ mächtigen äußeren Sphäre des jeweiligen Mineralkorns liegen. Entsteht ein Radonatom in größerer Distanz zur Kornoberfläche, bleibt es innerhalb des Mineralkorns stecken (Abb. 2-3. 1; A). Danach hat es kaum mehr die Möglichkeit den Porenraum zu erreichen, da ein rein diffusiver Austritt aus der Mineralmatrix nicht wahrscheinlich ist. Der sehr niedrige Diffusionskoeffizient für Radon in einer Kristallstruktur D_M , der nach Tanner (1980) bei $10^{-20}\ \text{cm}^2/\text{s}$ liegt, läßt nach Nazaroff (1992) nur Diffusionslängen von ca. $10^{-7} - 10^{-26}\ \mu\text{m}$ zu, welche im Vergleich zur oben genannten Rückstoßlänge des Radons vernachlässigbar gering sind.

Von den potentiell für die Emanation verfügbaren Radiumatomen nahe der Kornoberfläche tragen wiederum nur jene tatsächlich zur Emanation bei, bei deren Zerfall das entstehende Radonatom in Richtung der Kornoberfläche beschleunigt wird. Das trifft nach Andrews & Wood (1972) bei großen Körnern ($d \gg 0,07\ \mu\text{m}$) für etwa ein Viertel dieser Atome zu. Der weitaus größere Teil wird durch den Rückstoß weiter in das Korn hineintransportiert (Abb. 2-3. 1; B).

Die theoretische prozentuale Austrittswahrscheinlichkeit für Radonatome durch den Rückstoß, den sie bei ihrer Entstehung erfahren, entspricht nach Andrews & Wood (1972) etwa $4,9/d$, wobei mit d der Korndurchmesser in μm in die Gleichung eingeht. Das heißt, daß die Austrittswahrscheinlichkeit der in einer mineralischen Matrix entstehenden Radonatome bei Annahme kugelförmiger Mineralaggregate mit einem Durchmesser von $100\ \mu\text{m}$ theoretisch nur bei dem sehr geringen Wert von $0,049\ \%$ läge. Auch Tanner (1964) äußert, daß bei einer modellhaften Betrachtung eines Bodens als Matrix aus kugelförmigen Aggregaten mit homogener Radiumverteilung nur bis zu Korngrößen von $< 1\ \mu\text{m}$ eine substantielle Emanation möglich wäre.

Wie stark ein Boden tatsächlich emaniert kann jedoch kaum mit solchen einfachen modellhaften Überlegungen abgeschätzt werden. Gemessene Emanationskoeffizienten von Böden liegen zumeist weit über den theoretisch für diese Böden erwarteten (Rama & Moore, 1984; Tanner 1980; Andrews & Wood, 1972). Eine Ursache dafür, daß modellhafte Überlegungen das Emanationspotential einer mineralischen Matrix häufig unterschätzen, ist, daß die verwendeten Modelle zumeist eine homogene Verteilung des Radiums in den Mineralkörnern sowie einen Boden aus glatten und möglichst kugelförmigen Mineralpartikeln eines bestimmten Korngrößenspektrums voraussetzen. Diese Voraussetzungen werden aber sowohl der inter- als auch der intragranularen Struktur eines realen Bodens nicht gerecht.

Das oben beschriebene Prinzip der Emanation, aber auch die im folgenden besprochenen Einflüsse verschiedener bodenspezifischer Parameter auf den Emanationskoeffizienten sind in Abb. 2-3. 1 illustriert.

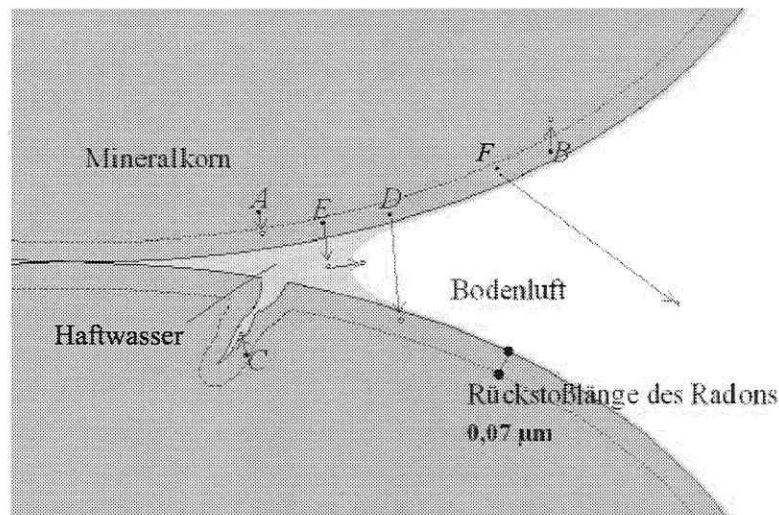


Abb. 2-3. 1: Schematische Illustration möglicher Pfade eines Radonatoms nach dessen rückstoßbedingter Beschleunigung bei seiner Entstehung in der Bodenmatrix (abgeändert nach Tanner, 1980). A: Das Radonatom erreicht nicht den Porenraum, da es zu tief im Mineral Korn sitzt. B: Das Radonatom sitzt nicht zu tief im Mineral Korn, wird aber nicht in Richtung der Kornoberfläche beschleunigt. C: Das Radonatom emaniert in eine „Nanopore“ und kann in den bodenluftgefüllten Porenraum diffundieren. D: Das Radonatom emaniert, schlägt aber in die Mineralmatrix eines benachbarten Korns ein. E: Das Radonatom emaniert in das Porenwasser und diffundiert in den bodenluftgefüllten Porenraum. F: Das Radonatom emaniert in den bodenluftgefüllten Porenraum.

2.3.3 Abhängigkeit des Emanationskoeffizienten von bodenspezifischen Parametern

Das im vorangegangenen Kapitel diskutierte Prinzip der Emanation macht verständlich, warum das Emanationspotential einer mineralischen Matrix direkt vom Verhältnis innere Matrixoberfläche zu Bodenvolumen abhängt. Die innere Matrixoberfläche eines Bodens wächst ihrerseits mit abnehmender Korngröße d . Setzt man kugelförmige Mineral Körner mit glatten Oberflächen voraus, ist die innere Oberfläche eines Bodens theoretisch proportional d^{-1} . Da sich im Verlauf der Verwitterung das Kornspektrum eines Bodens zu kleineren Kornfraktionen hin verschiebt, können Böden, die von vergleichbaren Ausgangsgesteinen abstammen, aufgrund ihres unterschiedlichen Entwicklungsstadiums völlig unterschiedliche Emanationseigenschaften aufweisen (Schumann & Gundersen, 1996; Wilkening, 1974).

Die Änderung des Emanationspotentials mit zunehmender Reife eines Bodens ist aber nicht nur mit der Änderung seines Kornspektrums zu begründen. Neben dem Korngrößenspektrum ist der Emanationskoeffizient eines Bodens noch von verschiedenen anderen matrixspezifischen und nichtmatrixspezifischen bodenphysikalischen Parametern abhängig. Die wichtigsten matrixspezifischen Faktoren sind (1) die räumliche Verteilung der Radiumatome in den Bodenpartikeln, (2) die Größe der tatsächlich für die Emanation zur Verfügung stehenden Mineraloberfläche und (3) die Größe und die Form der Bodenporen. Als wichtige nichtmatrixspezifische und kurzfristig variable Einflußgröße ist die Bodenfeuchte zu nennen. Der jeweilige Einfluß dieser Faktoren auf den Emanationskoeffizienten eines Bodens, soll in den folgenden Abschnitten im einzelnen besprochen werden.

2.3.3.1 Die Radiumverteilung in den Bodenpartikeln

Eine Ursache dafür, daß gemessene Emanationskoeffizienten zumeist höher als die theoretisch erwarteten sind, ist die bevorzugte oberflächennahe Anordnung des Radiums in den Bodenpartikeln. Durch diese räumlich inhomogene Verteilung des Radiums in der Mineralmatrix liegt ein überdurchschnittlich hoher Anteil der Radiumatome innerhalb der etwa $0,07\ \mu\text{m}$ mächtigen äußeren Sphäre des jeweiligen Mineralkorns, was sich positiv auf den Emanationskoeffizienten auswirkt.

Ursache dieser räumlich inhomogenen Radiumverteilung ist nach Tanner (1980) und Andrews & Wood (1972), daß sich das Uran und seine Folgeprodukte als Ergebnis von Verwitterungsprozessen gern in Sekundärmineralen konzentrieren, die vorwiegend in mineralischen Überzügen auf den Oberflächen der Mineralpartikel des Bodens auftreten. Nach Schumann & Gundersen (1996) sind Eisenoxide, Manganoxide und Karbonate besonders dafür geeignet, Uran oder Radium als Kopräzipitate zu binden und oberflächennah an den Mineralkörnern anzureichern. Dabei weisen diese vergleichsweise weichen Sekundärbildungen nach Tanner (1964) besonders hohe Emanationskoeffizienten auf. Weiterhin kann es zu einer Adsorption des Urans bzw. des Radiums an die äußeren und inneren Oberflächen von Tonmineralen kommen.

Megumi & Mamuro (1974, 1977) stellten bei der Untersuchung eines in acht verschiedene Korngrößen klassierten Granitgruses eine Erhöhung des Radiumgehalts mit abnehmender Größe des Kornspektrums fest. Als Ursache wurde vermutet, daß durch Verwitterung freigesetztes Radium an die Oberflächen der resistenteren Mineralpartikel angelagert wird, wovon die kleinen Korngrößenfraktionen am stärksten profitieren. Das wiederum bedeutet, daß kleine Kornfraktionen eine deutlich höhere Emanationsrate aufweisen als große Kornfraktionen, aber im Falle eines sandigen Bodens bezogen auf das gesamte Bodenvolumen einen geringeren Beitrag zur Emanation leisten, da sie in wesentlich geringeren Gehalten vorliegen.

Nach Tanner (1964) weisen gezüchtete radiumhaltige Kristalle deutlich geringere Emanationskoeffizienten als natürliche Mineralaggregate auf, da das Radium in künstlichen Kristallen nahezu homogen verteilt ist.

2.3.3.2 Die effektive innere Oberfläche der Mineralmatrix

Als zweiter matrixspezifischer Faktor ist die in einem Bodenvolumen tatsächlich für die Emanation zur Verfügung stehende Kornoberfläche entscheidend. Wie oben ausgeführt, weisen Böden mit einer großen inneren Oberfläche vergleichsweise große Emanationskoeffizienten auf, wobei die innere Oberfläche der Mineralmatrix ihrerseits vom Kornspektrum des Bodens abhängig ist. Während die innere Oberfläche bei Annahme kugelförmiger glatter Bodenpartikel theoretisch proportional d^{-1} ist, wurde durch Andrews & Wood (1972) bei der Untersuchung verschiedener Sande jedoch eine Proportionalität zu etwa $d^{-1/2}$ beobachtet. Das heißt, daß in den untersuchten Sanden eine stärkere Zunahme der Emanationsrate mit der Abnahme des Korndurchmessers auftrat, als sie allein durch die Verringerung des Korndurchmessers zu erklären wäre. Ursache hierfür ist, daß es im Zuge der Verwitterung nicht nur durch die Verschiebung des Kornspektrums zu kleineren Fraktionen hin zu einer Vergrößerung der inneren Oberfläche eines Bodens kommt, sondern auch durch eine Störung der Kristallstruktur in den Randbereichen der Mineralkörner. Beispielsweise wurden durch Wilkening (1974) in sehr jungen Verwitterungsprodukten von Lavagesteinen

Emanationskoeffizienten von 0,02 nachgewiesen, während benachbarte ältere Böden, die aus vergleichbarem Material hervorgegangen waren, Emanationskoeffizienten zwischen 0,55 und 0,70 zeigten.

Eine wichtige Arbeit zum Einfluß von Störungen der Matrixoberfläche auf die Radonemanation wurde von Rama & Moore (1984) vorgelegt. Auch sie fanden bei der Untersuchung von sehr gut klassierten grobkörnigen Sanden und Kiesen aus Aquiferen Emanationsraten, die weit über den theoretisch erwarteten lagen. Bei einer der untersuchten Proben wurde auch nach Auswaschen der Feinstkornbestandteile der Probe ein Emanationskoeffizient von $\varepsilon = 0,18$ ermittelt, während bei einer angenommenen homogenen Radiumverteilung und glatten Kornoberflächen theoretisch nur ein Wert von $\varepsilon = 0,0001$ erwartet worden war. Die Autoren führten die hohen Emanationsraten auf winzige Poren und Klüfte in den Mineralpartikeln zurück, welche die effektiv für die Emanation zur Verfügung stehende Matrixoberfläche erheblich vergrößern. Die durch Rama & Moore (1984) mit Hilfe eines Rasterelektronenmikroskops beobachteten sogenannten Nanoporen hatten Durchmesser von $< 1 \mu\text{m}$. Nach der Emanation von Radonatomen in diese Nanoporen ist es dem Radon leicht möglich diffusiv in die größeren Intergranularräume des Bodens zu gelangen (Abb. 2-3. 1; C).

Nach Schumann & Gundersen (1996) sind natürliche Strahlungsschäden einer der Hauptgründe für die Ausbildung von Nanoporen. Besonders im Bereich der Kornfraktion von Sanden (0,063 mm bis 2,0 mm) können Nanoporen eine Erhöhung des Emanationskoeffizienten um ein bis zwei Größenordnungen bewirken (Rama & Moore, 1984). Nach Andrews & Wood (1972) zeigen auch Gesteinspartikel im Korngrößenspektrum eines Sandes an ihren Oberflächen intragranulare Korngrenzen, deren Länge etwa $1/d^{1/2}$ entspricht. Solche intragranulare Korngrenzen können auch als Nanoporen verstanden werden. Nach Andrews & Wood (1972) ist die Länge dieser oberflächlich an den Matrixpartikeln auftretenden Korngrenzen proportional der Emanationsrate der jeweiligen Kornfraktion.

2.3.3.3 Die Porosität des Bodens

Weitere, den Emanationskoeffizient bestimmende matrixspezifische Faktoren sind die Porengröße und die Porenform im Bodengefüge. Maßgeblich hierfür sind das Kornspektrum und die Packungsdichte des Bodens. Nach Schachtschabel et al. (1989) werden Porengrößen in die Kategorien weite Grobporen ($> 50 \mu\text{m}$), enge Grobporen (10 - 50 μm), Mittelporen (0,2 - 10 μm) und Feinporen ($< 0,2 \mu\text{m}$) unterteilt.

Nach dem Austritt eines Radonatoms aus der Mineralmatrix in den bodenluftgefüllten Porenraum eines völlig wasserfreien Bodens wird dessen Rückstoßbewegung schlagartig ein viel geringerer Widerstand entgegengesetzt als noch im Kristallgefüge. Während in der Mineralmatrix nur rückstoßbedingte Weglängen von maximal 0,07 μm zurückgelegt werden können, sind in der Bodenluft Weglängen bis zu 63 μm möglich (Nazaroff, 1992; Wilkening, 1990; Tanner, 1980; Andrews & Wood, 1972). Aufgrund dieser relativ großen Rückstoßlänge des Radons in der Bodenluft kann bei Porendurchmessern die deutlich kleiner als 0,063 μm sind, ein Teil der emanierten Radonatome in die gegenüberliegende Porenwand einschlagen und somit dem luftgefüllten Porenraum wieder entzogen werden (Abb. 2-3. 1; D). Diese Radonatome tragen somit nicht zur direkten Emanation ("direct recoil fraction") bei, was sich negativ auf den Emanationskoeffizienten auswirkt. Die Tiefe der entstehenden Störungszone ist vom Energiegehalt des

einschlagenden Radonatoms und von der Härte der Mineralmatrix anhängig. Nach Tanner (1964) sind die Einschlagslöcher bis zu 10 nm breit.

Nach Andrews & Wood (1972) und Tanner (1964) ist eine Rückdiffusion der in das Nachbarkorn eingeschlagenen Radonatom in den Porenraum durch die aufgrund des Einschlags gestörte Mineralmatrix bedingt möglich ("indirect recoil fraction"). Das kann besonders dann der Fall sein, wenn es sich bei der Mineralmatrix um ein vergleichsweise weiches Sekundärmineral handelt. Guffraz & Redman (1995) sehen eine Möglichkeit der Rückdiffusion unmittelbar nach dem Einschlag, da das Mineralgefüge durch die beim Einschlag zugeführte Energie lokal geschmolzen oder sogar verdampft wird.

2.3.3.4 Die Bodenfeuchte

Zusätzlich zu den oben diskutierten, den Emanationskoeffizienten bestimmenden matrixspezifischen Faktoren ist auch die Bodenfeuchte als nichtmatrixspezifische Größe von entscheidendem Einfluß. Nach Schumann & Gundersen (1996) bestimmt zum einen der langfristige, von den lokalen klimatischen Verhältnissen abhängige Wassergehalt eines Bodens den Grad seiner Verwitterung und ist somit auch, wie oben diskutiert, für die Höhe des Emanationskoeffizienten maßgeblich. Zum anderen hat das Bodenwasser aber auch einen kurzfristigen und direkten Einfluß auf den Emanationskoeffizienten. Beispielsweise ergaben von Serdyokova & Kapitanov (1978) durchgeführte Versuche mit künstlichen Radium- und Thoriumsalzen einen zehnmal höheren Emanationskoeffizienten beim Durchströmen der Salze mit feuchter anstelle trockener Luft. Im Falle von Uran- und Thoriumerzen wurde eine Erhöhung auf das Dreifache festgestellt (in Uchdorf, 1990). Von Uchdorf (1990) wurden an natürlichen Phosphaten sowohl unter Freiland- als auch unter Laborbedingungen bei Versuchen mit feuchtem Material nahezu verdoppelte Radonkonzentrationen der Bodenluft im Vergleich zu Versuchen mit wasserfreien Phosphaten ermittelt. Auch Stranden et al. (1984) stellten eine Erhöhung der Radonexhalation von Bodenproben bei steigendem Feuchteanteil der Proben fest.

Ursache für die kurzfristige und direkte Beeinflussung des Emanationskoeffizienten durch die Bodenfeuchte sind zum einen die Bremswirkung des Porenwassers auf die emanierenden Radonatom und zum anderen die Verringerung der Adsorptionsfähigkeit der mineralischen Matrix gegenüber Radonatom. Diese beiden Effekte sollen in den folgenden beiden Abschnitten kurz diskutiert werden.

2.3.3.4.1 Die Bremswirkung des Porenwassers

Im Porenwasser können Radonatom nach Tanner (1980) rückstoßbedingt nur Weglängen von etwa 0,1 µm zurücklegen. Daraus folgt, daß Wasser gegenüber Luft, in der rückstoßbedingt Weglängen von bis zu 63 µm möglich sind, einen maßgeblichen Bremseffekt auf die aus der Bodenmatrix austretenden Radonatom hat. Aufgrund dieser Bremswirkung des Wassers wird die Anzahl der nach ihrer Emanation in die Mineralsubstanz des Nachbarkorns wiedereinschlagenden Radonatom erheblich reduziert (Stranden et al., 1984). Die Anzahl an Radonatom, welche durch die Rückstoßenergie in den Porenraum gelangen und dort verbleiben, wächst (Abb. 2-3. 1; E). Nach Wilkening (1990) und Strong & Lewins (1982) kann durch einen dünnen Wasserfilm an den Porenwänden eines Bodengefüges die Menge des im Porenraum verbleibenden Radons aufgrund der Bremswirkung des Wassers um das 3- bis 5-fache erhöht werden. Strong & Lewins (1982) beobachteten einen schlagartigen Anstieg des Emanationskoeffizienten von

$\varepsilon = 0,07$ auf $\varepsilon = 0,20$ nach Erhöhung des Wassergehalts einer Tailings-Probe von 0 Gew.% auf 1 Gew.%. Tanner (1964) ermittelte an Zeolithen (Chabasit) aufgrund des hohen Gehaltes an Kristallwasser sehr hohe Emanationskoeffizienten von bis zu $\varepsilon = 0,63$.

Neben der beschriebenen Bremswirkung des Wassers kann bei Anwesenheit von Wasser aber auch die oben erwähnte indirect recoil fraction durch Lösungsprozesse vergrößert werden (Tanner 1980).

2.3.3.4.2 Die Verringerung der Adsorptionsfähigkeit der mineralischen Matrix

In völlig wasserfreien Böden kommt es zu einer verstärkten Adsorption von Radonatomen an die Kornoberfläche der mineralischen Matrix (Nazaroff, 1992; Schery & Whittlestone, 1989). Diese Adsorption der Radonatome verringert deren Konzentration in der Bodenluft und wirkt sich somit negativ auf den Emanationskoeffizienten aus. Die Adsorptionsfähigkeit der Matrix gegenüber Radonatomen kann allerdings schon durch eine minimale Bodenfeuchte erheblich verringert werden. Schon bei geringsten Feuchteanteilen im Boden werden die Bodenpartikel mit dünnen Filmen adsorbtiv gebundenen Wassers überzogen, welches die zuvor für Radonatome verfügbaren Adsorptionsplätze an den Kornoberflächen blockiert (Stranden et al., 1984). Das kann zu einem drastischen und sprunghaften Anstieg des Emanationskoeffizienten führen. Beispielsweise ist in Tab. 2-3. 1 ein Boden aufgeführt, bei dem ein Anstieg des Emanationskoeffizienten von $\varepsilon = 0,09$ auf $\varepsilon = 0,68$ beobachtet wurde, nachdem der zuvor völlig trockene Boden mit einem Wasseranteil von 13 Gew.% versetzt worden war.

Schery & Whittlestone (1989) untersuchten an drei verschiedenen Bodenproben das Verhältnis von adsorbtiv gebundenem zu freiem Radon. Dabei stellten sie für völlig trockene Böden bei 0 °C Verhältniszahlen zwischen 3 und 17 fest, während sie für Böden mit einem Wasseranteil von 10 Gew.% bei 20 °C Verhältniszahlen von $< 0,2$ ermittelten. Nach Rehs (1999) und Nazaroff (1992) kann die Radonadsorption an die Mineralmatrix in natürlich feuchten, das heißt in lufttrockenen Böden aufgrund des Adsorptionswassers vernachlässigt werden.

Auch die Temperatur beeinflusst das Adsorptionsverhalten der Radonatome, wobei der adsorbtiv an die Bodenmatrix gebundene Anteil an Radonatomen mit zunehmender Temperatur geringer wird. Nach Nazaroff (1992) ist aber der Einfluß der Temperatur in Böden aufgrund des dort normalerweise angetroffenen Temperaturspektrums zu vernachlässigen. Durch Rehs (1999) wurde die Abhängigkeit des Adsorptionsverhaltens der Radonatome von der Bodenfeuchte S_w und der Temperatur T mit

$$\kappa(T, S_w) = \kappa_r e^{-b S_w} \quad \text{GL 2-3. 2}$$

empirisch quantifiziert, wobei κ der Radon-Adsorptionskoeffizient für feuchten Boden und κ_r , mit

$$\kappa_r(T) = \kappa_0 + \kappa_T T, \quad \text{GL 2-3. 3}$$

der Radon-Adsorptionskoeffizient für völlig wasserfreien Boden ist. Die Größen b , κ_0 [m^3/kg] und κ_T [$m^3/kg \text{ } ^\circ C$] sind empirische, bodenspezifische Parameter.

2.3.4 Die Radon-Gleichgewichtskonzentration im Boden

Da die Radonkonzentration der Atmosphärenluft im Vergleich zur Radonkonzentration der Bodenluft vernachlässigbar gering ist, diffundiert das Radon im Porenraum eines Bodens nach oben und exhaliert an der Bodenoberfläche in die Atmosphäre. Folglich gilt grundsätzlich, daß in einem sowohl mineralogisch als auch strukturell homogen aufgebauten Boden die Radonkonzentration am Interface Boden / Atmosphäre gegen Null geht und mit wachsender Tiefe einer Gleichgewichtskonzentration mit der radonproduzierenden Mineralmatrix zustrebt. In welcher Tiefe diese Radon-Gleichgewichtskonzentration erreicht wird, hängt in erster Linie von den in den Kapiteln 2.2.2 und 2.2.3 besprochenen bodenphysikalischen Parametern Gaspermeabilität k und Diffusionskonstante D ab. Wovon die sich ausbildende Form des Radontiefenprofils im einzelnen beeinflußt wird, soll detailliert im Kapitel 2.4 besprochen werden.

Die Radon-Gleichgewichtskonzentration, die sich unbeeinflusst von Migrationsprozessen der Bodenluft, also in einem geschlossenen System bzw. in theoretisch unendlicher Tiefe einstellt, wird mit C_∞ bezeichnet. Im Gegensatz zur Radiumaktivität des Bodens A_{Ra} , welche in Aktivität pro Masse Boden [Bq/kg] angegeben wird, ist die Einheit der Radonkonzentration der Bodenluft Aktivität pro Volumen Bodenluft [kBq/m³]. Überschlagsmäßig liegen Radon-Gleichgewichtskonzentrationen der Bodenluft in durchschnittlichen Böden zwischen $C_\infty = 10 \text{ kBq/m}^3$ und $C_\infty = 40 \text{ kBq/m}^3$. Der oben diskutierte Emanationskoeffizient ε ist neben der Radiumaktivität der mineralischen Matrix A_{Ra} die entscheidende Größe für die Radon-Gleichgewichtskonzentration.

2.3.4.1 Die Radon-Gleichgewichtskonzentration in trockenen Böden

Die Radon-Gleichgewichtskonzentration C_∞ in der Porenluft eines trockenen Bodenkörpers mit der Porosität n wird durch

$$C_\infty = \frac{\varepsilon A_{Ra} \rho_d}{n}$$

GL 2-3. 4

dargestellt, wobei ρ_d die schon in Kapitel 2.2.1 eingeführte Trockendichte des betrachteten Bodenkörpers ist. Der dimensionslose Emanationskoeffizient ε und die Radiumaktivitätskonzentration der mineralischen Matrix A_{Ra} [Bq/kg] bestimmen durch den Term εA_{Ra} wieviel Radon potentiell aus der Matrix in den Porenraum abgegeben werden kann. Die Überführung der massenbezogenen Größe A_{Ra} in die auf das luftgefüllte Porenvolumen bezogene Radon-Gleichgewichtskonzentration C_∞ wird in GL 2-3. 4 durch den Term ρ_d / n erreicht. Bei einem dichten Boden, d.h. bei großer Trockendichte des Bodens ρ_d [kg/m³], werden bei gegebenem A_{Ra} in einem bestimmten Bodenvolumen größere Mengen an Radon produziert, als bei einer geringeren Materialdichte. Demgegenüber wird bei einem großen Porenanteil n am Bodenvolumen das emanierte Radon stärker in der Bodenluft verdünnt und damit in seiner Konzentration verringert.

2.3.4.2 Die Radon-Gleichgewichtskonzentration in feuchten Böden

Bei Wasserzutritt in ein Bodenvolumen mit der Porosität n wird der luftgefüllte Porenraum V_{BL} zu Gunsten des wassergefüllten Porenraums V_W verringert. Bei der Ermittlung von C_∞ ist daher die im Kapitel 2.2.1 eingeführte Wassersättigung des Porenraums S_W zu berücksichtigen. Als für die emanierenden Radonotope zur Verfügung stehende luftgefüllte Porosität geht somit nicht wie in GL 2-3. 4 n , sondern nur der luftgefüllte Porenanteil $n S_{BL}$ ein, was bei sich verringerndem S_{BL} bzw. wachsendem S_W eine Erhöhung von C_∞ zur Folge hat.

Beim Zutritt von radonfreiem Porenwasser (Niederschlagswasser) in ein bestimmtes Volumen einer radonproduzierenden Bodenmatrix kommt es jedoch neben der Verringerung des luftgefüllten Porenraums gleichzeitig zur Lösung von Radon im Porenwasser, wodurch dem luftgefüllten Porenvolumen wiederum Radon entzogen wird. Die Lösung des Radons im Porenwasser ist temperaturabhängig und wird durch den im Kapitel 2.1.4 angesprochenen Verteilungskoeffizient zwischen Bodenwasser und Bodenluft $K_{W/BL}$ kontrolliert. Bei Raumtemperatur ist die Radonkonzentration in Luft etwa viermal höher als die in der mit der Luft im Verteilungsgleichgewicht stehenden wäßrigen Phase (Clever et al., 1979). Das heißt, daß sich vier mal weniger Radon im Porenwasser akkumuliert als in der Porenluft. Auf Grund der vergleichsweise schlechten Löslichkeit von Radon in Wasser liegt somit letztlich, nach einer Verringerung des luftgefüllten Porenraums durch Bodenwasser, im Falle eines Verteilungsgleichgewichts zwischen Fest-, Gas- und Flüssigphase im verbleibenden Porenluftvolumen eine höhere Radon-Gleichgewichtskonzentration C_∞ vor als im lufttrockenen Boden. Die Radon-Gleichgewichtskonzentration in der Bodenluft eines feuchten Bodens wird unter Einbeziehung des Verteilungskoeffizienten $K_{W/BL}$ durch die Gleichung

$$C_\infty = \frac{\varepsilon A_{Ra} \rho_d}{n (S_{BL} + K_{W/BL} S_W)}$$

GL 2-3. 5

beschrieben. Durch den Term $(S_{BL} + K_{W/BL} S_W)$ wird dabei sowohl die Verringerung des luftgefüllten Porenraums als auch die Lösung von Radon im Porenwasser berücksichtigt. Beim Vergleich von Radon-Gleichgewichtskonzentrationen feuchter Böden mit denen wasserfreier Böden ist auch die im Kapitel 2.3.3.4 diskutierte Abhängigkeit des Emanationskoeffizienten von der Bodenfeuchte zu beachten.

Die Zeit, die zur Einstellung eines Verteilungsgleichgewichts zwischen Bodenluft und Bodenwasser benötigt wird, ist nach Schütz (1994) von der Porosität n , vom Diffusionskoeffizient D_e , vom Verhältnis des in den Gasaustausch einbezogenen Gesamtvolumens zu der für den Gasaustausch nutzbaren Grenzfläche zwischen Luft und Wasser $(V_{W/BL} / F_{W/BL})$ und von der durch die Radonatome diffusiv zurückzulegenden Strecke l_{diff} abhängig. Die Zeit zur Einstellung eines Verteilungsgleichgewichts ist dabei durch

$$t_{GG} = \frac{n V_{W/BL} l_{diff}}{F_{W/BL} D_e}$$

GL 2-3. 6

gegeben und liegt im Bereich von wenigen Sekunden bzw. Sekundenbruchteilen. Aufgrund dieser nur sehr kurzen Zeit die zur Einstellung eines Verteilungsgleichgewichts benötigt wird, kann nach Nazaroff (1992) die Kinetik der Lösung des Radons im Bodenwasser praktisch vernachlässigt werden. Die Radonkonzentration im Bodenwasser eines feuchten Bodens kann somit immer als im Verteilungsgleichgewicht mit der Radonkonzentration in der Bodenluft betrachtet werden.

Die Radon-Gleichgewichtskonzentration in der Porenluft C_∞ stellt sich auf Grundlage des im Kapitel 2.1.1 angesprochenen allgemeinen Zerfallsgesetzes in einem abgeschlossenen frischgeschütteten Boden, das heißt in einem geschlossenen System, unabhängig von der Bodenfeuchte nach ca. 5 Halbwertszeiten des Radons, d.h. nach etwa 19 Tagen, zu ca. 97 % ein. Die zugehörige Radonproduktionsrate Φ des Bodens wird durch GL 2-3. 7 beschrieben.

$$\Phi = \lambda C_\infty$$

GL 2-3. 7

2.4 Die Radonmigration im luftgefüllten Porenraum

Bei einer vollständigen Versiegelung der Oberfläche eines sowohl mineralogisch als auch bodenphysikalisch homogen und isotrop aufgebauten Bodenkörpers (geschlossenes System), würde sich im gesamten Vertikalprofil dieses Bodens die oben diskutierte Radon-Gleichgewichtskonzentration C_∞ einstellen. Ist ein Boden jedoch zur Atmosphärenluft hin unversiegelt, bildet sich ein Radontiefenprofil heraus, welches an der Erdoberfläche eine vernachlässigbar geringe Radonkonzentration C_0 und in der Tiefe die Radon-Gleichgewichtskonzentration C_∞ aufweist. Ursache dieses Radontiefenprofils ist die aufwärtsgerichtete Migration und die Exhalation des Radons in die Atmosphäre.

Die Form des Radontiefenprofils, also die *relative* Änderung der Radonkonzentration in der Bodenluft als Funktion der Tiefe, wird durch Stärke und Richtung der Radonmigration bestimmt. Ursache der *absoluten* Radonkonzentrationen, die sich in den einzelnen Bodentiefen einstellen, ist hingegen die Radon-Gleichgewichtskonzentration C_∞ und damit die in Kapitel 2.3.4.2 eingeführte Radonproduktionsrate des Bodens

$$\Phi = \frac{\lambda \varepsilon A_{Ra} \rho_d}{n (S_{BL} + K_{W/BL} S_W)}$$

GL 2-4. 1

Die Radonmigration im Boden kann grundsätzlich in die diffusive und die advective Migration unterteilt werden. Die Diffusion hat den Konzentrationsgradienten ∇C_{Rn} zur Ursache. Dieser ist in den oberen Bodenhorizonten praktisch immer gegeben, da die mit der Bodenluft im Kontakt stehende Atmosphärenluft mit normalerweise 2 bis 20 Bq/m³ Radonkonzentrationen aufweist, die etwa drei Größenordnungen unter denen liegen, die im luftgefüllten Porenraum eines durchschnittlichen Bodens angetroffen werden. Daher kann bei der Modellierung von Radondiffusionsprozessen als eine Randbedingung die Radonkonzentration am Interface Boden / Atmosphäre $C_0 = 0$ gesetzt werden. Aufgrund des bodenspezifischen Konzentrationsgefälles zwischen C_∞ in der Tiefe und C_0 an der Erdoberfläche ist der diffusive Radonstrom im Boden im Regelfall nach oben gerichtet.

Die Advektion der Bodenluft und damit auch des in der Bodenluft vorhandenen Radons hat sich im Boden aufbauende Druckgradienten ∇P zur Ursache. Druckgradienten in der Bodenluft können durch Schwankungen des atmosphärischen Luftdrucks, durch starke Winde oder durch Temperaturgradienten im Boden hervorgerufen werden. Weiterhin können Schwankungen des Grundwasserspiegels oder ein verstärkter Sickerwassereintrag eine vertikale Verschiebung der Bodenluftsäule bewirken. Im Gegensatz zum Konzentrationsgradient ∇C_{Rn} , der im Normalfall negativ ist und damit einen positiven diffusiven Fluß bewirkt, kann der Druckgradient im Boden seine Richtung kurzfristig umkehren. Das wiederum bringt einen Richtungswechsel der advectiven Bodengasmigration mit sich. In Abhängigkeit von der Richtung des Druckgradienten kann der advective Radonstrom im luftgefüllten Porenraum eines Bodens somit wie der diffusive Bodengasstrom aufwärtsgerichtet sein, was eine erhöhte Exhalationsrate des Bodens zur Folge hat, oder dem diffusiven Radonstrom entgegenwirken, was die Radonexhalationsrate verringert.

In den nachfolgenden Kapiteln sollen zunächst die theoretischen Grundlagen zur Beschreibung des diffusiven und des advectiven Radonflusses im luftgefüllten Porenraum besprochen werden, um darauf aufbauend, eine allgemeine Migrationsgleichung vorzustellen, welche Radondiffusion,

Radonadvektion, Radonzerfall und Radonnachlieferung berücksichtigt. Die Entwicklung der Migrationsgleichung erfolgt dabei mit der hinreichenden Vereinfachung einer eindimensionalen Betrachtung, wobei zur Tiefe z hin negative Werte für z angenommen werden.

2.4.1 Die Radonflußdichte im Boden

2.4.1.1 Die diffusive Radonflußdichte

Die in Kapitel 2.2.3 eingeführte effektive diffusive Radonflußdichte $J_{d,e}$, das heißt der diffusiv bedingte Teilchenstrom ΔN_d^e pro Zeiteinheit Δt und Querschnittsfläche der effektiv zur Verfügung stehenden luftgefüllten Poren F_{BL} wird durch das 1. Fick'sche Gesetz beschrieben. Die Radonflußdichte $J_{d,e}$ hängt danach in einem gegebenen Boden direkt und ausschließlich vom Konzentrationsgradienten des Radons ∇C_{Rn} ab. Als Proportionalitätsfaktor zwischen $J_{d,e}$ und ∇C_{Rn} steht der in Kapitel 2.2.3 besprochene bodenspezifische effektive Diffusionskoeffizient D_e [m^2/s]. Das 1. Fick'sche Gesetz gilt bei einem zeitlich konstanten Konzentrationsprofil (stationäres Gleichgewicht) und lautet

$$J_{d,e} = \frac{d N_d^e}{F_{BL} dt} = -D_e \nabla C_{Rn} .$$

GL 2-4. 2

Die rechte Seite von GL 2-4. 2 hat ein negatives Vorzeichen, da sich der Teilchenstrom immer zu den geringeren Konzentrationen hin aufbaut. Der effektive Diffusionskoeffizient D_e steht für die Diffusion durch den effektiv zur Verfügung stehenden Porenraum, und schließt in feuchten Böden auch die Wechselwirkung mit dem Porenwasser ein. D_e ergibt sich aus dem integralen Diffusionskoeffizient D_i über

$$D_e = \frac{D_i}{n (S_{BL} + K_{W/BL} S_W)} .$$

GL 2-4. 3

2.4.1.2 Die advective Radonflußdichte

Die rein diffusive Migrationslänge des Radons in der Bodenluft eines trockenen, sandigen Bodens ist, wie im Kapitel 2.2.3 besprochen, etwa 2 m. Nach Mogro-Campero & Fleischer (1977) oder Tanner (1964) sind bei Radon aber vereinzelt Migrationslängen von bis zu 100 m beobachtet worden. Solche Migrationslängen sind nur dann möglich, wenn der effektive Gesamtfluß des Radons $J_{ges,e}$ in erster Linie von dem im Kapitel 2.2.2 eingeführten advectiven Fluß

$$J_{a,e} = \frac{d N_a^e}{F_{BL} dt} = \frac{v C_{Rn}}{n (S_{BL} + K_{W/BL} S_W)} .$$

GL 2-4. 4

bestimmt wird. Die effektive advective Radonflußdichte $J_{a,e}$, das heißt der advektiv bedingte Teilchenstrom ΔN_a^e pro Zeiteinheit Δt bezieht sich dabei, wie auch $J_{d,e}$, auf die Querschnittsfläche des luftgefüllten Porenraums F_{BL} .

Die in GL 2-4. 4 eingehende Advektionsgeschwindigkeit der Bodenluft v (Abstandsgeschwindigkeit) leitet sich mit

$$v = -\frac{k}{\eta} \nabla P$$

GL 2-4. 5

aus dem Gesetz von Darcy ab (Nazaroff et al. 1988; Schery et al., 1984). Gleichung GL 2-4. 5 sagt aus, daß v bei eindimensionaler Betrachtungsweise direkt vom vertikalen Druckgradienten ∇P (Gesamtdruckdifferenz minus hydrostatischer Komponente) abhängig ist. Als Proportionalitätsfaktor geht k/η ein. Dabei ist $k [m^2]$ die im Kapitel 2.2.2 besprochene Gaspermeabilität des Bodens und $\eta [Pa \cdot s]$ die dynamische Viskosität der strömenden Bodenluft. Die rechte Seite der Gleichung GL 2-4. 5 hat wiederum ein negatives Vorzeichen, da sich der Teilchenstrom immer zu den geringeren Drucken hin aufbaut.

2.4.1.3 Der Gesamtfluß

Der Gesamtfluß J_{ges} des Radons in der Bodenluft setzt sich aus den beiden oben definierten Komponenten diffusiver und advektiver Fluß zusammen. Bei Behandlung eines Bodens als porösen Körper, bei welchem nur die Querschnittsfläche seines luftgefüllten Porenraums F_{BL} als für die Radonmigration verfügbar betrachtet wird, wird der effektive Gesamtfluß $J_{ges, e}$ durch die Gleichung

$$J_{ges, e} = \frac{v C_{Rn}}{n (S_{BL} + K_{W/BL} S_W)} - D_e \nabla C_{Rn}$$

GL 2-4. 6

beschrieben. Bei Betrachtung des Flusses nicht nur durch F_{BL} , sondern integriert über die gesamte durchströmte Querschnittsfläche des Bodens, so wie er beispielsweise bei der Messung der Radonexhalation festgestellt wird, gilt entsprechend

$$J_{ges, i} = v C_{Rn} - D_i \nabla C_{Rn} .$$

GL 2-4. 7

2.4.2 Herleitung der allgemeinen Migrationsgleichung

Die tiefenabhängige Konzentration des Radons in der Bodenluft eines trockenen Bodens wird durch die Radondiffusion, die Radonadvektion, den Radonzerfall und die Radonnachlieferung (Emanationsrate) bestimmt. In einem feuchten Boden kommt als zusätzliche Größe die Lösung des Radons im Porenwasser dazu. Das sich in der Bodenluft ausbildende vertikale Konzentrationsprofil kann mit Hilfe einer allgemeinen Migrationsgleichung beschrieben werden, welche die genannten Einflußgrößen impliziert. Dabei werden für die Beschreibung der Flußdichte im folgenden jeweils die effektiven Flußparameter $J_{d, e}$ und $J_{a, e}$ herangezogen.

Der diffusive Anteil der Radonmigration geht in die allgemeine Migrationsgleichung als partielle Ableitung des diffusiven Materialflusses $J_{d, e}$ nach der Tiefe z ein. Dabei kann der diffusive Materialfluß im Porenwasser vernachlässigt werden. Der diffusive Materialfluß ist durch den bodenspezifischen Diffusionskoeffizient D_e und den zeitkonstanten Konzentrationsgradient ∇C_{Rn} in der Bodenluft bestimmt (1. Fick'sches Gesetz).

Der advective Anteil der Radonmigration geht als partielle Ableitung des advectiven Materialflusses $J_{a,e}$ nach der Tiefe z in die Gleichung ein. Dabei kann auch der advective Materialfluß im Porenwasser vernachlässigt werden. Der advective Materialfluß ist durch die Advektionsgeschwindigkeit der Bodenluft v bestimmt, welche ihrerseits von dem als konstant angenommenen Druckgradienten ∇P abhängt (Gesetz von Darcy).

Der Zerfall des im Porenraum vorhandenen Radons wird durch die Zerfallskonstante des Radons λ bestimmt. Dabei findet Radonzerfall sowohl im luftgefüllten als auch im wassergefüllten Porenraum statt. Das Verteilungsverhalten des Radons zwischen dem luftgefüllten und dem wassergefüllten Porenraum ist durch den Verteilungskoeffizient $K_{w/BL}$ bestimmt.

Die Radonnachlieferung aus der mineralischen Matrix in den Porenraum wird in der allgemeinen Migrationsgleichung mit der Emanationsrate des Bodens Φ ausgedrückt. Dabei kann in eine Emanation in den luftgefüllten Porenraum Φ_{BL} und in den wassergefüllten Porenraum Φ_w unterschieden werden.

Zur Entwicklung der allgemeinen Migrationsgleichung für die Beschreibung des Radontiefenprofils im luftgefüllten Porenraum, sollen zunächst die für das Porenwasser bzw. die für die Bodenluft gültigen Gleichungen separat vorgestellt werden.

Für das Porenwasser kann sowohl eine Diffusion als auch eine Advektion des Radons vernachlässigt werden. Für die Radonkonzentration sind nur der Radonzerfall und die Emanation in den wassergefüllten Porenraum maßgeblich. Dabei geht der Zerfallsterm als negative Größe in die Gleichung ein, da der Radonzerfall Ursache für die Verringerung der Radonkonzentration ist. Die Emanationsrate geht als Radonquellterm positiv ein. Für die, von jeglicher Migration in der flüssigen Phase unbeeinflusste Radonkonzentration im Porenwasser C_{Rn}^w gilt somit die Evolutionsgleichung

$$\frac{\partial C_{Rn}^w}{\partial t} = -\lambda C_{Rn}^w + \frac{\Phi_w}{S_w}$$

GL 2-4. 8

bzw.

$$\frac{\partial (S_w C_{Rn}^w)}{\partial t} = -\lambda S_w C_{Rn}^w + \Phi_w$$

GL 2-4. 9

Für den luftgefüllten Porenraum muß die Diffusion, die Advektion, der Radonzerfall und die Emanation in den luftgefüllten Porenraum in die Gleichung einbezogen werden. Der diffusive Migrationsterm, der advective Migrationsterm und der Zerfallsterm gehen in die Gleichung als negative Größen ein, da sie Ursache für die Verringerung der Radonkonzentration sind. Die Emanationsrate geht als Radonquellterm positiv ein. Für die Radonkonzentration in der Bodenluft gilt die Migrationsgleichung

$$\frac{\partial C_{Rn}^{BL}}{\partial t} = -\frac{\nabla J_{d,i}}{n S_{BL}} - \frac{\nabla J_{a,i}}{n S_{BL}} - \lambda C_{Rn}^{BL} + \frac{\Phi_{BL}}{S_{BL}}$$

GL 2-4. 10

bzw.

$$\frac{\partial (S_{BL} C_{Rn}^{BL})}{\partial t} = -\frac{\nabla J_{d,i}}{n} - \frac{\nabla J_{a,i}}{n} - \lambda S_{BL} C_{Rn}^{BL} + \Phi_{BL} .$$

GL 2-4. 11

Durch die Summierung der Gleichungen GL 2-4. 9 und GL 2-4. 11 ergibt sich

$$\frac{\partial (S_{BL} C_{Rn}^{BL} + S_W C_{Rn}^W)}{\partial t} = -\frac{\nabla J_{d,i}}{n} - \frac{\nabla J_{a,i}}{n} - \lambda (S_{BL} C_{Rn}^{BL} + S_W C_{Rn}^W) + \Phi_{BL} + \Phi_W$$

GL 2-4. 12

Bei Annahme eines Verteilungsgleichgewichts zwischen dem Porenwasser und der Bodenluft kann C_{Rn}^W durch $K_{W/BL} C_{Rn}^{BL}$ substituiert werden. Die allgemeine Migrationsgleichung ergibt nach Isolierung von C_{Rn}^{BL} sich somit zu

$$\frac{\partial C_{Rn}^{BL}}{\partial t} = -\frac{\nabla J_{d,i}}{n(S_{BL} + K_{W/BL} S_W)} - \frac{\nabla J_{a,i}}{n(S_{BL} + K_{W/BL} S_W)} - \lambda C_{Rn}^{BL} + \frac{\Phi}{S_{BL} + K_{W/BL} S_W}$$

GL 2-4. 13

Mit den oben gegebenen Definitionen (GL 2-4. 2, GL 2-4. 4, GL 2-4. 5, GL 2-3. 5 und GL 2-3. 7) ergibt sich aus GL 2-4. 13 für den luftgefüllten Porenraum eines Bodens in ausführlicher Schreibweise

$$\frac{\partial C_{Rn}^{BL}}{\partial t} = \left(D_e \frac{\partial^2 C_{Rn}^{BL}}{\partial z^2} \right) - \left(\frac{v}{n(S_{BL} + K_{W/BL} S_W)} \frac{\partial C_{Rn}^{BL}}{\partial z} \right) - (\lambda C_{Rn}^{BL}) + \left(\frac{\lambda \varepsilon A_{Ra} \rho_d}{n(S_{BL} + K_{W/BL} S_W)} \right)$$

mit

$$v = -\left(\frac{k}{\eta}\right) \left(\frac{\partial P}{\partial z}\right) .$$

GL 2-4. 14

Gleichung GL 2-4. 14 bestätigt, was bereits in den vorangegangenen Kapiteln postuliert worden war: bei einem sowohl mineralogisch als auch strukturell homogen und isotrop aufgebauten Boden (d.h. bei konstanten Werten für ε , A_{Ra} , ρ_d , n und S_{BL} bzw. S_{BL}), einer konstanten Viskosität des strömenden Bodengases (η) und konstanten vertikalen Druck- und Konzentrationsgradienten ($\partial C_{Rn} / \partial z$ und $\partial P / \partial z$), sind der Diffusionskoeffizient D_e und die Gaspermeabilität des Bodens k die bestimmenden Variablen für die relative tiefenabhängige Radonkonzentration in der Bodenluft $C_{Rn}(z)$. Für die absolute Höhe der Radonkonzentrationen im Tiefenprofil ist allein der Emanationsterm, und damit C_∞ maßgeblich.

Da bei der hier besprochenen Fragestellung Gleichgewichtszustände von Interesse sind, wird zur Lösung der mit GL 2-4. 14 gegebenen allgemeinen Migrationsgleichung von stationären Verhältnissen ausgegangen, das heißt es gilt für das gesamte Radontiefenprofil $\partial C_{Rn} / \partial t = 0$. Außerdem soll bei der weiteren Behandlung der Gleichung für die Radonkonzentration in der Bodenluft der Ausdruck C_{Rn} stehen. Weiterhin soll die effektive Porosität n_e mit

$$n_e = n(S_{BL} + K_{W/BL} S_W)$$

GL 2-4. 15

eingeführt werden. Die effektive Porosität n_e berücksichtigt neben der Verringerung des luftgefüllten Porenraums durch das Porenwasser auch die Lösung des Radons im Porenwasser im Verteilungsgleichgewicht.

Unter den genannten Voraussetzungen gilt für die allgemeine Migrationsgleichung die folgende Schreibweise:

$$D_e \left(\frac{\partial^2 C_{Rn}}{\partial z^2} \right) - \frac{v}{n_e} \left(\frac{\partial C_{Rn}}{\partial z} \right) - \lambda C_{Rn} + \lambda \frac{\varepsilon A_{Ra} \rho_d}{n_e} = 0 .$$

GL 2-4. 16

Für die Gültigkeit von GL 2-4. 16 sind die folgenden Annahmen Voraussetzung:

1. Es erfolgt keine Beeinflussung der Radonmigration durch die Diffusion anderer Gase.
2. Es herrschen quasistationäre Verhältnisse vor, das heißt ∇C und ∇P sind zeitkonstant.
3. Die Größen ε , A_{Ra} , ρ_d , n , S_{BL} , η , k , und D_e sind konstant, das heißt tiefenunabhängig.
4. Die Größen k und D_e verhalten sich im Bodenkörper isotrop.
5. Das Bodengas ist nicht komprimierbar.
6. Die Radonmigration erfolgt nur in der Gasphase.
7. Das Fick'sche Gesetz und das Gesetz von Darcy haben Gültigkeit.
8. Die Betrachtungsweise ist eindimensional. Die Betrachtungsrichtung ist die Tiefe z .

2.4.3 Lösung der allgemeinen Migrationsgleichung

Im folgenden Kapitel soll beispielhaft die Lösung der allgemeinen Migrationsgleichung GL 2-4. 16 für eine unendlich ausgedehnte, unversiegelte Bodenschicht mit den Randbedingungen $C_{Rn}(-\infty) = C_\infty$ und $C_{Rn}(0) = C_0 = 0$ vorgestellt werden.

Die allgemeinen Migrationsgleichung hat als homogene lineare Differenzialgleichung zweiter Ordnung den Funktionstyp $y'' + ay' + by + c = 0$. Als Lösung der Gleichung ergibt sich

$$C_{Rn}(z) = C_1 e^{\mu_1 z} + C_2 e^{\mu_2 z} + C_3$$

GL 2-4. 17

mit

$$\mu_1 = \frac{v}{n_e 2D_e} + \sqrt{\left(\frac{v}{n_e 2D_e} \right)^2 + \frac{\lambda}{D_e}} \quad \text{und} \quad \mu_2 = \frac{v}{n_e 2D_e} - \sqrt{\left(\frac{v}{n_e 2D_e} \right)^2 + \frac{\lambda}{D_e}} .$$

GL 2-4. 18a/b

In den Gleichungen GL 2-4. 18a/b gelten die Wertebereiche ($\infty > v > -\infty$) und ($D_e > 0$), womit in jedem Falle $\mu_2 < 0$ gilt. Im Falle $z \rightarrow -\infty$ würde C_{Rn} somit gegen unendlich gehen. Da aber als Randbedingung festgelegt wurde, daß C_{Rn} bei $z \rightarrow -\infty$ dem endlichen Wert C_∞ zustrebt, muß der Term $C_2 e^{\mu_2 z}$ und damit $C_2 = 0$ sein.

Bei $z \rightarrow -\infty$ geht der Term $C_1 e^{\mu_1 z}$ gegen 0. Bei gleichzeitiger Annahme von $C_2 = 0$ ergibt sich somit $C_{Rn}(-\infty) = C_3$. Das heißt, daß C_3 der Radon-Gleichgewichtskonzentration C_∞ entspricht.

Bei $C_2 = 0$ und $C_3 = C_\infty$ gilt aufgrund der Randbedingung $C_{Rn}(0) = 0$ im Falle $z = 0$ die Gleichung $0 = C_l + C_\infty$. Für C_l gilt daher $C_l = -C_\infty$.

Die Lösung der allgemeinen Migrationsgleichung für die oben angeführten Randbedingungen ergibt sich somit unter Verwendung der Beziehung $D_i = n_e D_e$ zu

$$C_{Rn}(z) = C_\infty \left(1 - \exp \left(\frac{v}{2D_i} + \sqrt{\frac{v^2}{(2D_i)^2} + \frac{\lambda}{D_e}} \right) z \right).$$

GL 2-4. 19

Die gesamte Migrationslänge des Radons M ist als die Wegstrecke definiert, auf der sich die Ausgangskonzentration des Radons bei der Migration durch ein nichtradonproduzierendes Medium aufgrund des radioaktiven Zerfalls des Radons um den Faktor $(1-e^{-1})$ verringert. Die Migrationslänge M ergibt sich aus GL 2-4. 19 über

$$M = 2D_e \left(\frac{v}{n_e} + \sqrt{\frac{v^2}{(n_e)^2} + 4D_e\lambda} \right)^{-1}$$

GL 2-4. 20

Zu der mit GL 2-4. 19 vorgestellten Lösung der allgemeinen Migrationsgleichung ist die generelle Anmerkung zu machen, daß eine exakte mathematische Modellierung der Migration des Radons im luftgefüllten Porenraum eines Bodens aufgrund der Komplexität und der Inhomogenität der einen natürlichen Boden auszeichnenden Parameter nicht möglich ist.

In den folgenden Kapiteln werden verschiedene Lösungen der allgemeinen Migrationsgleichung GL 2-4. 16 sowohl für den Fall der Vernachlässigung der Advektion als auch unter Einbeziehung der Advektion vorgestellt. Die vorgestellten, zur Beschreibung verschiedener Szenarien hergeleiteten Lösungen stellen theoretische Modelle unter Voraussetzung der genannten vereinfachenden Annahmen bzw. der jeweiligen Randbedingungen dar. Es werden drei modellhafte Szenarien diskutiert, welche durch die Festlegung verschiedener Randbedingungen bestimmte in situ auftretende Gegebenheiten simulieren. Die für die jeweiligen Szenarien geltenden Randbedingungen sind in den drei Bildern der folgenden Abb. 2-4. 1 grafisch dargestellt. Dabei muß erwähnt werden, daß jeweils von einem homogenen und isotropen Bodenaufbau ohne Oberflächenversiegelung ausgegangen wird.

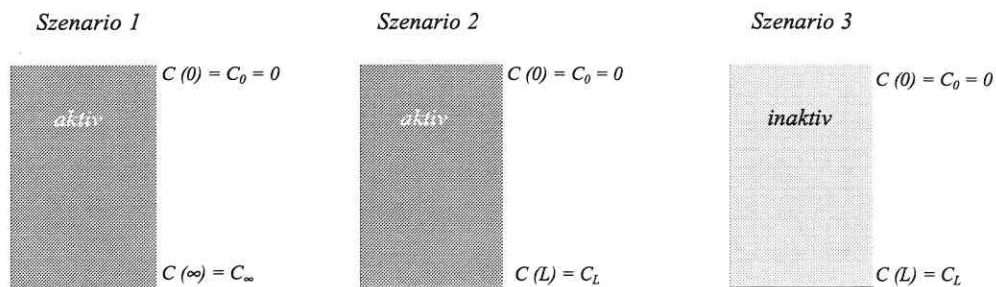


Abb. 2-4. 1: Schematische Darstellung von drei möglichen Szenarien des Aufbaus eines Bodenprofils.

2.4.4 Die Radonmigration bei Vernachlässigung der Advektion

Bei Vernachlässigung der Advektion wird der Advektionsterm der allgemeinen Migrationsgleichung (GL 2-4. 16) null gesetzt. Die allgemeine Migrationsgleichung wird so zur allgemeinen Diffusionsgleichung und hat die Form

$$(D_e \frac{\partial^2 C_{Rn}}{\partial z^2}) - \lambda C_{Rn} + \Phi = 0 \quad .$$

GL 2-4. 21

Szenario 1: Ausgedehnte, eigenaktive Bodenschicht

Szenario 1 repräsentiert die in situ am häufigsten angetroffene Situation einer ausgedehnten, eigenaktiven Bodenschicht. Die Randbedingungen, welche das Radontiefenprofil $C_{Rn}(z)$ in Szenario 1 bestimmen, sind in Abb. 2-4. 1 schematisch dargestellt. Für die Radonkonzentration am Interface Boden / Atmosphäre gilt $C(0) = 0$. Für die sich in theoretisch unendlicher Tiefe einstellende Radon-Gleichgewichtskonzentration gilt $C_{Rn}(-\infty) = C_\infty$. Die Lösung der allgemeinen Diffusionsgleichung GL 2-4. 21 für diese Randbedingungen ergibt sich aus GL 2-4. 19 zu

$$C_{Rn} = C_\infty \left(1 - \exp \left[\sqrt{\frac{\lambda}{D_e}} z \right] \right) .$$

GL 2-4. 22

Gleichung GL 2-4. 22 zeigt, daß $C_{Rn}(z)$ unter den gegebenen Randbedingungen nur vom effektiven Diffusionskoeffizient D_e des Bodens abhängig ist. Nach GL 2-4. 22 ergeben sich für einen jeweils beispielhaften Schluff ($D_e = 1 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$), Sand ($D_e = 5 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$) und Kies ($D_e = 1 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$) die in Abb. 2-4. 2 dargestellten Radontiefenprofile.

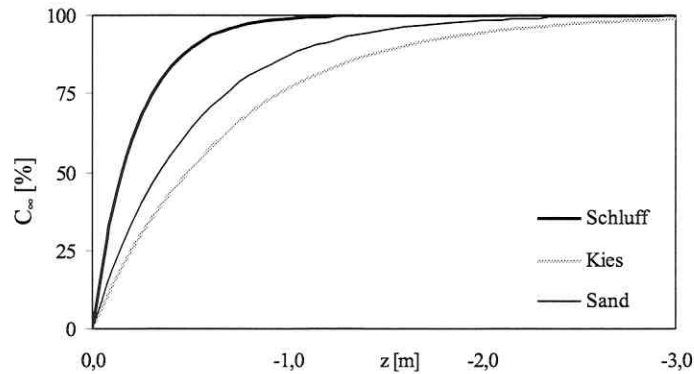


Abb. 2-4. 2: Modellhafte Radontiefenprofile unter den gegebenen Randbedingungen für einen beispielhaften Schluff ($D_e = 1 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$), Sand ($D_e = 5 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$) und Kies ($D_e = 1 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$) (nach GL 2-4. 22).

Szenario 2: Endlich dicke eigenaktive Bodenschicht

In den im folgenden diskutierten Szenarien 2 und 3 wird eine endlich dicke Bodenschicht der Mächtigkeit L angenommen. Die Radon-Gleichgewichtskonzentration dieser Bodenschicht, das heißt die Radonkonzentration, welche sich theoretisch in unendlicher Tiefe ($z = -\infty$) einstellen würde, wird wiederum mit C_∞ bezeichnet. Für die Radonkonzentration am Interface Boden / Atmosphäre gilt $C_{Rn}(0) = C_0 = 0$. An der Basis der Bodenschicht, also in der Tiefe $z = L$ soll die Radonkonzentration C_L vorgegeben sein. Die Lösung der allgemeinen Diffusionsgleichung (GL 2-4. 21) für diese Randbedingungen ist mit

$$C_{Rn}(z) = C_\infty - \frac{(C_\infty - C_L) \sinh\left(z \sqrt{\frac{\lambda}{D_e}}\right) - (C_\infty - C_0) \sinh\left((z-L) \sqrt{\frac{\lambda}{D_e}}\right)}{\sinh\left(L \sqrt{\frac{\lambda}{D_e}}\right)}$$

GL 2-4. 23

gegeben.

In Szenario 2 wird eine endlich dicke eigenaktive Bodenschicht betrachtet. Die Randbedingungen, die Szenario 2 auszeichnen, sind in Abb. 2-4. 1 schematisch dargestellt. In einer endlich dicken, eigenaktiven Bodenschicht wird nur dann die Radon-Gleichgewichtskonzentration C_∞ erreicht, wenn die Mächtigkeit der Schicht L größer ist als die bodenspezifische Migrationslänge des Radons M . Gilt $L \leq M$, liegt an der Basis der Bodenschicht ($z = L$) eine Radonkonzentration $C_L < C_\infty$ vor.

Nimmt man für Szenario 2 in der Tiefe L eine Radonkonzentration C_L an, die der Radon-Gleichgewichtskonzentration des betrachteten Bodens entspricht, ergibt sich aus der Lösung der allgemeinen Diffusionsgleichung für eine endlich dicke Bodenschicht der Mächtigkeit L (GL 2-4. 23) die Gleichung

$$C_{Rn} = C_\infty \left(1 + \frac{\sinh\left((z-L) \sqrt{\frac{\lambda}{D_e}}\right)}{\sinh\left(L \sqrt{\frac{\lambda}{D_e}}\right)} \right).$$

GL 2-4. 24

Für $L \rightarrow -\infty$ geht GL 2-4. 24 in die entsprechende Lösung für eine unendlich dicke eigenaktive Schicht (GL 2-4. 22) über.

In Abb. 2-4. 3 sind die Radontiefenprofile für verschiedene Schichtdicken L eines Bodens mit einem Diffusionskoeffizienten von $D_e = 1,5 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ unter Vorgabe von $C_L = C_\infty$ dargestellt. Bei dem vorgegebenen Diffusionskoeffizient kann als Boden ein trockener Mittelsand angenommen werden. Die Vorgabe $C_L = C_\infty$ wird für jede der gewählten Schichtdicken, also unabhängig von der Schichtdicke angenommen. Die Abbildung zeigt, daß das sich in den gegebenen Bodenschichten einstellende Radontiefenprofil ab Schichtdicken von etwa $L > 3\text{m}$ dem einer unendlich dicken, eigenaktiven Bodenschicht ($L \gg 3\text{m}$) entspricht. Selbst bei dem gegebenen relativ hohen Diffusionskoeffizient, hat die Schichtdicke ab $L > 3\text{m}$ praktisch keinen Einfluß mehr auf das

Radontiefenprofil. Das deckt sich mit der weiter oben gemachten Aussage, daß die Diffusionslänge des Radons in trockenen gut permeablen Böden bei etwa 2 m liegt (Tanner, 1964).

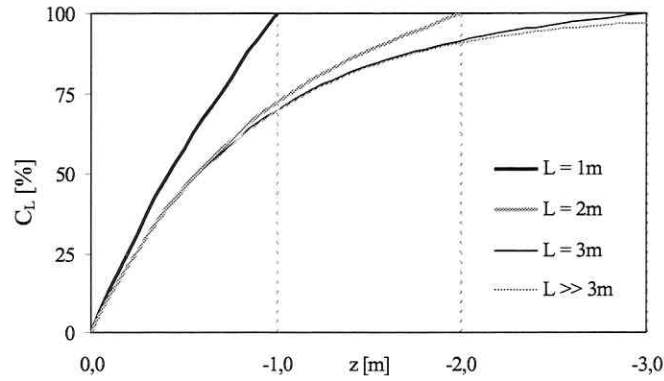


Abb. 2-4. 3: Modellhafte Radontiefenprofile für endlich dicke eigenaktive Schichten der Dicke L unter Vorgabe von $C_L = C_\infty$ und $D_e = 1,5 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ (nach GL 2-4. 24).

Szenario 3: Endlich dicke inaktive Bodenschicht

In Szenario 3 wird die Radondiffusion durch eine endlich dicke inaktive Bodenschicht betrachtet. Dabei wird wiederum vorgegeben, daß in der Tiefe $z = L$ eine Radonkonzentration C_L vorliegt. Weiterhin gilt, wie auch in den Szenarien 1 und 2 die Randbedingung $C_0 = 0$. Die Randbedingungen, die Szenario 3 auszeichnen sind schematisch in Abb. 2-4. 1 dargestellt. Aus der Lösung der allgemeinen Diffusionsgleichung für eine endlich dicke Bodenschicht der Mächtigkeit L unter den gegebenen Randbedingungen (GL 2-4. 23) ergibt sich mit der für eine inaktive Schicht geltenden Randbedingung $C_\infty = 0$, das heißt bei Vernachlässigung des Radonquellterms Φ in der betrachteten Bodenschicht, die Gleichung

$$C_{Rn} = C_L \frac{\sinh\left(z \sqrt{\frac{\lambda}{D_e}}\right)}{\sinh\left(L \sqrt{\frac{\lambda}{D_e}}\right)} .$$

GL 2-4. 25

In Abb. 2-4. 4 sind Radontiefenprofile für verschiedene Schichtdicken L einer inaktiven Bodenschicht mit einem angenommenen Diffusionskoeffizient von $D_e = 1,5 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ unter Vorgabe einer Radonkonzentration $C_{Rn}(L) = C_L$ dargestellt. Die Abbildung zeigt, daß selbst bei dem relativ hohen Diffusionskoeffizient von $D_e = 1,5 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ eine durch C_L vorgegebene Radonquelle in der Tiefe ab etwa $L \geq 4 \text{ m}$ im Oberboden nicht mehr signifikant registriert werden kann, wenn ein rein diffusiver Radontransport vorliegt. Die von verschiedenen Autoren beobachteten Migrationslängen des Radons von bis zu 100 m haben in erster Linie eine advective Bodengasströmung zur Ursache (z.B. Mogro-Campero & Fleischer, 1977). Diese soll Gegenstand des nachfolgenden Kapitels sein.

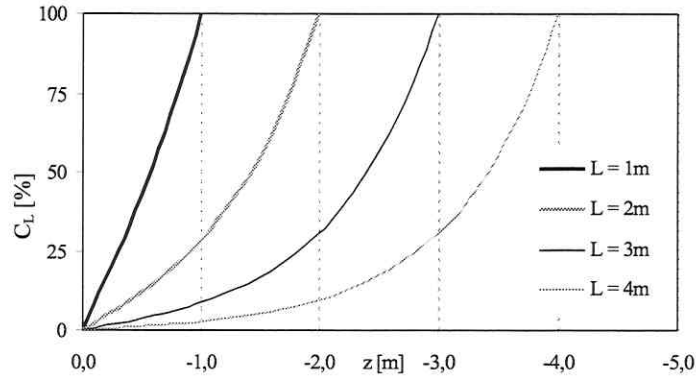


Abb. 2-4. 4: Modellhafte Radontiefenprofile für eine endlich dicke inaktive Schicht der Dicke L unter Vorgabe von $C_{Rn}(L) = C_L$ und $D_e = 1,5 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ (nach GL 2-4. 25).

2.4.5 Die Radonmigration unter Einbeziehung der Advektion

Zur Illustration des Einflusses einer Bodengasströmung auf das Radontiefenprofil soll im folgenden das oben vorgestellte Szenario 1 unter Einbeziehung der Bodengasadvektion, also ausgehend von der vollständigen allgemeinen Migrationsgleichung (GL 2-4. 16) besprochen werden. Auch hierbei gelten die oben gemachten einschränkenden Bemerkungen und die in Abb. 2-4. 1 dargestellten Randbedingungen ($C_0 = 0$; $C_{Rn}(-\infty) = C_\infty$). Die Lösung der allgemeinen Migrationsgleichung für eine unendlich ausgedehnte, unversiegelte Bodenschicht war bereits mit GL 2-4. 19 vorgestellt worden. Die Gleichung zeigt, daß $C_{Rn}(z)$ bei Einbeziehung der Bodengasadvektion von der Advektionsgeschwindigkeit v und dem Diffusionskoeffizienten D abhängig ist. Da für z negative Werte angenommen werden, bekommt eine aufwärtsgerichtete Advektionsgeschwindigkeit ein positives Vorzeichen. Für verschiedene beispielhafte Advektionsgeschwindigkeiten ergeben sich die in Abb. 2-4. 5 und Abb. 2-4. 6 dargestellten Abhängigkeiten. Für die Bodenmatrix wurde hierbei beispielhaft ein Diffusionskoeffizient von $D_e = 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$ angenommen.

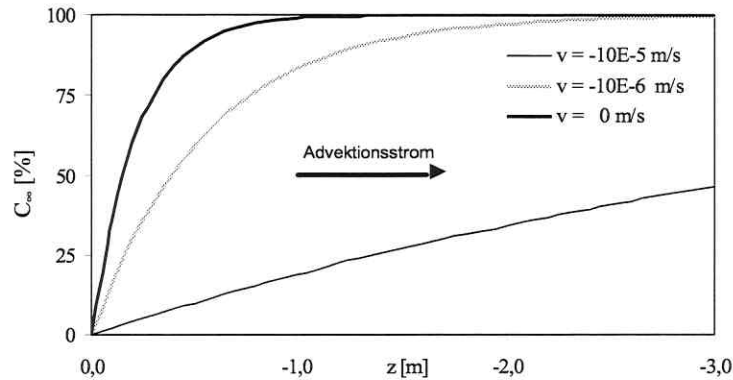


Abb. 2-4. 5: Modellhafte Radontiefenprofile für verschiedene Advektionsgeschwindigkeiten bei einem abwärtsgerichteten Advektionsstrom und einem Diffusionskoeffizienten $D_e = 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$ (nach GL 2-4. 19).

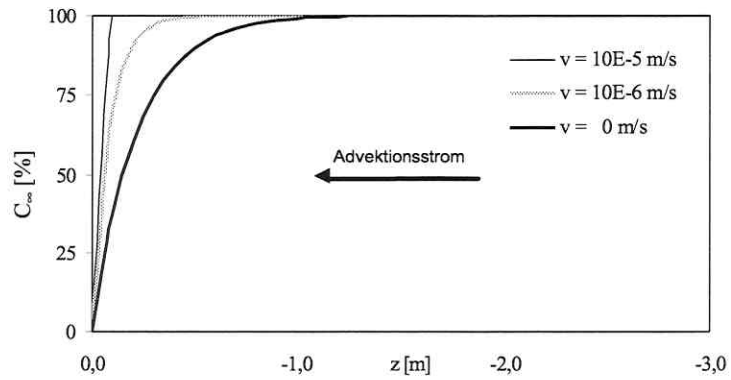


Abb. 2-4. 6: Modellhafte Radontiefenprofile für verschiedene Advektionsgeschwindigkeiten bei einem aufwärtsgerichteten Advektionsstrom und einem Diffusionskoeffizienten $D_e = 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$ (nach GL 2-4. 19).

Den Abbildungen Abb. 2-4. 5 und Abb. 2-4. 6 ist zu entnehmen, daß das Radontiefenprofil eines Bodens durch die Migration der Bodenluft sehr stark beeinflußt werden kann. Bodengasströmungen können beispielsweise durch Druck- oder Temperaturgradienten im Boden, durch einen steigenden bzw. fallenden Grundwasserspiegel oder durch die Verdrängung der Bodenluft durch absickerndes Niederschlagswasser hervorgerufen werden.

2.5 Die Radonexhalation

Die Radonexhalation aus der Erdoberfläche bestimmt den Radoneintrag in die Atmosphäre. Durch eine teilweise oder vollständige Versiegelung der Erdoberfläche kann die Radonexhalation eingeschränkt bzw. völlig unterbunden werden.

Die Exhalationsrate eines Bodens kann als die Radonflußdichte J am Interface Boden / Atmosphäre, also in der Tiefe $z = 0$ verstanden werden. Dabei wird zur Beschreibung der Exhalationsrate die integrale Flußdichte $J_{d,i}$ bzw. $J_{ges,i}$ herangezogen, da bei der Bestimmung der Radonexhalation eines Bodens nicht der effektive Radonfluß im luftgefüllten Porenraum, sondern der über die Gesamtoberfläche des Bodens integrierte Radonaustritt gemessen wird.

2.5.1 Die Radonexhalation bei Vernachlässigung der Advektion

Nach dem ersten Fick'schen Gesetz gilt für die Radonexhalation bei Vernachlässigung einer advektiven Bodengasströmung die Beziehung

$$J_{d,i} = -D_i \left. \frac{\partial C_{Rn}}{\partial z} \right|_{z=0},$$

GL 2-5. 1

wobei die Exhalationsrate durch die integrale diffusive Flußdichte $J_{d,i}$, das heißt über den integralen Diffusionskoeffizienten D_i und den Radon-Konzentrationsgradienten ∇C_{Rn} ausgedrückt wird. Mit der in Kapitel 2.4.4 vorgestellten Lösung der allgemeinen Diffusionsgleichung für eine ausgedehnte eigenaktive Bodenschicht ergibt sich für die rein diffusiv bedingte Radonflußdichte an der Erdoberfläche, das heißt für die Radonexhalation, aus GL 2-5. 1 die Lösung

$$J_{d,i} = C_\infty \sqrt{\lambda D_i n_e}.$$

GL 2-5. 2

Aus GL 2-5. 2 ist zu erkennen, daß die rein diffusiv bedingte Radonexhalationsrate eines Bodens vom Radonpotential des Bodens (C_∞) und von der bodenspezifischen Diffusionskonstante D abhängig ist. In Abb. 2-5. 1 ist $J_{d,i}$ als Funktion von D_i bei Annahme einer Radon-Gleichgewichtskonzentration von $C_\infty = 10 \text{ kBq/m}^3$ und einer luftgefüllten Porosität des Bodens von $n_{SBL} = 0,4$ dargestellt.

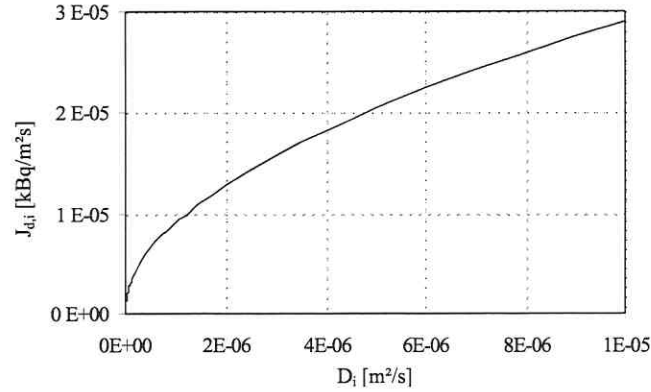


Abb. 2-5. 1: Modellhafte Abhängigkeit der diffusiv bedingten Exhalationsrate $J_{d,i}$ von D_i bei angenommenen bodenspezifischen Parametern $n_{S_{BL}} = 0,4$ und $C_\infty = 10 \text{ kBq/m}^3$ (nach GL 2-5. 2).

2.5.2 Die Radonexhalation unter Einbeziehung der Advektion

Nach dem 1. Fick'schen Gesetz und dem Gesetz von Darcy gilt für die Exhalation unter Einbeziehung der Advektion analog zu GL 2-4.6 aus Kapitel 2.4.1.3

$$J_{ges,i} = v C_{Rn} - D_i \left. \frac{\partial C_{Rn}}{\partial z} \right|_{z=0}.$$

GL 2-5. 3

Mit der Lösung der allgemeinen Migrationsgleichung für eine ausgedehnte eigenaktive Bodenschicht aus Kapitel 2.4.3 (GL 2-4. 12) ergibt sich für die Radonexhalation unter Einbeziehung der Advektion aus GL 2-5. 3 die Lösung

$$J_{ges,i} = C_\infty \left(\frac{v}{2} + \sqrt{\frac{v^2}{4} + \lambda D_i n_e} \right).$$

GL 2-5. 4

Für den Fall $v = 0$ geht Gleichung GL 2-5. 4 in die oben hergeleitete Gleichung GL 2-5. 2 über. In der Abb. 2-5. 2 ist die Abhängigkeit der Exhalationsrate $J_{ges,i}$ von D_i und v illustriert. Für die Darstellung wurde wie auch in Abb. 2-5. 1 eine Radon-Gleichgewichtskonzentration von $C_\infty = 10 \text{ kBq/m}^3$ und eine luftgefüllte Porosität von $n_{S_{BL}} = 0,4$ angenommen. In der Abbildung wurden nur aufwärtsgerichtete, also positive Advektionsgeschwindigkeiten berücksichtigt. Es ist zu erkennen, daß die Exhalation bei gegebener luftgefüllter Porosität und gegebener Radon-Gleichgewichtskonzentration mit wachsender Advektionsgeschwindigkeit und / oder wachsendem Diffusionskoeffizient zunimmt. Gleichzeitig wird deutlich, daß bei Advektionsgeschwindigkeiten von $v > 10^{-5} \text{ m/s}$ der Diffusionskoeffizient praktisch keine Auswirkung mehr auf des Radontiefenprofil hat.

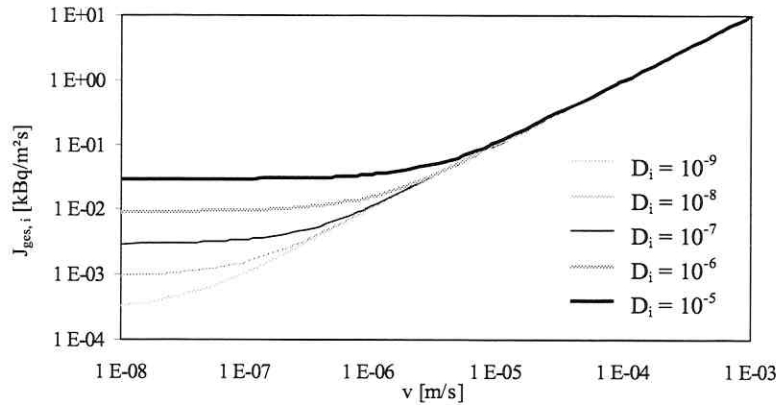


Abb. 2-5. 2: Abhängigkeit der Exhalationsrate $J_{ges,i}$ von D_i und v mit $C_\infty = 10 \text{ kBq/m}^3$ und $n S_{BL} = 0,4$ (nach GL 2-5. 4).

Die Radonexhalation hat eine Verringerung der Radonkonzentration in der Bodenluft des Oberbodens zur Folge. Dementsprechend liegen im Oberboden auch verringerte Gehalte an Radonfolgeprodukten vor. Aus diesem Grund spiegelt sich das zeitlich mittlere Radontiefenprofil eines Bodens auch in der Differenzkurve zwischen den Aktivitätskonzentrationen des ^{226}Ra , als Mutternuklid des Radons, und des ^{210}Pb als erstem langlebigen Radonfolgeprodukt wider. Das ^{210}Pb -Defizit in der Tiefe z $\Delta\alpha_{pb}(z)$ steht mit der Radonkonzentration $C_{Rn}(z)$ in dieser Tiefe und der Radonproduktionsrate des Bodens Φ über

$$\Delta\alpha_{pb}(z) = [\Phi - \lambda C_{Rn}(z)] n S_{BL}$$

GL 2-5. 5

in Beziehung. Aufgrund des Zusammenhangs zwischen der Radonexhalation und der Radonfolgeproduktanreicherung im Oberboden kann das Integral über der Differenzkurve zwischen A_{226-Ra} und A_{210-Pb} als Maß für die mittlere Exhalationsrate eines Bodens herangezogen werden. Bei der Betrachtung des ^{210}Pb -Defizits als Maß für die Exhalationsrate darf allerdings die oberste Bodenschicht nicht mit in die Bilanz einbezogen werden, da es hier zu einer Anreicherung von Radonfolgeprodukten aus der Atmosphärenluft kommt. Die Bestimmung der mittleren Exhalationsrate mit Hilfe des Tiefenprofils des ^{210}Pb -Defizits ist bei Schery et al. (1984) detailliert beschrieben.

2.5.3 Der Einfluß der Bodenfeuchte auf die Exhalationsrate

Wie in den Kapiteln 2.2.2 und 2.2.3 besprochen wurde, ist die Radonmigration und damit die Radonexhalation von der Bodenfeuchte abhängig, da sich eine erhöhte Bodenfeuchte sowohl auf die Gaspermeabilität k als auch auf den Diffusionskoeffizienten D des Bodens negativ auswirkt. Das heißt, daß sich die Radonexhalation mit steigender Bodenfeuchte verringert. Andererseits wurde im Kapitel 2.3.3.4 diskutiert, daß die Radon-Gleichgewichtskonzentration in der Bodenluft C_∞ ebenfalls von der Bodenfeuchte abhängt, wobei sich hier das Porenwasser positiv auf den Emanationskoeffizienten ε und damit auf C_∞ auswirkt. Das wiederum bedeutet, daß feuchte Böden

eine höhere Radonproduktionsrate und somit auch eine höhere Exhalationsrate aufweisen, als völlig wasserfreie.

Durch Lindmark & Rosen (1985) wurden die beiden die Exhalationsrate beeinflussenden Effekte der Bodenfeuchte im Zusammenhang diskutiert. Die Modelle und Experimente der Autoren ergaben, daß die Exhalationsrate von einem völlig wasserfreien Boden ausgehend mit wachsender Bodenfeuchte S_w zunächst ansteigt, da bis zu einem bestimmten Porenwassergehalt die emanationsverstärkenden Effekte dominieren. Ab einer bestimmten Bodenfeuchte geht die Exhalationsrate aber wieder zurück, da jetzt der migrationshemmende Einfluß des Porenwassers die Oberhand gewinnt. Ähnliche Beobachtungen wurden von Gruffaz & Redman (1995) und von Stranden et al. (1984) bei Experimenten mit Schieferen und verschiedenen Böden gemacht.

Die für eine hohe Exhalationsrate optimale Bodenfeuchte ist von der jeweiligen Bodenart abhängig. Nach Lindmark & Rosen (1985) kann die Exhalationsrate eines Bodens bei dieser optimalen Bodenfeuchte und sonst gleichen Bedingungen bis zu 30 mal größer sein als im ungünstigsten Fall. Nach Stranden et al. (1984) kann sich die Exhalationsrate feuchtebedingt um das 20-fache ändern, wobei der für die Exhalation optimale Wert für S_w von der Porosität der Bodenmatrix abhängig ist. Je höher die Porosität ist, um so mehr Wasser kann aufgenommen werden, bevor der optimale Wert für S_w überschritten wird.

Strong & Lewins (1982) beschreiben einen vergleichbaren Effekt für Uran-Tailings und geben zu bedenken, daß ein Befeuchten von Tailingshalden zur Minimierung des Staubaustrages, trotz der Verringerung des Diffusionskoeffizienten gegebenenfalls auch eine Verstärkung der Radonexhalation mit sich bringt.

2.6 Natürliche und anthropogene Beeinflussungen des Radontiefenprofils

2.6.1 Der Einfluß meteorologischer Parameter

2.6.1.1 Grundgedanken

Die Radonkonzentration der Bodenluft C_{Rn} in den obersten Bodenhorizonten zeichnet sich durch natürliche zyklische Schwankungen aus. Gleichzeitig setzt die Nutzung von Kurzzeitmessungen der Radonkonzentration der Bodenluft zur Lokalisierung von NAPL-Kontaminationen des Untergrundes voraus, daß diese natürlich auftretenden Schwankungen nicht so stark sind, daß sie die durch NAPLs induzierten Veränderungen von C_{Rn} überdecken. Diese Tatsache macht eine nähere Betrachtung der natürlichen Schwankungen der Radonkonzentration der Bodenluft notwendig.

Da sich Radonkartierungen zur Lokalisierung von NAPL-Kontaminationen zumeist über Zeiträume von einem oder wenigen Tagen erstrecken, ist bei der Interpretation der gewonnenen Radonmeßdaten vor allem der natürliche Tagesgang der Radonkonzentration von Interesse. Ein solcher natürlicher Radon-Tagesgang wurde von mehreren Autoren beschrieben. Ursache dafür, daß durch verschiedene andere Autoren kein signifikanter Radon-Tagesgang festgestellt werden konnte, ist nach Schery et al. (1984), daß bei der Aufnahme von Radonzeitreihen oft über zu lange Zeitfenster integriert wird und somit die für den Tagesgang typischen, nur wenige Stunden andauernden Peaks nicht erfaßt werden.

Grundsätzlich kann festgestellt werden, daß der Radon-Tagesgang tageszyklische Schwankungen bestimmter, die Bodengasmigration beeinflussender meteorologischer Parameter zur Ursache hat. Mit welcher Stärke und in welcher Form meteorologische Einflüsse auf die Bodengasmigration und damit das Radontiefenprofil im Boden einwirken, wird in der Literatur allerdings kontrovers diskutiert (Rehs, 1999; Woith & Pekdeger, 1995; Schery et al., 1984; Klusman & Webster, 1981; Clements & Wilkening, 1974). Während beispielsweise Klusman & Webster (1981) über 90% der natürlichen Schwankungen der Radonkonzentration der Bodenluft mit meteorologischen Einflüssen erklären und auch Woith & Pekdeger (1995) den überwiegenden Teil der zyklischen C_{Rn} -Schwankungen meteorologischen Einflüssen zuschreiben, führen Fleischer & Mogro-Campero (1985) Korrelationen zwischen gemessenen Radonkonzentrationen der Bodenluft und meteorologischen Parametern in erster Linie auf die sensible Reaktion der Radonmeßgeräte auf die Witterungsverhältnisse zurück. Nach Nazaroff (1992) und Woith & Pekdeger (1995) machen sich die einen Radon-Tagesgang verursachenden witterungsbedingten Einflüsse im Sommer stärker bemerkbar als im Winter.

Im allgemeinen wird in der Literatur jedoch ein gewisser Einfluß der meteorologischen Parameter auf die Radonkonzentration der Bodenluft anerkannt. Als für die Bodengasmigration relevante meteorologische Parameter werden dabei die periodisch veränderlichen Größen (1) Boden- bzw. Lufttemperatur, (2) atmosphärischer Luftdruck und (3) Windgeschwindigkeit, und als weitere Größe (4) die nicht tageszyklisch veränderliche Niederschlagsintensität genannt.

Nach Gast & Stolz (1982) sind meteorologische Einflüsse generell bis in etwa 0,6 m Bodentiefe meßbar. Tageszyklische Einflüsse meteorologischer Parameter wurden demgegenüber durch Schubert (2000) und Schubert & Schulz (2000) schon in 30 cm nicht mehr beobachtet. Andererseits beschreibt Nazaroff (1992) noch für den Tiefenhorizont von 70 - 100 cm Tagesschwankungen von C_{Rn} mit Änderungen um den Faktor zwei und jahreszeitliche Schwankungen mit Änderungen von bis zu einer Größenordnung. Woith & Pekdeger (1995) beschrieben sogar tageszyklische Schwankungen von C_{Rn} bis in 3 m Tiefe. Durch Kovach (1945) wurden Einflüsse des Luftdrucks bis in 2 m Tiefe beschrieben.

Da sich die Einflüsse der oben genannten meteorologischen Parameter komplex überlagern, kann eine kurzfristige Änderung der Radonkonzentration der Bodenluft selten der Änderung einer bestimmten meteorologischen Einflußgröße direkt zugeordnet werden. Das hat gegebenenfalls Fehleinschätzungen bei der Bewertung der Relevanz der einzelnen meteorologischen Einflußgrößen zur Folge. Weitere Ursachen für die häufig kontroversen Interpretationen von beobachteten Witterungseinflüssen sind die geringe Anzahl von Langzeituntersuchungen, die unterschiedlichen Eigenschaften der jeweils untersuchten Böden und die Vielzahl der eingesetzten Meßtechniken.

In den folgenden Kapiteln soll eine repräsentative Auswahl von in der Literatur beschriebenen Beobachtungen zum Einfluß der einzelnen oben genannten meteorologischen Parameter auf die Bodengasmigration bzw. eine entsprechende Auswahl von Interpretationsversuchen zu den beobachteten Effekten vorgestellt werden.

2.6.1.2 Abhängigkeit des Radontiefenprofils von der Temperatur

Die Temperatur zeigt ein ausgeprägtes tageszyklisches Verhalten und wird daher oft mit Tagesschwankungen der Radonkonzentration der Bodenluft bzw. Schwankungen der Radonexhalationsrate in Verbindung gebracht. Dabei wird in der Literatur sowohl eine umgekehrt proportionale Abhängigkeit der Radonkonzentration der Bodenluft (Schiffer, 1996; Schütz, 1994) oder der Radonexhalationsrate (Porstendörfer et al., 1994; Schütz, 1994) als auch eine proportionale Abhängigkeit der Radonkonzentration der Bodenluft (Gast & Stolz, 1982) oder der Radonexhalationsrate (Stranden et al., 1984) vom Tagesgang der Lufttemperatur beschrieben. Andere Autoren wiederum fanden diesbezüglich überhaupt keinen signifikanten Zusammenhang (Rehs, 1999; Nazaroff, 1992; Lindmark & Rosen, 1985; Schery et al., 1984; Schery & Patschek, 1983; Kovach, 1945).

Eine Ursache dieser kontroversen Debatte ist, daß der Einfluß der Temperatur praktisch nicht als separater Effekt gemessen werden kann, sondern von anderen meteorologischen Einflüssen überlagert wird. Zudem sind publizierte Ergebnisse oft nur schwer miteinander vergleichbar, da sowohl die Temperatur als auch C_{Rn} in den einzelnen Studien in jeweils verschiedenen Tiefehorizonten gemessen wurden. Da Böden im Normalfall eine geringe thermische Leitfähigkeit besitzen, unterliegt der Tagesgang der Temperatur mit zunehmender Tiefe neben einer Abnahme der Amplitude aber auch einer starken zeitlichen Phasenverschiebung. Aus diesen Gründen ist ein Vergleich von in verschiedenen Arbeiten publizierten Temperaturmeßreihen oft nur schwer möglich bzw. führt zu falschen Schlußfolgerungen.

Der jeweils beobachtete Zusammenhang zwischen der Temperatur und C_{Rn} bzw. der Exhalationsrate wird von den verschiedenen Autoren unterschiedlich begründet. Schiffer (1996) erklärt eine negative Korrelation zwischen Außentemperatur und Radonkonzentration der Bodenluft mit einem tageszyklischen Wechsel von Kondensation und Verdunstung in den obersten Bodenhorizonten, der eine tageszyklische Änderung der Gaspermeabilität des Oberbodens zur Folge hat und somit die Radonexhalation tageszyklisch behindert bzw. begünstigt. Porstendörfer et al. (1994) und Schütz (1994) begründen tageszyklische Schwankungen von C_{Rn} und der Exhalationsrate unter anderem damit, daß es nachts durch auf dem Boden aufliegende kalte Luftschichten zu einer Quasi-Versiegelung der Bodenoberfläche kommen kann, was einen Radonstau und damit ein Ansteigen der Radonkonzentration der oberflächennahen Bodenluft zur Folge hat. Dieser Effekt wurde von den Autoren bevorzugt in Tallagen beobachtet. Woith & Pekdeger (1995) sehen thermisch induzierte Druckgradienten als treibende Kraft von Bodengasströmungen, welche ihrerseits ein zyklisches

Schwanken von C_{Rn} zur Folge haben. Im Gegensatz dazu schließt Rehs (1999) konvektive Strömungen des Bodengases als Einflußfaktor aus und hält vielmehr die temperaturbedingte Änderung des Verteilungskoeffizienten $K_{w/BL}$ und des Diffusionskoeffizienten D für maßgeblich. Auch Schery & Patschek (1983) schließen eine Beeinflussung von C_{Rn} durch konvektive Bodengasströmung aus, da die theoretisch möglichen temperaturinduzierten Strömungsgeschwindigkeiten der Bodenluft zu gering sind. Auch nach Kovach (1945) ist die Expansion des Bodengases mit steigender Temperatur (0,366 % pro °C) aufgrund des im Boden angetroffenen Temperaturspektrums für eine Beeinflussung von C_{Rn} nicht relevant. Nach Schütz (1994) und Schütz & Keller (1994) pausen sich kurzzeitige Temperaturschwankungen der Atmosphärenluft in relevantem Maße nur bis in Tiefen von ca. 5 cm durch und machen sich ab etwa 30 cm nicht mehr bemerkbar.

2.6.1.3 Abhängigkeit des Radontiefenprofils vom atmosphärischen Luftdruck

Der Zusammenhang zwischen Schwankungen des atmosphärischen Luftdrucks und der Radonexhalationsrate des Bodens ist in der Literatur, besonders mit Hinblick auf das im Kapitel 2.1.5.4 angesprochene Problem der natürlichen Radonbelastung in Wohnräumen häufig beschrieben worden. Als generelle Aussage ist den publizierten Daten zu entnehmen, daß bei Änderungen des atmosphärischen Luftdrucks von nur etwa 1 % Änderungen der Radonexhalationsrate um 50 % bis 100 % möglich sind. Dabei hat ein Rückgang des Luftdrucks einen Anstieg der Exhalationsrate zur Folge und umgekehrt.

Eine wichtige und häufig zitierte Arbeit zur Abhängigkeit der Radonexhalationsrate vom Luftdruck, in welcher der Zusammenhang sowohl modellhaft als auch mit Hilfe von Labor- und Feldexperimenten untersucht wurde, legten Clements & Wilkening (1974) vor. Bei den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimenten wurden allerdings die Tagesschwankungen der Radonexhalationsrate ausgeklammert, indem die Feldmessungen zur jeweils gleichen Tageszeit vorgenommen wurden. Als Ergebnis der Felduntersuchungen konnte, in Übereinstimmung mit den im Vorfeld durchgeführten modellhaften Überlegungen festgestellt werden, daß eine Druckerhöhung von nur wenigen Prozent über einen Zeitraum von ein oder zwei Tagen einen Rückgang der Exhalationsrate um mehrere Zehner Prozent und umgekehrt zur Folge hat. Wie stark sich die Radonexhalationsrate änderte, war dabei von der Stärke der Druckänderung und der Zeitspanne über welche sie sich erstreckte abhängig.

Schery et al. (1984) und Schery & Patschek (1983) halten Schwankungen des atmosphärischen Luftdrucks für den hauptsächlichen die Radonexhalationsrate und damit auch das Radontiefenprofil bestimmenden meteorologischen Einfluß. Sowohl ihre modellhaften Überlegungen als auch die durchgeführten Experimente ergaben eine umgekehrte Proportionalität zwischen Exhalationsrate und Luftdruck. Bei der Auswertung von Tagesmittelwerten der gemessenen Exhalationsraten wurden an Tagen mit niedrigem oder fallendem Druck bis zu drei mal höhere Exhalationsraten als an Tagen mit hohem oder steigendem Luftdruck festgestellt. Sämtliche anderen witterungsbedingten Effekte werden nach Schery & Patschek (1983) durch den Einfluß des Luftdrucks nahezu vollständig überlagert.

Auch nach Owczarski et al. (1990) und Kovach (1945) ist weniger der absolute atmosphärische Luftdruck, als vielmehr der zeitliche Druckgradient für das Radontiefenprofil ausschlaggebend, wobei ein Anstieg des Luftdruckes generell einen Rückgang von C_{Rn} und umgekehrt mit sich bringt. Demgegenüber hat aber ein konstanter Luftdruck generell eine leichte Erhöhung von C_{Rn} zur Folge, da dabei das „Atmen“ des Bodens, welches häufige Druckänderungen mit sich bringen, minimiert wird. Zu vergleichbaren Ergebnissen kamen Holford et al. (1993) und Lindmark & Rosen (1985).

Nach Nazaroff (1992) haben Luftdruckänderungen von 1 bis 2 kPa über einen Zeitraum von 1 bis 2 Tagen, bei einer Gaspermeabilität des Bodens von $k = 10^{-12} \text{ m}^2$, verglichen mit einer rein diffusiv bedingten Exhalation, Änderungen der Exhalationsrate um 20 % bis 60 % zur Folge. Da der Einfluß des Druckes die Exhalation sowohl verstärken (Druckrückgang) als auch behindern kann (Druckanstieg), entspricht nach Nazaroff (1992) eine über längere Zeiträume gemittelte Exhalationsrate der, welche allein der Diffusion zugeschrieben werden kann.

Neben den beschriebenen längerfristigen Schwankungen zeigt der atmosphärische Luftdruck auch einen signifikanten Tagesgang bzw. zyklische Halbtageschwankungen (Woith & Pekdeger, 1995; Schery et al., 1984; Schery & Patschek, 1983). Diese kurzfristigen Schwankungen haben allerdings oft zu unscharfe Auswirkungen auf die Exhalationsrate bzw. auf C_{Rn} , um eine quantitative Einschätzung ihres Einflusses möglich zu machen. Schery & Patschek (1983) führten eine von ihnen beobachtete zyklische abendliche Verdoppelung der Exhalationsrate auf einen jeweils gleichzeitig festgestellten Rückgang des Luftdruckes zurück.

Generell kann der Literatur entnommen werden, daß langfristige Druckschwankungen einen deutlichen Einfluß auf C_{Rn} und die Exhalationsrate haben, wohingegen der Tagesgang des Luftdruckes diesbezüglich kaum von Bedeutung zu sein scheint. Durch verschiedene andere Autoren wurde allerdings auch überhaupt keine Abhängigkeit der Radonkonzentration der Bodenluft vom Luftdruck festgestellt (Rehs, 1999; Schütz, 1994; Gaucher, 1976).

2.6.1.4 Abhängigkeit des Radontiefenprofils von der Windgeschwindigkeit

Nach dem Satz von Bernoulli verringert sich der dynamische Druck in einem strömenden Gas gegenüber dem Druck in einem ruhenden Gas proportional zu dessen Strömungsgeschwindigkeit. Das bedeutet, daß im luftgefüllten Porenraum des Oberbodens durch oberflächennahen Wind theoretisch ein Druckgradient senkrecht zur Erdoberfläche aufgebaut wird, welcher eine aufwärtsgerichtete Bodengasadvektion und somit eine verstärkte Exhalation zur Folge hat. Bei einer Windgeschwindigkeit von ca. 5 m/s und einer Luftdichte von $1,293 \text{ kg/m}^3$ wird beispielsweise zwischen Boden- und Atmosphärenluft theoretisch ein Druckunterschied von etwa 16 Pa erzeugt.

Mochizuki & Sekikawa (1978) zogen diesen Effekt zur Interpretation von Messungen heran, bei denen sie während eines schweren Sturmes in 20 cm Bodentiefe um das Vierfache erhöhte Radonkonzentrationen festgestellt hatten. Erhöhungen von C_{Rn} die auch durch Kovach (1945) während eines starken Sturmes festgestellt wurden, führte der Autor andererseits auf eine Versiegelung der Bodenoberfläche durch den gleichzeitig einsetzenden Starkregen zurück.

Im Gegensatz zu den oben beschriebenen Beobachtungen von Mochizuki & Sekikawa (1978) wurde durch Lindmark & Rosen (1985) und Kovach (1945) eine Verringerung der Radonkonzentration in den obersten Bodenschichten bei mehrstündigen, starken Winden festgestellt. Nach Kovach (1945) treten stärkere Winde bevorzugt in Böen auf, was anstelle eines kontinuierlichen Unterdrucks im Boden einen fortwährenden Wechsel der Druckverhältnisse mit sich bringt. Das wiederum hat einen verstärkten Luftaustausch und somit keine Erhöhung sondern eher eine Verringerung von C_{Rn} zur Folge. Des weiteren begründeten die genannten Autoren ihre Beobachtung mit einer verstärkten Austrocknung des Oberbodens aufgrund des Windes, welche eine Erhöhung der Gaspermeabilität des Bodens mit sich bringt. Nach Nazaroff (1992) und Schery et al. (1984) hat die Windgeschwindigkeit im Vergleich zum Einfluß anderer meteorologischer Parameter nur eine untergeordnete Bedeutung für das Radontiefenprofil.

Porstendörfer et al. (1994, 1991) und Rehs (1999) diskutieren die Abhängigkeit der Radonkonzentration der bodennahen Atmosphärenluft von der tageszyklischen Änderung der Windgeschwindigkeit. Ein festgestelltes tageszyklisches Schwanken der Radonkonzentration der bodennahen Atmosphärenluft mit geringeren Konzentrationen tagsüber und höheren Konzentrationen nachts wurde mit dem tageszyklischen Auftreten bodennaher atmosphärischer Turbulenzen begründet, durch welche die exhalierende Bodenluft verdünnt wird. Die tageszyklische Änderung der Exhalationsrate fällt dagegen nach Porstendörfer et al. (1994) und Rehs (1999) für die Radonkonzentration der bodennahen Atmosphärenluft kaum ins Gewicht.

2.6.1.5 Abhängigkeit des Radontiefenprofils von Niederschlägen und Bodenfrost

Wie in den Kapiteln 2.2.2.3, 2.2.3.2, 2.3.3.4 und 2.3.4.2 ausgeführt wurde, wird die Radonkonzentration der Bodenluft unter anderem von der Bodenfeuchte S_w bestimmt. Die in den genannten Kapiteln diskutierten Ursachen der Abhängigkeit der Radonkonzentration der Bodenluft von S_w sind die Änderung des luftgefüllten Porenraums, des Diffusionskoeffizienten, der Gaspermeabilität und des Emanationskoeffizienten des Bodens. Die besprochenen Abhängigkeiten sind für eine mehr oder weniger homogene Durchfeuchtung des Bodens zutreffend.

Neben diesen Effekten bewirkt eine einmalige kurzzeitige aber intensive Beregnung des Bodens, die nicht zwingend signifikante Auswirkungen auf die Bodenfeuchte der tieferen Bodenschichten hat, eine temporäre Versiegelung des Porenraums im Oberboden und zieht durch die Behinderung der Radonexhalation einen vorübergehenden Radonstau unterhalb der temporär wassergesättigten oberflächennahen Bodenschicht nach sich (Rehs, 1998; Schiffer, 1996; Schütz, 1994; Nazaroff, 1992; Worm, 1986; Lindmark & Rosen, 1985; Kovach, 1945). Schery et al. (1984) beschreiben nachfolgend zu einem Starkregen eine völlige Überlagerung des Einflusses des wiederansteigenden Luftdrucks durch den Versiegelungseffekt des Regenwassers. Andererseits kann es nach Tanner (1964) in sandigen Böden aufgrund der Verdrängung der Bodenluft durch absickerndes Niederschlagswasser auch zu einer kurzzeitigen Verstärkung der Radonexhalation kommen.

Wie stark die durch Niederschlag hervorgerufene Beeinflussung ist bzw. wie schnell sowohl C_{Rn} als auch die Exhalationsrate wieder ihre Normalwerte erreichen, ist von der Lufttemperatur und der Windgeschwindigkeit (Rehs, 1999) bzw. von der Bodenfeuchte im Vorfeld des Niederschlagsereignisses abhängig (Schütz, 1994).

Ähnlich dem Einfluß des Niederschlags kann auch starke Taubildung einen Radonstau im Oberboden bewirken (Gaucher, 1976). In diesem Fall ist eine Erhöhung der Radonkonzentration in Oberflächennähe besonders in den Nachtstunden, also tageszyklisch zu beobachten (Ball et al., 1990).

Einen ebenfalls mit Niederschlägen vergleichbaren, wenn auch längerfristigen Versiegelungseffekt kann Bodenfrost haben (Rehs, 1999; Lindmark & Rosen, 1985; Kovach, 1945). Dabei sind feinkörnige Böden aufgrund des niedrigeren Gefrierpunktes des Kapillarwassers weniger frostgefährdet. Ob Bodenfrost eine Bodenversiegelung zur Folge hat, hängt neben der Bodenart auch vom Wassergehalt des Bodens im Vorfeld der Frostperiode ab (Bunzl et al., 1998). Woith & Pekdeger (1995) schreiben der Versiegelung der Bodenoberfläche durch Regen oder Eis eine zentrale Bedeutung bei der Ausbildung des Radontiefenprofils zu.

Schneedecken tragen, im Gegensatz zu einem Zufrieren des Oberbodens, nicht direkt zur Versiegelung bei, da Schnee im allgemeinen eine bessere Gaspermeabilität aufweist als der Boden selbst. Zudem bringen Schneedecken eine Wärmeisolation des Bodens mit sich, was das Zufrieren des Bodens

verhindert (Rehs, 1999). Im Fall längerer Tauperioden kommt es durch Schneedecken allerdings zu einer starken und langanhaltenden Durchfeuchtung des Oberbodens, was eine deutliche Verringerung der Gaspermeabilität und des Diffusionskoeffizienten somit einen Radonstau zur Folge haben kann (Lindmark & Rosen, 1985).

In niederschlagsreichen Jahreszeiten oder in Folge von Hochwässern lokaler Vorfluter kann es zu beträchtlichen Anstiegen des Grundwasserspiegels kommen. Durch einen kurzfristigen Anstieg des Grundwassers wird die Bodenluftsäule des grundwasserungesättigten Bodens angehoben, was zu einer Erhöhung der Radonkonzentration der Bodenluft in Oberflächennähe führt (Fukui, 1987).

2.6.2 Der Einfluß von Eingriffen in das natürliche Bodenprofil

Die Radonkonzentration der Bodenluft ist, wie weiter oben detailliert ausgeführt wurde, von diversen bodenphysikalischen Parametern abhängig. Weiterhin hat der Grad der Bodenversiegelung Einfluß auf das Radontiefenprofil. Wird eine dieser Einflußgrößen, beispielsweise im Zuge von Baumaßnahmen geändert, hat das im Normalfall Verschiebungen im lokalen Radontiefenprofil zur Folge. Werden bei einer Radonkartierung in urban überprägten Gebieten lokale Anomalien festgestellt, können diese unter Umständen auf einen früheren Eingriff in das natürliche Bodenprofil zurückgeführt werden.

Aufgrund der in dieser Arbeit untersuchten Anwendung von Radonkartierungen zur Lokalisierung von NAPL-Kontaminationen, stehen unter anderem Tankstellenstandorte im Blickpunkt des Interesses. Neben NAPL-Kontaminationen des Untergrundes können auf Tankstellenstandorten festgestellte Radonanomalien gegebenenfalls auch auf bautechnische Eigenheiten der jeweiligen Tankstelle zurückgeführt werden. So sind beispielsweise die unterirdischen Lagertanks selten direkt in das anstehende Erdreich eingelassen, sondern zumeist in deutlich größeren Baugruben auf sogenannte Bettungssande gelagert. Die Baugruben können in Abhängigkeit des Tankdurchmessers bis zu 4 m tief sein und werden nach Einbau der Tanks häufig auch mit Bettungssanden wiederverfüllt. Bettungssande sind üblicherweise reine Quarzsande, welche im Normalfall sehr geringe Radiumgehalte und gute Gaspermeabilitäten und Diffusionskoeffizienten aufweisen. Das hat zumeist eine signifikante Auswirkung auf das Radontiefenprofil im direkten Umfeld der Tankbehälter.

Des weiteren sind Tankstellengrundstücke häufig flächendeckend versiegelt, was einen Radonstau unterhalb der Versiegelung zur Folge hat. Für den Grad der Beeinflussung des Radontiefenprofils durch die Bodenversiegelung ist dabei die Art der Versiegelung entscheidend. Während beim Bau neuer Tankstellen zur Versiegelung der neuralgischen Bereiche mineralölresistenter Beton verwendet wird, weisen viele alte Tankstellen lediglich Kopfsteinpflaster auf, welches gegebenenfalls eine begrenzte Radonexhalation zuläßt. Bei der Interpretation der Ergebnisse einer Radonkartierung die im Bereich eines Tankstellengrundstückes durchgeführt wurde, sind die möglichen Auswirkungen der genannten baulichen Eingriffe in jedem Fall mit in Betracht zu ziehen.

Bei der Gründung von Wohnhäusern kann es ebenfalls zu einem großräumigen Bodenaustausch, einer Bodenverdichtung oder einer Wiederverfüllung alter Baugruben mit Fremdmaterial kommen. Besonders in städtischen Gebieten ändern sich daher die Bodenverhältnisse häufig sehr kleinräumig, wodurch sich auch das Radonpotential des Bodens sehr uneinheitlich zeigt. Im Umfeld alter Industriestandorte kann der natürliche Bodenaufbau zudem stark durch alte Bombentrichter gestört sein, was sich gegebenenfalls auch auf die Radonkonzentration im Oberboden niederschlagen kann.

Generell ist festzustellen, daß es aufgrund des in urban überprägten Landschaften zumeist sehr uneinheitlichen und stark anthropogen veränderten Bodengefüges häufig schwer ist, festgestellte Radonanomalien einer konkreten Ursache zuzuordnen oder für die gewählte Meßtiefe einen repräsentativen geogenen Radon-Hintergrundwert festzulegen.

2.6.3 Der Einfluß von NAPL-Kontaminationen

Die Beeinflussung des Radontiefenprofils durch Non-Aqueous Phase-Liquids ist die Grundlage der in dieser Arbeit vorgestellten Detektionsmethode zur Lokalisierung von NAPL-Kontaminationen des Untergrundes. In den folgenden Kapiteln wird zunächst der theoretische Hintergrund der Beeinflussung der Radonkonzentration der Bodenluft durch NAPLs diskutiert. Nachfolgend soll der von verschiedenen Autoren beschriebene erfolgreiche Einsatz des im Grundwasser natürlich vorhandenen Radons als Tracer bei der Detektion von NAPL-Kontaminationen in Aquiferen angesprochen werden. Als dritter Punkt werden die wichtigsten bis dato in der Literatur beschriebenen Versuche, die Radonkonzentration der Bodenluft als Indikator für NAPL-Kontaminationen zu nutzen, kritisch diskutiert.

2.6.3.1 Theoretischer Hintergrund

Im Gegensatz zu der verhältnismäßig schlechten Löslichkeit des Radons in Wasser zeigt Radon, wie in Kapitel 2.1.4 gezeigt, in NAPLs sehr gute Löslichkeiten. Durch Clever et al. (1979) wurde eine große Anzahl experimentell ermittelter Daten verschiedener Autoren zur Radonlöslichkeit in den unterschiedlichsten Flüssigphasen zusammengestellt und kritisch besprochen. Für Wasser wird in dieser sehr umfangreichen Datensammlung bei Zimmertemperatur ein Verteilungskoeffizient von etwa $K_{W/BL} = 0,26$ angegeben. Demgegenüber werden für NAPLs im selben Temperaturbereich Verteilungskoeffizienten genannt, die zwischen $K_{NAPL/BL} = 10$ und $K_{NAPL/BL} = 20$ liegen. Einige beispielhafte Verteilungskoeffizienten reiner NAPLs sind zusammen mit dem Verteilungskoeffizient des Wassers in der folgenden Tab. 2-6. 1 zusammengestellt. Für relevante NAPL-Gemische wie Benzin, Diesel oder Kerosin liegen in Clever et al. (1979) keine Daten vor. Der in Tab. 2-6. 1 angegebene Wert für Diesel wurde durch Hunkeler et al. (1997 b) publiziert. Die aufgeführten Daten bestätigen die in Kapitel 2.1.4 besprochene Eigenschaft des Radons, sich gern in NAPLs zu akkumulieren und gleichzeitig dem mit der jeweiligen NAPL in Kontakt stehenden Bodengas bzw. Grundwasser entzogen zu werden.

Tab. 2-6. 1: Verteilungskoeffizienten für Radon zwischen beispielhaften NAPLs und Bodenluft ($K_{NAPL/BL}$) und zwischen Wasser und Bodenluft ($K_{W/BL}$) nach Clever et al. (1979) (*: mit dort angeführter genauer Quellenangabe) und nach Hunkeler et al. (1997 b).

NAPL	$K_{NAPL/BL}$ bzw. $K_{W/BL}$	Temperatur T [°C]	Quelle
Benzol	12,82	18	Ramstedt (1911)*
Toluol	11,79	20	Hofmann (1905)*
Xylol	15,10	20	Lurie (1910)*
Erdöl	9,01	20	Lurie (1910)*
Diesel	13,20	12	Hunkeler et al. (1997)
Wasser	0,33	12	Battino (1978)*
Wasser	0,26	20	Szeparowicz (1920)*

Das Verhalten des Radons im Porenraum eines Bodens in Gegenwart einer NAPL-Kontamination soll im folgenden zunächst für den grundwassergesättigten Aquifer besprochen werden. Im grundwassergesättigten Aquifer befindet sich, im Gegensatz zum wasserungesättigten Boden, keine Gasphase im Porenraum, was die Betrachtung der Wechselwirkungen vereinfacht.

2.6.3.1.1 Der Einfluß von NAPLs auf die Radonkonzentration des Grundwassers

Bei den im folgenden vorgestellten Überlegungen wird der Aquifer als stationäres System betrachtet, das heißt das Strömen des Grundwassers wird vernachlässigt ($v = 0$). Zudem wird die Diffusion des Radons im Porenraum nicht in die Überlegungen einbezogen ($D = 0$), da die Diffusionslänge des Radons in Wasser mit etwa 2 cm vernachlässigbar gering ist (Kapitel 2.2.3.2). Durch Schaefer et al. (1998) wurde ein ähnliches Diffusionsverhalten des Radons in NAPLs beschrieben. Des weiteren wird von einem Verteilungsgleichgewicht für Radon zwischen der jeweiligen NAPL und dem Grundwasser ausgegangen. Da die Kinetik der Einstellung des Radon-Verteilungsgleichgewichts zwischen NAPLs und Grundwasser im Falle normaler Stömungsgeschwindigkeiten des Grundwassers nicht relevant ist, kann diese Vereinfachung als zulässig angesehen werden. Weiterhin wird bei den folgenden Überlegungen vorausgesetzt, daß der Verteilungskoeffizient $K_{NAPL/W}$ unabhängig vom Volumenanteil der NAPLs am Porenraum S_{NAPL} ist. Von Schulz (2000) wurde experimentell bestätigt, daß auch der Emanationskoeffizient der Bodenmatrix ε unabhängig von $K_{NAPL/W}$ ist.

In einem grundwassergesättigten NAPL-kontaminierten Aquifer wird der Porenraum vollständig durch Wasser und die jeweilige NAPL eingenommen ($S_W + S_{NAPL} = 1$). Der Verteilungskoeffizient für Radon zwischen der NAPL und dem Grundwasser wird analog GL 2-1. 4 über

$$K_{NAPL/W} = \frac{C_{Rn}^{NAPL}}{C_{Rn}^W} \quad \text{GL 2-6. 1}$$

ausgedrückt. Er nimmt im Verteilungsgleichgewicht im allgemeinen Werte zwischen 40 und 60 an. Die Radonkonzentration im gesamten Wasser / NAPL - gefüllten Porenraum, das heißt die nach den jeweiligen Volumenanteilen gewichtete mittlere Radonkonzentration aus C_{Rn}^W und C_{Rn}^{NAPL} kann durch

$$C_{Rn}^{W+NAPL} = C_{Rn}^W S_W + C_{Rn}^{NAPL} S_{NAPL} \quad \text{GL 2-6. 2}$$

beschrieben werden. Die Einstellung des Radongleichgewichts zwischen der Radonnachlieferung aus der mineralischen Matrix (Emanation) und dem Radonzerfall im Porenraum wird bei Annahme von $v = 0$ und $D = 0$ analog zu Gleichung GL 2-4. 8 unter Einbeziehung von GL 2-6. 2 durch die Evolutionsgleichung

$$\frac{\partial (C_{Rn}^W S_W + C_{Rn}^{NAPL} S_{NAPL})}{\partial t} = -\lambda (C_{Rn}^W S_W + C_{Rn}^{NAPL} S_{NAPL}) + \frac{\lambda \varepsilon A_{Ra} \rho_d}{n} \quad \text{GL 2-6. 3}$$

beschrieben. Im Falle eines Verteilungsgleichgewichts des Radons zwischen der NAPL und dem Grundwasser kann C_{Rn}^{NAPL} in GL 2-6. 3 durch $K_{NAPL/W} C_{Rn}^W$ ersetzt werden.

Nach Isolierung der Radonkonzentration des Grundwassers C_{Rn}^W wird GL 2-6. 3 mit $S_{NAPL} = 1 - S_W$ zu

$$\frac{\partial C_{Rn}^W}{\partial t} = -\lambda C_{Rn}^W + \frac{\lambda \varepsilon A_{Ra} \rho_d}{n (K_{NAPL/W} - K_{NAPL/W} S_W + S_W)} \quad \text{GL 2-6. 4}$$

Damit kann die Radonkonzentration im Grundwasser nach Einstellung sowohl des Radonverteilungsgleichgewichts zwischen der NAPL und dem Grundwasser als auch des Gleichgewichts zwischen der Radonnachlieferung aus der mineralischen Matrix und dem Radonzerfall im Porenraum ($\partial C_{Rn}^W / \partial t = 0$) durch

$$C_{Rn}^W = \frac{\varepsilon A_{Ra} \rho_d}{n (K_{NAPL/W} - K_{NAPL/W} S_W + S_W)} \quad \text{GL 2-6. 5}$$

beschrieben werden. Über

$$\frac{C_{Rn}^W (S_W = 1)}{C_{Rn}^W (S_W < 1)} = K_{NAPL/W} - K_{NAPL/W} S_W + S_W \quad \text{GL 2-6. 6}$$

wird ein Vergleich der Radonkonzentration des Grundwassers in einem unkontaminierten Aquifer mit der des Grundwassers in einem NAPL-kontaminierten Aquifer bei sonst gleichen Bedingungen möglich. Im beispielhaften Fall eines 5%-igen NAPL-Anteils am Porenraum eines grundwassergesättigten Aquifers ($S_W = 0,95$) ergibt sich bei $K_{NAPL/W} = 40$ nach GL 2-6. 6 ein Quotient von 2,95. Das heißt, daß ohne Vorhandensein der 5%-igen NAPL-Verunreinigung, im Grundwasser eine fast drei mal höhere Radonkonzentration erreicht wird als bei Vorhandensein der 5%-igen NAPL-Sättigung des Porenraumes. Die durch GL 2-6. 5 beschriebene Abhängigkeit zeigt die Proportionalität zwischen S_W und C_{Rn}^W . Je höher der NAPL-Zusatz, d.h. je kleiner S_W ist, um so mehr Radon wird in der NAPL akkumuliert und somit dem Grundwasser entzogen und um so kleiner wird C_{Rn}^W bzw. um so größer wird der durch GL 2-6. 6 beschriebene Quotient.

2.6.3.1.2 Der Einfluß von NAPLs auf die Radonkonzentration der Bodenluft

In einem NAPL-kontaminierten wasserungesättigten Boden tritt neben den NAPLs und dem Bodenwasser als dritte Phase die Bodenluft mit der Radonkonzentration C_{Rn}^{BL} auf. Die Einstellung des Radongleichgewichts zwischen der Radonnachlieferung aus der mineralischen Matrix und dem Radonzerfall im Porenraum wird bei Vernachlässigung jeglicher Fluidmigration, das heißt bei Annahme von $v = 0$ und $D = 0$, analog zu GL 2-6. 3 durch die Evolutionsgleichung

$$\frac{\partial (C_{Rn}^{BL} (1 - S_F) + C_{Rn}^W S_W + C_{Rn}^{NAPL} S_{NAPL})}{\partial t} = -\lambda (C_{Rn}^{BL} (1 - S_F) + C_{Rn}^W S_W + C_{Rn}^{NAPL} S_{NAPL}) + \frac{\lambda \varepsilon A_{Ra} \rho_d}{n} \quad \text{GL 2-6. 7}$$

beschrieben. S_F ist dabei mit $S_F = S_{NAPL} + S_W$ die Gesamtsättigung des Porenraums mit Flüssigphasen. Im Falle eines Radonverteilungsgleichgewichts zwischen den drei Phasen im Porenraum, d.h. nach

Erreichen der drei Verteilungskoeffizienten $K_{W/BL}$, $K_{NAPL/W}$ und $K_{NAPL/BL}$ ergibt sich aus GL 2-6. 7 entsprechend GL 2-6. 4 für die Radonkonzentration in der Gasphase

$$\frac{\partial C_{Rn}^{BL}}{\partial t} = -\lambda C_{Rn}^{BL} + \frac{\lambda \varepsilon A_{Ra} \rho_d}{n(1 - S_F + K_{W/BL} S_W + K_{NAPL/BL} S_{NAPL})} \quad \text{GL 2-6. 8}$$

Mit Einführung des NAPL-Anteils an der flüssigen Phase $X_{NAPL} = S_{NAPL}/S_F$ kann die Radonkonzentration in der Bodenluft nach Einstellung sowohl der Radonverteilungsgleichgewichte zwischen der NAPL, dem Porenwasser und der Bodenluft als auch des Gleichgewichts zwischen Emanation und Radonzerfall im Porenraum ($\partial C_{Rn}^{BL}/\partial t = 0$) analog zu GL 2-6. 5 durch

$$C_{Rn}^{BL} = \frac{\varepsilon A_{Ra} \rho_d}{n(1 - S_F + K_{W/BL} S_F(1 - X_{NAPL}) + K_{NAPL/BL} X_{NAPL} S_F)} \quad \text{GL 2-6. 9}$$

beschrieben werden. Die theoretische Abhängigkeit der Radonkonzentration in der Bodenluft von X_{NAPL} und S_F bei $K_{NAPL/W} = 40$ und $K_{W/BL} = 0,25$ zeigt Abb. 2-6. 2 (nach GL 2-6. 9). In der Abbildung ist die Radonkonzentration der Bodenluft prozentual dargestellt. Der Wert $C_{Rn}^{BL} = 100\%$ steht für die Radonkonzentration der Bodenluft im lufttrockenen Boden. Zur transparenteren Darstellung von Abb. 2-6. 2 sind in Abb. 2-6. 1 drei Schnitte durch die Funktionsfläche aus Abb. 2-6. 2 dargestellt.

Zum einen ist in den Abbildungen Abb. 2-6. 1 und Abb. 2-6. 2 zu erkennen, daß ohne NAPL-Zusatz ($X_{NAPL} = 0$) mit wachsendem Anteil an Flüssigphase im Porenraum (S_F) die Radonkonzentration der Bodenluft C_{Rn}^{BL} aufgrund der Abnahme des bodenluftgefüllten Porenanteils $n_{S_{BL}}$ zunimmt. Dieser Effekt wurde in Kapitel 2.3.4.2. diskutiert. Ab einem gewissen NAPL-Anteil an der Flüssigphase (X_{NAPL} etwa größer 0,07) liegt für C_{Rn}^{BL} hingegen immer ein geringerer Wert vor, als er im lufttrockenen Boden gegeben war, da die Akkumulation des Radons in der NAPL und die damit verbundene Verringerung der Radonkonzentration in der Bodenluft den Effekt der Abnahme des bodenluftgefüllten Porenanteils völlig überdeckt.

Analog zu GL 2-6. 6 wird mit

$$\frac{C_{Rn}^{BL}(X_{NAPL} = 0)}{C_{Rn}^{BL}(X_{NAPL} > 0)} = \frac{1 - S_F + K_{W/BL} S_F(1 - X_{NAPL}) + K_{NAPL/BL} X_{NAPL} S_F}{1 - S_F + K_{W/BL} S_F} \quad \text{GL 2-6. 10}$$

wiederum ein Vergleich der Radonkonzentration der Bodenluft in einem unkontaminierten Boden mit der der Bodenluft in einem kontaminierten Boden bei sonst gleichen Bedingungen möglich. Aus der Beziehung GL 2-6. 10 ergibt sich beispielsweise bei einer Flüssigphasensättigung des Porenraumes von $S_F = 0,5$ und einem NAPL-Anteil an der Flüssigphase von wiederum $X_{NAPL} = 0,5$, sowie bei den Verteilungskoeffizienten von $K_{NAPL/W} = 40$ und $K_{W/BL} = 0,25$ eine Verhältniszahl von 4,9. Das heißt, daß im Vergleich mit einem Boden mit einem 50 %-igen NAPL-Zusatz in einer Flüssigphase, welche ihrerseits 50 % des Porenvolumens einnimmt, ohne NAPL-Verunreinigung in der Bodenluft theoretisch eine fast fünffache Radonkonzentration erreicht wird.

Der Rückgang der Radonkonzentration innerhalb eines NAPL-kontaminierten Bodenvolumens hat auch einen Rückgang der Radonkonzentration der Bodenluft in dem das kontaminierte Bodenvolumen

umgebenden unkontaminierten Boden zur Folge. Bis in welche Entfernung dieser Einfluß der NAPL-Kontamination im unkontaminierten Boden signifikant ist, hängt von der bodenspezifischen Migrationslänge des Radons M und damit von der Gaspermeabilität k und dem Diffusionskoeffizienten D des Bodens bzw. einer gegebenenfalls vorliegenden Bodengasströmung ($v \neq 0$) ab. Dabei ist zu bemerken, daß durch die NAPL-Kontamination eines Bodens sowohl der Diffusionskoeffizient als auch die Gaspermeabilität im kontaminierten Bodenvolumen verringert werden.

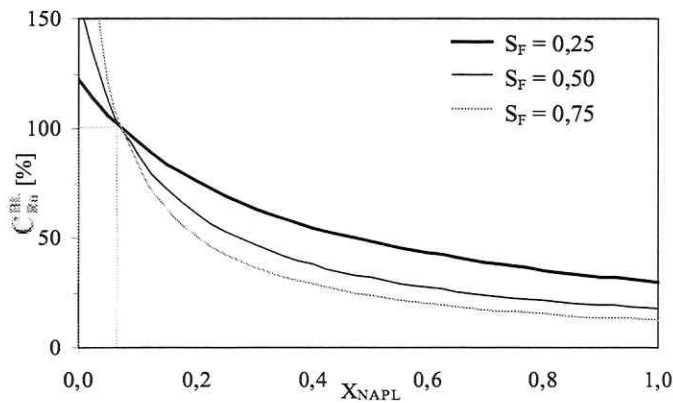


Abb. 2-6. 1: Abhängigkeit der Radonkonzentration der Bodenluft von X_{NAPL} für drei verschiedene Werte von S_F bei $K_{NAPL/W} = 40$, $K_{W/G} = 0,25$ und $n = 0,4$ (nach GL 2-6. 9).

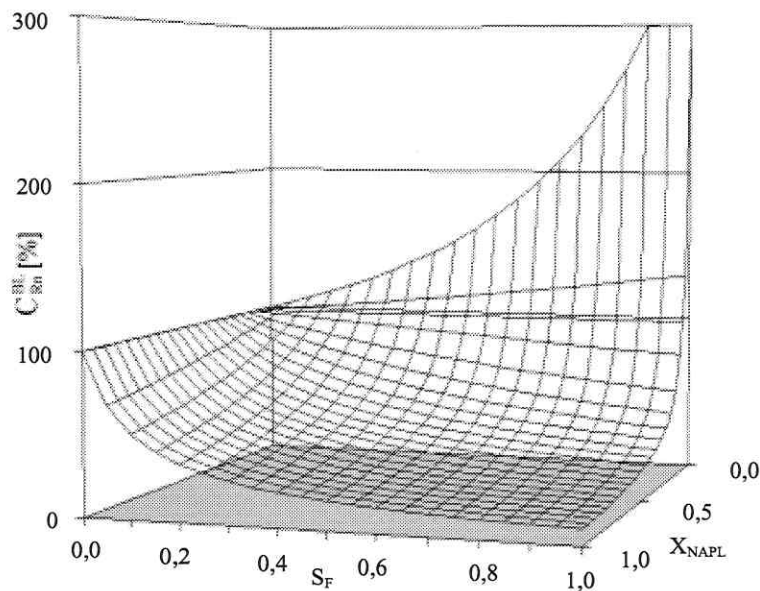


Abb. 2-6. 2: Abhängigkeit der Radonkonzentration der Bodenluft von S_F und X_{NAPL} bei $K_{NAPL/W} = 40$, $K_{W/G} = 0,25$ und $n = 0,4$ (aus Schubert et al., 2000 nach GL 2-6. 9).

2.6.3.2 Radon als Tracer bei der Detektion von NAPL-Kontaminationen in Aquiferen

Die hohe Affinität des Radons zu NAPLs ermöglicht dessen Nutzung als natürlichen Tracer bei der Erkundung von Aquiferverunreinigungen durch immobile NAPLs (dense-NAPLs oder DNAPLs). Im Falle einer Aquiferverunreinigungen durch DNAPLs führt die Akkumulation des Radons in den DNAPLs zu einer Verringerung der natürlichen Radonkonzentration des Grundwassers abstromig zum kontaminierten Aquifervolumen (Kap. 2.6.3.1.1). Aufgrund des konservativen Verhaltens des Radons im unkontaminierten Aquifer, läßt diese Radon-Abreicherung im Grundwasser bei genauer Kenntnis der Grundwasserfließrichtung eine Lokalisierung der NAPL-Verunreinigung zu.

Der Grad der Radon-Abreicherung gegenüber dem natürlichen Radon-Hintergrundwert des Grundwassers ist durch den NAPL-spezifischen Verteilungskoeffizienten $K_{NAPL/W}$ und durch die Menge der durchströmten NAPLs bestimmt. Da ein größeres NAPL-Volumen im Aquifer auch eine stärkere Verringerung der Radonkonzentration im Grundwasser abstromig zur Kontamination zur Folge hat, ist neben der Lokalisierung der Kontamination auch eine orientierende quantitative Einschätzung der NAPL-Kontamination im Aquifer möglich. Bei Durchführung von zeitintegrierenden Langzeitmessungen an ortsfesten Grundwassermeßstellen eignet sich die Methode prinzipiell auch für das Monitoring von Grundwassersanierungsmaßnahmen.

Limitierende Faktoren dieser Detektionsmethode sind zum einen, daß ein mehr oder weniger homogen aufgebauter Grundwasserleiter Voraussetzung ist und zum anderen, daß sich der natürliche Radon-Hintergrundwert des Grundwassers abstromig zur Kontamination wieder aufbaut und somit keine Ortung der NAPLs mehr zuläßt. In welcher Entfernung der natürliche Radon-Hintergrundwert des Grundwassers wieder erreicht ist, hängt von der jeweiligen Grundwasserfließgeschwindigkeit ab.

Umfangreiche Arbeiten zur Detektion von NAPL-Kontaminationen in Aquiferen mit Hilfe der Radonkonzentration des Grundwassers als natürlichen "Partitioning Tracer" wurden von Semprini et al. (2000), Semprini et al. (1998), Hunkeler et al. (1997a und b), Hoehn et al. (1996), Semprini et al. (1995), Tasker (1995), Hopkins (1995) und Hoehn et al. (1992) vorgelegt und sollen hier nicht näher diskutiert werden. Ein ähnliches Verhalten wie das des Radons in Gegenwart von DNAPLs wurde durch Wilson & Mackay (1995) für Schwefelhexafluorid beschrieben.

2.6.3.3 Radon als Tracer bei der Detektion von NAPL-Kontaminationen in Böden

Vergleichbar mit der oben beschriebenen Nutzung des im Grundwasser gelösten Radons als Partitioning Tracer bei der Detektion von DNAPL-Kontaminationen in Aquiferen, gibt es auch seit einem knappen Jahrzehnt Bestrebungen, die Radonkonzentration der Bodenluft als Indikator für NAPL-Kontaminationen in Böden zu nutzen. Dabei wurde in fast allen Fällen von den im Kapitel 2.1.5.5 beschriebenen, aus der Kohlenwasserstoffprospektion entlehnten Erfahrungen bzw. Modellen ausgegangen. Das heißt, es wurde ein relatives *Maximum* der Radonkonzentration der Bodenluft als Indikator einer NAPL-Kontamination erwartet. Wie bereits in Kapitel 2.1.5.5 besprochen wurde, ist aber das Prinzip der Detektion von Kohlenwasserstofflagerstätten mit Hilfe von Radonmaxima keinesfalls unmodifiziert auf die Nutzung von Radonkartierungen zur Lokalisierung von NAPL-Kontaminationen des Untergrundes übertragbar. Im folgenden sollen die wichtigsten Arbeiten zur Nutzung der Radonkonzentration der Bodenluft als Tracer bei der Detektion von NAPL-Kontaminationen im grundwasserungesättigten Boden vorgestellt und kritisch besprochen werden.

Ein erster großmaßstäblicher Versuch zur Beeinflussung des Radontiefenprofils durch NAPL-Kontaminationen in der grundwasserungesättigten Bodenzone wurde 1993 durch das Waterloo Centre

for Goundwater Research durchgeführt und von DeRyck et al. (1993) beschrieben. Das Experiment war Teil einer groß angelegten Testreihe zu Anwendung geophysikalischer Meßmethoden bei der Detektion von NAPL-Schadensfällen. Die Versuchsreihen wurden auf dem Gelände der Canadian Forces Base in Borden / Ontario in einem mit feuchtem Sand gefüllten Polyethylen-Behälter mit einem Durchmesser von 3,6 m und einer Höhe von 1,7 m durchgeführt. Im Zuge der Testreihen wurden über einen Zeitraum von 33 Tagen insgesamt 343 Liter Kerosin in fünf Einzelschritten so in die Bodensäule injiziert, daß sich ab etwa 1 m Tiefe eine Kerosinsättigung des Sandes aufbaute. Zur Untersuchung des Einflusses der injizierten NAPL auf die Radonkonzentration der Bodenluft erfolgte eine Bodenluftbeprobung an 13 verschiedenen Punkten aus 10 cm Tiefe jeweils unmittelbar vor und nach einer Injektion. Die 13 gemessenen Konzentrationen wurden nachfolgend zu jeweils einem Mittelwert zusammengefaßt. Die Auswertung der Meßwerte ergab eine Erhöhung des Thorongehalts der Bodenluft nach der ersten Injektion und ein nachfolgendes Verbleiben der Thoronkonzentration auf ihrem vergleichsweise hohen Niveau. Die Radonkonzentration der Bodenluft, der schon vor der ersten Injektion sehr gering war (niedriger geogener Hintergrundwert des verwendeten Sandes), verblieb während des gesamten Versuches auf seinem sehr niedrigen Niveau bzw. fiel nachfolgend zur ersten, dritten und vierten Injektion unter die Nachweisgrenze des Meßgerätes (Scintrex RDA 200). Eine schlüssige Interpretation der Meßwerte wurde durch DeRyck et al. (1993) nicht gegeben.

Aufbauend auf den von DeRyck et al. (1993) publizierten Daten und unter Einbeziehung der Überlegungen zur Anwendung des Radons bei der Kohlenwasserstoffprospektion wurde durch Lyons (1994) die Radonkartierung als eine "neue indirekte Methode zur Aufspürung von Kohlenwasserstoffkontaminationen" vorgestellt. Generell wurde von Lyons (1994) ausgesagt, daß Untergrundkontaminationen, sowohl durch leichtflüchtige als auch durch schwerflüchtige NAPLs mit Hilfe relativer *Maxima* der Radonkonzentration der Bodenluft, welche sich oberhalb der NAPL-Kontamination ausbilden, detektierbar sind. Als Ursache der Radonmaxima wurde ein größerer Diffusionskoeffizient für Radon in NAPLs im Vergleich zu Wasser genannt. Durch Schaefer et al. (1998) wurde hingegen für Radon ein ähnliches Diffusionsverhalten in NAPLs wie in Wasser beschrieben. Neben den oben angesprochenen Ergebnissen von DeRyck et al. (1993) wurden von Lyons (1994) keine weiteren Fallbeispiele zur Hinterlegung der von ihm postulierten These genannt.

Etwa 1993 kam es, trotz der eher unbefriedigenden Datenlage, auch zu ersten kommerziellen Anwendungen der Radonkartierung als Mittel zur Lokalisierung von NAPL-Kontaminationen. In einem diesbezüglichen Werbeprospekt (SCINTREX, 1993) wird das "Radon Prospecting" als erfolgreich angewandtes Verfahren zum Aufspüren von NAPL-Kontaminationen ausgewiesen. Ausgehend von der Nutzung des Radons bei der Kohlenwasserstoffprospektion werden dabei wiederum lokale *Radonmaxima* als Indikatoren für NAPL-Verunreinigungen im Untergrund verstanden. Der Zusammenhang zwischen lokalen Radonmaxima und NAPLs im Untergrund wird mit volatilen NAPLs erklärt, welche bei ihrem Aufstieg aus dem kontaminierten Bodenvolumen die aufwärtsgerichtete Radonmigration im Boden verstärken und somit erhöhte Radonkonzentrationen in der Oberflächennähe zur Folge haben. Im Widerspruch dazu wird gesagt, daß das Verfahren unabhängig von den Art der NAPLs anwendbar ist und auch bei schwerflüchtigen NAPLs eingesetzt werden kann.

In einem kritischen Artikel des Waterloo Centre for Goundwater Research bemerkt Schirmer (1994), daß, obwohl Radonkartierungen bereits von einigen Firmen zur Lokalisierung von NAPL-Kontaminationen angeboten werden, die von den Firmen beanspruchten, mit der Methode erzielten Erfolge aufgrund der nach wie vor herrschenden Unklarheit bezüglich des theoretischen Hintergrundes des Verfahrens anzuzweifeln sind.

Mit dem Ziel eines eindeutigen Nachweises der Erhöhung der Radonkonzentration der Bodenluft oberhalb einer NAPL-Kontamination und einer schlüssigen Erklärung dieses Effekts wurde 1995 durch das Waterloo Centre for Goundwater Research in Zusammenarbeit mit dem Institut National Polytechnique de Grenoble, aufbauend auf dem oben beschriebenen Feldexperiment in Borden / Ontario eine weitere Versuchsreihe durchgeführt (Gruffaz & Redman, 1995). Für die Versuche wurde sowohl der in Borden benutzte Sand als auch das in Borden genutzte Kerosin verwendet. Allerdings beschränkten sich die Versuche auf nur sehr geringe Volumina, was den nachteiligen Einfluß von Randeffekten verstärkte. Nachdem Gruffaz & Redman (1995) ursprünglich die Bestätigung und Erklärung von *Radonmaxima* oberhalb von NAPL-Kontaminationen zum Ziel hatten, formulieren die Autoren letztlich als wichtiges Ergebnis der Versuche, daß im Zuge der Experimente nach der Kerosininjektion keine Erhöhung der Thoron- und Radonaktivitäten, sondern vielmehr ein Konzentrationsrückgang beobachtet wurde.

Auch durch Klatt (1998) wurde kein Anstieg, sondern eher ein Rückgang der Radonkonzentration der Bodenluft nach der Injektion von einem Liter Öl bzw. einem Liter Benzin in ein Bodenvolumen beobachtet. Bei der Interpretation der Ergebnisse wurde jedoch keine Verbindung zwischen den NAPL-Injektionen und dem Rückgang der Radonkonzentration der Bodenluft hergestellt, da ein Anstieg der Radonkonzentration als Ergebnis der Injektion erwartet worden war. Zu vergleichbaren Ergebnissen kam Veltz (1999).

Erste Untersuchungen, die *Minima* der Radonkonzentration der Bodenluft als Indikatoren für NAPL-Kontaminationen des Untergrundes zum Gegenstand hatten, wurden Ende der 1990er Jahre durch die Firmen Geophysik GGD – Gesellschaft für Geowissenschaftliche Dienste Leipzig mbH und IAF – Radioökologie Dresden GmbH in Zusammenarbeit mit dem UFZ Umweltforschungszentrum Leipzig – Halle GmbH durchgeführt. Nachdem auch hier anfänglich von einer Erhöhung der Radonkonzentration der Bodenluft im Falle einer NAPL-Kontamination des Untergrundes ausgegangen worden war, ergaben theoretische Betrachtungen, daß die Idee des Radon-Maximums im Falle von NAPL-kontaminierten Böden nicht anwendbar ist, sondern vielmehr *Radonminima* erwartet werden müssen (Schubert, 1999 c). Experimentelle Arbeiten bestätigten diese Vermutung. Zudem ergaben verschiedene Feldversuche, daß bei Radonkartierungen mit dem Ziel einer NAPL-Detektion besonders die Art und Weise der Probenahme über den Erfolg der Kartierung entscheidet.

Die besprochenen Arbeiten zeigen, daß die Untersuchungen zur Nutzung des Radons als Indikator für NAPL-Kontaminationen im Boden zum Teil stark von den Überlegungen zur Nutzung der Radonkartierung bei der Kohlenwasserstoffprospektion geprägt sind, obwohl die dort beobachteten Radonanomalien völlig andere Ursachen haben. Bei der Kohlenwasserstoffprospektion mit Hilfe der Kartierung von Radon oder Radonfolgeprodukten, spielt die gute Löslichkeit des Radons in NAPLs praktisch keine Rolle (Morse, 2000). Das Festhalten an der Idee des Radon-Maximums als NAPL-Indikator auch bei NAPL-Kontaminationen des Untergrundes ist möglicherweise ein wichtiger Grund dafür, daß der Radonkartierung als Methode zur Detektion von NAPL-Kontaminationen bis dato noch kein Durchbruch gelungen ist.

Die in den folgenden Kapiteln diskutierten Ergebnisse der durchgeführten experimentellen Arbeiten sollen die in den vorangegangenen Kapiteln vorgestellten theoretischen Überlegungen verifizieren. Zudem soll eine leicht handhabbare und effektive Feldtechnologie zur Durchführung von Radonkartierungen vorgestellt werden.

3 Experimentelle Arbeiten

Die durchgeführten experimentellen Arbeiten können in die drei Schwerpunkte

1. Experimente zur Bestimmung von Radon-Verteilungskoeffizienten umweltrelevanter NAPLs,
2. Radon-Migrationsexperimente in definierten Bodensäulen und
3. Felduntersuchungen an real kontaminierten Standorten

unterteilt werden. Während die Experimente zur Bestimmung der Radon-Verteilungskoeffizienten im Labormaßstab möglich waren, kam bei den Migrationsexperimenten der eigens dafür entwickelte größerdimensionierte „Gasmigrationssimulator“ (GAMS) zum Einsatz. Mit Hilfe der Laborexperimente und der Experimente am GAMS wurde die Affinität des Radons zu NAPLs bzw. die Abhängigkeit des Radongehaltes der Bodenluft von meteorologischen Einflüssen und von NAPL-Kontaminationen des Bodens untersucht.

Die Felduntersuchungen hatten das Ziel der praktischen Bestätigung der in Kapitel 1 vorgestellten Arbeitsthese und der Entwicklung einer felddauglichen, effektiven Meßtechnologie. Die entwickelte Feldechnologie zur Durchführung von Radonkartierungen kam an drei realen NAPL-Schadensfällen zum Einsatz. Die dabei ermittelten NAPL-Verteilungskarten wurden der jeweiligen, mit herkömmlichen Untersuchungsmethoden lokalisierten NAPL-Verteilung gegenübergestellt. Die experimentellen Arbeiten und ihre Ergebnisse werden im folgenden Kapitel vorgestellt.

3.1 Laborexperimente zur Bestimmung von Radon-Verteilungskoeffizienten

3.1.1 Problemstellung

Der NAPL-spezifische Radon-Verteilungskoeffizient zwischen einer NAPL und der Bodenluft ($K_{NAPL/BL}$) ist eine maßgebliche Größe dafür, wie stark im Falle einer Untergrundverunreinigung durch NAPLs der Bodenluft Radon entzogen und in der jeweiligen NAPL angereichert wird. Während für zahlreiche reine NAPLs Verteilungskoeffizienten für Radon vorliegen (Clever et al., 1979), sind für NAPL-Gemische wie Benzin, Diesel oder Kerosin (Petroleum) kaum Werte für $K_{NAPL/BL}$ publiziert. Da aber bei realen NAPL-Schadensfällen (Tankstellen, Tanklager) besonders die genannten NAPL-Gemische häufig eine große Rolle spielen, war es das Ziel der hier vorgestellten Laborexperimente, die Verteilungskoeffizienten dieser NAPL-Gemische mit hinreichender Genauigkeit zu bestimmen.

Bei den drei genannten NAPL-Gemischen handelt es sich um LNAPLs (leichte NAPLs oder auch light-NAPLs), d.h. um Stoffgemische, welche im Gegensatz zu den DNAPLs (dichte NAPLs oder auch dense-NAPLs), eine Dichte von $< 1 \text{ g/cm}^3$ aufweisen und somit im Falle der Kontamination eines Aquifers dem Grundwasser aufschwimmen. Während Benzin einen großen Anteil an leichtflüchtigen Komponenten aufweist (BTEX, kurzkettige Aliphate), setzen sich Diesel und Petroleum bevorzugt aus schwererflüchtigen Kohlenwasserstoffverbindungen zusammen. Die typischen Zusammensetzungen der genannten NAPL-Gemische sind in der folgenden Tab. 3-1. 1 zusammengestellt. Die aufgeführten Zusammensetzungen der drei beispielhaften NAPL-Gemische unterliegen zum Teil starken Schwankungen. Diese sind von der jeweiligen Rohölzusammensetzung und der Raffination des Rohöls abhängig.

Tab. 3-1. 1: Typische Zusammensetzungen der untersuchten NAPLs (ARAL, 2000; Merck KGaA, 2000).

	Normalbenzin [%]	Diesel [%]	Petroleum [%]
Summe Alkane	50 bis 65	40 bis 70	Hauptbestandteil
Alkane C ₁ – C ₄	ca. 4,5 (erst ab C ₃)	gering	-
Alkane C ₅ – C ₁₀	ca. 55	gering	gering (erst ab C ₉)
Alkane C ₁₁ – C ₂₅	gering	40 bis 70	Hauptbestandteil
Cycloalkane (monozyklisch)	gering	10 bis 20	Hauptbestandteil
Cycloalkane (dizyklisch)	gering	max. 5	max. 10
Summe Alkene	gering bis 21	gering bis 5	Hauptbestandteil
Alkene C ₁ – C ₄	ca. 2,5 (erst ab C ₄)	gering	-
Alkene C ₅ – C ₁₀	ca. 10	gering	gering (erst ab C ₁₀)
Alkene C ₁₁ – C ₂₅	gering	max. 5	Hauptbestandteil
Summe Aromaten	25 bis 42	10 bis 30	< 1
Summe Monoaromaten	Hauptbestandteil	15 bis 28	gering
BTEX	ca. 15	max. 0,2	gering
Summe Diaromaten	gering	4 bis 8	gering
Summe Tri- & Polyaromaten	gering	max. 2	gering

3.1.2 Experimentelle Herangehensweise

Zur Bestimmung von $K_{NAPL/BL}$ wurde zunächst der Radon-Verteilungskoeffizient zwischen der jeweiligen NAPL und Wasser ($K_{NAPL/W}$) ermittelt. Im Vergleich zu einer direkten Bestimmung von $K_{NAPL/BL}$ ist eine Bestimmung des Verteilungskoeffizienten $K_{NAPL/W}$ und dessen nachfolgende Umrechnung in $K_{NAPL/BL}$ einfacher durchführbar. Die Bestimmung von $K_{NAPL/W}$ wurde mit Hilfe von sogenannten Mischungs- und Durchströmungsexperimenten durchgeführt. Während bei den Mischungsexperimenten die zu untersuchende NAPL im direkten Kontakt mit radonhaltigem Wasser stand (siehe Kap. 3.1.2.1), wurde bei den Durchströmungsexperimenten ein radonhaltiger Luftstrom parallel durch die jeweilige NAPL und das Wasser geleitet (siehe Kap. 3.1.2.2). Die Mischungs- und Durchströmungsexperimente wurden bei ca. 20°C durchgeführt. Im Falle beider Versuchsreihen wurden nach Einstellung des Radonverteilungsgleichgewichts zwischen der NAPL und dem Wasser die jeweiligen Radonkonzentrationen C_{Rn}^{NAPL} und C_{Rn}^W gammaspektrometrisch bestimmt und über

$$K_{NAPL/W} = \frac{C_{Rn}^{NAPL}}{C_{Rn}^W}$$

GL 3-1. 1

der entsprechende NAPL-spezifische Verteilungskoeffizient $K_{NAPL/W}$ ermittelt. Da der Radon-Verteilungskoeffizient zwischen Wasser und Luft ($K_{W/BL}$) umfassend untersucht und für ein weites Temperaturspektrum dokumentiert ist (Clever et al., 1979), konnte der jeweils zugehörige Verteilungskoeffizient $K_{NAPL/BL}$ nachfolgend über

$$K_{NAPL/BL} = K_{W/BL} K_{NAPL/W}$$

GL 3-1. 2

ermittelt werden. Für den Radon-Verteilungskoeffizient zwischen Wasser und Luft wurde dabei von einem Wert von $K_{W/BL} = 0,26$ ausgegangen, welcher bei 20°C Gültigkeit hat. Die Mischungs- und Durchströmungsexperimente werden in den beiden folgenden Kapiteln detailliert beschrieben.

3.1.2.1 Durchführung der Mischungsexperimente

Die Mischungsexperimente wurden am UFZ Umweltforschungszentrum Leipzig – Halle GmbH und im Labor der IAF Radioökologie Dresden GmbH mit freundlicher Unterstützung der IAF GmbH durchgeführt. Als radonhaltige wäßrige Phase wurde Grundwasser vom Heilbad Bad Schmiedeberg bei Leipzig verwendet, welches am Quellaustritt eine konstante Radon-Aktivitätskonzentration von ca. 600 Bq/l aufweist (Kurfürstenquelle).

Zur Versuchsdurchführung wurden jeweils 800 ml NAPL und 800 ml radonhaltiges Wasser in ein 1600 ml fassendes, radondichtes Glasgefäß gegeben und dieses blasenfrei verschlossen. Um eine möglichst schnelle Einstellung des Radon-Verteilungsgleichgewichts zwischen den beiden Flüssigphasen zu erreichen, wurden die Phasen mit Hilfe eines Magnetrührers bewegt. Zur Gewährleistung der Einstellung des Radon-Verteilungsgleichgewichts zwischen den Phasen wurde dabei eine Mischungszeit von drei Stunden eingehalten.

Zur möglichst vollständigen Entmischung der Phasen nach Einstellung des Radon-Verteilungsgleichgewichts wurde das NAPL / Wasser-Gemisch nachfolgend für eine Stunde ruhiggestellt. Diese Entmischungszeit führte zu einer weitestgehenden Trennung der nichtwäßrigen von der wäßrigen Phase. Eine restlose Entmischung wurde allerdings auch bei längeren Entmischungszeiten nicht erreicht. Der Verbleib von NAPL-Spuren in der wäßrigen Phase konnte organoleptisch festgestellt werden und wurde bei der Interpretation der Meßergebnisse berücksichtigt.

Nach der Entmischung der beiden Phasen wurde das Mischgefäß geöffnet und die NAPL bzw. das Wasser durch Absaugen in radondichte Glas-Marinelli-Becher überführt (Anhang G, Bild 1). Bei der Überführung der Phasen in die Marinelli-Becher wurde ein Luftkontakt weitestgehend vermieden, um die Entgasung des Radons aus den Flüssigphasen zu minimieren.

Nach der Separierung der Phasen in die Marinelli-Becher wurde eine weitere Ruhephase von drei Stunden eingehalten, um sowohl im Wasser als auch in der NAPL ein Gleichgewicht zwischen dem gelösten Radon und seinen kurzlebigen, gammastrahlenden Folgeprodukten ^{214}Pb ($T_{1/2} = 26,8 \text{ min}$) und ^{214}Bi ($T_{1/2} = 19,9 \text{ min}$) zu gewährleisten. Experimente hatten ergeben, daß die genannten Folgeprodukte nicht das gleiche NAPL / Wasser-Verhaltensverhalten wie das Radon aufweisen und unmittelbar nach der Separierung der Phasen im Wasser angereichert auftreten. Da die Aktivitätskonzentration des Radons gammaspektrometrisch über die Aktivitätskonzentrationen des ^{214}Pb und ^{214}Bi bestimmt wird, war das Aktivitätsgleichgewicht zwischen Radon und diesen Folgeprodukten aber notwendig um C_{Rn}^{NAPL} und C_{Rn}^W exakt messen zu können. Nachfolgend zur Bestimmung der Radon-Aktivitätskonzentrationen wurden $K_{NAPL/W}$ bzw. $K_{NAPL/BL}$ nach GL 3-1. 1 bzw. GL 3-1. 2 ermittelt.

3.1.2.2 Durchführung der Durchströmungsexperimente

Die Durchströmungsexperimente wurden am UFZ Umweltforschungszentrum Leipzig – Halle GmbH durchgeführt. Als Radon-Quellmaterial zur Erzeugung des radonhaltigen Luftstroms dienten ca. 15 kg mittel- bis grobsandige Uran-Tailings mit einer Radium-Aktivitätskonzentration von 2,7 Bq/g. Das Tailingsmaterial ist detailliert in Kapitel 3.2.2.1 beschrieben. Der Versuchsaufbau zur Durchführung der Durchströmungsexperimente ist schematisch in Abb. 3-1. 1 dargestellt (Anhang G, Bild 2).

Zur Durchführung der Durchströmungsexperimente wurden Leitungswasser und die jeweilige NAPL für mindestens 19 Tage im geschlossenen Kreislauf parallel und mit gleichem Luftdurchsatz mit radonhaltiger Luft durchströmt. Diese Zeitspanne entspricht etwa fünf Halbwertszeiten des Radons. Eine kürzere Durchströmung der Flüssigphasen verhindert eine weitestgehende Einstellung des Radongleichgewichts zwischen dem Radon-Quellmaterial, der strömenden Luft und den beiden durchströmten Flüssigphasen. Außerdem werden bei einer zu kurzen Durchströmung der Flüssigphasen nur geringe Radonkonzentrationen in den Flüssigphasen erreicht, was eine exakte Bestimmung von C_{Rn}^{NAPL} und C_{Rn}^W erschwert.

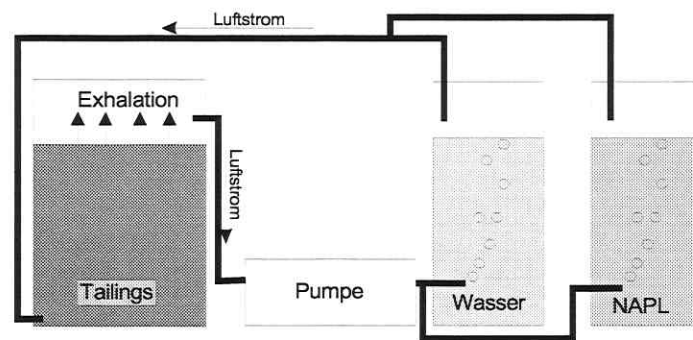


Abb. 3-1. 1: Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus zur Durchführung der Durchströmungsexperimente.

Nach Abschluß der Durchströmung wurden die beiden Phasen in radondichte Glas-Marinelli-Becher überführt. Wie auch bei den Mischungsexperimenten wurde nach der Überführung der Phasen in die Marinelli-Becher eine Ruhephase von drei Stunden eingehalten um sowohl im Wasser als auch in der NAPL ein Aktivitätsgleichgewicht zwischen Radon und seinen kurzlebigen Folgeprodukten zu erreichen. Nachfolgend wurden die Radon-Aktivitätskonzentrationen der beiden Phasen gammaspektrometrisch bestimmt und $K_{NAPL/W}$ bzw. $K_{NAPL/BL}$ nach GL 3-1. 1 bzw. GL 3-1. 2 ermittelt.

Mit Benzin wurde kein Durchströmungsexperiment durchgeführt. Die bei der Durchströmung des Benzins entgasenden leichtflüchtigen Substanzen gelangen in den Luftkreislauf des geschlossenen Systems und somit auch in die parallel durchströmte Wassersäule. Das wiederum verfälscht den ermittelten Radon-Verteilungskoeffizienten $K_{NAPL/W}$ maßgeblich. Auch bei den Durchströmungsexperimenten mit Diesel und Petroleum kam es zu einer Verschleppung leichtflüchtiger Komponenten in die parallel durchströmte Wassersäule. Da Diesel und Petroleum aber nur sehr geringe Gehalte an leichtflüchtigen Stoffen aufweisen, wurden die Meßergebnisse dieser Experimente hiervon kaum beeinflusst. Trotzdem muß auch bei der Auswertung der Ergebnisse der Durchströmungsexperimente das Vorhandensein von NAPL-Spuren im Wasser berücksichtigt werden.

3.1.3 Ergebnisdiskussion

Die mit Hilfe der Mischungs- und Durchströmungsexperimente für die genannten NAPL-Gemische ermittelten Verteilungskoeffizienten $K_{NAPL/W}$ und die daraus abgeleiteten Werte für $K_{NAPL/BL}$ sind in Tab. 3-1.2 zusammengestellt. Für den Fall, daß in der Literatur Angaben zu den Verteilungskoeffizienten der jeweiligen NAPLs vorliegen, sind diese ebenfalls in der Tabelle aufgeführt.

Die ermittelten Verteilungskoeffizienten in Tab. 3-1.2 belegen deutlich die Affinität des Radons zu den untersuchten NAPL-Gemischen. Dabei muß erwähnt werden, daß die oben beschriebene Durchführung der Experimente als systematische Fehlerquellen das unvollständige Entmischen der Phasen (Mischungsexperimente) bzw. das Verschleppen von leichtflüchtigen NAPL-Komponenten in das Wasser (Durchströmungsexperimente) aufweist. In beiden Fällen haben die im Wasser vorhandenen NAPL-Spuren letztlich die Ermittlung von etwas zu niedrigen Verteilungskoeffizienten $K_{NAPL/W}$ zur Folge. Trotz dieses, in der Experimentalanordnung begründeten systematischen Fehlers, erbrachten die Laborversuche gut reproduzierbare Ergebnisse, welche in ihrer Genauigkeit dem Zweck der Untersuchung entsprachen. Die ermittelten Verteilungskoeffizienten lagen im Bereich von publizierten Verteilungskoeffizienten ähnlicher NAPLs (Clever et al., 1979; Hunkeler et al., 1997 b) und entsprechen somit den erwarteten Werten. Die vollständigen Analysendaten sind in Anhang A aufgeführt.

Tab. 3-1. 2: Bei den Mischungsexperimenten (M) und Durchströmungsexperimenten (DS) bei einer Temperatur von etwa 20°C ermittelte Verteilungskoeffizienten $K_{NAPL/W}$ und $K_{NAPL/BL}$ (Versuchszahl n) und entsprechender Literaturwert für Diesel (bei 12°C) nach Hunkeler et al. (1997 b).

NAPL	$K_{NAPL/W}$ (M)	$K_{NAPL/W}$ (DS)	$K_{NAPL/BL}$ (M)	$K_{NAPL/BL}$ (DS)	Versuchs- anzahl M / DS	$K_{NAPL/BL}$ Lit.-angabe
Benzin	50,9 +/- 5,8	-	13,2 +/- 1,5	-	7 / -	-
Diesel	43,8 +/- 4,6	38,6 +/- 1,0	11,4 +/- 1,2	10,0 +/- 0,3	10 / 3	13,2 (12°C)
Petroleum	40,6 +/- 8,3	43,6 +/- 4,1	10,6 +/- 2,1	11,3 +/- 1,1	4 / 2	-

3.2 Großmaßstäbliche Experimente zur Radonmigration in definierten Bodensäulen

3.2.1 Problemstellung

Wie bereits in Kapitel 2.6.1.1 erwähnt wurde, erschwert die Abhängigkeit der Bodengasmigration von verschiedenen natürlich veränderlichen Parametern die Interpretation der Meßergebnisse von Radonkartierungen. In der Literatur werden diesbezüglich besonders die Auswirkungen meteorologischer Einflußgrößen sowohl qualitativ als auch quantitativ sehr widersprüchlich diskutiert. Die Kenntnis des Einflusses der jeweiligen meteorologischen Gegebenheiten auf das Radontiefenprofil ist aber besonders für die Festlegung einer für die Radonkartierung adäquaten Probenentnahmetiefe entscheidend. Während diese zum einen so gering wie möglich gehalten werden sollte, um den technischen Aufwand bei der Bodenluftprobenahme zu minimieren, ist sie zum anderen tief genug zu wählen, um kurzfristige meteorologische Einflüsse auf die erhobenen Meßwerte auszuschließen.

Der Versuch, den Einfluß der einzelnen meteorologischen Parameter auf die Bodengasmigration mit Hilfe von Feldexperimenten zu quantifizieren, scheitert häufig daran, daß das komplexe Zusammenspiel der einzelnen meteorologischen Meßgrößen eine Einschätzung ihres jeweiligen individuellen Einflusses schwer möglich macht. Im Gegensatz zu Feldversuchen ist es im Labor möglich, die relevanten Parameter gezielt vorzugeben, um so ihren individuellen Einfluß zu untersuchen. Gleichzeitig können aber die Ergebnisse kleinmaßstäblicher Laborversuche nur bedingt auf in-situ-Verhältnisse extrapoliert werden, da im Labormaßstab gewonnene Meßwerte oft stark von den Randeffekten der Meßeinrichtung beeinflusst sind.

Zum besseren Verständnis der in situ ablaufenden Bodengasmigration war daher die Entwicklung eines Versuchsaufbaus notwendig, welcher die Lücke zwischen dem großmaßstäblichen Feldversuch und dem kleinmaßstäblichen Laborexperiment schließt. Das heißt eine Meßeinrichtung war gefragt, die einerseits laborähnliche Meßbedingungen ermöglicht und andererseits die im Labor unvermeidlichen Randeffekte weitestgehend ausschließt. Als weitere Anforderung sollte die Meßeinrichtung neben der detaillierten Untersuchung des Einflusses meteorologischer Parameter auch die Untersuchung des Einflusses von NAPL-Kontaminationen des Untergrundes auf das Radontiefenprofil erlauben. Zur Feststellung kausaler Zusammenhänge zwischen den einzelnen Meßgrößen sollte dabei die Aufnahme von Zeitreihen mit einer ausreichend hohen Datendichte möglich sein.

Als Ergebnis der Überlegungen wurde der "Gasmigrationssimulator" entwickelt, welcher im folgenden Kapitel 3.2.2.1 vorgestellt wird. Der Entwurf des Gasmigrationssimulators baut auf einer von van der Spoel et al. (1997) vorgestellten Meßapparatur auf.

3.2.2 Experimentelle Herangehensweise

3.2.2.1 Der Gasmigrationssimulator (GAMS)

Bei dem Gasmigrationssimulator (GAMS) handelt es sich um ein zylinderförmiges Gefäß mit 1 m^2 Grundfläche, welches die Aufnahme einer Bodensäule mit einem Volumen von $1,7\text{ m}^3$ erlaubt. Das die Bodensäule aufnehmende Gefäß ist vollständig aus HD-PE gefertigt und weist eine Wandstärke von 40 mm auf. Die in den GAMS eingebrachte Bodensäule kann mit einer Vielzahl von Sonden

bestückt werden. Zur Gewährleistung eines natürlichen Temperaturgradienten in der Bodensäule wird der GAMS bis zu seiner Oberkante in das natürliche Erdreich eingegraben. Die in die Bodensäule eingebrachten Sonden sind dabei über einen Probenahmeschacht zugänglich (Abb. 3-2. 2).

Der GAMS erlaubt aufgrund seiner Abmaße die Bestimmung von Radonmeßdaten, die in ihrer Qualität denen von in situ aufgenommenen Meßdaten entsprechen. Gleichzeitig können aber, vergleichbar mit Laborbedingungen, sämtliche das Radontiefenprofil beeinflussenden Parameter definiert vorgegeben bzw. sehr genau bestimmt werden. Somit wird bei der Untersuchung der Radonmigration im Boden die Anzahl der unbekannten Einflußgrößen minimiert, was zu einem besseren Verständnis der individuellen Einflüsse der einzelnen untersuchten Parameter führt.

Die inzwischen zum Patent angemeldete Meßeinrichtung (Schubert, 1999 a und b; Schubert et al., 1999; Meißner et al., 2000) ist im folgenden detailliert beschrieben und in Abb. 3-2. 1 schematisch dargestellt. Insgesamt wurden zur Durchführung verschiedener Versuchsreihen vier GAMS hergestellt, welche in einem Viererblock kleeblattförmig angeordnet wurden (Abb. 3-2. 2, Anhang G, Bilder 3 und 4).

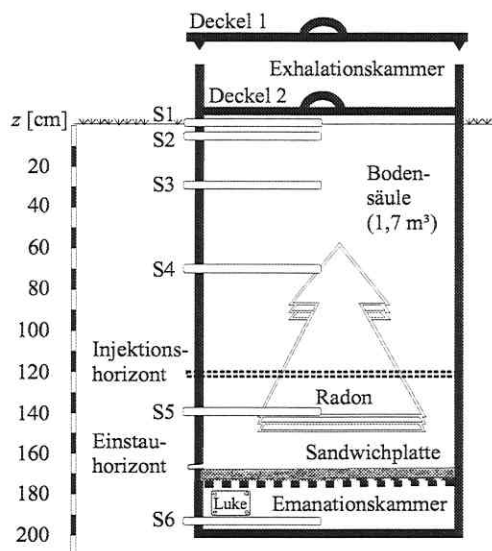


Abb. 3-2. 1: Schematische Darstellung des Gasmigrationssimulators (GAMS).

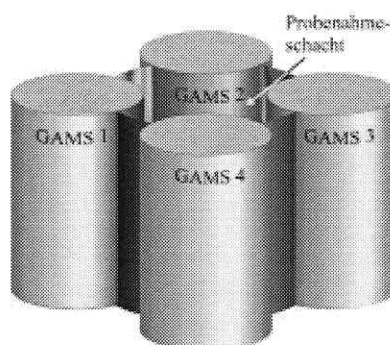


Abb. 3-2. 2: Schematische Darstellung des eingesetzten GAMS-Viererblocks.

Die für die Versuchsreihen in die einzelnen GAMS eingebrachten Bodensäulen bestanden hauptsächlich aus gut klassiertem, gewaschenen Quarzsand eines definierten Kornspektrums (Mittelsand, siehe Anhang B). Für den Quarzsand wurde eine sehr niedrige Radiumaktivitätskonzentration von $A_{Ra} = 6,8 \text{ Bq/kg}$ ermittelt. Um eine für die Versuchsreihen ausreichend hohe Radonkonzentration der Bodenluft zu erreichen, wurde dem Quarzsand bei drei der Bodensäulen zusätzliches Radon-Quellmaterial (Uran-Tailings) homogen zugemischt (GAMS 2, GAMS 3 und GAMS 4). In einem der GAMS wurde der Quarzsand als quasi passive Bodensäule pur eingebaut und lediglich mit Uran-Tailings unterschichtet (GAMS 1). Bevor auf die Bestückung der einzelnen GAMS detaillierter eingegangen wird, sollen zunächst die als Radon-Quellmaterial verwendeten Uran-Tailings charakterisiert werden.

Uran-Tailings sind grob - bis feinstkörnige, radiumreiche Rückstände der Uranerzaufbereitung. An einer den Uran-Tailings entnommenen Mischprobe wurde durch Naßsiebung das Kornspektrum der Tailings bestimmt. Dabei wurde festgestellt, daß die Tailings eine ähnliche Kornverteilung wie der als mineralische Grundmatrix verwendete Quarzsand aufwiesen (Mittelsand, grobsandig, schwach feinsandig, siehe Anhang B). Bei 15 Proben, die den Uran-Tailings entnommen wurden, ergaben entsprechende Untersuchungen eine durchschnittliche Radiumaktivitätskonzentration von $A_{Ra} = 2,7 \pm 0,27 \text{ Bq/g}$ (siehe Anhang C) und einen Emanationskoeffizient von $\varepsilon = 0,23$.

An einer in ihre Kornklassen fraktionierten Mischprobe des Tailingsmaterials war zudem festgestellt worden, daß der Radiumgehalt der Mineralpartikel mit abnehmender Korngröße deutlich zunimmt. Die das Tailingsmaterial charakterisierenden Daten sind in der folgenden Tab. 3-2. 1 zusammengestellt.

Tab. 3-2. 1: Kornspektrum und Radiumgehalt der als Radon-Quellmaterial verwendeten Uran-Tailings.

Kornklasse [μm]		Masseanteil [Gew. %]	A_{Ra} [Bq/kg]
Kies	> 2000	4,5	2.000
Grobsand	630 – 2000	25,5	2.000
Mittelsand	200 – 630	60,5	2.200
Feinsand	63 – 200	9,0	6.500
Schluff	< 63	0,5	37.500

Im folgenden sollen die in die einzelnen GAMS eingebrachten Bodensäulen beschrieben werden. Die Bodensäule in GAMS 1 setzte sich aus reinem, quasi inaktiven Quarzsand zusammen. Die Emanationskammer des GAMS 1, die durch eine dreischichtige Sandwichplatte von der eigentlichen Bodensäule getrennt ist (Abb. 3-2. 1), wurde mit $0,2 \text{ m}^3$ unverdünntem Uran-Tailingsmaterial als Radonquelle bestückt. Die Sandwichplatte des GAMS besteht aus einem ca. 10 cm starken, glasfaserverstärkten Kunststoffgitter, einer ca. 2 cm starken, hochporösen, ultrahochmolekularen PE-Sinterplatte und einer etwa 0,1 mm starken hochradondurchlässigen LD-PE-Folie. Die Sandwichplatte besitzt eine zum Tragen der Bodensäule ausreichende Statik, ist hoch radondurchlässig und läßt kein Eindringen von Bodenwasser aus der Bodensäule in die Emanationskammer zu.

Die GAMS 2, 3 und 4 wurden mit aktiven Bodensäulen bestückt. Dazu wurden dem quasi inaktiven Quarzsand Uran-Tailings im jeweiligen Volumenverhältnis 1: 10 (GAMS 2), 1: 7,5 (GAMS 3) bzw. 1: 6,5 (GAMS 4) untergemischt. Die Emanationskammern der GAMS wurden jeweils vollständig mit dem gleichen Sand-Tailings-Gemisch befüllt, aus dem die zugehörige Bodensäule bestand. Die

Mischung des Sandes mit den Tailings erfolgte mit Hilfe eines handelsüblichen Betonmischers über eine Zeitdauer von wenigstens 30 min.

Abgesehen von der unterschiedlichen Befüllung war der prinzipielle Aufbau der vier GAMS gleich. Bei allen vier GAMS konnte durch eine gasdichte Abdeckung oberhalb der Bodensäule ein Stauraum von 0,3 m³ erzeugt werden (Exhalationskammer, Abb. 3-2. 1). Weiterhin war es möglich die Bodensäule mit einer bündig aufliegenden HD-PE Platte direkt abzudecken, was die Simulation einer Versiegelung der Erdoberfläche ermöglichte. Da jeder der GAMS durch eine abnehmbare Plexiglashaube vor Niederschlägen geschützt war, konnte außerdem eine kontrollierte Beregnung der Bodensäulen ermöglicht werden.

Zur Untersuchung der Beeinflussung des Radontiefenprofils durch eine NAPL-Kontamination, war in GAMS 3 und GAMS 4 jeweils 120 cm unterhalb der Bodenoberkante ein Injektionshorizont für NAPLs installiert worden (Abb. 3-2. 1). Dieser NAPL-Einlaß ermöglichte eine nahezu homogene NAPL-Kontamination der beiden Bodensäulen unterhalb dieses Horizontes. Die Injektion der NAPLs erfolgte dabei über ein System aus perforierten PE-Schläuchen, welches als Netz über die gesamte Querschnittsfläche der Bodensäule gelegt wurde, ohne dabei die Radonmigration nennenswert zu behindern.

Zur tiefenabhängigen Messung der relevanten Parameter wurden in den GAMS auf je sechs Ebenen die Sondenhorizonte S1 bis S6 eingerichtet (Abb. 3-2. 1). Die Sonderebenen S2, S3, S4 und S5 lagen 5 cm, 30 cm, 70 cm bzw. 140 cm unterhalb der Bodenoberkante und wiesen eine identische Sondenbestückung auf. Die im folgenden aufgeführten Sensoren wurden in jedem dieser Horizonte installiert.

- Radondetektor „Clipperton“ zur Messung des Radongehalts der Bodenluft als Zeitreihe
- TDR-Feuchtemeßgerät zur Messung der Bodenfeuchte als Zeitreihe
- elektronischer Temperatursensor zur Bestimmung der Bodentemperatur als Zeitreihe

Bei dem Radondetektor „Clipperton“ handelt es sich um eine Radonsonde, welche eine kontinuierliche Aufzeichnung des Radongehalts der Bodenluft in situ ermöglicht, ohne dabei die Bodengasmigration zu beeinflussen. Die Bestimmung der Radonkonzentration erfolgt dabei mit Hilfe eines photosensitiven Detektors durch die Registrierung von α -Zerfällen im Porenraum des Bodens. Die als Zeitreihe aufgenommene und im geräteinternen ROM abgespeicherte Zählrate kann nach dem Auslesen der Sonde über einen sondenspezifischen Faktor in die Zeitreihe der Radon-Aktivitätskonzentration umgerechnet werden. Dieser sondenspezifische Faktor wurde im Vorfeld der Experimente für jeden der Clippertons ermittelt, indem aus dem jeweiligen Sondenhorizont des GAMS eine Bodenluftprobe entnommen und mit Hilfe des Radonmonitors „Alpha-GUARD“ auf ihren Radongehalt untersucht wurde. Der Alpha-GUARD ist detailliert im Kapitel 3.3.2.1 beschrieben. Die Clippertons wurden auswechselbar in Führungsrohren installiert, welche horizontal bis in die Achse der jeweiligen Bodensäule reichten. Die Führungsrohre wurden radondicht in die Wandung der GAMS eingeschraubt. Der Aufbau, die Funktionsweise und die technischen Daten der Clipperton-Sonde wurden ausführlich durch Monnin & Seidel (1998) beschrieben.

Die TDR-Feuchtemeßgeräte und die Temperatursensoren wurden nicht in Führungsrohren installiert, sondern direkt in die Bodensäulen eingebaut. Um Randeffekte auch hierbei weitestgehend auszuschließen lagen die jeweiligen Meßfühler ebenfalls nahe der Achse der jeweiligen Bodensäule. Die Sensoren wurden, wie auch die Führungsrohre der Clippertons, im Zuge der Befüllung der GAMS

in den entsprechenden Tiefen installiert. Das Auslesen der Sonden bzw. der Austausch der Clippertons war über den eingangs erwähnten Probenahmeschacht im Zentrum des GAMS-Viererblocks möglich (Abb. 3-2. 2).

Die Sondenebene S1 lag unmittelbar an der Bodenoberkante und diente der Aufzeichnung der relevanten Parameter am Interface Boden / Atmosphäre. Die Sondenebene S1 war mit den im folgenden genannten Sensoren bestückt.

- Bodenluftlanze zur kontinuierlichen Messung des Radongehalts der Bodenluft am Interface Boden / Atmosphäre als Zeitreihe
- Temperatursensor zur Temperaturbestimmung des Bodens am Interface Boden / Atmosphäre als Zeitreihe

Die Bestimmung des Radongehalts der Bodenluft in der Sondenebene S1 erfolgte durch eine kontinuierliche Bodenluftprobenahme mit Hilfe des mobilen Radonmeßgerätes Alpha-GUARD, bzw. der zugehörigen radondichten Pumpe Alpha-PUMP der Firma Genitron Instruments, Frankfurt / M. (Genrich, 1999). Dabei wurde die Bodenluft kontinuierlich mit einer Pumprate von 0,3 l/min abgesaugt. Die zur Gewinnung der Bodenluftproben installierte Bodenluftlanze bestand aus 2 dünnen Edelstahlrohren, wobei das Absaugrohr in der Achse der Bodensäule und das Einlaßrohr unmittelbar hinter der Gefäßwandung endete. Durch den Abstand von Aus- und Einlaß (ca. 0,5 m) wurde ein Kurzschluß des Luftstroms auch bei geschlossenem Außendeckel vermieden.

Die Sondenebene S6 lag unterhalb der Sandwichplatte in der Emanationskammer und war lediglich mit einem Temperatursensor bestückt.

Zur Messung der aktuellen meteorologischen Parameter wurde in direkter Nachbarschaft zu dem GAMS-Viererblock eine mobile Wetterstation betrieben. Als relevante meteorologische Kenngrößen wurden die Lufttemperatur, der Luftdruck und die Windgeschwindigkeit als kontinuierliche Zeitreihen aufgezeichnet.

3.2.2.2 Versuchsreihen zur Ermittlung des unbeeinflussten Radontiefenprofils

Nach der Befüllung der vier GAMS und der Installation und Eichung sämtlicher Sensoren wurden die GAMS zunächst mit bündig auf der jeweiligen Bodensäule aufliegendem Deckel betrieben. Durch diese radondichte Versiegelung der Bodensäulen stellte sich in den aktiven Bodensäulen der GAMS 2, 3 und 4 nach etwa 19 Tagen über das gesamte Tiefenprofil die Radon-Gleichgewichtskonzentration C_{∞} ein. Die Höhe von C_{∞} hing dabei von dem jeweiligen Tailingsanteil in der Bodensäule ab. In der passiven Bodensäule von GAMS 1 bildete sich aufgrund der radonproduzierenden Uran-Tailings in der Emanationskammer des GAMS ein durch den Diffusionskoeffizienten der Bodensäule bestimmtes Radontiefenprofil heraus.

Nach Abnahme der Deckel, das heißt nach Öffnung der Bodensäulen zur Atmosphärenluft, stellte sich in jeder der Bodensäulen ein vom Diffusionskoeffizienten und der Gaspermeabilität des Bodens abhängiges Radontiefenprofil ein. Dieses Tiefenprofil stellte als unbeeinflusstes Normalprofil die Ausgangssituation für die späteren Experimente zum Einfluß meteorologischen Parameter, zum Einfluß von Niederschlägen bzw. zum Einfluß von NAPL-Kontaminationen des Bodens dar.

3.2.2.3 Versuchsreihen zur Abhängigkeit des Radontiefenprofils von meteorologischen Einflüssen

Die Nutzung von Kurzzeitmessungen des Radongehaltes der Bodenluft zur Lokalisierung von NAPL-Kontaminationen im Untergrund setzt voraus, daß die natürlich auftretenden Schwankungen des Radongehalts der Bodenluft nicht so stark sind, daß sie die NAPL-induzierten Konzentrationsveränderungen überdecken. Da Radonkartierungen zur Detektion von NAPL-Schadensfällen erfahrungsgemäß Zeiträume von einem oder wenigen Tagen in Anspruch nehmen, waren im hier betrachteten Zusammenhang besonders tageszyklische Witterungseinflüsse von Interesse. Als meteorologische Parameter, die mit tageszyklischen Schwankungen auftreten, wurden die Temperatur, der Luftdruck und die Windgeschwindigkeit aufgezeichnet. Des weiteren wurde die Bodenfeuchte als ebenfalls tageszyklisch veränderlicher Parameter registriert. Sämtliche Meßreihen wurden im Stundentakt aufgenommen.

Um quantitative Aussagen bezüglich der natürlich auftretenden Tagesschwankungen des Radongehalts der Bodenluft machen zu können, wurde untersucht bis in welche Tiefe ein signifikantes tageszyklisches Verhalten der Radonkonzentration erkennbar ist und mit welchen maximalen Amplituden dieses in den einzelnen Meßhorizonten auftritt. Dazu wurde der Radongehalt in den fünf Sondenebenen S1 bis S5 ebenfalls kontinuierlich im Stundentakt aufgezeichnet.

Zur genauen Analyse des zyklischen Verhaltens der betrachteten meteorologischen Parameter und der Radonkonzentration der Bodenluft wurden sämtliche aufgenommenen Zeitreihen einer statistischen Auswertung in Form einer Spektralanalyse und einer anschließenden Saisonanalyse unterzogen. Durch eine Gegenüberstellung der damit festgestellten jeweiligen Zyklizitäten der Zeitreihen, wurden schließlich die für eine kurzfristige Beeinflussung Bodengasmigration maßgeblichen meteorologischen Parameter fixiert.

Ein weiteres Experiment befasste sich mit der Abhängigkeit des Radontiefenprofils von einem Niederschlagsereignis. Dazu wurde an der lufttrockenen Bodensäule des GAMS 2 ein kurzzeitiger aber starker Gewitterguß (30 mm in 10 min) simuliert. Außerdem erfolgte ein Experiment zur Auswirkung des Überstaus einer radonproduzierenden Bodenschicht durch einen steigenden Grundwasserspiegel auf das Radontiefenprofil im darüberliegenden passiven Boden. Dazu wurde in der passiven Bodensäule des GAMS 1 oberhalb der Emanationskammer ein Wasserhorizont eingestaut.

3.2.2.4 Versuchsreihen zur Abhängigkeit des Radontiefenprofils von NAPL-Kontaminationen des Untergrundes

Zur Untersuchung des Einflusses von NAPL-Kontaminationen des Untergrundes auf das Radontiefenprofil wurden die aktiven Bodensäulen des GAMS 3 und des GAMS 4 mit einer leichtflüchtigen bzw. einer schwerflüchtigen NAPL kontaminiert. Die Injektionen erfolgten jeweils über das oben beschriebene System aus perforierten PE-Schläuchen in 120 cm Bodentiefe. Als beispielhaftes leichtflüchtiges NAPL-Gemisch wurde Normalbenzin gewählt. Als schwerflüchtige NAPL kam Diesel zum Einsatz. Im Vorfeld der Injektionen war die Diesel- und die Benzin-Residualsättigung des Sandes der Bodensäulen experimentell bestimmt worden. Die NAPL-Residualsättigung eines Bodens ist der maximal gegen die Schwerkraft gehaltene NAPL-Anteil am Porenvolumen, also der Wert für S_{NAPL} , welcher der Feldkapazität bei der Bodenfeuchte entspricht. Die Residualsättigung ist ein Maß für das NAPL-Rückhaltevermögen eines Bodens.

3.2.3 Ergebnisdiskussion

3.2.3.1 Das unbeeinflusste Radontiefenprofil

Vor Beginn der Migrationsexperimente wurden die GAMS zunächst mit bündig aufliegenden radondichten Deckeln, das heißt als geschlossene Systeme betrieben. Nach etwa 19 Tagen wurde in den aktiven Bodensäulen der GAMS 2, 3 und 4 die Radon-Gleichgewichtskonzentration C_∞ erreicht. Die jeweils festgestellten Konzentrationen sind in Tab. 3-2. 2 aufgeführt.

Etwa eine Woche nach Abnahme der Deckel der GAMS hatten sich in den vier Bodensäulen stationäre Radongleichgewichte eingestellt. Die jeweilige Form der Radontiefenprofile, die sich in den Bodensäulen ausbildeten, ist davon abhängig, ob es sich bei der jeweiligen Bodensäule um passives (GAMS 1) oder aktives Material (GAMS 2, 3 und 4) handelt. Bei den aktiven Bodensäulen hat zudem das Mischungsverhältnis zwischen den Uran-Tailings und dem Quarzsand Einfluß auf das Tiefenprofil.

Die Radonkonzentrationen, welche sich in den Meßhorizonten der einzelnen GAMS nach Erreichen des Radongleichgewichts einstellten, sind in Tab. 3-2. 2 zusammengestellt. Bei den Meßdaten handelt es sich um Mittelwerte von Radonzeitreihen, welche im Stundentakt über einen Zeitraum von etwa 30 Tagen nach Einstellung der stationären Radontiefenprofile aufgenommen wurden.

Tab. 3-2. 2: Radonkonzentrationen in den Meßhorizonten der einzelnen GAMS nach Erreichen eines stationären Radongleichgewichts. Für GAMS 2 bis 4 ist das Mischungsverhältnis Uran-Tailings / Quarzsand angegeben.

Meßhorizont	GAMS 1 (passiv) [kBq/m³]	GAMS 2 (1 : 10) [kBq/m³]	GAMS 3 (1 : 7,5) [kBq/m³]	GAMS 4 (1 : 6,5) [kBq/m³]
C_{Rn} in 0 cm	0	0	0	0
C_{Rn} in 5 cm	18	12	15	11
C_{Rn} in 30 cm	59	53	65	62
C_{Rn} in 70 cm	139	88	115	139
C_{Rn} in 140 cm	295	137	185	206
C_∞		240	312	349

In Abb. 3-2. 3 sind die in Tab. 3-2. 2 aufgeführten Werte zusammen mit der jeweils zugehörigen Modellkurve des Tiefenprofils dargestellt. Die Modellkurven wurden mit Hilfe der in Kapitel 2.4 vorgestellten entsprechenden Lösungen der allgemeinen Diffusionsgleichung berechnet.

Bei der Berechnung der vier Tiefenprofile wurde von einem Diffusionskoeffizient der Bodensäulen von $D_e = 5 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ ausgegangen, welcher für den verwendeten trockenen Mittelsand typisch ist. Des weiteren kam für die Berechnung der theoretischen Radontiefenprofile als Radonkonzentration am Interface Boden / Atmosphäre ein Wert von $C_0 = 0 \text{ kBq/m}^3$ zur Anwendung. Diese Randbedingung spiegelt die tatsächlichen Verhältnisse hinreichend genau wider. An den Oberflächen der aktiven Bodensäulen waren Radonkonzentrationen gemessen worden, welche gegenüber den Radonkonzentrationen der Bodenluft vernachlässigbar gering waren ($C_0 \approx 0,5 \text{ kBq/m}^3$).

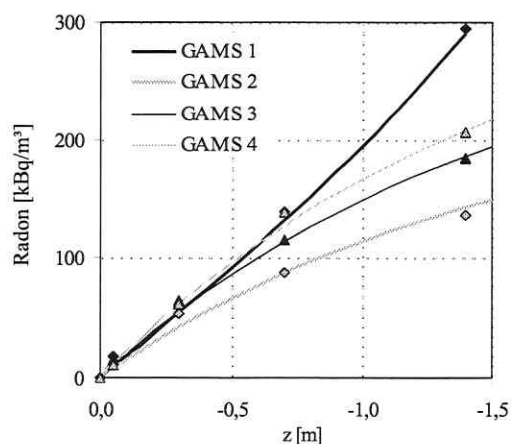


Abb. 3-2. 3: In den GAMS 1 bis 4 gemessene Radonkonzentrationen (markiert durch Symbole) im Vergleich zu den entsprechenden Modellkurven der Radontiefenprofile mit $D_e = 5 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$.

3.2.3.2 Der Tagesgang der Radonkonzentration der Bodenluft

Die Messungen zur Untersuchung der tageszyklischen Schwankungen der Radonkonzentration der Bodenluft in den einzelnen Meßtiefen erfolgten im August 1999 an GAMS 2 über einen Zeitraum von 31 Tagen. Die Datensätze repräsentieren somit typisch mitteleuropäisches Sommerwetter, welches sich im Vergleich zu Winterwetter durch stärkere Tag / Nacht - Schwankungen der Temperatur und der Windgeschwindigkeit sowie durch eine generell geringere Bodenfeuchte auszeichnet.

Die Abbildungen Abb. 3-2. 4 bzw. Abb. 3-2. 5 geben einen Eindruck vom Verlauf der Zeitreihen der Radonkonzentration in den Meßhorizonten S 1 (0 cm) und S 2 (5 cm) bzw. S 3 (30 cm) und S 4 (70 cm). Um die Darstellung der Meßkurven transparenter zu machen, wurden Sequenzen von nur jeweils sieben Tagen abgebildet, welche repräsentativ für die zugehörige Gesamtzeitreihe von 31 Tagen sind. In den Abbildungen ist Mitternacht jeweils mit „0:00“ gekennzeichnet.

Abb. 3-2. 4 zeigt die geglätteten Meßkurven der Radonkonzentrationen am Interface Boden / Atmosphäre (0 cm) und in 5 cm Bodentiefe. Zur Glättung der im Stundentakt aufgenommenen Meßkurven wurde ein Hamming-Filter mit $n = 5$ verwendet. Es ist zu erkennen, daß die Konzentrationen in den beiden Meßhorizonten signifikante Tagesschwankungen aufweisen. In 5 cm Tiefe wurden die höchsten Konzentrationen jeweils am frühen Morgen gemessen, während die geringsten Konzentrationen am Nachmittag auftraten. In 0 cm Tiefe traten erhöhte Konzentrationen jeweils nachts auf, während am frühen Nachmittag ein tageszyklisches Minimum zu erkennen ist.

Die in 0 cm und in 5 cm beobachtete deutliche tageszyklische Komponente der Radonkonzentration der Bodenluft verringert sich mit zunehmender Bodentiefe immer mehr und wird in den tieferen Bodenhorizonten immer stärker von den stochastischen Schwankungen der jeweiligen Zeitreihe überprägt. Abb. 3-2. 5 zeigt die ebenfalls geglätteten Zeitreihen der Radonkonzentrationen aus 30 cm und 70 cm Tiefe. In dem Diagramm, welches die selbe Zeitspanne wie Abb. 3-2. 4 überdeckt, tritt in keiner der beiden Kurven ein signifikanter kontinuierlicher Tagesgang auf. Die vereinzelt in den Zeitreihen festgestellten längerfristigen Schwankungen sind auf Undichtigkeiten in der Wandung des

GAMS zurückzuführen, welche vorübergehend an einzelnen Sondeneingängen auftraten. Die Schwankungen in den Meßreihen aus 30 cm und 70 cm liegen allgemein im Bereich des Meßfehlers der Radonsonden, welcher etwa 7,5 % beträgt.

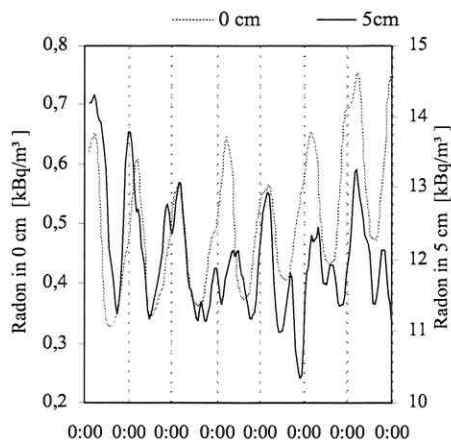


Abb. 3-2. 4: Radonkonzentration am Interface Boden / Atmosphäre (0 cm) und in 5 cm Bodentiefe über eine Zeitspanne von sieben Tagen (mit $n = 5$ geglättete Meßkurve von Stundenwerten).

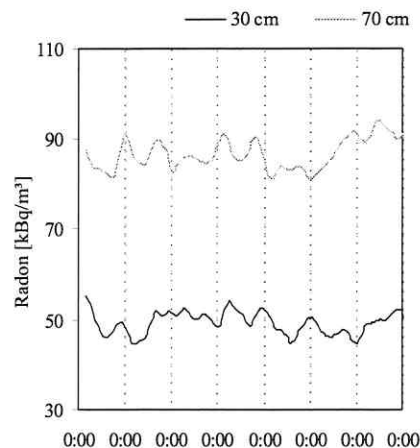


Abb. 3-2. 5: Radonkonzentration in 30 cm und 70 cm Bodentiefe über eine Zeitspanne von sieben Tagen (mit $n = 5$ geglättete Meßkurve von Stundenwerten).

Das in den beiden Abbildungen Abb. 3-2. 4 und Abb. 3-2. 5 über eine Zeitspanne von sieben Tagen zu erkennende Verhalten der Radonkonzentrationen in den einzelnen Meßhorizonten spiegelt sich auch in den Standardabweichungen der kompletten, über 31 Tage aufgenommenen Zeitreihen wider, welche in Tab. 3-2. 1 aufgeführt sind. Die Werte zeigen, daß die Standardabweichungen der Zeitreihen mit zunehmender Tiefe geringer werden. Die Standardabweichungen der Zeitreihen aus 30 cm, 70 cm und 140 cm Tiefe repräsentieren dabei, mit etwa 8 %, den Meßfehler der Radonsonden. Dem gegenüber stehen die Standardabweichungen der Zeitreihen aus 0 cm bzw. 5 cm Tiefe mit Werten von 29,0 % bzw. 12,9 % nicht allein für die stochastischen Schwankungen der Zeitreihen, sondern spiegeln den in Abb. 3-2. 4 zu erkennenden Radon-Tagesgang in diesen Meßhorizonten wider.

Tab. 3-2. 1: Mittelwerte und Standardabweichungen der kompletten Radonzeitreihen (31 Tage) aus allen fünf Meßhorizonten von GAMS 2 (je 744 Werte des August 1999).

Meßhorizont [cm]	Mittelwert [kBq/m³]	Standardabweichung [kBq/m³]	Standardabweichung [%]
0	0,5	0,15	29,0
5	11,6	1,49	12,9
30	53,0	4,36	8,2
70	87,0	6,78	7,8
140	137,0	10,90	7,9

Um das in den Siebentagesabschnitten in Abb. 3-2. 4 zu erkennende tageszyklische Verhalten der Radonkonzentration in 0 cm und 5 cm Tiefe für die jeweilige Gesamtzeitreihe von 31 Tagen zu

verifizieren und um gegebenenfalls auch in den Radonzeitreihen der tieferen Meßhorizonte eventuell verborgene zyklische Komponenten offenzulegen, wurden die kompletten, im Stundentakt aufgenommenen Radonzeitreihen aus allen Meßhorizonten einer Spektralanalyse unterzogen. Bei der Auswertung der Frequenzspektren wurde besonderes Augenmerk auf die Periodenlänge 24, also den Tagesgang gelegt. Die Frequenzspektren der in 0 cm und in 5 cm Tiefe aufgezeichneten Radonzeitreihen sind in den Abbildungen Abb. 3-2. 6 und Abb. 3-2. 7 dargestellt. Zur deutlicheren Illustration wurden nur die Perioden 0 bis 48 abgebildet und sämtliche Spektraldichten auf die maximale Spektraldichte normiert, die in diesem Bereich auftrat.

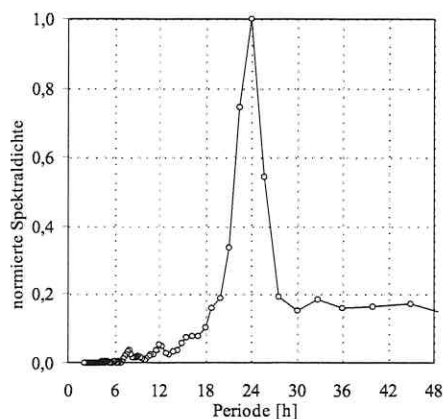


Abb. 3-2. 6: Normierte Spektraldichten der Zeitreihe der Radonkonzentration am Interface Boden / Atmosphäre (744 Stundenwerte des August 1999). Normierung sämtlicher Werte auf die maximale Spektraldichte im Bereich der Perioden 0 – 48.

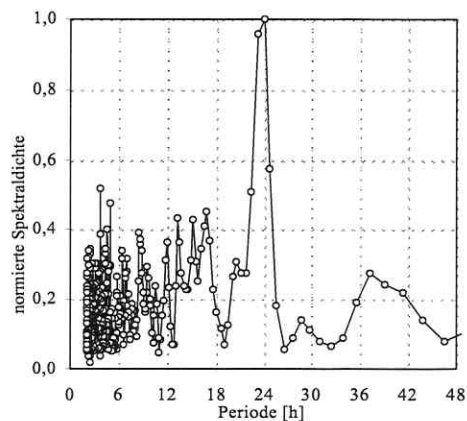


Abb. 3-2. 7: Normierte Spektraldichten der Zeitreihe der Radonkonzentration in 5 cm Bodentiefe (744 Stundenwerte des August 1999). Normierung sämtlicher Werte auf die maximale Spektraldichte im Bereich der Perioden 0 – 48.

In den beiden Darstellungen ist jeweils im Bereich um die Periode 24 eine Häufung von hohen Spektraldichten zu erkennen. Damit konnte der signifikante Tagesgang der Radonkonzentration in den Meßhorizonten in 0 cm und in 5 cm Tiefe, welcher bereits in den Siebentagessequenzen der Abb. 3-2. 4 zu erkennen war, für die jeweilige Gesamtzeitreihe bestätigt werden. Während der 24-Stunden-Peak im Frequenzspektrum der 0 cm Zeitreihe sehr deutlich ist, weist das Spektrum der 5 cm Zeitreihe im Bereich der kurzen Perioden zahlreiche weitere Einzelpeaks auf. Diese Einzelpeaks haben keine reproduzierbaren zyklischen Schwankungen der Radonkonzentration zur Ursache, sondern liegen in der Abschwächung der tageszyklischen Komponente bei gleichzeitiger relativer Verstärkung des stochastischen Untergrundes der Zeitreihe mit wachsender Bodentiefe begründet.

Bei der Spektralanalyse der Zeitreihen aus 30, 70 und 140 cm Tiefe konnte der den Tagesgang repräsentierende Peak im Bereich der Periode 24 nicht mehr als signifikant festgestellt werden. Das ist in Abb. 3-2. 8 exemplarisch anhand der Zeitreihe aus 30 cm Tiefe dargestellt. Wie schon in Abb. 3-2. 5 gezeigt werden konnte, sind die Tagesgänge der Radonkonzentration der Bodenluft, die möglicherweise auch in diesen Bodenhorizonten auftreten, zu schwach um sich aus den stochastischen Schwankungen der jeweiligen Zeitreihe herauszuheben.

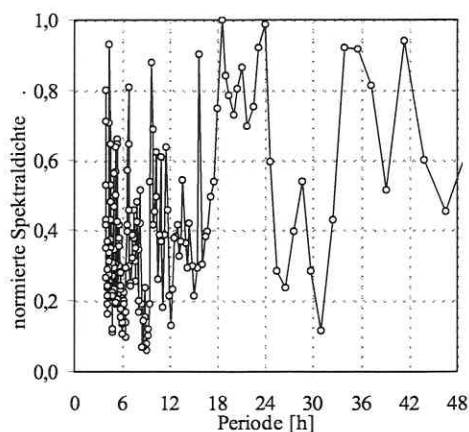


Abb. 3-2. 8: Normierte Spektraldichten der Zeitreihe der Radonkonzentration in 30 cm Tiefe (744 Stundenwerte des August 99). Normierung sämtlicher Werte auf die maximale Spektraldichte im Bereich der Perioden 0 – 48.

Nachdem am Interface Boden / Atmosphäre und in 5 cm Bodentiefe signifikante Tagesgänge der Radonkonzentration der Bodenluft nachgewiesen worden waren, wurde das mittlere tageszyklische Verhalten dieser Tagesgänge untersucht. Dazu wurden die Saisonkomponenten der mittels Hamming-Filter ($n = 5$) geglätteten Zeitreihen unter Vorgabe der durch die Spektralanalyse nachgewiesenen Saison von 24 Stunden isoliert. Die mittleren tageszyklischen Komponenten der Radonzeitreihen aus 0 cm und 5 cm Tiefe sind in Abb. 3-2. 9 dargestellt.

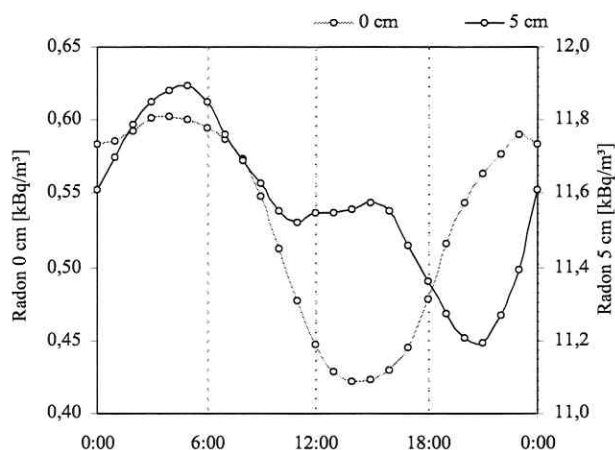


Abb. 3-2. 9: Mittleres tageszyklisches Verhalten der Radonkonzentrationen am Interface Boden / Atmosphäre (0 cm) und in 5 cm Bodentiefe im August 1999 über eine Saison von 24 Stunden.

Das mittlere tageszyklische Verhalten der in 5 cm Tiefe aufgezeichneten Zeitreihe ist durch drei, sich deutlich voneinander unterscheidende Abschnitte gekennzeichnet. Typisch für die späten Nacht- und frühen Morgenstunden (ca. 03:00 - 07:00 Uhr) ist ein mehr oder weniger stabiles Plateau erhöhter

Radonkonzentrationen. Im weiteren Tagesverlauf geht die Radonkonzentration auf ein niedrigeres Niveau zurück, wo er ein weniger stabiles Verhalten zeigt (ca. 08:00 - 17:00 Uhr). Am Abend ist ein ausgeprägtes Minimum der Radonkonzentration zu erkennen. Danach steigt die Radonkonzentration erneut an, um nach Mitternacht wieder das oben genannte morgendliche Plateau zu erreichen (ca. 18:00 - 02:00). Wie im folgenden Kapitel 3.2.3.3 herausgearbeitet werden wird, ist dieser, für sehr geringe Bodentiefen typische Tagesgang der Radonkonzentration der Bodenluft das Ergebnis eines Wechselspiels zwischen diffusiven und advektiven Migrationsprozessen der Bodenluft, welches in erster Linie von der tageszyklischen Umkehr des Temperaturgradienten am Interface Boden / Atmosphäre gesteuert wird.

Das mittlere tageszyklische Verhalten der in 0 cm Tiefe aufgezeichneten Radonzeitreihe zeichnet sich durch zwei Abschnitte aus. Während in der Nacht vergleichsweise hohe Radonkonzentrationen auftreten (ca. 21:00 - 09:00 Uhr), sind die Radonkonzentrationen tagsüber deutlich geringer (ca. 10:00 - 20:00 Uhr) und erreichen am frühen Nachmittag ihr Minimum. Wie im folgenden Kapitel 3.2.3.3 gezeigt werden wird, ist dieser, für die Radonkonzentration am Interface Boden / Atmosphäre typische Tagesgang der Radonkonzentration der Bodenluft von der sich tageszyklisch ändernden Windgeschwindigkeit und vom Tagesgang der Exhalationsrate des Bodens abhängig, welche ihrerseits vom Tagesgang des Temperaturgradienten am Interface Boden / Atmosphäre bestimmt wird.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, daß tageszyklische Schwankungen der Radonkonzentration der Bodenluft im Beobachtungszeitraum August 1999 nur am Interface Boden / Atmosphäre und in sehr geringen Bodentiefen auftraten. Schon in 30 cm Tiefe wurden diese Tagesschwankungen nicht mehr als signifikant registriert. Da der untersuchte Boden in GAMS 2 ein gut gaspermeabler trockener Mittelsand mit einem vergleichsweise hohen Diffusionskoeffizienten war, sind bei sonst vergleichbaren Bedingungen wesentlich größere Einflusstiefen auch für andere Böden nicht wahrscheinlich. Des weiteren kann konstatiert werden, daß auch in den Wintermonaten keine wesentlich größeren Einflusstiefen zu erwarten sind. Zum einen schränkt die im Winter generell höhere Bodenfeuchte die Bodengasmigration ein und zum anderen treten die im folgenden Kapitel besprochenen, den Radon-Tagesgang verursachenden meteorologischen Einflußgrößen im Winter im Normalfall mit geringeren Gradienten auf. Eine geringe Intensität der tageszyklischen Schwankungen der Radonkonzentration der Bodenluft im Winter konnte auch im Rahmen eines Experiments zum Einfluß von NAPL-Kontaminationen auf die Radonkonzentration der Bodenluft beobachtet werden, welches im November 1999 durchgeführt wurden und im Kapitel 3.2.3.5 beschrieben ist.

3.2.3.3 Meteorologische Einflüsse als Ursache des Tagesganges der Radonkonzentration der Bodenluft

Die am Interface Boden / Atmosphäre und in 5 cm Bodentiefe nachgewiesenen tageszyklischen Schwankungen der Radonkonzentration der Bodenluft haben Tagesgänge bestimmter, die Bodengasmigration beeinflussender meteorologischer Parameter zur Ursache. Als für die Bodengasmigration relevante natürliche Einflußgrößen kommen die Luft- und Bodentemperatur, die Windgeschwindigkeit, der atmosphärische Luftdruck und die Bodenfeuchte in Betracht. In den folgenden Abschnitten werden Ergebnisse vorgestellt, welche die Tagesgänge der genannten Einflußgrößen charakterisieren und deren Relevanz für eine tageszyklische Beeinflussung der Bodengasmigration aufzeigen. Es soll an dieser Stelle nochmals darauf hingewiesen werden, daß die

analysierten Meßreihen im August 1999 aufgezeichnet wurden und somit ein typisches mitteleuropäisches Sommerwetter repräsentieren.

3.2.3.3.1 Der Einfluß der Temperatur

Zur Untersuchung des Einflusses von Tag / Nacht - Schwankungen der Temperatur auf das Radontiefenprofil wurden in der Bodensäule von GAMS 2 in den Tiefenhorizonten S1 bis S6 (0 cm, 5 cm, 30 cm, 70 cm, 140 cm und 200 cm) kontinuierliche Temperaturzeitreihen aufgezeichnet (Stundenwerte). Synchron dazu waren, mit Ausnahme des Sondenhorizontes S6 (200 cm), in den selben Tiefenhorizonten die oben besprochenen Radonzeitreihen registriert worden.

Abb. 3-2. 10 gibt einen Eindruck vom Verlauf der Zeitreihen der Temperatur in den Meßhorizonten 0 cm und 5 cm. Um den Verlauf der Meßkurven transparenter zu machen, sind Sequenzen von jeweils nur sieben Tagen abgebildet, welche repräsentativ für die zugehörige Gesamtzeitreihe von 31 Tagen sind. In der Abbildung ist Mitternacht jeweils mit „0:00“ Uhr markiert.

Neben dem sehr deutlichen Tagesgang der Temperatur sowohl in 0 cm als auch in 5 cm Bodentiefe, ist in Abb. 3-2. 10 eine starke Abnahme der Amplitude des tageszyklischen Temperaturganges in 5 cm im Vergleich zum Meßhorizont in 0 cm Tiefe zu erkennen. Diese Abnahme verstärkt sich mit zunehmender Bodentiefe, was zur Folge hat, daß in 30 cm Tiefe nur noch sehr geringe tageszyklische Temperaturschwankungen und in den Tiefenhorizonten > 30 cm überhaupt keine signifikanten Tagesgänge der Temperatur mehr gemessen wurden. Die Tiefenhorizonte 30 cm, 70 cm und 140 cm wurden daher in Abb. 3-2. 10 nicht dargestellt.

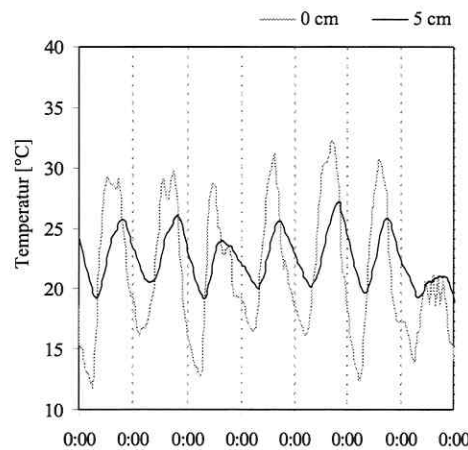


Abb. 3-2. 10: Bodentemperatur in 0 cm und 5 cm Bodentiefe über eine Zeitspanne von sieben Tagen (Stundenwerte).

Weiterhin ist in Abb. 3-2. 10 zu erkennen, daß es mit zunehmender Bodentiefe zu einer Phasenverschiebung der tageszyklischen Temperaturschwingung kommt. Zur Illustration dieser Phasenverschiebung wurden die Temperaturzeitreihen aus 0 cm und 5 cm bzw. aus 0 cm und 30 cm Tiefe miteinander gekreuzkorreliert. Die Ergebnisse der Kreuzkorrelationen sind in den folgenden Abbildungen Abb. 3-2. 11 und Abb. 3-2. 12 dargestellt. Es ist zu erkennen, daß die Temperaturschwingung in 5 cm Tiefe gegenüber der in 0 cm Tiefe eine Verschiebung von etwa drei

Stunden aufweist, die Temperaturschwingung in 30 cm Tiefe aber der in 0 cm mit einer Verzögerung von ca. 12 Stunden praktisch gegenläufig ist.

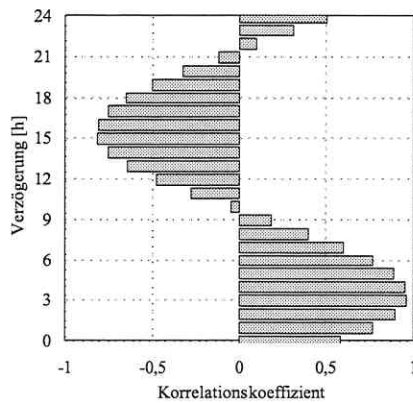


Abb. 3-2. 11: Kreuzkorrelation der Temperaturzeitreihen aus 0 cm und 5 cm Bodentiefe (744 Stundenwerte des August 99).

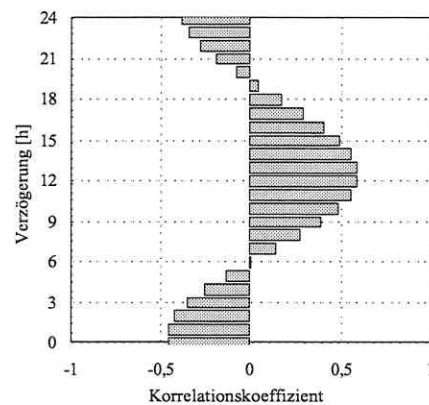


Abb. 3-2. 12: Kreuzkorrelation der Temperaturzeitreihen aus 0 cm und 30 cm Bodentiefe (744 Stundenwerte des August 99).

Die mit wachsender Bodentiefe beobachtete starke Abnahme der Amplitude des tageszyklischen Temperaturganges und die gleichzeitig zunehmende Phasenverschiebung der tageszyklischen Temperaturschwingung bewirken, daß der Oberboden im Normalfall nachts deutlich wärmer und tagsüber deutlich kälter ist als die Außenluft. Das wiederum bedeutet, daß es zu einer ausgeprägten tageszyklischen Umkehr des Temperaturgradienten am Interface Boden / Atmosphäre kommt. Zur Darstellung dieser tageszyklischen Umkehr des Temperaturgradienten ist in Abb. 3-2. 13 die Differenz zwischen der Temperatur des Oberbodens in 5 cm Tiefe und der Temperatur am Interface Boden / Atmosphäre ($\Delta T = T_{5cm} - T_{0cm}$) für einen repräsentativen Zeitraum von sieben Tagen dargestellt. In der Darstellung ist außerdem die geglättete Meßkurve der zeitgleich in 5 cm Bodentiefe aufgezeichneten Radonkonzentration aufgetragen.

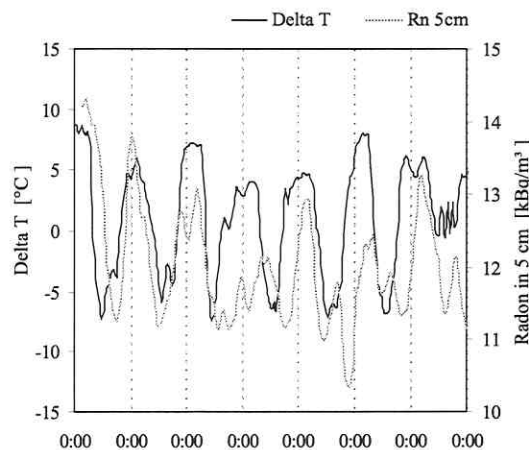


Abb. 3-2. 13: Temperaturdifferenz $\Delta T = T_{5cm} - T_{0cm}$ und Radonkonzentration in 5 cm Bodentiefe (geglättet) über eine Zeitspanne von sieben Tagen (Stundenwerte).

Der Abbildung Abb. 3-2. 13 kann entnommen werden, daß die Temperaturdifferenz ΔT eine deutliche Korrelation zur Radonkonzentration der Bodenluft in 5 cm Tiefe aufweist. Das läßt vermuten, daß der sich tageszyklisch umkehrende Temperaturgradient am Interface Boden / Atmosphäre einen maßgeblichen Einfluß auf die Radonkonzentration der Bodenluft im Oberboden hat. Auf diesen Zusammenhang soll nachfolgend detailliert eingegangen werden.

Das in der Siebentagessequenz in Abb. 3-2. 13 zu erkennende tageszyklische Verhalten der Temperaturdifferenz am Interface Boden / Atmosphäre wurde sowohl mit Hilfe der Spektralanalyse für die Gesamtzeitreihe von 31 Tagen verifiziert als auch einer Saisonanalyse unterzogen. Die Abb. 3-2. 14 zeigt das entsprechende Frequenzspektrum, welches mit dem deutlichen Peak im Bereich der Periode 24 den sehr markanten Tagesgang der Temperaturdifferenz $\Delta T = T_{5cm} - T_{0cm}$ betätigt. Sämtliche Spektraldichten wurden wiederum auf die maximale Spektraldichte, die im Bereich der Perioden 0 bis 48 auftrat, normiert. In Abb. 3-2. 15 ist die isolierte Saisonkomponente der Temperaturdifferenz bei Vorgabe einer Saison von 24 Stunden dargestellt. Nachts (ca. 22:00 bis 6:00 Uhr) herrscht ein stabiler negativer Temperaturgradient vor. Dieser schwächt sich am frühen Morgen ab um sich gegen etwa 9:00 Uhr umzukehren. Der stärkste positive, also in den Boden gerichtete Temperaturgradient herrscht am frühen Nachmittag vor (01:00 Uhr). Etwa 18:00 Uhr stellt sich wiederum ein negativer Temperaturgradient ein.

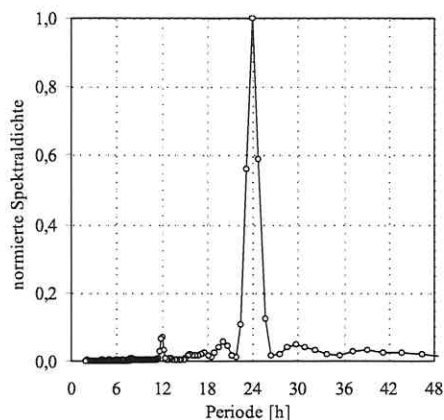


Abb. 3-2. 14: Normierte Spektraldichten der Zeitreihe der Temperaturdifferenz $\Delta T = T_{5cm} - T_{0cm}$ (744 Stundenwerte des August 1999). Normierung sämtlicher Werte auf die maximale Spektraldichte im Bereich der Perioden 0 – 48.

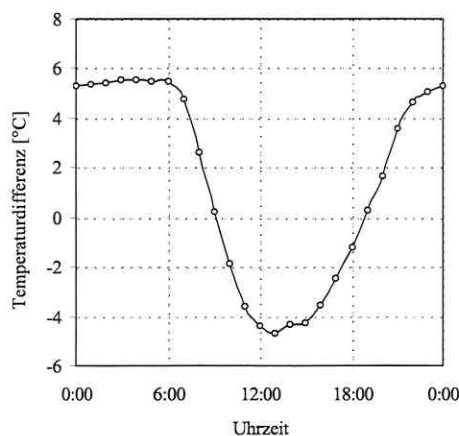


Abb. 3-2. 15: Mittleres tageszyklisches Verhalten der Temperaturdifferenz $\Delta T = T_{5cm} - T_{0cm}$ im August 1999 über eine Saison von 24 Stunden.

Der durch die drei Abbildungen Abb. 3-2. 13 bis Abb. 3-2. 15 charakterisierte, sich tageszyklisch umkehrende Temperaturgradient zwischen Oberboden und bodennaher Außenluft hat einen großen Einfluß auf das Wechselspiel zwischen diffusiven und konvektiven Migrationsprozessen der Bodenluft in den oberen Bodenschichten. Diese Migrationsprozesse wiederum bestimmen maßgeblich das Radontiefenprofil im Oberboden. Die Abhängigkeit der Radonkonzentration der oberflächennahen Bodenluft vom Temperaturgradienten am Interface Boden / Atmosphäre kann wie folgt erklärt werden.

In den kühlen Nacht- und Morgenstunden, das heißt, wenn der Boden wärmer ist als die bodennahe Außenluft, setzt eine konvektive Aufwärtsbewegung der Bodenluft ein. In diesen frühen Morgenstunden ist sowohl die konvektive als auch die diffusive Bodengasmigration nach oben gerichtet, was zu einer erhöhten Radonkonzentration in den oberflächennahen Bodenschichten führt. Diese erreicht am frühen Morgen ihren Maximalwert, auf dem sie bis zum frühen Vormittag mehr oder weniger stabil verharrt. Am Vormittag wird die bodennahe Außenluft wärmer als der Boden. Der Temperaturgradient am Interface Boden / Atmosphäre kehrt sich um. Das hat zur Folge, daß die konvektive Aufwärtsbewegung der Bodenluft zum Erliegen kommt und die aufwärtsgerichtete Migration des Radons nur noch diffusiv, d.h. abgeschwächt erfolgt. Da das im Oberboden vorrätige Radon exhalieret, hat der gebremste Radonnachschub aus der Tiefe eine schnelle Verringerung der Radonkonzentration im Oberboden zur Folge. Die Radonkonzentration der Bodenluft unmittelbar unter der Bodenoberfläche erreicht am Abend sein Minimum. Durch die nächtliche Abkühlung der Atmosphäre baut sich am späten Abend wieder ein positiver, also aufwärtsgerichteter Temperaturgradient auf. Die dadurch wieder in Gang gebrachte aufwärtsgerichtete Bodengaskonvektion läßt die Radonkonzentration der oberflächennahen Bodenluft wieder auf ihren Maximalwert ansteigen, welche wiederum am frühen Morgen erreicht wird. In der nachfolgenden Abb. 3-2. 16 ist der durch das „Atmen“ des Bodens verursachte Radon-Tagesgang zusammen mit dem Tagesgang der Temperaturdifferenz ΔT als Ergebnis der Saisonanalyse dargestellt.

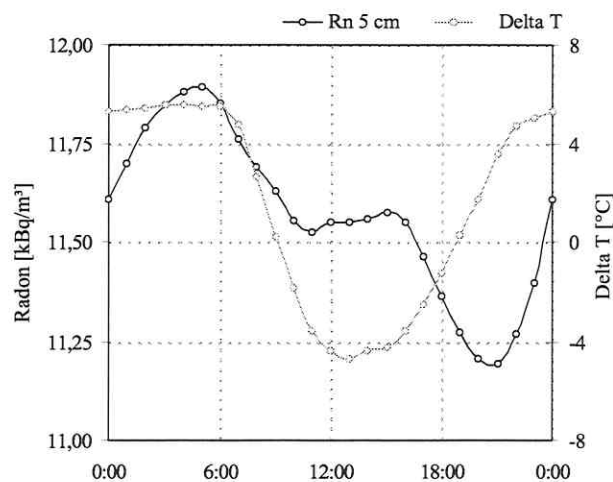


Abb. 3-2. 16: Mittleres tageszyklisches Verhalten der Radonkonzentration in 5 cm Bodentiefe und der Temperaturdifferenz $\Delta T = T_{5cm} - T_{0cm}$ im August 1999 über eine Saison von 24 Stunden.

Da sich der tageszyklische Wechsel der Radonkonzentration der Bodenluft im Oberboden auch in einem tageszyklischen Schwanken der Radonexhalationsrate niederschlägt, wird die Radonkonzentration an der Bodenoberfläche ebenfalls durch den beschriebenen Tagesgang des Temperaturgradienten am Interface Boden / Atmosphäre beeinflusst. Als weiterer, weitaus wichtigerer Einflußparameter für die Radonkonzentration an der Bodenoberfläche ist jedoch die vorherrschende Windgeschwindigkeit zu nennen. Die Abhängigkeit der Radonkonzentration in 0 cm Tiefe von der Windgeschwindigkeit wird im folgenden Kapitel besprochen.

3.2.3.3.2 Der Einfluß der Windgeschwindigkeit

Die Abb. 3-2. 17 zeigt den Verlauf der Windgeschwindigkeit einen Meter über dem Boden und die synchron dazu aufgezeichnete Radonkonzentration der Bodenluft an der Bodenoberfläche (0 cm) über einen repräsentativen Zeitraum von sieben Tagen. Aus der Abbildung geht zum einen ein signifikantes tageszyklisches Verhalten der Windgeschwindigkeit hervor, zum anderen ist eine deutliche Korrelation zwischen der Radonkonzentration am Interface Boden / Atmosphäre und der Windgeschwindigkeit zu erkennen.

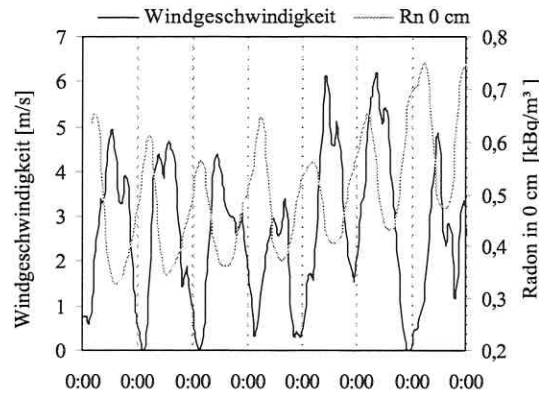


Abb. 3-2. 17: Windgeschwindigkeit in 1 m Höhe und Radonkonzentration in 0 cm Bodentiefe über eine Zeitspanne von sieben Tagen (geglättete Meßkurven von Stundenwerten).

Um das in der Abb. 3-2. 17 zu erkennende tageszyklische Verhalten der Windgeschwindigkeit für den gesamten Beobachtungszeitraum von 31 Tagen zu verifizieren und um den mittleren Tagesgang der Windgeschwindigkeit näher zu untersuchen, wurde die Zeitreihe einer Spektralanalyse und einer Saisonanalyse unterzogen. Die Ergebnisse sind in Abb. 3-2. 18 und Abb. 3-2. 19 illustriert.

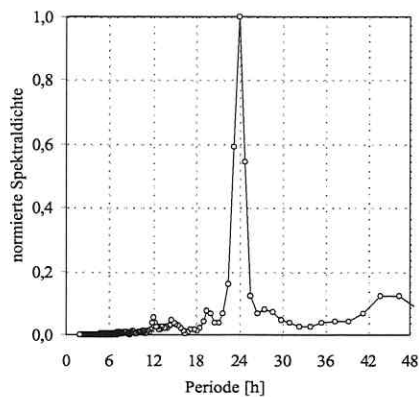


Abb. 3-2. 18: Normierte Spektraldichten der Zeitreihe der Windgeschwindigkeit in 1 m Höhe (744 Stundenwerte des August 1999). Normierung sämtlicher Werte auf die maximale Spektraldichte im Bereich der Perioden 0 – 48.

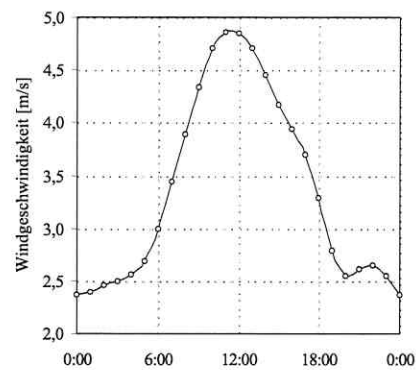


Abb. 3-2. 19: Mittleres tageszyklisches Verhalten der Windgeschwindigkeit in 1 m Höhe im August 1999 über eine Saison von 24 Stunden.

Das Frequenzspektrum in Abb. 3-2. 18 bestätigt das in der Abb. 3-2. 17 zu erkennende sehr markante tageszyklische Verhalten der Windgeschwindigkeit. Das Diagramm in Abb. 3-2. 19 illustriert, als Ergebnis der Saisonanalyse, den mittleren Tagesgang der Windgeschwindigkeit. Es ist zu erkennen, daß im Mittel nachts deutlich geringere Windgeschwindigkeiten auftreten als tagsüber.

Wie oben schon angedeutet, wird der Tagesgang der Radonkonzentration der Bodenluft am Interface Boden / Atmosphäre von der bodennahen Windgeschwindigkeit und untergeordnet vom Temperaturgradienten an der Bodenoberfläche bestimmt. Im einzelnen können diese Abhängigkeiten wie folgt erklärt werden.

Die wichtigste Einflußgröße auf die Radonkonzentration an bzw. unmittelbar über der Bodenoberfläche ist der Grad der Verdünnung der exhalierenden Bodenluft durch die Atmosphärenluft. Der Grad der Verdünnung wird wiederum durch bodennahe atmosphärische Turbulenzen bestimmt. Wie mit den Abbildungen Abb. 3-2. 17 bis Abb. 3-2. 19 gezeigt wurde, treten diese tageszyklisch auf. Während tagsüber höhere Windgeschwindigkeiten die exhalierende Bodenluft stark verdünnen, kann sich nachts aufgrund verringerter Windintensitäten eine erhöhte Radonkonzentration an bzw. unmittelbar über der Bodenoberfläche aufbauen. Der umgekehrt proportionale Zusammenhang zwischen der Radonkonzentration der Bodenluft in 0 cm und der Windgeschwindigkeit ist in Abb. 3-2. 20 illustriert.

Die zweite Einflußgröße auf die Radonkonzentration bei 0 cm ist die Radonexhalationsrate des Bodens. Der durch die tageszyklische Änderung der Windintensität verursachte nächtliche Aufbau einer radonreicheren Luftschicht direkt über der Bodenoberfläche wird durch das tageszyklische Schwanken der Radonexhalationsrate noch verstärkt. Dieses oben besprochene „Atmen“ des Bodens hat seinerseits die tageszyklische Umkehr des Temperaturgradienten am Interface Boden / Atmosphäre zur Ursache. Der nächtliche aufwärtsgerichtete konvektive Bodengasstrom führt zu einer verstärkten Radonexhalation in den Nacht- und Morgenstunden. Der proportionale Zusammenhang zwischen der Temperaturdifferenz $\Delta T = T_{scm} - T_{0cm}$ und der Radonkonzentration in 0 cm Bodentiefe ist in Abb. 3-2. 21 illustriert.

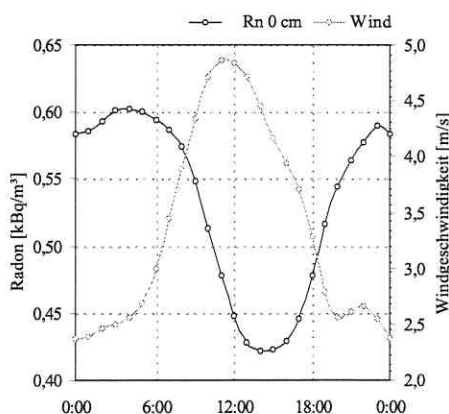


Abb. 3-2. 20: Mittleres tageszyklisches Verhalten der Radonkonzentration in 0 cm und der Windgeschwindigkeit im August 1999 über eine Saison von 24 Stunden.

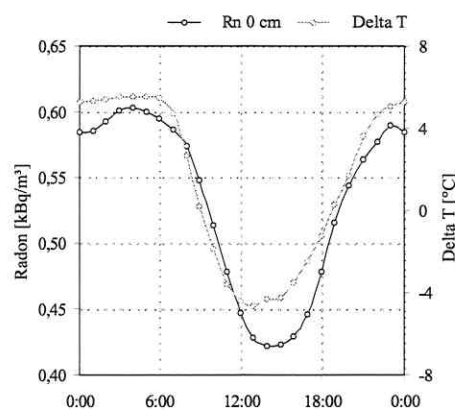


Abb. 3-2. 21: Mittleres tageszyklisches Verhalten der Radonkonzentration in 0 cm und der Temperaturdifferenz ($\Delta T = T_{scm} - T_{0cm}$) im August 1999 über eine Saison von 24 Stunden.

3.2.3.3 Der Einfluß des atmosphärischen Luftdrucks

Bis in welche Tiefe sich eine Änderung des atmosphärischen Luftdrucks im Porenraum des Bodens bemerkbar macht, hängt neben der Gaspermeabilität des Bodens auch von der Stärke der Druckanomalie und vom Gradienten mit dem diese auftritt, ab. Während im mitteldeutschen Raum längerfristig Luftdruckschwankungen zwischen etwa 950 und 1050 hPa möglich sind, werden binnen 24 Stunden im Normalfall nur Druckdifferenzen gemessen, die etwa 10 hPa betragen. Im Gegensatz zum Verlauf der Lufttemperatur oder der Windgeschwindigkeit, die sich vor allem durch einen ausgeprägten Tag / Nacht - Zyklus auszeichnen, treten größere Änderungen des Luftdrucks somit im Regelfall nur längerfristig auf. Zur Illustration dieses Sachverhaltes ist der Verlauf des Luftdrucks im unmittelbaren Umfeld des GAMS-Viererblocs in Abb. 3-2. 22 nicht nur über eine beispielhafte Sequenz von sieben Tagen, sondern über den gesamten Meßzeitraum des August 1999 dargestellt.

Die maximale Luftdruckänderung, die im Meßzeitraum innerhalb einer Zeitspanne von 24 Stunden auftrat, wurde mit 15 hPa zwischen dem 14.08., 05:00 Uhr und dem 15.08., 05:00 Uhr festgestellt. Dieser maximale Druckgradient über 24 Stunden war Teil einer Hochdruckfront, die am 09.08. einsetzte und bis zum 15.08. 1999 anhielt. Die Hochdruckfront spiegelte sich in keiner der synchron aufgenommenen Radonzeitreihen maßgeblich wider. Das ist in Abb. 3-2. 23 illustriert, in der die Radonzeitreihen aus 5 cm und 30 cm zusammen mit der Kurve des Luftdrucks für den Zeitraum dieser Hochdruckfront abgebildet sind. Um die tageszyklischen Schwankungen der Radonkonzentration zu eliminieren, wurden in Abb. 3-2. 23 die im Stundentakt aufgenommenen Radonzeitreihen als gleitendes Mittel mit $n = 24$ aufgetragen. In der Abbildung wird deutlich, daß sich kurzfristige Luftdruckschwankungen aufgrund ihrer im Normalfall geringen Amplitude nur untergeordnet auf Migrationsprozesse der Bodenluft auswirken. Daher scheint der Luftdruck für eine *kurzfristige* Beeinflussung der Radonkonzentration der Bodenluft kaum von Bedeutung zu sein und kann nicht als maßgebliche Ursache für die beobachteten tageszyklischen Schwankungen der Radonkonzentration in geringen Bodentiefen herangezogen werden.

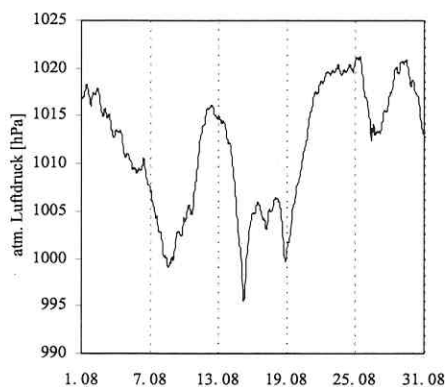


Abb. 3-2. 22: Atmosphärischer Luftdruck im unmittelbaren Umfeld des GAMS-Viererblocs über eine Zeitspanne von 31 Tagen (Stundenwerte).

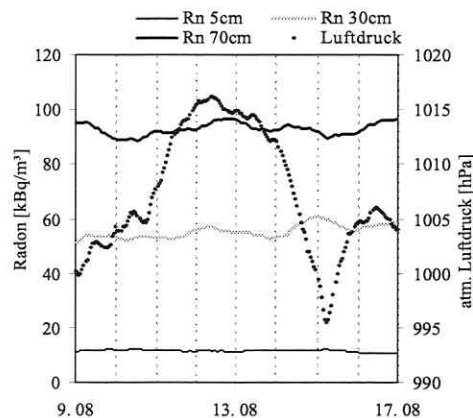


Abb. 3-2. 23: Atmosphärischer Luftdruck und Radonkonzentration in 5 cm und 30 cm Bodentiefe (mit $n = 24$ geglättete Zeitreihen) zwischen dem 09. und dem 17. 08. 1999 (Stundenwerte).

3.2.3.3.4 Der Einfluß der Bodenfeuchte

Da die untersuchten Bodensäulen während des Meßzeitraums vor Regen geschützt waren, hing die Bodenfeuchte allein von der tageszyklischen Wechselbeziehung zwischen der Kondensation der Luftfeuchte im Boden und der Verdunstung ab. Die Feuchtebestimmung in der Bodensäule erfolgte in 5 cm, 30 cm, 70 cm und 140 cm Tiefe kontinuierlich im Stundentakt. In Abb. 3-2. 24 ist die Bodenfeuchte der beiden oberen Meßhorizonte zusammen mit der an der Bodenoberfläche gemessenen Lufttemperatur (0 cm) über einen beispielhaften Zeitraum von sieben Tagen aufgetragen. Es ist zu erkennen, daß die Bodenfeuchte in 5 cm Tiefe eine signifikante Abhängigkeit von den täglichen Schwankungen der Außentemperatur zeigt. In 30 cm Tiefe ist diese Abhängigkeit kaum mehr nachweisbar. In den tieferen Meßhorizonten wurden überhaupt keine tageszyklischen Schwankungen der Bodenfeuchte mehr registriert.

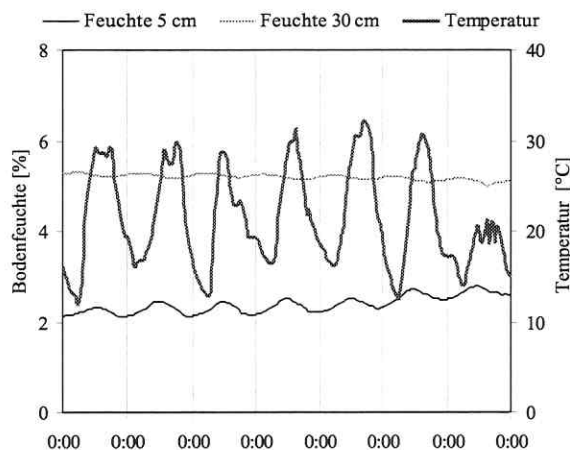


Abb. 3-2. 24: Bodenfeuchte in 5 cm und 30 cm Bodentiefe und Bodentemperatur in 0 cm Bodentiefe über eine Zeitspanne von sieben Tagen (Stundenwerte).

Da sich die tageszyklischen Schwankungen der Bodenfeuchte im beschriebenen Langzeitversuch in GAMS 2 auf die oberste Bodenschicht beschränkten, ihre Amplituden nur sehr gering waren und die Bodenfeuchte ohnehin nur Werte zwischen 2 % und 3 % annahm, ist eine signifikante Beeinflussung der Gaspermeabilität und des Diffusionskoeffizienten des Bodens durch den beobachteten Tagesgang der Bodenfeuchte auszuschließen. Daher kann der tageszyklische Wechsel zwischen Kondensation und Verdunstung nicht als maßgebliche Ursache für die gemessenen tageszyklischen Schwankungen der Radonkonzentration der oberflächennahen Bodenluft herangezogen werden.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, daß die im Kapitel 3.2.3.2 beschriebenen tageszyklischen Schwankungen der Radonkonzentration der Bodenluft am Interface Boden / Atmosphäre und in geringen Bodentiefen (5 cm) durch den ausgeprägten Tagesgang der vorherrschenden meteorologischen Verhältnisse hervorgerufen werden. Den dominierenden Anteil haben dabei der Temperaturgradient am Interface Boden / Atmosphäre und die bodennahe Windgeschwindigkeit. Änderungen des Luftdrucks scheinen mit den beobachteten tageszyklischen Änderungen der Radonkonzentration genauso wenig im Zusammenhang zu stehen, wie die tageszyklischen Schwankungen der Bodenfeuchte im Oberboden.

3.2.3.4 Der Einfluß von Niederschlägen und Grundwasserspiegelschwankungen auf die Radonkonzentration der Bodenluft

Im Gegensatz zum Wechselspiel zwischen Kondensation der Luftfeuchte und Verdunstung haben Regenfälle einen starken, wenn auch nicht zyklischen Einfluß auf die Gaspermeabilität und die Diffusionskonstante eines Bodens. Zum einen ist bei einer langfristigen Betrachtung festzustellen, daß der Oberboden in niederschlagsreichen Jahreszeiten sehr feucht bis wassergesättigt ist, was eine *nachhaltige* Verschiebung des Radontiefenprofils zur Folge hat. Zum anderen sind singuläre Niederschlagsereignisse für eine *kurzfristige* Beeinflussung der Radonkonzentration der Bodenluft relevant. Ihr Einfluß ist besonders dann gravierend, wenn im Vorfeld ein vergleichsweise trockener Boden vorgelegen hat und wenn der Boden eine schlechte Wasserdurchlässigkeit aufweist.

Am 17. September 1999 wurde an der trockenen Bodensäule des GAMS 2 ein starker Gewitterguss simuliert und dessen Einfluß auf die Bodenfeuchte und die Radonkonzentration in den einzelnen Meßhorizonten aufgezeichnet. Zwischen 9:50 Uhr und 10:00 Uhr wurde die Bodensäule gleichmäßig mit 30 Litern Wasser beregnet, was bei der gegebenen Grundfläche des GAMS von 1 m² einer Niederschlagsmenge von 30 mm entspricht. Zur detaillierteren Meßwerterfassung wurden die Radonkonzentrationen in den einzelnen Meßhorizonten dabei im 10-Minuten-Takt aufgenommen. Im folgenden werden die während des Experiments gemachten Beobachtungen beschrieben.

Aufgrund der guten Wasserdurchlässigkeit der Bodensäule wurde das Sickerwasser in 5 cm Tiefe schon unmittelbar nach Beginn der Beregnung registriert. In 30 cm wurde die Sickerwasserfront erst mit knapp dreistündiger Verzögerung festgestellt. In 70 cm Tiefe und darunter konnte das Niederschlagsereignis überhaupt nicht nachgewiesen werden. Die Daten zeigen, daß die 30 mm Regen aufgrund der Feldkapazität des Sandes vollständig im oberen halben Meter der Bodensäule zurückgehalten wurden.

Abb. 3-2. 25 zeigt die Reaktion der Radonkonzentrationen in 5 cm, 30 cm und 70 cm Tiefe auf das Niederschlagsereignis. Der Abbildung ist zu entnehmen, daß die Radonkonzentration in 5 cm Bodentiefe unmittelbar nach der Beregnung leicht anstieg. Das ist damit zu erklären, daß aufgrund der Verdrängung durch das Wasser radonreichere Bodenluft aus der Tiefe nach oben verfrachtet wurde, was zu einem temporären Anstieg der Radonkonzentration kurz unterhalb der Bodenoberfläche führte.

In den nächsten Stunden kam die Blockierung der Bodenporen durch das Sickerwasser zum Tragen. Die Verringerung des luftgefüllten Porenraums im Oberboden hatte eine Stagnation des Radontransports aus der Tiefe in die oberflächennahen Bodenhorizonte und damit einen Radonstau in den tieferen Bodenschichten zur Folge. Aufgrund dessen sank die Radonkonzentration in 5 cm Bodentiefe etwa 8 Stunden nach der Beregnung auf ein Minimum ab, während sie in 30 cm und in 70 cm Tiefe zeitgleich ein Maximum durchlief. Nach etwa 12 Stunden hatten sich wieder relativ konstante Konzentrationsverhältnisse eingestellt. In 140 cm Tiefe wurde keine Reaktion der Radonkonzentration festgestellt, die mit der Beregnung in Verbindung gebracht werden könnte.

Das Ergebnis des Beregnungsexperiments zeigt, daß es auch in gut wasserdurchlässigen Böden wie dem untersuchten Mittelsand in GAMS 2 durch starke Niederschläge zu einer kurzfristigen Beeinflussung des Radontiefenprofils kommen kann. Während die kurzfristige Erhöhung der Radonkonzentration in 5 cm Bodentiefe bereits unmittelbar nach der Beregnung festgestellt wurde, machte sich der durch das Sickerwasser hervorgerufene Radonstau erst einige Stunden verzögert bemerkbar.

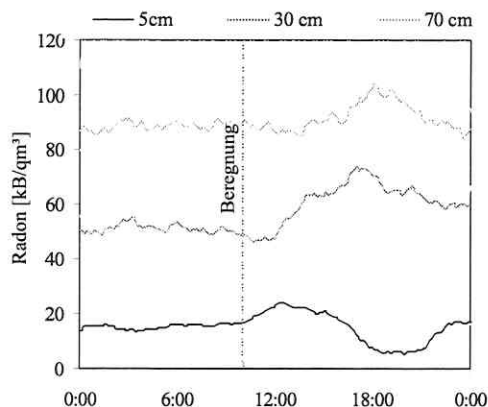


Abb. 3-2. 25: Auswirkung eines Niederschlagsereignisses (30 mm in 10 min) auf die Radonkonzentration in drei Meßhorizonten. Geglättete Meßkurven ($n = 12$) der im 10-Minuten-Takt aufgenommenen Radonzeitreihen.

Durch jahreszeitliche Schwankungen der Niederschlagsintensität oder durch Hochwässer in Vorflutern kann es auch zu beträchtlichen Schwankungen des Grundwasserspiegels kommen. Wird hierbei eine radonproduzierende Bodenschicht, welche unterhalb eines quasi inaktiven Bodenhorizontes liegt auch nur geringfügig überstaut, hat das einen deutlichen Rückgang der Radonkonzentration der Bodenluft in der hangenden inaktiven Bodenschicht zur Folge. Aufgrund des sehr geringen Diffusionskoeffizienten von Radon in Wasser ($D_w = 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$) wird der Radonnachschub aus der Tiefe durch den Grundwasserüberstau praktisch völlig abgeschnitten. Ein entsprechendes Experiment wurde an der passiven Bodensäule des GAMS 1 gemacht. Dazu wurde an der Basis der Bodensäule ein wassergesättigter Horizont von etwa 30 cm eingestaut (120 l Wasser). In Abb. 3-2. 26 sind die Radonmeßkurven dargestellt, die nach dem Einstau des Wassers aufgezeichnet wurden.

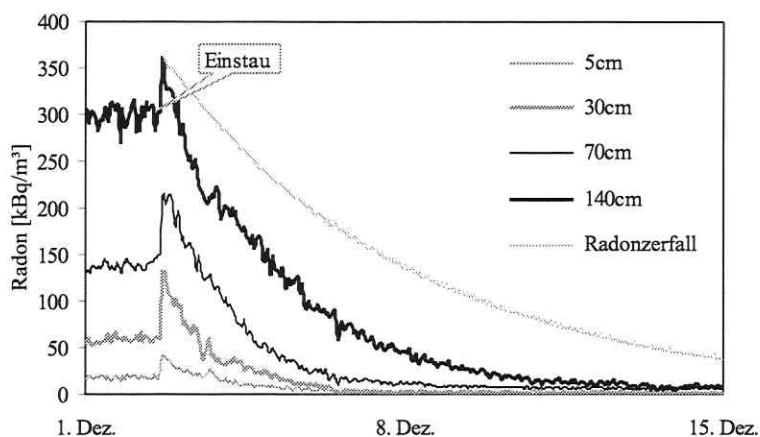


Abb. 3-2. 26: Radonmeßkurven nachfolgend zu einem Wassereinstau an der Basis der inaktiven Bodensäule des GAMS 1 und beispielhafte reine Zerfallskurve des Radons in 140 cm.

Durch den Wassereinstau wurde die Radonmigration aus dem in der Emanationskammer befindlichen Radon-Quellmaterial in die passive Bodensäule des GAMS 1 vollständig unterbunden. Nachdem

der Wassereinstau aufgrund der Verdrängung von etwa 120 Litern Bodenluft zunächst ein temporäres Maximum der Radonkonzentration in den einzelnen Meßhorizonten hervorgerufen hatte, ging nachfolgend die Radonkonzentration der Bodenluft in der gesamten Bodensäule auf sehr geringe Werte zurück. In 140 cm Tiefe stellte sich die Radon-Gleichgewichtskonzentration des Quarzsandes ein, die etwa bei 7 kBq/m^3 liegt. In den darüberliegenden Horizonten wurde ein Rückgang auf noch geringere Konzentrationen registriert. Dieser Rückgang hat neben dem fehlenden Radonnachschub aus der Tiefe und dem radioaktiven Zerfall des Radons auch die nach oben gerichtete Migration und die Exhalation des Radons zur Ursache. Aus diesem Grund verläuft der Rückgang der Radonkonzentration in der Bodenluft schneller, als es allein durch den radioaktiven Zerfall bei fehlender Radonproduktion zu erklären wäre. Zur Illustration des Anteils des radioaktiven Zerfalls am Rückgang der Radonkonzentration in der Bodensäule, ist in Abb. 3-2. 26 die Zerfallskurve für die nach dem Einstau im 140 cm Tiefe ermittelte Radonkonzentration von $C_{Rn} = 360 \text{ kBq/m}^3$ beigefügt.

3.2.3.5 Der Einfluß von NAPL-Kontaminationen des Untergrundes auf die Radonkonzentration der Bodenluft

Zur experimentellen Untersuchung des Einflusses von NAPL-Kontaminationen des Bodens auf das Radontiefenprofil wurden zwei Versuche durchgeführt. Im ersten Experiment wurde in die Bodensäule des GAMS 3 25 l Benzin injiziert. Im zweiten Experiment wurden die Bodensäule des GAMS 3 mit 20 l Diesel kontaminiert. Die NAPL-Injektionen erfolgten jeweils über das im Zuge der Bestückung der GAMS in 120 cm Tiefe eingebrachte perforierte Schlauchnetz flächendeckend über den gesamten Säulenquerschnitt von 1 m^2 . Die Aufzeichnung der Radonkonzentrationen der Bodenluft in den einzelnen Sondenebenen erfolgte kontinuierlich im Stundentakt.

3.2.3.5.1 Das Benzinexperiment

Im Vorfeld des Benzinexperimentes war die Residualsättigung des Sandes für Benzin bestimmt worden. Dazu wurden 10 dm^3 Sand in einen Zylinder gefüllt, an dessen Basis ein engmaschiges Sieb montiert war. Dabei wurde darauf geachtet, daß der Sand im Zylinder etwa die gleiche Packungsdichte aufwies, wie der in der Bodensäule des GAMS. Nachfolgend wurde der Sand solange gleichmäßig mit Benzin berieselt, bis dieses an der Basis des Zylinders flächendeckend wieder austrat. Über die im Sand verbliebene Benzinmenge und die Porosität des Sandes konnte eine Residualsättigung von $S_{NAPL} = 0,20$ ermittelt werden. Die Porosität des Sandes war im Vorfeld mit $n = 0,38$ bestimmt worden.

Unter der Voraussetzung einer flächig-homogenen Versickerung der in 120 cm Tiefe injizierten 25 l Benzin und mit Kenntnis der Residualsättigung des Sandes konnte abgeschätzt werden, daß das Benzin bis etwa 35 cm bis 40 cm unterhalb des Injektionshorizontes, also bis in eine Tiefe von etwa 160 cm abgesickert war. Damit befand sich der unterste der in der Bodensäule befindlichen Meßhorizonte (S5, 140 cm) innerhalb des kontaminierten Bodenvolumens, während die drei übrigen Meßhorizonte (S2, 5 cm; S3, 30 cm; S4, 70 cm) oberhalb der Kontamination lagen.

Während die Radonkonzentrationen in der Bodensäule vor der Benzininjektion bei den in Tab. 3-2. 4 angegebenen Ausgangskonzentrationen $C_{t=0}$ lagen, wurden nach der Injektion in den einzelnen Sondenebenen Änderungen der Radonkonzentrationen der Bodenluft festgestellt. Die in den Meßhorizonten S2, S3 und S4 aufgezeichneten Zeitreihen sind Abb. 3-2. 27 in illustriert. Die im kontaminierten Meßhorizont S5 (140 cm) registrierte Zeitreihe erbrachte keine quantitativ

auswertbaren Daten, da die in diesem Tiefenhorizont auftretenden Benzindämpfe die Meßtechnik stark beeinflussen. In Abb. 3-2. 27 und Tab. 3-2. 4 sind die in 140 cm Tiefe festgestellten Radon-Konzentrationen trotzdem aufgeführt, jedoch jeweils als "unsicherer Wert" initiiert. Auf diesen Zusammenhang wird weiter unten eingegangen.

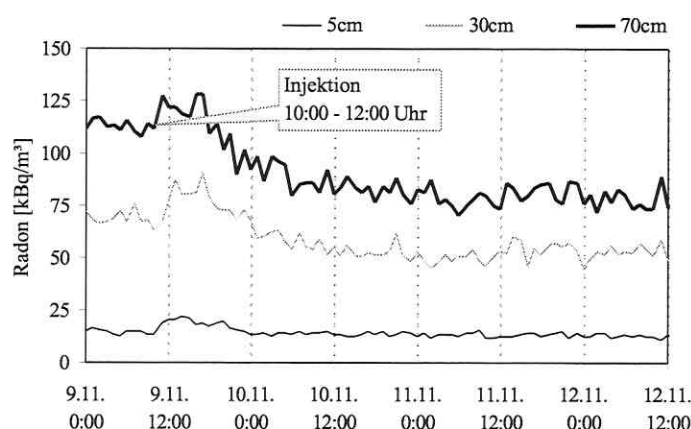


Abb. 3-2. 27: Radonkonzentration in drei Tiefenhorizonten nach einer Benzininjektion in 120 cm Tiefe (25 l) über eine Zeitspanne von 84 Stunden.

Tab. 3-2. 4: Maximale bzw. minimale Radonkonzentrationen der Bodenluft in den einzelnen Meßtiefen während der einzelnen Stadien des Benzinexperimentes (*: unsicherer Wert).

Sonden- ebene	Injektion $C_{t=0}$ [kBq/m³]	Initiales Maximum [kBq/m³]	Finales Gleichgewicht [kBq/m³]
5 cm	15	20	13
30 cm	65	81	55
70 cm	115	123	80
140 cm	185	(185*)	(73*)

Unmittelbar nach der Benzininjektion wurde in den drei Sondenebenen oberhalb des Injektionshorizontes ein kurzfristiges Maximum der Radonkonzentrationen festgestellt. Dieses „initiale Maximum“ begann etwa acht Stunden später wieder abzuklingen. Das Maximum ist auf das Zusammenwirken von zwei Effekten zurückzuführen.

Zum einen kam es bei der Benzininjektion durch die nahezu instantane Verdrängung von 25 l Bodenluft bei der gegebenen Porosität des Sandes von $n = 0,38$ zu einer Anhebung der Bodenluftsäule oberhalb des Injektionshorizontes um etwa 6,6 cm. Das hatte eine entsprechende Erhöhung der Radongehalte in den Meßhorizonten in 5 cm, 30 cm und 70 cm Tiefe zur Folge, welche experimentell

nachgewiesen wurde (Abb. 3-2. 27). Der gleiche Effekt war auch schon bei dem im Kapitel 3.2.3.4 beschriebenen Beregnungsexperiment beobachtet worden.

Zum anderen ist ein Teil der initialen Radonkonzentrationserhöhung durch einen zusätzlichen Radonschub bedingt, der seinerseits durch das schlagartige Freisetzen hochvolatiler Bestandteile des Benzins unmittelbar nach der Injektion hervorgerufen wurde. Die durch die Verteilung des Benzins im Sand entstandene vergrößerte Benzinoberfläche begünstigte die Entgasung der hochvolatilen Benzinbestandteile. Als hochvolatile Substanzen kommen hierfür die Benzinbestandteile in Frage, welche unter den gegebenen Bedingungen höhere Dampfdrucke als ca. 1000 hPa aufweisen. In relevanten Mengen treten davon Propan und Butan (zusammen ca. 4,5 Gew.%) und Buten (ca. 2,5 Gew.%) auf (siehe Tab. 3-1. 1). In Folge der schlagartigen Entgasung kam es zu einer temporären, aufwärtsgerichteten Migration dieser Komponenten, was die aufwärtsgerichtete Radonmigration kurzzeitig unterstützte. Dieser zweite Effekt ist allerdings im Vergleich zur oben genannten Luftverdrängung durch das injizierte Volumen nur von untergeordneter Bedeutung. Nach etwa zehn Stunden war das initiale Radonmaximum wieder abgeklungen.

Nach Abklingen des initialen Maximums wurde in der gesamten Bodensäule ein Konzentrationsrückgang festgestellt. Mit abnehmender Tiefe, das heißt mit größer werdendem Abstand zum kontaminierten Bodenvolumen, verringerte sich der Konzentrationsrückgang und war in 5 cm Tiefe kaum mehr signifikant.

Die Ursache für den Rückgang des Radongehalts der Bodenluft im unkontaminierten Teil der Bodensäule als Reaktion auf die Benzininjektion ist die hohe Radon-Löslichkeit im injizierten Benzin. Der entsprechende Verteilungskoeffizient war im Rahmen der Laborexperimente mit $K_{NAPL/BL} = 13,2$ ermittelt worden (Tab. 3-1. 2). Aufgrund der hohen Löslichkeit des Radons im Benzin akkumuliert das in 120 cm Tiefe injizierte Benzin einen Teil des im Porenraum vorhandenen Radons, wobei es dem verbleibenden, luftgefüllten Porenraum Radon entzieht („*Akkumulations-Effekt*“). Dadurch bildet sich *unterhalb* des Injektionshorizontes, also im kontaminierten Teil der Bodensäule, eine "Radonsenke" aus. Diese Radonsenke hat eine Verringerung des Radonnachschubs aus der Tiefe in den unkontaminierten Teil der Bodensäule zur Folge, was sich auf die Radonkonzentrationen in den Sondenebenen S2, S3 und S4 auswirkt. Da in der Bodenluft des kontaminierten Bodenvolumens aufgrund des Akkumulations-Effektes eine deutlich geringere Radonkonzentration vorliegt, als in der darüberliegenden unkontaminierten Bodenschicht, bildet sich im Übergangsbereich zwischen dem kontaminierten und dem unkontaminierten Teil der Bodensäule ein positiver, das heißt nach unten gerichteter Konzentrationsgradient ∇C_{Rn} aus. Aufgrund dieses positiven Konzentrationsgradienten kommt es zusätzlich zur Verringerung des Radonnachschubs zu einer Rückdiffusion des Radons aus dem unkontaminierten in das kontaminierte Bodenvolumen. Der verringerte Radonnachschub und die Rückdiffusion des Radons in die Tiefe haben den Rückgang des Radongehalts der Bodenluft im unkontaminierten Teil der Bodensäule zur Folge.

Auch in S5 (140 cm Tiefe), also innerhalb des kontaminierten Bodenvolumens, wurde ein deutlicher Rückgang der Radonkonzentration der Bodenluft festgestellt. In wie weit es sich dabei um einen realen Meßeffect handelt, ist jedoch nicht quantifizierbar. Aufgrund des injizierten Benzinvolumens bzw. der sich daraus ergebenden Mächtigkeit des kontaminierten Bodenhorizontes (ca. 35 cm) konnte eingeschätzt werden, daß der in S5 gemessene Konzentrationsrückgang um 61 % zu stark war, um allein durch den oben diskutierten Akkumulations-Effekt erklären werden zu können. Als zusätzliche

Erklärung muß hier herangezogen werden, daß die Diffusionskonstante des Bodens im Bereich des Sondenhorizontes S5 durch das injizierte Benzin erheblich verringert wurden. Das schränkte den Einzugsradius der Clipperton-Sonde ein. Diese Änderung der Meßbedingungen im kontaminierten Bodenhorizont hätten eine neue Eichung der Clipperton-Sonde S5 erforderlich gemacht. Eine ungestörte Bodenluftprobenahme zur Eichung der Clipperton-Sonde war aber wegen der Benzinsättigung des entsprechenden Bodenhorizontes nicht möglich. Aufgrund der somit nicht definierbaren Meßbedingungen im kontaminierten Bodenhorizont, konnte die nachfolgend zur Injektion in S5 aufgezeichnete Radonzeitreihe nicht als quantitativ interpretierbar angesehen werden. Da außerdem befürchtet werden mußte, daß die aus dem Benzin entgasenden leichtflüchtigen Kohlenwasserstoffe (BTEX) am Detektor der Clipperton-Sonde kondensieren und so die Meßwerte verfälschen oder der Meßsensorik anderweitig schaden, wurde das Experiment 84 Stunden nach der Injektion beendet.

In Abb. 3-2. 28 ist der Rückgang des Radongehalts in den einzelnen Meßhorizonten nach Einstellung stabiler Konzentrationsverhältnisse im Vergleich zu dem schon in Abb. 3-2. 2 vorgestellten modellhaften, unbeeinflussten Radontiefenprofil des GAMS 3 illustriert. Aufgrund der durch die Benzininjektion veränderten Meßbedingungen in 140 cm Tiefe, ist die dort gemessene Radonkonzentration der Bodenluft als nicht quantitativ interpretierbar einzuschätzen.

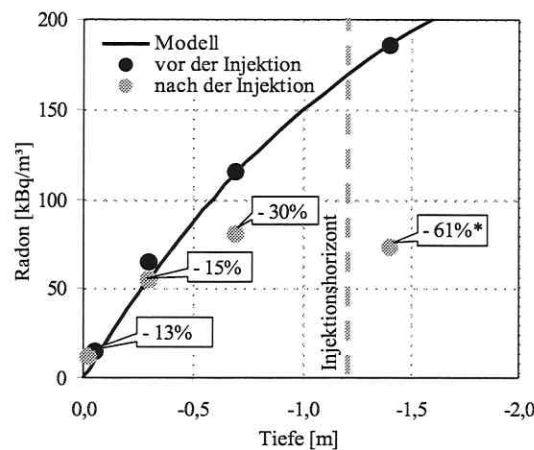


Abb. 3-2. 28: Rückgang der Radonkonzentrationen in den einzelnen Bodenhorizonten als Resultat einer Benzininjektion in 120 cm Tiefe (25 l) und Modellkurve des Radontiefenprofils des unkontaminierten Sandes (*: unsicherer Wert).

Tageszyklische Schwankungen der Radonkonzentration, wie sie während des im August 1999 an GAMS 2 durchgeführten Langzeitexperiments in geringen Bodentiefen festgestellt worden waren, wurden im Verlauf des Benzinexperiments nicht registriert. Im Meßzeitraum des Benzinexperiments (09.11. - 12.11.1999) waren die tageszyklischen Temperaturschwankungen und damit auch der Tagesgang des Temperaturgradienten am Interface Boden / Atmosphäre wesentlich schwächer ausgeprägt als im August 1999. Während die Temperaturdifferenz $\Delta T = T_{5cm} - T_{0cm}$ im August 1999 zwischen 6,3 °C und -5,7 °C schwankte (Abb. 3-2. 14), wurden während des Benzinexperiments

nur Schwankungen zwischen $2,7^{\circ}\text{C}$ und $-1,2^{\circ}\text{C}$ registriert. Somit kam das tageszyklische temperaturinduzierte "Atmen" des Bodens im Verlauf des Benzinexperiments nicht zum Tragen.

3.2.3.5.2 Das Deselexperiment

Zur Bestätigung der im Zuge des Benzinexperimentes gemachten Beobachtungen wurde ein zweites NAPL-Experiment durchgeführt. Dazu wurde in die Bodensäule des GAMS 4 20 l Diesel injiziert. Das Deselexperiment erstreckte sich über einen Beobachtungszeitraum von insgesamt 21 Tagen.

Im Vorfeld des Deselexperimentes war die Residualsättigung des Sandes für Diesel mit $S_{NAPL} = 0,25$ bestimmt worden. Unter Annahme einer flächig-homogenen Versickerung des Diesels unterhalb des Injektionshorizontes ergab sich aus der ermittelten Residualsättigung und der Porosität des Sandes ($n = 0,38$) sowie dem injizierten Dieselvolumen, daß der Diesel mindestens bis etwa 20 cm bis 25 cm unterhalb des Injektionshorizontes abgesickert war. Das heißt, daß der Meßhorizont S5 (140 cm) nach der NAPL-Injektion an der Basis der kontaminierten Bodenschicht lag, während sich die drei übrigen in der Bodensäule befindlichen Meßhorizonte oberhalb der NAPL-Kontamination befanden.

Der Verlauf der Radonmeßkurven aus den Sondenebenen S2, S3 und S4 (5 cm, 30 cm und 70 cm) über den gesamten Meßzeitraum ist in Abb. 3-2. 29 dargestellt. Auch beim Deselexperiment konnte aufgrund der nicht definierbaren Meßbedingungen im Sondenhorizont S5 nachfolgend zur Injektion, keine quantitativ gesicherte Aussage über den Verlauf der Radonzeitreihe in 140 cm Tiefe gemacht werden. Aus diesem Grund wurde die in S5 aufgenommenen Radonzeitreihe in Abb. 3-2. 29 nicht dargestellt.

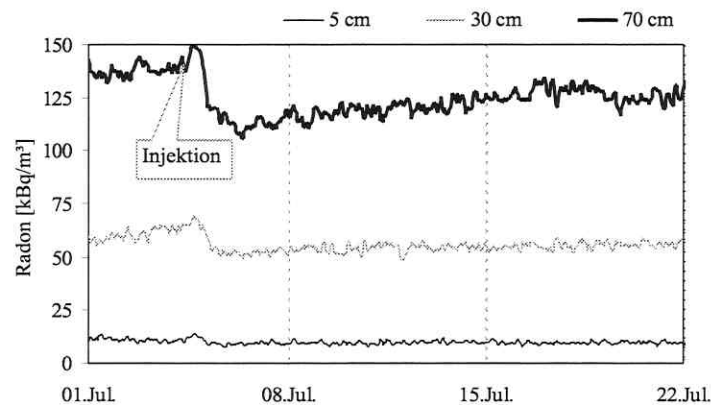


Abb. 3-2. 29: Radonkonzentration in drei Tiefenhorizonten nach einer Dieselinjektion in 120 cm Tiefe (20 l) über eine Zeitspanne von 21 Tagen.

In Abb. 3-2. 29 ist zu erkennen, daß es, wie auch bei dem Benzinexperiment, unmittelbar nach der NAPL-Injektion in den Sondenebenen S2, S3 und S4 zu einem kurzzeitigen Maximum der Radonkonzentrationen kam. Dieses Maximum, das über etwa 12 Stunden beobachtet wurde, ist in Tab. 3-2. 5 wiederum als initiales Maximum bezeichnet. Ursache des initialen Maximums ist die Verdrängung von 20 l Bodenluft durch die Dieselinjektion. Die Freisetzung hochvolatiler Substanzen ist im Falle des Diesels als zweite Ursache auszuschließen.

Wie auch beim Benzinexperiment wurde im weiteren Verlauf des Versuches beobachtet, daß es nach Abklingen des initialen Maximums in der gesamten Bodensäule zu einem Rückgang der Radonkonzentration der Bodenluft kam. Mit abnehmender Tiefe wurde der Konzentrationsrückgang geringer und in 5 cm Tiefe kaum mehr festgestellt. Der Rückgang der Radonkonzentrationen hat die oben diskutierte Akkumulation des Radons in der injizierten NAPL zur Ursache. Der in 70 cm Tiefe beobachtete leichte Wiederanstieg der Radonkonzentration von etwa 110 kBq/m³ auf letztlich 125 kBq/m³ kann mit einer weitergehenden aber verzögerten abwärtsgerichteten Migration des Diesels erklärt werden, wodurch sich der Einfluß der Dieselkontamination auf den Sondenhorizont S4 mit der Zeit etwas abschwächte. Der Rückgang der im kontaminierten Bodenhorizont (140 cm) aufgezeichneten Radonkonzentrationen hatte neben der Akkumulation des Radons im injizierten Diesel auch die Verringerung des Diffusionskoeffizienten des Sandes in diesem Bereich zur Ursache. Aufgrund dieser veränderten Meßbedingungen spiegeln die in 140 cm Tiefe ermittelten Radonkonzentrationen die tatsächlichen Verhältnisse nicht exakt wieder. Dieser Zusammenhang wurde im Rahmen des Benzinexperimentes besprochen.

In Abb. 3-2. 30 ist der Rückgang des Radongehalts in den einzelnen Meßhorizonten nach Einstellung stabiler Konzentrationsverhältnisse im Vergleich zu dem schon in Abb. 3-2. 2 vorgestellten modellhaften, unbeeinflussten Radontiefenprofil des GAMS 4 illustriert. Die während des temporären Maximums und im finalen Gleichgewicht in den einzelnen Sondenhorizonten erreichten Konzentrationen sind außerdem in Tab. 3-2. 5 aufgeführt.

Tab. 3-2. 5: Maximale bzw. minimale Radonkonzentrationen der Bodenluft in den einzelnen Meßtiefen während der einzelnen Stadien des Deselexperimentes (*: unsicherer Wert).

Sonden- ebene	Ausgangswert $C_{t=0}$ [kBq/m ³]	Initiales Maximum [kBq/m ³]	Finale Gleichgewicht [kBq/m ³]
5 cm	11	13	10
30 cm	62	70	55
70 cm	139	150	125
140 cm	206	(206*)	(43*)

Während bei der Durchführung des Benzinexperimentes (09. - 12.11.1999) kaum signifikante tageszyklische Schwankungen des Radongehalts der Bodenluft auftraten, wurde während des Deselexperimentes (Juli 2000), aufgrund der wesentlich ausgeprägteren tageszyklischen Temperaturschwankungen ein Radon-Tagesgang festgestellt. In Abb. 3-2. 31 ist die Zeitreihe der Differenz zwischen der Temperatur in 5 cm Tiefe und am Interface Boden / Atmosphäre ($\Delta T = T_{5cm} - T_{0cm}$) zusammen mit der Radonzeitreihe aus 5 cm Bodentiefe für einen repräsentativen Zeitraum von sieben Tagen dargestellt. Als beispielhafter Zeitraum wurde die Woche gewählt, in welcher die Dieselinjektion vorgenommen worden war. Neben den tageszyklischen Schwankungen des Radongehalts der Bodenluft ist zum Zeitpunkt der Injektion sowohl das initiale Maximum der Radonkonzentration in 5 cm Tiefe als auch ein sehr scharfes Minimum von ΔT zu erkennen.

Dieser plötzliche Rückgang von ΔT hat den plötzlichen Aufstieg kühler Bodenluft aus der Tiefe aufgrund des injizierten Diesels zur Ursache.

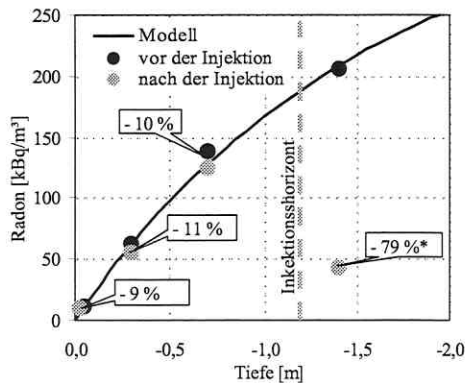


Abb. 3-2. 30: Rückgang der Radonkonzentrationen in den einzelnen Bodenhorizonten als Resultat einer Dieselinjektion in 120 cm Tiefe (20 l) und Modellkurve des Radontiefenprofils des unkontaminierten Sandes (*: unsicherer Wert).

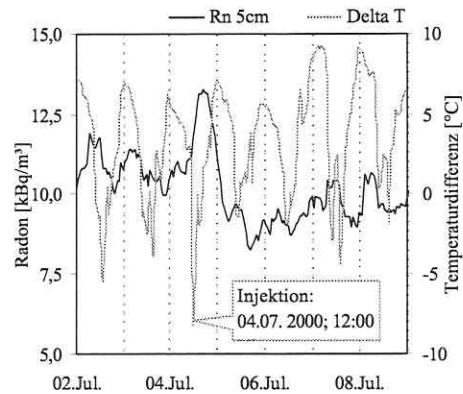


Abb. 3-2. 31: Temperaturdifferenz $\Delta T = T_{5cm} - T_{0cm}$ und Radonkonzentration in 5 cm Bodentiefe (geglättet) über einen repräsentativen Zeitraum von sieben Tagen (Stundenwerte).

3.2.3.5.3 Zusammenfassung der Ergebnisse der NAPL-Experimente

In Auswertung der NAPL-Experimente an den GAMS kann festgestellt werden, daß eine NAPL-Kontamination des Untergrundes innerhalb des kontaminierten Bodenvolumens grundsätzlich eine Verringerung der Radonkonzentration der Bodenluft zur Folge hat. Diese Verringerung ist auf den oben beschriebenen Akkumulations-Effekt zurückzuführen. Eine solche Verringerung konnte sowohl am Ende des Benzinexperiments als auch am Ende des Dieseleperiments im kontaminierten Bereich der jeweiligen Bodensäule (Sonde S5 in 140 cm Tiefe) beobachtet werden. Eine quantitative Einschätzung des Anteils des Akkumulations-Effektes an diesem drastischen Konzentrationsrückgang wird jedoch dadurch erschwert, daß sich im NAPL-kontaminierten Bodenhorizont sowohl der Diffusionskoeffizient als auch die Gaspermeabilität des Bodens in Abhängigkeit von S_{NAPL} verringern.

Die starke Reduktion der Radonkonzentration der Bodenluft im kontaminierten Bodenvolumen zieht auch eine signifikante Verringerung der Radonkonzentration im unkontaminierten Teil der Bodensäule nach sich. Wie weit sich die Verringerung des Radongehalts der Bodenluft in den unkontaminierten Boden fortpflanzt, hängt neben der Stärke der Kontamination auch stark vom Diffusionskoeffizienten und von der Gaspermeabilität des unkontaminierten Bodens ab.

Aufgrund der mit Hilfe der GAMS gewonnenen Ergebnisse kann geschlußfolgert werden, daß die im Rahmen dieser Arbeit untersuchte Methode der Detektion von NAPL-Kontaminationen des Untergrundes mit Hilfe des Radongehalts der Bodenluft auch unter Feldbedingungen anwendbar sein sollte. Dabei sind grundsätzlich Radonminima der Bodenluft als NAPL-Indikatoren zu erwarten. Zur Überprüfung der Feldtauglichkeit der Methode und zur Entwicklung einer effizienten Meßtechnologie wurden an drei realen Schadensfällen Radonkartierungen durchgeführt. Die Feldexperimente und ihre Ergebnisse werden im folgenden Kapitel beschrieben.

3.3 Feldexperimente

3.3.1 Problemstellung

Die eingangs postulierte Arbeitsthese (Kap. 1) konnte im Zuge der bisher beschriebenen Untersuchungen sowohl theoretisch unterlegt als auch durch klein- und mittelmaßstäbliche Experimente im Labor bzw. in den GAMS praktisch nachvollzogen werden. Damit wurde die Möglichkeit der Nutzung des in der Bodenluft natürlich vorkommenden Radons als Tracer zur indirekten NAPL-Detektion prinzipiell bestätigt.

Ziel der Feldexperimente war es, die Detektionsmethode zur Überprüfung ihrer Feldtauglichkeit an realen Schadensfällen einzusetzen. Dabei sollte auf ausgewählten NAPL-kontaminierten Standorten das jeweilige flächige Radon-Verteilungsmuster in einem ausreichend dichten Raster aufgenommen und der mit herkömmlichen Untersuchungsmethoden kartierten Ausdehnung der NAPL-Kontamination gegenübergestellt werden.

Zur Durchführung der Felduntersuchungen war zunächst die Erarbeitung einer geeigneten Feldtechnologie notwendig. Dabei stand als grundsätzliche Forderung, daß die Feldtechnologie bei möglichst geringem technischen Aufwand eine im Sinne der Aufgabenstellung repräsentative Bodenluftprobenahme erlaubt. In diesem Zusammenhang waren besonders die in Kapitel 3.2.3.3 diskutierten kurzfristigen meteorologischen Einflüsse auf das Radontiefenprofil zu beachten.

Des weiteren war die Auswahl von geeigneten Standorten notwendig. Die wichtigste Anforderung an diese Standorte war eine in ihrer Ausdehnung bekannte NAPL-Kontamination des Untergrundes. Die Standorte sollten sich nach Möglichkeit in ihrer Ausdehnung und in der Größe der Kontamination unterscheiden. Zudem sollte sich wenigstens einer der Standorte durch eine relativ einheitliche und ungestörte geologische Situation auszeichnen.

3.3.2 Experimentelle Herangehensweise

3.3.2.1 Erarbeitung einer Feldtechnologie

In der Literatur wird bei der Diskussion der Ergebnisse von Radonmessungen der Bodenluft die jeweils zum Einsatz gekommene Feldtechnologie häufig nur unzureichend genau beschrieben. Die jeweiligen Technologien unterscheiden sich sowohl bezüglich der verwendeten Meßtechnik als auch der Vorgehensweise bei der eigentlichen Probenahme zum Teil erheblich. Da eine repräsentative Probenahme Voraussetzung für sinnvoll interpretierbare Meßdaten ist, wurde für die in dieser Arbeit beschriebenen Feldexperimente eine Probenahmetechnologie entwickelt, welche alle Ergebnisse der in den vorangegangenen Kapiteln beschriebenen theoretischen Überlegungen und praktischen Untersuchungen berücksichtigt. Danach muß eine Feldtechnologie zur Durchführung von repräsentativen Kurzzeitmessungen des Radongehalts der Bodenluft im Sinne der Aufgabenstellung die im folgenden aufgeführten Kriterien erfüllen.

- Die Bodenluftprobenahme muß aus einem genau definierbaren Tiefenhorizont möglich sein. Diese Probenahmetiefe muß während der gesamten Probenahmekampagne beibehalten werden.
- Um tageszyklische atmosphärische Einflüsse auf den Radongehalt der Bodenluft auszuschließen, sollte die Probenahmetiefe in normal lockeren, sandigen Böden unterhalb 50 cm liegen.

- Um bei der Bodenluftprobenahme ein repräsentatives Bodenvolumen einzubeziehen, sollte das abgepumpte Bodenluftvolumen etwa 1 l betragen. Dieses Probenvolumen muß während der gesamten Probenahmekampagne einheitlich sein. Dabei muß in jedem Fall gewährleistet werden, daß das entnommene Bodenluftvolumen tatsächlich aus dem entsprechenden Bodenhorizont stammt und bei der Probenahme keine Fremdluft angesaugt wird. Diese Gefahr ist besonders bei bindigen Böden gegeben.
- Im Gegensatz zur Radonkonzentration der Bodenluftprobe, welche bezogen auf die Meßzeit an einem Probenahmepunkt praktisch unverändert bleibt, zerfällt das Thoron innerhalb der ersten 5 min nach der Probenahme nahezu vollständig. Um vergleichbare Meßergebnisse zu gewährleisten, sollte nur die Radonkonzentration in die Auswertung eingehen und das Thoron unberücksichtigt bleiben.
- Um abschätzende Aussagen über die Migrationslänge des Radons im jeweiligen Boden machen zu können, sollte die Gaspermeabilität des Bodens im Zuge der Probenahme halbquantitativ bestimmt werden.
- Die Bodenfeuchte sollte an jedem Meßpunkt in der jeweiligen Probenahmetiefe bestimmt werden, um bei der Interpretation der Meßergebnisse gegebenenfalls den Einfluß der Bodenfeuchte auf das Radontiefenprofil berücksichtigen zu können.
- Die aktuelle Außentemperatur und der aktuelle Luftdruck sollten an jedem Meßpunkt registriert werden, um während der Meßkampagne gegebenenfalls auftretende starke Druck- oder Temperaturschwankungen bei der Interpretation der Meßergebnisse berücksichtigen zu können.

Die im folgenden beschriebene Meßtechnologie berücksichtigt sämtliche der oben genannten Forderungen. Die zum Einsatz kommenden Meßgeräte sind feldtauglich und entsprechen dem Stand der Technik. Im Falle eines reibungslosen Ablaufs der Radonkartierung, muß bei Anwendung der beschriebenen Meßtechnologie mit einem Zeitaufwand von etwa 20 min pro Meßpunkt gerechnet werden. Dabei verlangt die Meßtechnologie einen personellen Aufwand von nur einer Person.

Als geeignetes mobiles Meßsystem wurde der Radonmonitor Alpha-GUARD PQ2000 der Firma Genitron Instruments, Frankfurt /M. in leicht abgewandelter Form verwendet. Bei dem Alpha-GUARD handelt es sich um einen Radonmonitor, welcher die Alphazerfälle in dem in die Meßkammer gepumpten Luftvolumen registriert. Über die Anzahl der Zerfälle pro Zeiteinheit (counts per minute, cpm) wird die jeweilige Radonkonzentration in der Luftprobe ermittelt und geräteintern zusammen mit der aktuellen Meßzeit gespeichert.

Im Alpha-GUARD kommt als Meßkammer eine Impulsionskammer (3D DSP) mit einem Kammervolumen von 0,6 l zum Einsatz. Die Empfindlichkeit des Detektors liegt bei 1 cpm bei einer Radonkonzentration von 20 Bq/m³. Die Spanne der registrierbaren Radonkonzentrationen erstreckt sich über sechs Größenordnungen und liegt zwischen 2 Bq/m³ und 2000 kBq/m³. Die Registrierung des Radongehalts ist dabei im Minutentakt, im 10-Minutentakt oder im Stundentakt möglich. Der Betrieb des Alpha-GUARD ist sowohl im Diffusionsmodus, das heißt mit rein diffusivem Radoneintritt in die Meßkammer als auch im Flussmodus, das heißt mit aktivem Einpumpen der Luftprobe in die Meßkammer möglich. Aufgrund der hier vorliegenden Aufgabenstellung wurde der Alpha-GUARD im Flussmodus mit einer minütlichen Datenregistrierung betrieben.

Neben der Registrierung des Radongehalts erlaubt der Alpha-GUARD eine zeitparallele Aufzeichnung der Temperatur der Außenluft, des atmosphärischen Luftdrucks und der Luftfeuchte. Der Alpha-GUARD ist detailliert in Genrich (1999) beschrieben. Als Bodenluftpumpe wurde die zugehörige, radondichte Alpha-PUMP verwendet, welche Pumpraten von 1 l/min bis 0,03 l/min ermöglicht.

Als Bodenluftsonde wurde ein ebenfalls von Genitron Instruments vertriebenes System verwendet. Das Sondensystem und sein Funktionsprinzip ist in Abb. 3-3. 1 skizziert und soll nachfolgend kurz beschrieben werden.

Das verwendete Sondensystem besteht aus einer robusten, aus Stahl gefertigten, dickwandigen Außensonde, die mit einem schweren Kunststoffhammer bis in die gewünschte Tiefe gerammt wird (Abb. 3-3. 1/1). Die Außensonde ist hierfür optional bis 2 m verlängerbar. Nachfolgend wird die Außensonde ($\varnothing$ ca. 3 cm) wieder um wenige Zentimeter gezogen, um einen Hohlraum an der Basis der Sondierung zu schaffen. Danach wird die zugehörige Innensonde in die Außensonde eingeführt und dabei der Verschlussniet aus der Lufteintrittsöffnung am unteren Ende der Außensonde gestoßen. Der Verschlussniet verbleibt nach der Probenahme im Sondenloch (Abb. 3-3. 1/2). Die Probenahme erfolgt durch Ansaugen der Bodenluft aus der definierten Tiefe durch die Innensonde. Durch die beiden Packer im Sondensystem wird gewährleistet, daß dabei keine Fremdluft angesaugt wird.

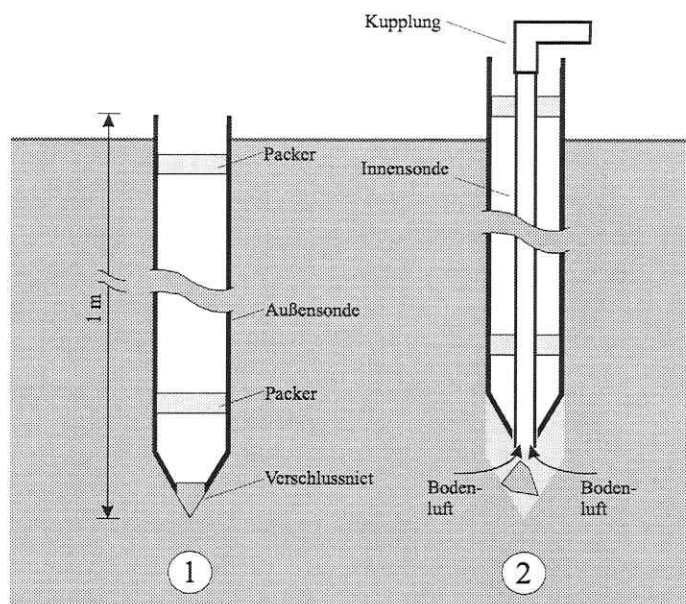


Abb. 3-3. 1: Schematische Darstellung der verwendeten Bodenluftsonde und ihres Funktionsprinzips.

Zur Gewährleistung repräsentativer Meßergebnisse wurde die Bodenluftprobenahme nach einem festen Ablauf durchgeführt, welcher bei minimalem technischen Aufwand alle oben genannten Forderungen berücksichtigte. Die vollständige zur Bodenluftprobenahme benötigte Meßanordnung ist in Abb. 3-3. 2 schematisch dargestellt (Anhang G, Bild 5). Die in enger Zusammenarbeit mit der IAF Radioökologie Dresden und der Geophysik GGD – Gesellschaft für Geowissenschaftliche Dienste Leipzig erarbeitete Meßtechnologie ist im folgenden Schritt für Schritt beschrieben.

1. Spülen der Meßkammer des Alpha-GUARD mit Atmosphärenluft für ca. 2 min mit einer Leistung der Alpha-PUMP von 1 l/min
2. Einschlagen der Außensonde bis in eine Bodentiefe von 70 cm
3. Ziehen der Außensonde um 5 cm zur Schaffung eines definierten Hohlraums an der Basis der Sondierung (65 cm - 70 cm Tiefe)
4. Einführen der Innensonde in die Außensonde und Herausdrücken des Verschußniets
5. Anschließen der Alpha-PUMP und des Alpha-GUARD an die Innensonde
6. Entnahme von 1 l Bodenluft aus der Meßtiefe mit einer Leistung der Alpha-PUMP von 1 l/min; Kontrolle der abgepumpten Luftmenge mit Hilfe eines 1 Liter-Luftsackes am Luftaustrittsstutzen des Alpha-GUARD
7. Registrierung des Zeitbedarfes für den Füllvorgang des Luftsackes zur halbquantitativen Einschätzung der Gaspermeabilität des Bodens; die Pumpdauer bei gut permeablen Böden liegt bei der gewählten Pumprate bei etwa 60 s - 70 s; bei bindigen Böden sind Bodenluftprobenahmen nur bis 5 min Pumpdauer sinnvoll; bei Pumpzeiten > 5 min wird ein neuer Meßpunkt oder eine geringere Pumprate empfohlen, da bei einer zu geringen Gaspermeabilität des Bodens die Gefahr des Ansaugens von Außenluft gegeben ist
8. Trennung des Alpha-GUARD von der Innensonde; Verschließen des Luft Eintritts- und Luftaustrittsstutzens der Meßkammer des Alpha-GUARD; Ziehen der Sonden
9. Einhalten einer Wartezeit von 5 min zur Gewährleistung des nahezu vollständigen Zerfalls des Thorons vor der eigentlichen Datenaufnahme; danach Registrierung der Radonkonzentration in der Meßkammer des Alpha-GUARD über eine Dauer von wenigstens 10 min im 1-min-Interval (wenigstens 10 Meßwerte)
10. automatisches Abspeichern der registrierten Werte der Radonkonzentration der Bodenluft bei gleichzeitiger Registrierung von Außentemperatur und Luftdruck
11. Bestimmung der Bodenfeuchte an der Sohle des Sondenloches mit Hilfe des TDR-Feuchtemeßgerätes "Easy-Test" der Firma Easy Test, Ltd., Lublin

Zur Auswertung der im Kapitel 3.3.3 diskutierten Meßergebnisse wurden die an jedem Meßpunkt registrierten mindestens zehn Radonmeßwerte zu jeweils einem Mittelwert zusammengefaßt. Nachfolgend wurden die an den Meßpunkten bestimmten Radonkonzentrationen mit Hilfe der Kriging-Methode auf ein Gitter interpoliert, Isanomalien berechnet und in Kartenform dargestellt.

Die Kriging-Methode ist ein statistisches Interpolationsverfahren, welches besonders bei geowissenschaftlichen Fragestellungen Anwendung findet. Der Vorteil des Verfahrens besteht gegenüber den deterministischen Interpolationsverfahren darin, daß durch Berücksichtigung der Verteilung der Meßpunkte und der Variation der Meßwerte auch bei größeren Lücken in der Stützwertverteilung gute Ergebnisse erreicht werden. Die Maschenweite des zu interpolierenden Gitters ist auch hier vom mittleren Abstand der Meßpunkte abhängig. Der Glättungsgrad der Isanomalien wird optional durch zwei Parameter gesteuert, welche zum einen die Reproduzierbarkeit der Daten an einem Meßpunkt (Error Variance) und zum anderen die kleinräumige Datenvarianz berücksichtigen (Micro Variance). Die beiden Parameter werden zum sogenannten Nugget-Effekt

zusammengefaßt, der sich letztlich über den Nugget-Faktor ausdrückt. Mit wachsendem Nugget-Faktor wird der Einfluß von Meßwerten einzelner Stützstellen immer stärker zugunsten des sich abzeichnenden allgemeinen Trends unterdrückt, wodurch der statistische Charakter des Verfahrens in den Vordergrund rückt.

Die aufgezeichneten Daten des Luftdrucks P , der Lufttemperatur T und der Bodenfeuchte S_w müssen nur dann in die Interpretation der Meßwerte einbezogen werden, wenn eine sehr starke Änderung dieser Parameter als Funktion der Zeit (P und T) bzw. des Meßpunktabstandes (S_w) vorliegt.

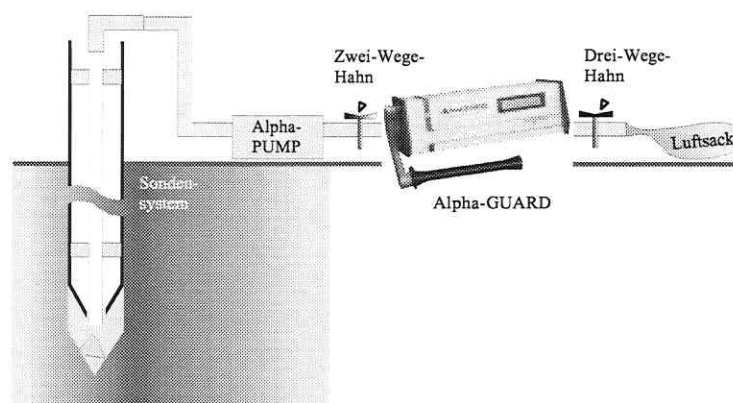


Abb. 3-3. 2: Komplette Meßanordnung zur Bodenluftprobenahme.

3.3.2.2 Auswahl der Standorte

Das Ziel der Feldversuche war es, die an NAPL-kontaminierten Standorten mit Hilfe herkömmlicher Detektionsmethoden lokalisierte Ausdehnung der jeweiligen Kontamination mit Hilfe einer Radon-Kartierung zu bestätigen oder gegebenenfalls zu präzisieren. Dabei sollte der für die Radon-Kartierung betriebene Aufwand deutlich geringer sein als der, der für die Erkundung mit Hilfe der herkömmlichen Technik notwendig war. Generell wurden an die beispielhaften Standorte die im folgenden aufgeführten Anforderungen gestellt.

- Die NAPL-Kontamination sollte in ihrer Ausdehnung weitestgehend bekannt sein.
- Aufgrund der Diffusionslänge des Radons in trockenen, sandigen Böden von etwa 2 m, sollte die NAPL-Kontamination nicht tiefer als 2 - 3 m unter der Erdoberfläche liegen.
- Wenigstens einer der Standorte sollte sich durch eine homogene und ungestörte geologische Situation auszeichnen.

Da die Sanierung eines NAPL-kontaminierten Standortes zumeist relativ zeitnah auf die Untersuchung des Schadensfalles folgt, gestaltete sich die Suche nach kontaminierten, ausreichend untersuchten aber noch unsanierten Schadensfällen schwierig. Zudem werden die zu einem Standort vorliegenden Untersuchungsergebnisse von dem jeweiligen Grundstückseigner im Regelfall nur ungern bzw. unter Auflagen Dritten zur Verfügung gestellt. Aus diesem Grund werden die im folgenden beschriebenen ausgewählten Standorte anonym behandelt. Die drei beispielhaft untersuchten Standorte, werden im folgenden als Standort 1, 2 und 3 bezeichnet. Die Radonkartierungen erfolgten in Zusammenarbeit mit der Geophysik GGD – Gesellschaft für Geowissenschaftliche Dienste Leipzig.

3.3.2.2.1 Standort 1

Als erster Standort wurde das Grundstück einer 1966 errichteten und 1995 stillgelegten Tankstelle im Großraum Leipzig untersucht. Das ehemalige Tankstellengrundstück ist relativ eben und hat eine Ausdehnung von etwa 850 m². Das nähere Umfeld des Standortes wird vorwiegend als Wohngebiet genutzt.

Da auf Tankstellengrundstücken zumeist die tanktechnischen Einrichtungen die kritischen Bereiche bezüglich einer NAPL-Kontamination des Untergrundes darstellen, sollen die auf Standort 1 vorhandenen tanktechnischen Einrichtungen im folgenden kurz beschrieben werden. Die genaue Lage der einzelnen Einrichtungen ist Abb. 3-3. 3 (Kap. 3.3.3.1) zu entnehmen.

Auf dem Grundstück sind insgesamt vier unterirdische Lagertanks, ein unterirdischer Leichtflüssigkeitsabscheider sowie zwei Zapfinseln mit vier bzw. zwei inzwischen rückgebauten Zapfsäulen vorhanden. Bei den Lagertanks handelt es sich im einzelnen um einen 20 m³-Tank (Benzin), zwei 10 m³-Tanks (Benzin, Diesel) und einen 5 m³-Öltank. Die Kraftstofftanks, die im südlichen Teil des Grundstückes liegen, wurden über Einfüllschächte befüllt, welche sich unmittelbar westlich der Tanks befinden (in Abb. 3-3. 3 nicht dargestellt). Der Öltank, der im Bereich der westlichen Zapfinsel liegt, wurde direkt befüllt. An der zentralen Zapfinsel wurde ehemals Vergaserkraftstoff angeboten (vier Zapfsäulen). Die Zapfinsel an der westlichen Grundstücksgrenze war mit zwei Dieselpapfäulen bestückt. Der Leichtflüssigkeitsabscheider ist im östlichen Teil des Grundstückes installiert (in Abb. 3-3. 3 nicht dargestellt).

Der Standort ist zu etwa 80 % mit Kopfsteinpflaster versiegelt. Im Bereich der Kraftstofflagertanks liegt keine Oberflächenversiegelung vor. Dieser Bereich ist mit Rasen und Buschwerk bestanden. Die genaue Lage der versiegelten bzw. unversiegelten Bereiche ist Abb. 3-3. 3 zu entnehmen.

Bei dem natürlich anstehenden Boden handelt es sich um sandige Schluffe, die mit zunehmender Tiefe in schluffige Sande übergehen. Im oberen halben Meter liegt auf einem Großteil des Geländes aufgefülltes kiesig-sandiges Material vor. Der Grundwasserspiegel wurde im Frühjahr 1998 in ca. 11 m Tiefe erbohrt. Dabei ist anzumerken, daß dieser Grundwasserflurabstand stark von lokalen Grundwasserabsenkungsmaßnahmen beeinflusst wird und nicht dem natürlichen Grundwasserflurabstand entspricht.

Im Bereich des Grundstückes liegt eine erhebliche Kontamination der grundwasserungesättigten Bodenzone mit Mineralölkohlenwasserstoffen (MKW) und leichtflüchtigen aromatischen Kohlenwasserstoffen (BTEX) vor. Die Ausdehnung dieser Kontamination konnte in den Jahren 1990, 1992 und 1998 im Zuge von drei Sondierungskampagnen weitestgehend lokalisiert bzw. eingegrenzt werden. Insgesamt wurden dabei 22 Rammkernsondierungen abgeteuft. Die festgestellten Kontaminationen konzentrieren sich auf den Bereich der beiden Zapfinseln und den Bereich nordwestlich der Kraftstofflagertanks. Die stärkste Kontamination wurde im Umfeld der westlichen Zapfinsel bzw. des dortigen Öltanks lokalisiert. Die Lage der Rammkernsondierungen sowie die mit Hilfe der Rammkernsondierungen festgestellte horizontale Ausdehnung der NAPL-Kontamination ist Abb. 3-3. 3 zu entnehmen. Dabei schließt die Linie, welche die lokalisierte Kontamination umgrenzt, NAPL-Gehalte des Bodens mit Werten von > 1000 mg/kg ein. Die vertikale Ausdehnung der Kontamination beginnt stellenweise unmittelbar unter der Geländeoberkante (Bereich Öltank) und erstreckte sich bis in eine maximale Tiefe von 10 m.

3.3.2.2.2 Standort 2

Als zweiter Standort wurde das Grundstück einer weiteren Tankstelle im Großraum Leipzig gewählt. Die Tankstelle wurde seit 1909 betrieben und war 1992 stillgelegt worden. Das untersuchte Grundstück hat eine Ausdehnung von etwa 650 m². Es wird im Süden durch eine Kleingartensparte und im Westen durch eine Eisenbahntrasse begrenzt. Östlich des Tankstellengrundstücks schließt sich Wohnbebauung an. Nördlich des Grundstücks befindet sich jenseits einer Hauptverkehrsstraße ebenfalls Wohnbebauung.

Auch für den Standort 2 sollen zunächst die relevanten tanktechnischen Einrichtungen genannt werden, da diese die potentiellen Schadensherde darstellen. Die genaue Lage der tanktechnischen Einrichtungen kann Abb. 3-3. 4 (Kap. 3.3.3.2) entnommen werden. Auf dem Gelände der ehemaligen Tankstelle befinden sich insgesamt fünf Lagertanks im Untergrund. Bei den Tanks handelt es sich im einzelnen um einen 20 m³-Benzintank, zwei 10 m³-Benzintanks, einen 1 m³-Öltank und einen 2 m³-Tank unbekannter ehemaliger Belegung. Die Tanks wurden über Einfüllschächte befüllt, die sich südwestlich der Zapfstraße befinden (in Abb. 3-3. 4 nicht dargestellt). Die Zapfinsel liegt im zentralen Bereich des Grundstückes und war ursprünglich mit 2 Benzinzapfsäulen bestückt. Zwei weitere Zapfsäulen waren auf Höhe der nördlichen Stirnseite des Tankstellengebäudes installiert. An der südöstlichen Grundstücksgrenze befand sich ehemals ein inzwischen zurückgebauter Öllagerraum. Der Leichtflüssigkeitsabscheider ist nördlich des ehemaligen Öllageraums unterirdisch installiert (in Abb. 3-3. 4 nicht dargestellt).

Das Untersuchungsgelände ist nahezu eben und zu etwa 60 % mit Kopfsteinpflaster bzw. zu etwa 30 % mit Beton versiegelt. Ein unversiegelter Streifen an der südwestlichen Grundstücksgrenze ist mit Rasen und Büschen bestanden (ca. 10 % der Fläche). Die genaue Lage Versiegelungsflächen ist im Detail Abb. 3-3. 4 zu entnehmen. Im Bereich der Zapfstraße und westlich davon wurde unterhalb des Kopfsteinpflasters in etwa 30 cm Tiefe eine zusätzliche Magerbetonschicht festgestellt, welche die Probenahme in diesem Bereich erschwerte.

Bei dem natürlich anstehenden Boden handelt es sich vorwiegend um feinsandige Schluffe und schluffige Feinsande, die stellenweise von Auelehmen unterlagert werden. Im oberen halben Meter liegt zumeist eine sandige Auffüllung mit Fremdmaterial vor. Der Grundwasserspiegel wurde in ca. 2,2 m Tiefe erbohrt (September 1996). Der obere Grundwasserleiter, der bis in eine Tiefe von etwa 3,5 m reicht, besteht vornehmlich aus sandigem Material.

Im Bereich des Standortes liegen in der grundwasserungesättigten Bodenzone deutlich erhöhte Konzentrationen an Mineralölkohlenwasserstoffen (MKW) und leichtflüchtigen aromatischen Kohlenwasserstoffen (BTEX) vor. Die Kontamination wurde in den Jahren 1993 und 1995 im Zuge von drei Sondierungskampagnen mit insgesamt 31 Rammkernsondierungen lokalisiert und weitestgehend eingegrenzt. Das Schadenszentrum befindet sich im Zapfstraßenbereich, wobei die höchsten Kontaminationen im direkten Umfeld der Zapfinsel und nordöstlich des Tankstellengebäudes festgestellt wurden. Die Lage der Rammkernsondierungen und die flächige Ausdehnung der mit Hilfe der Rammkernsondierungen lokalisierten Kontamination ist Abb. 3-3. 4 zu entnehmen. Die Linie, welche die lokalisierte NAPL-Kontamination umgrenzt, schließt auskartierte NAPL-Gehalte des Bodens mit Werten von > 500 mg/kg ein. Die Tiefenersteckung der Kontamination beginnt ca. 1,5 m unter der Geländeoberkante und reicht bis in den Aquifer.

3.3.2.2.3 Standort 3

Als drittes Testfeld wurde das Gelände der mittlerweile völlig rückgebauten Betankungsanlage eines Flugplatzes im Großraum Schwerin gewählt. Der Flughafen ist seit 1936 in Betrieb. Die Betankungsanlage wurde bis etwa 1992 betrieben. Das untersuchte Gelände hat eine Ausdehnung von etwa 120.000 m² und ist damit bedeutend größer als die oben beschriebenen Standorte 1 und 2.

Die ehemalige Betankungsanlage befand sich etwa im Zentrum des Untersuchungsgeländes. Als relevante tanktechnische Einrichtungen waren hier ehemals vier 10 m³ Hochtanks und zwei unterirdische 16 m³ Lagertanks vorhanden (Abb. 3-3.6; Kap. 3.3.3.1). Außerdem befand sich unmittelbar südöstlich der Hochtanks eine Kerosin-Umpumpstation (in Abb. 3-3.6 nicht dargestellt).

Das Untersuchungsgelände zeigt kaum Relief. Es wird im Süden durch eine Rollbahn, im Westen durch einen Parkplatz und im Norden und Osten durch teilweise mit Bäumen bestandenes Brachland begrenzt. Das Untersuchungsgelände ist bis auf ein einzelnes kleines Gebäude, welches im Zentrum des Geländes steht, unversiegelt und zeichnet sich durch eine sehr homogene, ungestörte geologische Situation aus. Die grundwasserungesättigte Bodenzone wird von Fein- bis Grobsanden dominiert, die bisweilen von kiesigen Lagen durchzogen werden. Generell wurden im Zuge vorangegangener Untersuchungen in den oberen 2 bis 3 m Mittel- bis Grobsande und darunter Fein- bis Mittelsande erbohrt. Als mittlere Porosität der Sande wurde $n = 0,36$ festgestellt. Der natürliche Grundwasserflurabstand auf dem Standort wurde mit etwa 4 m bis 5 m ermittelt, wobei die Amplitude der Ganglinie im Jahresmittel ca. 1 m beträgt. Es liegt eine nordwestliche Grundwasserfließrichtung vor. Die Aquiferbasis liegt in 25 m Tiefe.

Die Kontamination des Standortes ist in erster Linie durch eine großflächige, dem Grundwasser aufschwimmende Kerosin-Fahne gegeben, welche 1994 mit Hilfe von ca. 40 Rammkernsondierungen und Grundwassermeßstellen weitestgehend lokalisiert und eingegrenzt wurde. Die Kerosin-Fahne erstreckt sich in Grundwasserfließrichtung (Nordwest) über eine Länge von etwa 300 m, weist eine seitliche Ausdehnung von etwa 150 m und im Schadenszentrum Mächtigkeiten bis zu 0,85 m auf. Die dem Grundwasser aufschwimmenden etwa 900 m³ Kerosin bedecken eine Fläche von ca. 13.600 m². Die aus aktuellen Daten konstruierte Ausdehnung der Kerosin-Fahne ist Abb. 3-3.6 zu entnehmen. Des weiteren wurden im Zuge der Sondierungen zur Erkundung des Schadensfalls auch in der grundwasserungesättigten Bodenzone erhöhte Mineralölkohlenwasserstoffgehalte festgestellt (Residualphase), wobei diese sehr inhomogen im Sedimentkörper verteilt sind. Diese Bodenkontaminationen liegen im Verbreitungsbereich des dem Grundwasser aufschwimmenden Kerosins bzw. gehen darüber hinaus. Die Kerosin-Residualphase bedeckt eine Fläche von ca. 28.000 m². Die höchsten ermittelten MKW-Konzentrationen wurden mit 48.000 mg/kg in Tiefen zwischen 4 m und 6 m festgestellt, was in etwa dem Grundwasserschwankungsbereich entspricht. Aber auch in geringeren Bodentiefen wurden erhöhte MKW-Konzentrationen erbohrt.

Mit dem Ziel der Präzisierung der vorhandenen Untersuchungsergebnisse zur NAPL-Kontamination der grundwasserungesättigten Bodenzone, wurden im Zuge der Radonkartierung fünf zusätzliche Rammkernsondierungen niedergebracht, welche die gesamte grundwasserungesättigte Bodenzone durchteufen. Vier der Rammkernsondierungen wurden im Verbreitungsbereich der aufschwimmenden Kerosinphase (RKS 1 - 4) und eine Sondierung in unkontaminiertem Gelände positioniert (RKS 5). Die Lage der RKS 1-5 ist ebenfalls in Abb. 3-3.6 dargestellt.

Im Gegensatz zu den beiden oben besprochenen Standorten, welche zwar erkundet, aber noch unsaniert waren, werden auf Standort 3 seit 1999 umfangreiche Grundwassersanierungsmaßnahmen

durchgeführt. Dazu wurden auf dem Gelände insgesamt 13 Gruppen von Sanierungsbrunnen installiert (B2 bis B14), mit deren Hilfe sowohl kontaminiertes Grundwasser gefördert als auch die aufschwimmende Kerosinphase abgesaugt wird. Aufgrund des kontinuierlichen Abpumpens und anstromigen Wiederversickerns von Grundwasser liegt auf dem Gelände kein unbeeinflusster Grundwasserspiegel vor. Vielmehr werden im Umfeld der einzelnen Sanierungsbrunnen Absenktrichter im Grundwasserspiegel angetroffen. Die Mächtigkeit und der Flurabstand der aufschwimmenden Kerosinphase wird maßgeblich von den Absenktrichtern im Umfeld der Sanierungsbrunnen bestimmt, da sich die Phase in den Absenktrichtern sammelt und somit dort mit erhöhten Mächtigkeiten auftritt.

3.3.3 Ergebnisdiskussion

3.3.3.1 Standort 1

Zur Kartierung der flächigen Radonverteilung auf Standort 1 wurden im Juli 2000 an insgesamt 48 Stellen Bodenluftproben entnommen. Bei der Probenahme wurde gemäß der oben beschriebenen Meßtechnologie verfahren. Während der Meßkampagne, die sich über zwei Tage erstreckte, traten keine Niederschläge oder außergewöhnliche Schwankungen der Temperatur bzw. des Luftdrucks auf. Somit konnte eine kurzfristige Beeinflussung der Radonkonzentration im Meßhorizont durch meteorologische Parameter ausgeschlossen werden.

Auf dem Standort wurden Bodenfeuchten zwischen 8 % und 26 % festgestellt, wobei die Meßwerte einem Mittelwert von $S_w = 0,12 \pm 0,07$ aufwiesen. Dabei wurde westlich der zentralen Zapfinsel ein Bereich relativ hoher Bodenfeuchten angetroffen, während die Bodenfeuchtegehalte auf dem übrigen Grundstück eher stochastisch verteilt waren. Als Abpumpzeit für 1 l Bodenluft wurden relativ konstant etwa 70 s benötigt, was für eine gleichbleibende, gute Gaspermeabilität des Bodens im Meßhorizont spricht.

Bei der Interpretation der Radonmeßdaten von Standort 1 war grundsätzlich zwischen einem unversiegelten und einem versiegelten Bereich zu unterscheiden. Der unversiegelte Bereich befand sich im unmittelbaren Umfeld der Kraftstofflagertanks. Das übrige Gelände war mit Kopfsteinpflaster bedeckt. Im unversiegelten Bereich des Grundstücks war in der gewählten Meßtiefe aufgrund der ungehinderten Radonexhalation ein geringerer natürlicher Radon-Hintergrundwert anzusetzen, als auf dem versiegelten Teil des Geländes. Jedoch stellt auch das Kopfsteinpflaster keine völlig undurchlässige Sperrschicht gegenüber dem Radon dar, so daß auch hier eine aufwärtsgerichtete Radonmigration und eine begrenzte Exhalation möglich war.

Die im Zuge der Radonkartierung auf dem Standort gemessenen Radonkonzentrationen der Bodenluft in 70 cm Tiefe lagen in einem Wertebereich zwischen $C_{Rn} = 2,5 \text{ kBq/m}^3$ und $C_{Rn} = 28,7 \text{ kBq/m}^3$. Aufgrund der festgestellten Radonmeßwerte kann im versiegelten Bereich des Grundstückes ein geogener Radon-Hintergrundwert von $C_{Rn} = 20 \text{ kBq/m}^3$ angenommen werden. Im unversiegelten Bereich wurde ein geogener Hintergrundwert von $C_{Rn} = 15 \text{ kBq/m}^3$ zu Grunde gelegt.

An fünf aus einer Tiefe von 70 cm gewonnenen Bodenproben, die aus verschiedenen Bereichen des Grundstücks stammten, wurde die spezifische Radiumaktivität A_{Ra} bestimmt. Die ermittelten Werte ergaben eine relativ geringe Schwankungsbreite der spezifischen Radiumaktivität im Meßhorizont und lagen bei $A_{Ra} = 28,0 \pm 4,0 \text{ Bq/kg}$. Die an den Proben bestimmte Trockendichte der mineralischen Matrix lag bei $\rho_d = 1,7 \text{ g/cm}^3$. Die Porosität wurde mit $n = 0,41$ ermittelt. Bei Annahme eines für den

vorliegenden Boden typischen Emanationskoeffizienten von $\varepsilon = 0,23$, stellt sich mit oben genannten Werten im Meßhorizont theoretisch eine Radon-Gleichgewichtskonzentration von $C_{\infty} = 27,7 \text{ kBq/m}^3$ ein. Dieser theoretische Wert entspricht in etwa den höchsten auf dem Gelände angetroffenen Radonkonzentrationen und wird somit durch die Ergebnisse der Radonkartierung bestätigt.

Da die Meßdaten der Radonkartierung bei stichprobenartigen Wiederholungsmessungen sehr gut reproduzierbar waren, wurde der Nugget-Faktor bei der Kriging-Interpolation gleich null gesetzt. Das heißt, daß das für die Konstruktion der Radonkarte interpolierte Gitter jeden der individuellen Meßwerte uneingeschränkt einbezog.

Das im Zuge der Radon-Kartierung auf dem Standort festgestellte flächige Radon-Verteilungsmuster ist in Abb. 3-3.3 dargestellt. Dabei ist das Ergebnis der Radon-Kartierung der mit Hilfe der Rammkernsondierungen lokalisierten Ausdehnung der NAPL-Kontamination gegenübergestellt. Die Abbildung zeigt als generelles Bild, daß sich die auskartierten Radonminima gut mit den durch die Rammkernsondierungen lokalisierten NAPL-Schadensherden decken. Sowohl nach den Ergebnissen der Rammkernsondierungen als auch nach den Ergebnissen der Radonkartierung liegen auf dem Grundstück zwei Schadenszentren vor. Das erste befindet sich im unmittelbaren Umfeld des Öltanks am westlichen Rand des Grundstückes und erstreckt sich bis in den Bereich der zentralen Zapfinsel. Das zweite Schadenszentrum liegt im Bereich der unterirdischen Kraftstofflagertanks bzw. nördlich davon. In den beiden Schadenszentren wurden Radongehalte der Bodenluft festgestellt, welche gegenüber den jeweiligen geogenen Hintergrundwerten deutlich erniedrigt waren. In unmittelbarer Nachbarschaft des Öltanks (versiegelter Geländeabschnitt) wurde als niedrigster Wert $C_{Rn} = 4,6 \text{ kBq/m}^3$ festgestellt. Im Bereich der Kraftstofflagertanks (unversiegelter Geländeabschnitt) lag die niedrigste gemessene Radonkonzentration bei $C_{Rn} = 2,5 \text{ kBq/m}^3$.

Während als Ergebnis der Rammkernsondierungen das Hauptschadenszentrum im Bereich des Öltanks festgestellt worden war, erbrachte die Radonkartierung das deutlichste Radonminimum im Bereich der Kraftstofflagertanks bzw. unmittelbar nördlich davon. Bei der Interpretation dieses Minimums muß in Betracht gezogen werden, daß das Radontiefenprofil in diesem Bereich, neben der dort vorliegenden NAPL-Kontamination des Untergrundes, auch durch die fehlende Bodenversiegelung beeinflusst wird, wodurch eine uneingeschränkte Radonexhalation möglich ist. Eine Beeinflussung des Radontiefenprofils durch einen großräumigen Bodenaustausch im Zusammenhang mit der Einlagerung der Kraftstofflagertanks kann nicht als Ursache des Radonminimums herangezogen werden, da durch die im Bereich der Kraftstofflagertanks abgeteufte Rammkernsondierungen kein anderer Bodenaufbau als im übrigen Teil des Grundstückes aufgeschlossen wurde.

Als Fazit der durchgeführten Untersuchungen kann festgestellt werden, daß mit Hilfe der Radonkartierung eine Lokalisierung der NAPL-Verunreinigungen der grundwasserungesättigten Bodenzone auf Standort I möglich war. Dabei wurden die beiden NAPL-kontaminierten Beriche durch signifikante Radonminima angezeigt. Aufgrund der Effizienz der Probenahmetechnologie und aufgrund der unmittelbaren Verfügbarkeit der Meßergebnisse nach der Kartierung, war der für die Lokalisierung der NAPL-Kontamination notwendige Aufwand im Vergleich zur Lokalisierung durch Rammkernsondierungen gering.

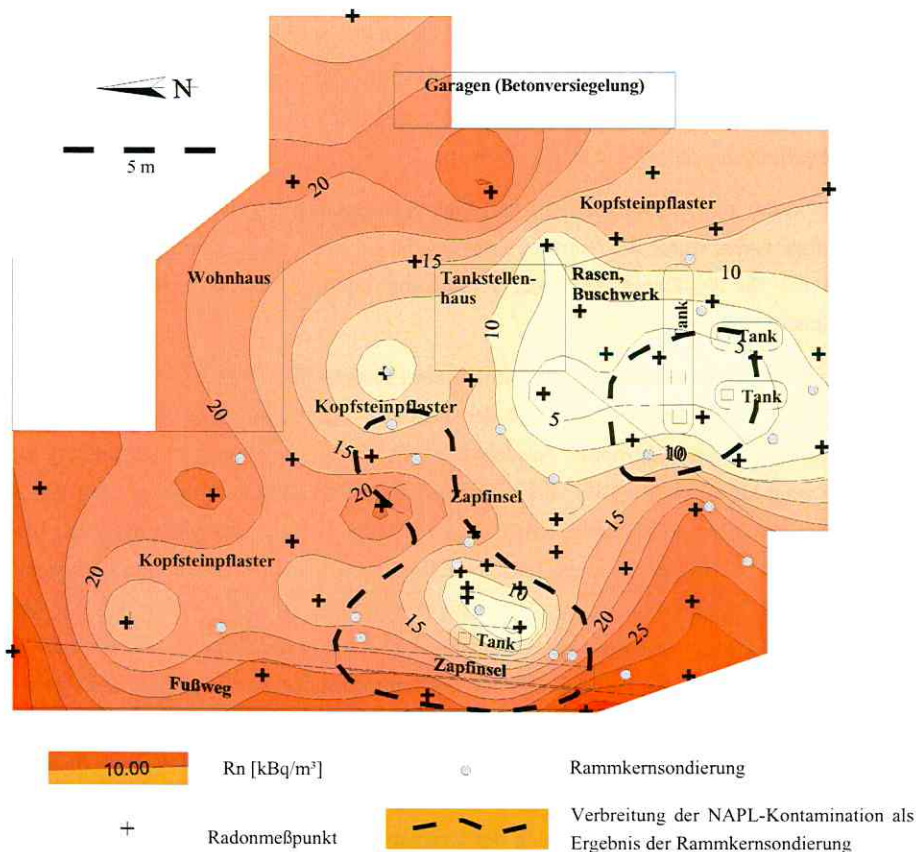


Abb. 3-3. 3: Ergebnis der Radonkartierung im Vergleich zu der durch Rammkernsondierungen lokalisierten Verbreitung der NAPL-Kontamination auf Standort 1.

3.3.3.2 Standort 2

Die flächige Radonverteilung auf Standort 2 wurde im Juli 2000 mit Hilfe von insgesamt 45 Radonmeßpunkten auskartiert. Bei der Bodenluftprobenahme wurde gemäß der in Kapitel 3.3.2.1 beschriebenen Meßtechnologie verfahren. Aufgrund dessen, daß der Auffüllungshorizont im oberen halben Meter stellenweise große Anteile an Bauschutt enthielt, gestaltete sich sowohl die Entnahme von Boden- als auch von Bodenluftproben zum Teil schwierig. Zudem lag im Bereich der Zapfstraße und westlich davon in etwa 30 cm Tiefe eine Magerbetonschicht vor, die mit der eingesetzten Technik nur schwer zu durchteufen war. Im Bereich des ehemaligen Öllagers und nördlich davon war aufgrund eines Betonfundamentes keine Probenahme möglich.

Während der Meßkampagne, die sich aufgrund der oben erwähnten schwierigen Probenahmebedingungen über einen Zeitraum von drei Tagen erstreckte, traten keine Schwankungen der Temperatur oder des Luftdrucks auf, die für die erhobenen Meßwerte der Radonkonzentration von Relevanz sein könnten.

Auf Standort 2 wurden Bodenfeuchten zwischen 10 % und 49 % festgestellt, wobei die geringsten Bodenfeuchten im nordwestlichen Bereich des Grundstückes und die höchsten Bodenfeuchten am östlichen Grundstücksrand auftraten. Die gemessenen Bodenfeuchten schwankten stark, was

wahrscheinlich auf den geringen lokalen Grundwasserflurabstand zurückzuführen ist. Der Mittelwert der gemessenen Bodenfeuchten wurde mit $S_w = 0,20 \pm 0,12$ bestimmt. Die Abpumzeit für 1 l Bodenluft mit einer Pumpleistung von 1 l/min war für alle Meßpunkte mit ca. 70 s in etwa gleich. Das läßt auf eine relativ konstante, gute Gaspermeabilität des Bodens im Meßhorizont schließen.

Wie bei Standort 1 war auch bei der Interpretation der Daten von Standort 2 zwischen einem unversiegelten und einem versiegelten Geländebereich zu unterscheiden. Der unversiegelte Bereich war ein mit Büschen bestandener Grünstreifen an der südwestlichen Grenze des Untersuchungsgeländes, unmittelbar südlich der Kraftstofflagertanks. Der zentrale und nördliche Teil des Geländes besaß eine Decke aus Kopfsteinpflaster. Im Bereich der Kraftstofflagertanks und im Umfeld des ehemaligen Öllagers war der Boden mit einer Betonschicht versiegelt. Im Bereich der Zapfstraße und westlich davon wurde in 30 cm Tiefe der oben erwähnte Magerbeton angetroffen. Die genaue Lage der versiegelten Abschnitte ist in Abb. 3-3. 4 ausgewiesen.

Fünf aus 70 cm Tiefe entnommene Bodenproben wurden gammaspektrometrisch auf ihre spezifische Radiumaktivität A_{Ra} untersucht. Die ermittelten spezifischen Radiumaktivitäten waren relativ uneinheitlich und lagen bei $A_{Ra} = 41,0 \pm 15,5 \text{ Bq/kg}$. Ursache für die große Schwankungsbreite der spezifischen Radiumaktivität der Proben ist wahrscheinlich, daß es aufgrund der angetroffenen verschiedenartigen Bodenversiegelungen mit der verwendeten Ausrüstung stellenweise nur schwer möglich war, repräsentative Bodenproben in ausreichender Menge zu gewinnen.

Als Trockendichte der mineralischen Matrix wurde $\rho_d = 1,7 \text{ g/cm}^3$ ermittelt. Die Porosität des Bodens lag bei $n = 0,4$. Mit diesen Werten ergibt sich bei einem für den vorliegenden Boden typischen Emanationskoeffizienten von $\varepsilon = 0,23$ als Radon-Gleichgewichtskonzentration der Bodenluft theoretisch ein Wert von etwa $C_\infty = 42 \text{ kBq/m}^3$. Diese Radonkonzentration entspricht in etwa den im unkontaminierten Bereich des versiegelten Geländes gemessenen Werten für C_{Rn} . Deutlich höhere Radonkonzentrationen von $C_{Rn} > 50 \text{ kBq/m}^3$ waren nur im östlichen Bereich des Grundstückes aufgetreten. Als Ursache hierfür kann die in diesem Bereich angetroffene sehr hohe Bodenfeuchte herangezogen werden, die mit Werten bis $S_w = 0,49$ auftrat.

Die auf Standort 2 in 70 cm Tiefe gemessenen Radonkonzentrationen der Bodenluft lagen in einem Wertebereich zwischen $C_{Rn} = 5,0 \text{ kBq/m}^3$ und $C_{Rn} = 61,3 \text{ kBq/m}^3$. Als Radon-Hintergrundwert wurde im versiegelten Bereich des Untersuchungsgeländes, aufgrund der dort festgestellten Radonkonzentrationen ein Wert von 40 kBq/m^3 angenommen. Im unversiegelten Bereich in der südwestlichen Grundstücksecke war aufgrund der freien Radonexhalation ein geringerer geogener Radon-Hintergrundwert anzusetzen. Hier wurde ein geogener Hintergrundwert von 30 kBq/m^3 zugrunde gelegt. Dieser Wert konnte durch eine Radonmessung bestätigt werden, die im Bereich der südlich des Standortes gelegenen Kleingartensparten, in etwa 25 m Entfernung zum Tankstellengrundstück durchgeführt wurde. Hierbei war im Meßhorizont eine Radonkonzentration von $C_{Rn} = 27 \text{ kBq/m}^3$ ermittelt worden.

Für die Kriging-Interpolation der Radonmeßdaten wurde der Nugget-Faktor null gesetzt. Das war aufgrund der guten Reproduzierbarkeit der Daten bei stichprobenartigen Wiederholungsmessungen möglich. Abb. 3-3. 4 zeigt das auf dem Standort ermittelte Radon-Verteilungsmuster zusammen mit der durch die Rammkernsondierungen lokalisierten Lage des NAPL-Schadens.

Abb. 3-3. 4 zeigt, daß sowohl durch die Rammkernsondierungen als auch durch die Radonkartierung im Bereich der Zapfinsel eine NAPL-Kontamination des Untergrundes lokalisiert werden konnte.

Nach den Ergebnissen der Radonkartierung erstreckt sich der NAPL-Schaden etwas weiter in westliche Richtung als es die Ergebnisse der Rammkernsondierungen andeuten. Der durch die Radonkartierung zusätzlich als kontaminiert ausgewiesene Bereich war nicht durch Rammkernsondierungen erfaßt worden. In dem durch die Radonkartierung ermittelten Schadenszentrum wurden Radongehalte der Bodenluft festgestellt, die gegenüber der geogenen Hintergrundkonzentration deutlich verringert waren. Als niedrigster Wert wurde hier $C_{Rn} = 5,0 \text{ kBq/m}^3$ festgestellt.

Neben dem Radonminimum im Bereich der Zapfinsel wurden auch im Bereich der Kraftstofflagertanks verringerte Radonkonzentrationen festgestellt. Da im Umfeld der Tanks eine Betonversiegelung des Bodens vorlag, war in unmittelbarer Nachbarschaft der Tanks nur eine einzige Radonmessung möglich. Zusätzliche Radonmessungen, im unversiegelten Geländeabschnitt südlich der Kraftstofflagertanks bestätigten jedoch das Radonminimum und grenzten es nach Süden ein. Die niedrigste Konzentration im Bereich der Tanks lag bei $C_{Rn} = 7,2 \text{ kBq/m}^3$. Bei der Interpretation dieser Meßdaten muß wiederum in Betracht gezogen werden, daß das Radonminimum im Bereich der Kraftstofflagertanks auch die fehlende Bodenversiegelung südlich der Tanks zur Ursache hat. Eine Beeinflussung des Radontiefenprofils durch einen ehemaligen Bodenaustausch ist dagegen aber auszuschließen, da die Radonsondierungen südlich der Tanks in natürlich anstehenden Boden abgeteuft wurden.

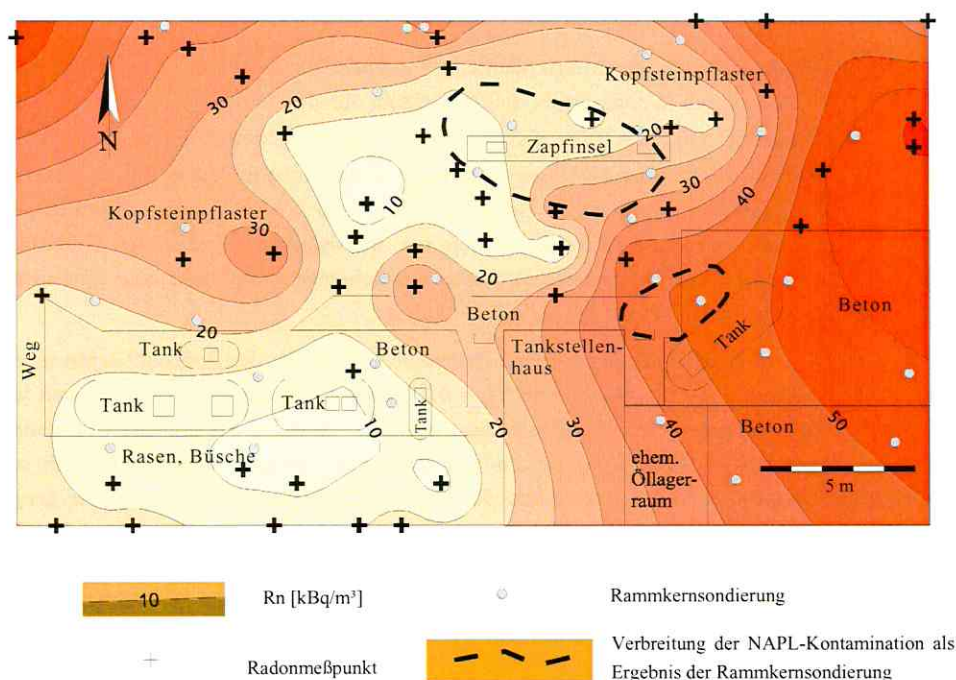


Abb. 3-3. 4: Ergebnis der Radonkartierung im Vergleich zu der durch Rammkernsondierungen lokalisierten Verbreitung der NAPL-Kontamination auf Standort 2.

Als Fazit der Radonkartierung kann konstatiert werden, daß die NAPL-Verunreinigung auf Standort 2 lokalisiert werden konnte, wobei die NAPL-kontaminierten Bereiche des Untergrundes durch Radonminima indiziert wurden. Während durch die Rammkernsondierungen nur im Bereich Zapfinsel erhöhte MKW-Konzentrationen festgestellt worden waren, deuten die Ergebnisse der

Radonkartierung auf eine NAPL-Kontamination auch im Bereich der Tanks hin. Trotz der vergleichsweise schwierigen Meßbedingungen war der für die Lokalisierung der NAPL-Kontamination notwendige Aufwand im Vergleich zur Lokalisierung durch Rammkernsondierungen gering.

3.3.3.3 Standort 3

Nachdem mit den Standorten 1 und 2 Testfelder von vergleichsweise geringer Ausdehnung und stark urban überprägtem Bodenaufbau untersucht wurden, stand mit Standort 3 ein bedeutend größerer Schadensfall außerhalb einer städtischen Siedlung als Testfeld zur Verfügung. Da aufgrund der Ausdehnung des Standortes eine rasterartige Bodenluftprobenahme nicht effizient war, wurde die Radonkartierung entlang von insgesamt 14 Meßprofilen vorgenommen, welche senkrecht zur Grundwasserfließrichtung eingemessen wurden. Die Lage der Meßprofile ist in Abb. 3-3.6 dargestellt. Die Meßprofile hatten eine durchschnittliche Länge von 125 m. Der Profilabstand betrug im Schnitt 35 m. Als Punktabstand auf den Profilen wurde 10 m gewählt und dieser stellenweise verdichtet. Zusätzlich zu den Meßprofilen wurden außerhalb dieser Profile weitere Verdichtungspunkte gelegt.

Aufgrund dessen, daß der Standort unversiegelt war und sich durch eine sehr homogene geologische Situation auszeichnete (hauptsächlich Mittelsande), war eine konsequente und zügige praktische Umsetzung der geplanten Radonmessungen möglich. Die Radonkartierung wurde mit insgesamt 209 Radonmessungen in zwei Meßkampagnen durchgeführt, welche sich über einen Zeitraum von insgesamt 10 Tagen erstreckten. Bei der Probenahme wurde gemäß der oben vorgestellten Meßtechnologie verfahren.

Die erste Meßkampagne wurde im Januar 2000 bei trockenem aber sehr kaltem Wetter durchgeführt. Während dieses ersten Teils der Untersuchungen wurden die Profile 1 bis 6 gemessen, die den nördlichen Bereich des Standortes abdecken. Die zweite Meßkampagne, die den zentralen und den südlichen Teil des Geländes einschloß (Profile 7 bis 14), wurde im Juni 2000 während eines stabilen, langanhaltenden Hochdruckgebietes mit sehr warmen Außentemperaturen durchgeführt. Trotz der starken klimatischen Unterschiede zwischen den beiden Meßkampagnen, mit einer Differenz der jeweiligen Tagesdurchschnittstemperatur von fast 30 Grad, ergaben die Radonmeßwerte der beiden Meßkampagnen ein zusammenhängendes Bild, ohne daß eine zusätzliche Korrektur notwendig wurde. Diese Beobachtung bestätigt die Annahme, daß in der gewählten Meßtiefe von 70 cm keine maßgeblichen druck- oder temperaturinduzierten Änderungen der Radonkonzentration der Bodenluft mehr aufzutreten scheinen. Während jeder der beiden Meßkampagnen waren die Witterungsverhältnisse stabil. Es wurden weder Niederschläge noch unverhältnismäßige Temperatur- oder Luftdruckschwankungen registriert, die eine Korrektur der Meßdaten notwendig gemacht hätten.

Die im Zuge der zweiten Meßkampagne (Juni 2000) ermittelte geringe Bodenfeuchte lag bei $6,1 \pm 2,9$ %. Die Messungen ergaben eine sehr gleichmäßige Verteilung der Bodenfeuchtwerte auf dem Untersuchungsgelände. Lediglich in unmittelbarer Nachbarschaft zur Grundwassersanierungsanlage im Zentrum des Standortes wurden stellenweise Bodenfeuchten von bis zu 20 % gemessen. Ursache hierfür ist, daß in diesem Bereich das im Rahmen der Sanierung gereinigte Grundwasser wiederversickert wird. Während der ersten Meßkampagne im Januar 2000 konnten aufgrund eines technischen Defekts keine Feuchtwerte bestimmt werden.

Die Abpumzeit für 1 l Bodenluft mit einer Pumpleistung von 1 l/min war für das gesamte Untersuchungsgelände mit ca. 60 s konstant. Diese geringe Abpumzeit ist auf eine sehr hohe Gaspermeabilität des Bodens im Meßhorizont zurückzuführen.

Die fünf im Zuge der Radonkartierung abgeteuten Rammkernsondierungen (RKS) wurden durchgängig beprobt und die gewonnenen Bodenproben vor Ort organoleptisch begutachtet. Während sich dabei in RKS 5 keine Verunreinigungen des Bodens mit NAPLs bemerkbar machten, wurden in den Sondierungen RKS 1 bis RKS 4 organoleptische Auffälligkeiten sowohl in der grundwasserungesättigten als auch der grundwassergesättigten Bodenzone festgestellt (MKW-Geruch). Daraufhin wurden 12 ausgewählte Bodenproben aus RKS 3 exemplarisch einer IR-spektroskopischen Analyse unterzogen. Die Sondierung RKS 3 liegt in Nachbarschaft des Sanierungsbrunnens B2, in welchem während der vorangegangenen 12 Monate Phasenmächtigkeiten bis zu 25 cm aufgetreten waren. Die an den Bodenproben aus RKS 3 ermittelten MKW-Gehalte sind in Tab. 3-3. 1 aufgeführt. Die Werte zeigen, daß im Bereich der Sondierung RKS 3 unterhalb einer Tiefe von etwa 4,5 m, das heißt im Grundwasserschwankungsbereich, stark erhöhte MKW-Konzentrationen auftraten. Diese haben die im Brunnen B2 nachgewiesene aufschwimmende Kerosinphase zur Ursache. Aber auch in der grundwasserungesättigten Bodenzone lagen zum Teil stark erhöhte MKW - Konzentrationen vor. Die höchsten MKW-Gehalte wurden mit 1737 mg/kg zwischen 1,25 m und 1,50 m ermittelt.

Tab. 3-3. 1: An den Bodenproben aus RKS 3 ermittelte Gehalte an Mineralölkohlenwasserstoffen (MKW).

Tiefenbereich [m]	MKW [mg/kg]
1,25 - 1,50	1737,4
1,50 - 1,75	1243,9
1,75 - 2,00	801,0
2,00 - 2,25	567,7
2,25 - 2,50	451,6
2,50 - 2,75	61,4
2,75 - 3,00	8,8
3,00 - 3,25	624,4
4,00 - 4,25	309,0
4,25 - 4,50	212,5
4,50 - 4,75	1324,6
4,75 - 5,00	1317,6

An zwanzig verschiedenen Stellen des Untersuchungsgeländes wurden aus Tiefen zwischen 30 cm und 160 cm Bodenproben gewonnen und eine Bestimmung der spezifischen Radiumaktivität A_{Ra} und des Emanationskoeffizienten ε durchgeführt. Die ermittelten spezifischen Radiumaktivitäten wiesen einen Mittelwert von $A_{Ra} = 16,3 \pm 3,8 \text{ Bq/kg}$ auf. Für die zugehörigen Emanationskoeffizienten wurde ein Mittelwert von $\varepsilon = 0,31 \pm 0,18$ bestimmt. Die ermittelten Werte belegen für den untersuchten Bodenhorizont eine relativ homogene flächige Verteilung der spezifischen Radiumaktivität der mineralischen Matrix auf dem Untersuchungsgelände.

Des weiteren wurde mit Hilfe der aus RKS 5 gewonnenen Bodenproben ein Radiumtiefenprofil bestimmt. Das Vertikalprofil erstreckte sich von der Erdoberfläche bis zum Grundwasserspiegel in 5 m Tiefe und stützte sich auf 18 Bodenproben. Die hierbei ermittelten spezifischen Radiumaktivitäten hatten einen Mittelwert von $A_{Ra} = 10,2 \pm 1,9 \text{ Bq/kg}$. Dabei wurden für die, bis in eine Tiefe von 2,5 m anstehenden Mittel- bis Grobsande, mit $A_{Ra} = 12,1 \pm 2,1 \text{ Bq/kg}$ etwas höhere spezifische Radiumaktivitäten ermittelt, als für die darunter liegenden Mittel- bis Feinsande ($A_{Ra} = 8,2 \pm 1,7 \text{ Bq/kg}$). Das Radiumtiefenprofil aus RKS 5 ist in Abb. 3-3.5 dargestellt. Die Analysenergebnisse zeigen, daß in bis in eine Bodentiefe von etwa 2,5 m auch vertikal eine relativ konstante spezifische Radiumaktivität vorliegt.

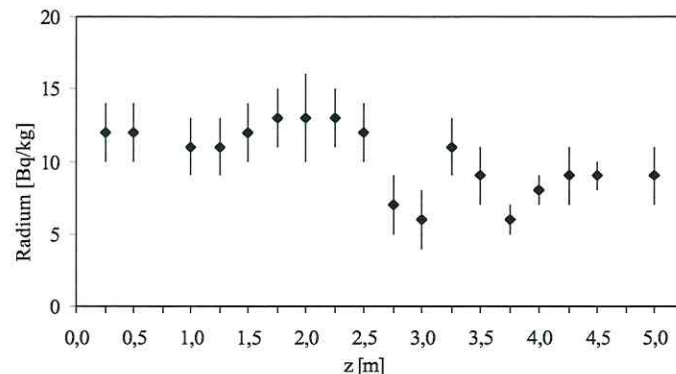


Abb. 3-3. 5: Radiumtiefenprofil aus RKS 5

Als Trockendichte des Bodens von Standort 3 wurde ein Wert von $\rho_d = 1,6 \text{ g/cm}^3$ ermittelt. Im Zuge vorangegangener Untersuchungen war die durchschnittliche Porosität des Bodens mit $n = 0,36$ festgestellt worden. Mit diesen Werten, einem Emanationskoeffizienten von $\varepsilon = 0,31$ und einer für den Meßhorizont angenommenen spezifischen Radiumaktivität von $A_{Ra} = 14 \text{ Bq/kg}$ ergibt sich als Radon-Gleichgewichtskonzentration der Bodenluft theoretisch ein Wert von ca. $C_\infty = 19 \text{ kBq/m}^3$. Diese Konzentration entspricht in etwa den höchsten auf dem Gelände gemessenen Radonkonzentrationen.

Die auf dem Standort in 70 cm Tiefe gemessenen Radonkonzentrationen der Bodenluft lagen in einem Wertebereich zwischen $C_{Rn} < 1 \text{ kBq/m}^3$ und $C_{Rn} = 22 \text{ kBq/m}^3$. Als geogener Radon-Hintergrundwert im Meßhorizont wurde aufgrund der festgestellten Radonkonzentrationen der Bodenluft und aufgrund der an insgesamt 38 Bodenproben ermittelten spezifische Radiumaktivitäten ein Wert von 15 kBq/m^3 angenommen.

Während der beiden Meßkampagnen wurden an etwa 20 % der Punkte Wiederholungsmessungen durchgeführt. Da die Meßdaten der Radonkartierung sowohl bei den Wiederholungsmessungen als auch im Gesamtvergleich der beiden Meßkampagnen (siehe Profile 6 und 7) gut reproduzierbar waren, wurde der Kriging-Interpolation ein Nugget-Faktor von null zugrundegelegt. Das im Zuge der Radonkartierung auf Standort 3 festgestellte Radon-Verteilungsmuster ist in Abb. 3-3.6 dargestellt.

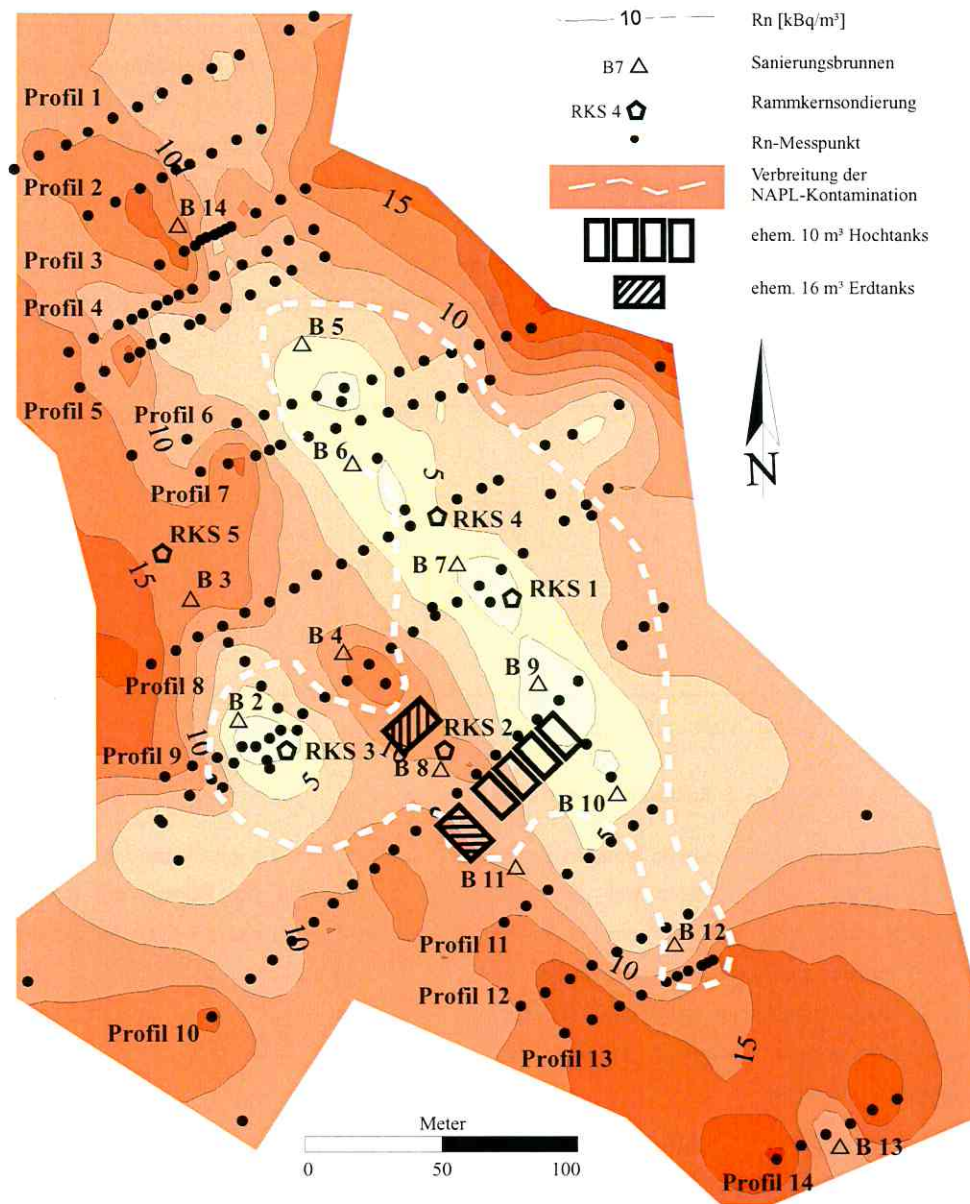


Abb. 3-3. 6: Ergebnis der Radonkartierung im Vergleich zu der durch Rammkernsondierungen lokalisierten Verbreitung der NAPL-Kontamination auf Standort 3

Das Kartenbild in Abb. 3-3.6 zeigt, daß sich das auskartierte Radonminimum im Zentrum des Untersuchungsgeländes gut mit der Verbreitung der aufschwimmenden Kerosinphase und damit auch der Verbreitung der MKW-Kontamination im grundwasserungesättigten Boden deckt. Sowohl nach den Ergebnissen der Radonkartierung als auch den Ergebnissen der Rammkernsondierungen bzw. Grundwassermeßstellen erstreckt sich der Kern der kontaminierten Zone vom ehemaligen Schadenszentrum ausgehend dem Grundwasserstrom folgend in nordwestliche Richtung.

Ein weiteres, separates Radonminimum wurde westlich des Schadenszentrums, im Bereich des Sanierungsbrunnens B2, festgestellt. Dieses Radonminimum indizierte sowohl die im Sanierungsbrunnen B2 angetroffene, wahrscheinlich ebenfalls vom Schadenszentrum ausgehende, aufschwimmende Kerosin-Phase als auch die in der Rammkernsondierung RKS 3 festgestellte residuale NAPL-Kontamination in der grundwasserungesättigten Bodenzone. Aufgrund der auf dem Gelände festgestellten Radonkonzentrationen sind solche residualen NAPL-Verunreinigungen der grundwasserungesättigten Bodenzone auch in anderen Bereichen des Standortes zu erwarten.

Im Zuge der Radonkartierung waren am nordöstlichen Ende des Profils 8 verringerte Radonkonzentrationen in einem Teil des Geländes ermittelt worden, welcher im Zuge der Sanierungsuntersuchung nicht als kontaminiert ausgewiesen worden war. Aufgrund der Ergebnisse der Radonkartierung wurde durch die zuständige Sanierungsfirma in diesem Bereich eine zusätzliche Erkundungsbohrung abgeteuft. Diese Bohrung wies auch hier eine aufschwimmende Kerosinphase nach, was die Installation eines weiteren Sanierungsbrunnens zur Folge hatte.

Als Fazit der Untersuchungen auf Standort 3 ist festzustellen, daß die auf dem Standort vorliegende großräumige NAPL-Verunreinigung mit Hilfe der Radonkartierung lokalisiert werden konnte. Dabei wurden die NAPL-kontaminierten Bereiche durch sehr deutliche Radonminima indiziert. Weiterhin kann festgestellt werden, daß im Falle des Standortes 3 die im Vorfeld auskartierte Verbreitung der NAPL-Kontamination durch die Radonkartierung nicht nur bestätigt, sondern an einer Stelle sogar präzisiert werden konnte. Dabei war der für die Lokalisierung der ausgedehnten NAPL-Kontamination notwendige Aufwand im Vergleich zur Lokalisierung durch Rammkernsondierungen gering.

4 Eignung der Radonkonzentration der Bodenluft als Indikator für NAPL-Kontaminationen des Untergrundes

Die im Kapitel 1 vorgestellte und in Kapitel 2 theoretisch hinterlegte Arbeitsthese konnte sowohl durch die an den GAMS durchgeführten experimentellen Untersuchungen (Kap. 3.2) als auch durch die Radonkartierungen auf den Feldstandorten (Kap. 3.3) verifiziert werden. Das läßt die Schlußfolgerung zu, daß der Radongehalt der Bodenluft prinzipiell als Indikator für NAPL-Kontaminationen des Untergrundes geeignet ist. Die durchgeführten Untersuchungen ergaben, daß NAPL-Kontaminationen des Untergrundes grundsätzlich zu verringerten Radonkonzentrationen der Bodenluft im unmittelbaren Bereich der Kontamination führen.

Die im Zusammenhang mit NAPL-Kontaminationen des Untergrundes in der Bodenluft auftretenden Radonminima sind auf eine Akkumulation des Radons in den NAPLs und eine damit verknüpfte Verringerung der Radonkonzentration der Bodenluft zurückzuführen (Akkumulations-Effekt). Wie weit sich eine NAPL-Kontamination auch im angrenzenden unkontaminierten Boden durch verringerte Radongehalte der Bodenluft bemerkbar macht, ist von der Stärke der Kontamination sowie der Gaspermeabilität und dem Diffusionskoeffizient des Bodens abhängig. Je bindiger und / oder feuchter ein Boden ist, um so geringer ist die Distanz, in der noch ein signifikanter Einfluß der NAPL-Kontamination auf das Radontiefenprofil im angrenzenden unkontaminierten Boden zu erwarten ist.

Im Falle von sehr frischen NAPL-Schadensfällen mit einem hohen Anteil an leichtflüchtigen Komponenten ist gegebenenfalls eine temporäre Erhöhung Radonkonzentration der Bodenluft oberhalb der Kontamination möglich. Dieses wird durch eine Verstärkung der aufwärtsgerichteten Radonmigration aufgrund der Entgasung der leichtflüchtigen NAPLs hervorgerufen (Shuttle-Effekt). Durch NAPL-Schadensfälle hervorgerufene erhöhte Radonkonzentrationen der Bodenluft sind jedoch nur temporärer Natur und stellen als Indikatoren für NAPL-Kontaminationen des Untergrundes eher eine Ausnahme dar. Bei den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Radonkartierungen wurden als NAPL-Indikatoren ausschließlich Radonminima festgestellt. Trotzdem muß die Interpretation der Meßergebnisse einer Radonkartierung immer mit Hinblick auf die Art und das Alter der NAPL-Kontamination erfolgen.

Besonders bei der Auswertung von Radonmeßdaten, die in stark urban überprägten Gebieten gewonnen werden, ist die Auswirkung eines möglicherweise vorliegenden anthropogenen Eingriffs in das natürliche Bodenprofil oder einer gegebenenfalls vorhandenen Versiegelung des Bodens in die Interpretation einzubeziehen. Da auch Niederschlagswasser eine temporäre Versiegelung des Bodens bewirken kann, sollten Radonkartierungen nicht während bzw. unmittelbar nach Regenereignissen durchgeführt werden. Wie lange der erhöhte Porenwassergehalt nachfolgend zu einem Regenereignis sich auf das Radontiefenprofil auswirkt, hängt von der Stärke des Niederschlages und von der Bodenart ab. Bei dem mit Hilfe der GAMS untersuchten Mittelsand wurde eine Beeinflussung über etwa 12 Stunden festgestellt.

Voraussetzung einer erfolgreichen Radonkartierung ist eine repräsentative Bodenluftprobenahme. Bei der im Zuge einer Radonkartierung durchgeführten Bodenluftprobenahme sollte daher nach der im Kapitel 3.3.2.1 beschriebenen Feldtechnologie verfahren werden. Damit kann gewährleistet werden,

daß die für das Radontiefenprofil relevanten natürlichen Einflußgrößen Luftdruck, Temperatur und Windgeschwindigkeit keinen signifikanten kurzfristigen Einfluß auf die Meßergebnisse der Radonkartierung haben. Die testweise Anwendung der vorgestellten Probenahmetechnologie an drei realen Schadensfällen bestätigte gleichzeitig die Effizienz der Methode. Die Feldtechnologie erlaubt bei einem reibungslosen Meßablauf etwa drei Radonmessungen pro Stunde, wobei die Messungen von einer Person durchführbar sind. Im Vergleich zu Rammkernsondierungen erlaubt die Radonkartierung somit eine schnellere und weniger aufwendige orientierende Erkundung eines NAPL-kontaminierten Standortes.

Radonkartierungen sind nicht uneingeschränkt zur Detektion von NAPL-Kontaminationen des Untergrundes einsetzbar. Die limitierenden Faktoren werden im folgenden genannt.

1. Aufgrund der sehr ähnlichen Löslichkeiten des Radons in unterschiedlichen NAPLs, ist bei einer Radonkartierung keine Unterscheidung zwischen verschiedenen NAPLs möglich.
2. Da kleinräumig sehr uneinheitliche geologische Verhältnisse auch starke kleinräumige Veränderungen der Gaspermeabilität, des Diffusionskoeffizienten und der Emanationsrate des Bodens mit sich bringen, ist es im Falle einer komplizierten geologischen Situation nur unter Vorbehalten möglich, auskartierte Radonanomalien einer bestimmten Ursache zuzuordnen bzw. einen geogenen Radon-Hintergrundwert für den Meßhorizont festzulegen.
3. Aufgrund der begrenzten Diffusionslänge des Radons von maximal etwa 2 m (trockene, sandige Böden), sind Kontaminationen, die tiefer als 2 m unterhalb des Meßhorizontes liegen, kaum mehr mit einer Verringerung der Radonkonzentration der Bodenluft nachweisbar.
4. Aufgrund der geringen Migrationslänge des Radons in Wasser können DNAPL-Kontaminationen, welche unterhalb des Grundwasserspiegels vorliegen nicht mit Hilfe des Radongehalts der Bodenluft detektiert werden. DNAPL-Kontaminationen in Aquiferen haben schon bei einem Grundwasserüberstau von wenigen Zentimetern keinen signifikanten Einfluß mehr auf das Radontiefenprofil in der Bodenluft des darüberliegenden Bodens.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, daß Anomalien des Radongehalts der Bodenluft zur Detektion von NAPL-Kontaminationen des Untergrundes bei oberflächennahen NAPL-Kontaminationen in der grundwasserungesättigten Bodenzone genutzt werden können. Hierbei sind als Indikatoren grundsätzlich Radonminima zu erwarten.

5 Ausblick

Die beschriebenen Experimente und theoretischen Betrachtungen haben gezeigt, daß die natürliche Radonkonzentration der Bodenluft als Indikator für Bodenkontaminationen durch Non-Aqueous Phase-Liquids (NAPLs) prinzipiell geeignet ist. Die entwickelte Feldmethode konnte als feldtaugliches Detektionsverfahren im Sinne der Aufgabenstellung bestätigt werden.

Sowohl im Zuge der Experimente in den GAMS als auch bei den Felduntersuchungen, wurden Radonminima der Bodenluft als Indikatoren von NAPL-Verunreinigungen des Bodens festgestellt. Eine länger anhaltende Erhöhung der Radonkonzentration durch aufsteigende hochvolatile NAPLs, wie sie im Falle von Bodenkontaminationen durch leichtflüchtige NAPLs erwartet werden könnte, wurde nicht festgestellt. Eine Untersuchung dieses „Shuttle-Effekts“, durch gezielte Kontaminationen definierter Bodensäulen mit leichtflüchtigen Kohlenwasserstoffen (BTEX), würden den diesbezüglichen Kenntnisstand ergänzen. Hierbei wäre vor allem die Zeitabhängigkeit eventuell auftretender Radonmaxima von Interesse.

Die Experimente in den GAMS wurden an Bodensäulen aus gut klassiertem Mittelsand durchgeführt. Aussagen zu anderen Bodentypen wurden aus den ermittelten Daten abgeleitet. Zur Verifizierung dieser Aussagen wäre es möglich, die GAMS mit natürlichen Böden neu zu bestücken und an diesen Bodensäulen vergleichbare Experimente durchzuführen. Hierbei sollten auch andere NAPLs zum Einsatz kommen.

Nachdem durch die hier beschriebenen Arbeiten eine *qualitative* Detektion von Bodenkontaminationen durch NAPLs nachgewiesen werden konnte, sollte anschließend untersucht werden, ob mit Hilfe der beschriebenen Methode auch *quantitative* Aussagen möglich sind. Durch Semprini et al. (2000) konnte eine solche quantitative Korrelation zwischen DNAPL-Gehalten in Aquiferen und verringerten Radonkonzentrationen im Grundwasserabstrom zu der jeweiligen Kontamination nachgewiesen werden.

Neben der in dieser Arbeit beschriebenen Nutzung der Radonkonzentration der Bodenluft zur Lokalisierung und Eingrenzung von NAPL-Kontaminationen, können Radonmessungen prinzipiell auch zum Monitoring von aktiven Sanierungsmaßnahmen herangezogen werden. Zur Detektion sollten hier Festkörperspurdetektoren zum Einsatz kommen (Track-Etch Technik nach Fleischer, 1980, und Fleischer et al. 1975), welche die Radonkonzentration der Bodenluft über längere Expositionszeiten registrieren.

6 Zusammenfassung

Die Eignung der natürlichen Radonkonzentration der Bodenluft als Indikator für Bodenkontaminationen durch Non-Aqueous Phase-Liquids (NAPLs) wurde untersucht. Als Arbeitsthese wurde eingangs postuliert, daß infolge der sehr hohen Löslichkeit von Radon in NAPLs eine NAPL-Kontamination in der grundwasserungesättigten Bodenzone aufgrund der Akkumulation des Radons in der NAPL eine lokale Verringerung des Radongehalts der Bodenluft in der Umgebung der Kontamination nach sich zieht und somit eine Detektion der Kontamination ermöglicht. Ziel der Untersuchung war zum einen eine theoretische und experimentelle Bestätigung der Arbeitsthese und zum anderen die Entwicklung eines feldtauglichen Detektionsverfahrens für NAPL-Kontaminationen, welches den Radongehalt der Bodenluft als zentrale Meßgröße hat. Dabei sollte das Verfahren bei geringerem technischen Aufwand eine höhere Anzahl an Probenahmepunkten zulassen als herkömmliche Untersuchungsmethoden. Zur umfassenden Bearbeitung dieser Aufgabenstellung wurden (1) relevante Fragen zur Radonmigration theoretisch behandelt sowie (2) Laborexperimente, (3) Experimente in definierten Bodensäulen und (4) umfangreiche Felduntersuchungen durchgeführt.

Zur Bestimmung von Radon-Verteilungskoeffizienten zwischen verschiedenen umweltrelevanten NAPL-Gemischen und Luft ($K_{NAPL/BL}$) wurden Laborexperimente durchgeführt. Dazu wurden zwei Experimentalanordnungen entworfen und eingesetzt. Für die Untersuchungen wurden beispielhaft die NAPL-Gemische Benzin, Diesel und Petroleum gewählt. Während für zahlreiche reine NAPLs entsprechende Verteilungskoeffizienten vorliegen, sind für diese drei NAPL-Gemische kaum experimentelle Daten publiziert.

Die Laborexperimente ergaben Radon-Verteilungskoeffizienten $K_{NAPL/BL}$ zwischen 10 und 13. Die ermittelten Werte lagen in ihrer Höhe im Bereich von bekannten Radon-Verteilungskoeffizienten ähnlicher NAPLs und entsprachen somit den Erwartungen. Die für die drei NAPL-Gemische ermittelten Radon-Verteilungskoeffizienten belegen die starke Affinität des Radons zu den untersuchten NAPL-Gemischen.

Voraussetzung für eine Nutzung des natürlich in der Bodenluft vorhandenen Radons zur Lokalisierung von NAPL-Kontaminationen des Untergrundes ist die Signifikanz des NAPL-Einflusses auf den Radongehalt der Bodenluft gegenüber dessen natürlichen Schwankungen. Natürliche Schwankungen des Radongehalts der Bodenluft treten besonders in den oberen Bodenhorizonten auf und haben den Einfluß verschiedener meteorologischer Parameter zur Ursache. Zur Untersuchung sowohl der natürlichen Einflußfaktoren als auch des Einflusses von NAPL-Kontaminationen auf die Radonkonzentration der Bodenluft wurden großmaßstäbliche Migrationsexperimente in definierten Bodensäulen durchgeführt.

Zur Durchführung der Migrationsexperimente wurde der, mittlerweile als Patent angemeldete, Gasmigrationssimulator (GAMS) entwickelt. Der GAMS ermöglicht die kontinuierliche Aufzeichnung der Radonkonzentration der Bodenluft in einer definierten Bodensäule der Ausdehnung $1,0 \text{ m}^2 \times 1,7 \text{ m}$ in 5 Sondenebenen (0 cm, 5 cm, 30 cm, 70 cm und 140 cm), ohne dabei die Bodengasmigration maßgeblich zu beeinflussen. Parallel dazu ist die kontinuierliche Aufzeichnung der Temperatur und der Bodenfeuchte in den einzelnen Sondenebenen möglich. Die Zeitreihen der einzelnen Meßgrößen können im Stunden- oder 10-Minutentakt registriert werden. Der GAMS erlaubt aufgrund seiner Abmaße die Bestimmung von Meßwerten, die in ihrer Qualität denen von in-situ-Meßdaten entsprechen. Gleichzeitig können aber, vergleichbar mit Laborbedingungen, sämtliche

die Meßergebnisse beeinflussenden Parameter definiert vorgegeben bzw. sehr genau bestimmt werden. Der GAMS ermöglicht damit einerseits laborähnliche Meßbedingungen und schließt andererseits die im Labormaßstab unvermeidlichen Randeffekte weitestgehend aus. Für die Untersuchungen wurden insgesamt vier GAMS eingesetzt, welche mit definierten Bodensäulen bestückt wurden. Als Mineralmatrix kam hierbei ein radiumarmer Mittelsand zum Einsatz, dem homogen Uran-Tailings des gleichen Kornspektrums untergemischt wurden. Zur kontinuierlichen Aufzeichnung der Außentemperatur, der Windgeschwindigkeit und des Luftdrucks, als relevante meteorologische Einflußgrößen, wurde in unmittelbarer Nachbarschaft zur Meßstation eine mobile Wetterstation betrieben.

Die an den GAMS durchgeführten Experimente zum Einfluß meteorologischer Parameter auf das Radontiefenprofil ergaben tageszyklische Schwankungen des Radongehalts der Bodenluft am Interface Boden / Atmosphäre und in sehr geringen Bodentiefen (5 cm). In tieferen Bodenschichten (≥ 30 cm) wurde ein solches tageszyklisches Verhalten nicht mehr registriert.

Die in 5 cm Tiefe registrierte Zeitreihe der Radonkonzentration zeichnete sich durch hohe Werte in den Nacht- und frühen Morgenstunden aus, während sie am späten Abend ein deutliches Minimum durchlief. Es konnte gezeigt werden, daß dieser Tagesgang des Radongehalts der Bodenluft für geringe Bodentiefen typisch ist und in erster Linie den sich tageszyklisch umkehrenden Temperaturgradienten im Oberboden zur Ursache hat.

Der beobachtete Tagesgang des Radongehalts der Bodenluft am Interface Boden / Atmosphäre zeigte tagsüber geringe und nachts erhöhte Radonkonzentrationen. Es konnte gezeigt werden, daß dieser Radontagesgang für die Bodenluft am Interface Boden / Atmosphäre typisch ist und in einem Wechselspiel zwischen der tageszyklisch schwankenden Exhalationsrate des Bodens und der ebenfalls tageszyklisch wechselnden bodennahen Windgeschwindigkeit begründet liegt. Dabei ist die Windgeschwindigkeit die dominierende Einflußgröße.

Ein signifikanter Einfluß des Luftdrucks konnte nicht als Ursache des beobachteten Tagesganges der Radonkonzentration im Oberboden festgestellt werden. Ebenso wenig waren die durch Taufall und Verdunstung bedingten tageszyklischen Schwankungen der Bodenfeuchte im Oberboden für die Radonkonzentration von Bedeutung.

Neben den Einflüssen tageszyklisch veränderlicher meteorologischer Parameter wurde die Auswirkung von Niederschlägen auf den Radongehalt der Bodenluft untersucht. Dabei konnte ein deutlicher Einfluß von Niederschlagsereignissen nachgewiesen werden. Aufgrund der Blockierung der Bodenporen durch das Niederschlagswasser im Oberboden, kommt es unmittelbar nach dem Einsetzen eines Niederschlags zu einem Radonstau und damit zu einem Anstieg der Radonkonzentration in den Bodenschichten unterhalb des stark durchfeuchteten Bodenhorizonts.

Zur Untersuchung des Einflusses von NAPL-Kontaminationen des Bodens auf den Radongehalt der Bodenluft wurden zwei der GAMS mit einem definierten NAPL-Volumen kontaminiert (20 l bzw. 25 l). Dabei wurde bei einem der Versuche Benzin, als NAPL mit einem hohen Anteil an leichtflüchtigen Komponenten, und bei dem zweiten Versuch Diesel, als NAPL mit einem geringen Anteil an leichtflüchtigen Komponenten verwendet. Die Kontamination der Bodenkörper erfolgte homogen in einer Tiefe unterhalb 120 cm.

Bei beiden Experimenten wurde ein erheblicher Rückgang der Radonkonzentration der Bodenluft innerhalb des kontaminierten Bodenvolumens beobachtet. Gleichzeitig kam es auch in den

Sondenebenen oberhalb der NAPL-Kontamination zu einer signifikanten Verringerung der Radonkonzentration, wobei der Konzentrationsrückgang hier mit zunehmendem Abstand vom kontaminierten Bodenvolumen geringer wurde und in 5 cm Tiefe kaum mehr zu bemerken war. Der Rückgang der Radonkonzentration der Bodenluft in den GAMS hat die Akkumulation eines Teils des im Porenraum vorhandenen Radons in der jeweils injizierten NAPL zur Ursache. Durch die NAPL-Injektion kam es sowohl zu einer Stagnation des Radonnachschubs aus der Tiefe als auch zu einer Rückdiffusion von Radon aus dem unkontaminierten in den kontaminierten Teil der Bodensäule.

Aufbauend auf den theoretischen Betrachtungen zur Radonmigration im Boden und auf Grundlage der Ergebnisse der Labor- und Migrationsexperimente, wurde eine Technologie zur Messung des Radongehalts der Bodenluft erarbeitet, welche allen theoretischen und praktischen Anforderungen im Sinne der Aufgabenstellung gerecht wird. Zur Überprüfung der Feldtauglichkeit und der Effizienz dieser Meßtechnologie wurden an drei exemplarisch ausgewählten, real kontaminierten Standorten unterschiedlicher Ausdehnung Radonkartierungen durchgeführt. Bei den untersuchten Standorten handelte es sich um zwei stillgelegte Tankstellen und eine ebenfalls stillgelegte Betankungsstation eines Flughafens. Die Standorte zeichneten sich durch NAPL-Kontaminationen des Untergrundes aus, welche in ihrer Lage weitestgehend bekannt waren.

Bei jedem der Standorte wurde die mit Hilfe der Radonkartierung lokalisierte Ausdehnung der jeweiligen NAPL-Kontamination mit der im Vorfeld mit herkömmlichen Mitteln festgestellten Lage der Kontamination verglichen. In jedem der untersuchten Fälle konnte die Lage der NAPL-Kontamination des Untergrundes durch signifikante Minima der Radonkonzentration der Bodenluft lokalisiert werden. Im Falle der ehemaligen Betankungsstation des Flughafens war sogar eine Präzisierung des bis dahin bekannten Schadensbildes möglich. Durch die Feldversuche konnten somit die theoretischen Überlegungen und die experimentellen Ergebnisse in situ bestätigt werden. Gleichzeitig wurde gezeigt, daß die entwickelte Meßtechnologie sowohl eine repräsentative als auch eine effiziente Bodenluftprobenahme im Sinne der Aufgabenstellung ermöglicht.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, daß eine Lokalisierung von NAPL-Kontaminationen der grundwasserungesättigten Bodenzone mit Hilfe der Detektion von Anomalien des Radongehalts der Bodenluft möglich ist. Dabei sind als NAPL-Indikator grundsätzlich Radonminima zu erwarten. Gleichzeitig haben die Untersuchungen gezeigt, daß Radonkartierungen nicht in jedem Falle zur Detektion von NAPL-Kontaminationen geeignet sind. Das eingeschränkte Nutzungspotential der Methode ergibt sich aus den vier im folgenden aufgezählten Punkten.

(1) Eine Aussage darüber, welche konkrete NAPL als Kontaminant im Untergrund vorliegt, kann nicht gemacht werden. (2) Die begrenzte Diffusionslänge des Radons im Boden limitiert die Tiefe detektierbarer NAPL-Kontaminationen. (3) Eine sehr uneinheitliche geologische Situation erschwert die Interpretation der Meßdaten. (4) Eine Detektion von NAPL-Kontaminationen unterhalb des Grundwasserspiegels ist nicht möglich.

Neben der in dieser Arbeit beschriebenen Nutzung von Radon-Kurzzeitmessungen zur Lokalisierung von NAPL-Kontaminationen des Untergrundes können Radonmessungen prinzipiell auch zum Monitoring von aktiven Sanierungsmaßnahmen herangezogen werden. Dazu bieten sich zeitintegrierende Radon-Langzeitmessungen mit Hilfe von Festkörperspurdetektoren an.

7 Literatur

- Ahl, C., Becker, K.W., Jörgensen, R.G., Klages, F.W., Meyer, B. und Wildhagen, H. (1991) Aspekte und Grundlagen der Bodenkunde; Georg-August-Universität Göttingen; Göttingen; Eigenverlag.
- Andrews, J.N. und Wood, D.F. (1972) Mechanism of radon release in rock matrices and entry into groundwaters; Transactions of the Institution of Mining and Metallurgy / B 81; pp. B198 – B209.
- ARAL (2000) Info-Zapfsäule, Typische Bandbreite von Kennwerten marktüblicher Markenkraftstoffe (Winter); ARAL AG; [<http://www.aral.de/kraft/index0.htm>]; Zugriff 15.02.2000.
- Armstrong, F.E. und Heemtsra, J.R. (1973) Radiation halos and hydrocarbon reservoirs: a review; U.S. Department of the Interior / Bureau of Mines; Information Circular 8579.
- Ball, T.K., Cameron, D.G., Colman, T.B. und Roberts, P.D. (1990) Behaviour of radon in the geological environment: a review; Quarterly Journal of Engineering Geology 24; pp. 169 – 182.
- Barton, A.F.M. (1991) Handbook of solubility parameters and other cohesion parameters, 2nd ed.; CRC Press; Boca Raton/FL/USA.
- Beuge, P. (2000) Persönliche Mitteilung.
- Birchard, G.F. und Libby, W.F. (1980) Soil radon concentration changes preceding and following four magnitude 4.2 – 4.7 earthquakes on the San Jacinto Fault in southern California; Journal of Geophysical Research 85 / B6; pp. 3100 – 3106.
- Bird, R.B., Steward, W.E. und Lightfoot, E.N. (1960) Transport phenomena; John Wiley & Sons; New York/NY/USA (u.a.).
- Bowles, J.E. (1979) Physical and geotechnical properties of soils; McGraw-Hill; New York/NY/USA (u.a.); p. 213.
- Bruno, C.R. (1983) Sources of indoor radon in houses: a review. Journal of the Air Pollution Control Association; 33 / 2; pp. 105 – 109.
- Bundt, J. (1993) Mineralölanalytik von Bodenkontaminationen; in: Franzius, V. et al. (Hrsg.): Handbuch der Altlastensanierung, Kap. 3.2.2.8, 14. Lieferung 2/93; C.F. Müller Verlag; Heidelberg; pp. 1 – 19.
- Bunzl, K., Ruckerbauer, F. und Winkler, R. (1998) Temporal and small-scale spatial variability of radon-222 gas in a soil with a high gravel content; The Science of the Total Environment 220; pp. 157 – 166.
- Clements, W.E. und Wilkening, M.H. (1974) Atmospheric pressure effects on radon-222 transport across the earth-air interface; Journal of Geophysical Research 79 / 33; pp. 5025 - 2029.
- Clever, H.L. (Hrsg.) (1979) Solubility data series, volume 2: Krypton, Xenon and Radon – gas solubilities; International Union of Pure and Applied Chemistry; Pergamon Press; Oxford/UK (u.a.).
- Currie, J.A. (1961) Gaseous diffusion in porous media, part 3 - wet granular materials; British journal of applied physics 12, pp. 275 – 281.
- Fleischer, R.L. (1980) Radon flux from the earth: methods of measurement by nuclear track technique; Journal of Geophysical Research 85 / C12; pp. 7553 – 7556.

- Fleischer, R.L. und Mogro-Campero, A. (1985) Association of subsurface radon changes in Alaska and the northeastern United States with earthquakes; *Geochimica et Cosmochimica Acta* 49; pp. 1061 – 1071.
- Fleischer, R.L., Price P.B. und Walker, R.M. (1975) Nuclear tracks in solids – principles and applications; University of California Press; Berkley/CA/USA (u.a.).
- Folkerts, K.H. (1991) Messverfahren zur Bestimmung von Radon und kurzlebigen Radonfolgeprodukten und deren Ergebnisse bei internationalen Vergleichsmessungen – ein Überblick; in Völks, H. und Borchardt, D. (Hrsg.). Messung von Radon und Radonfolgeprodukten; Tagungsband zum Kolloquium des Fachverbandes für Strahlenschutz e.V. am 06. – 07.05.1991, Hahn-Meitner-Institut Berlin; pp. 37 - 52.
- Fukui, M. (1987) Soil water effects on concentration profiles and variations of radon in a vadose zone; *Health Physics* 53/2; pp. 181 – 186.
- Gast, H. und Stolz, W. (1982) Beziehungen zwischen meteorologischen Bedingungen und der Radonkonzentration von Bodenluft; *Isotopenpraxis* 18 / 7; pp. 250 – 253.
- Gaucher, E. (1976) Alphameters: uranium prospecting by radon detection, the newest development in the oldest radiometric prospecting method; *Canadian Mining Journal* 04 /76; pp. 28 – 34.
- 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..
- Gill, R.C.O. (1993) Geochemische Grundlagen der Geowissenschaften, Enke, Stuttgart.
- Guffraz, F. und Redman, D. (1995) Study of radon diffusion related to detection of NAPL contamination in the subsurface; Institut National Polytechnique de Grenoble / Waterloo Centre for Groundwater Research; unveröffentlicht.
- Hirst, W. und Harrison, G.E. (1939) The diffusion of radon gas mixtures; *Proceedings of the Royal Society of London (A)* 14 / 169; pp. 573 - 586.
- Hoehn, E., Höhener, P., Hunkeler, D., Zeyer, J. und Zweifel, H.R. (1996) A recent application of Rn-222 as a groundwater tracer: can we use radon to detect organic contaminants in the subsurface? In: *Isotopes in water resources management, Symposium Proceedings*; International Atomic Energy Agency; Vienna.
- Hoehn, E., von Grunten H.R., Stauffer, F. und Dracos, T. (1992) Radon-222 as a groundwater tracer – a laboratory study; *Environmental Science and Technology* 26; pp. 734 – 738.
- Hölting, B. (1989) Einführung in die allgemeine und angewandte Hydrogeologie, Enke, Stuttgart.
- Holford, D.J., Schery, S.D., Wilson, J.L. und Phillips, F.M. (1993) Modeling radon transport in dry cracked soil; *Journal of Geophysical Research* 98 / B1; pp.567 – 580.
- Hopkins, O.S. (1995) Radon as an indicator for nonaqueous phase liquids in the saturated zone: developing a detection technology; Oregon State University; Masters Thesis; unveröffentlicht.
- Hunkeler, D., Höhener, P. und Zeyer, J. (1997a) Can radon be used as a partitioning tracer to detect mineral oil contamination?; in: Kranjc, A. (Hrsg.). *Tracer Hydrology*; Balkema; Rotterdam/Holland (u.a.); pp. 63-68.
- Hunkeler, D., Hoehn, E., Höhener, P. und Zeyer, J. (1997b) Radon-222 as a partitioning tracer to detect diesel fuel contamination in aquifers: laboratory study and field observations; *Environmental Science and Technology* 31; pp. 3180-3187.
- Jolley, B.E. und Hildebrand, J.H. (1957) Solubility, entropy and partial molal volumes in solutions of gasses in non-polar solvents; *Journal of the American Chemical Society* 80; pp. 1050 – 1054.

- Keller, G., Folkerts, K.H. und Muth, H. (1984) Special aspects of the radon-222 and daughter product concentration in dwellings and in the open air; *Radiation Protection Posimetry* 7 / 1-4; pp. 151 - 154.
- King, C.Y. (1978) Radon emanation on San Andreas Fault; *Nature* 271; pp. 516 – 519.
- Klatt, C. (1998) Untersuchungen zur Wechselwirkung von Radongehalten in der Grundluft mit organischen Kontaminationen; Bergakademie Freiberg; Freiberg; Diplomarbeit; unveröffentlicht.
- Klusman, R.W. und Webster, J.D. (1981) Preliminary analysis of meteorological and seasonal influences on crustal gas emission relevant to earthquake prediction; *Bulletin of the Seismological Society of America* 71 / 1; pp. 211 – 222.
- Kovach, E.M. (1945) Meteorological influences upon the radon-contents of soil-gas; *Transactions of the American Geophysical Union* 26 / 2; pp. 241 - 248.
- Lewis, C., Hopke, P.K., Stukel, J. (1987) Solubility of radon in selected perfluorocarbon compounds and water; *Industrial Engineering & Chemical Research* 26; pp. 356-359.
- Lide, D.R. (Ed.) (1992) *Handbook of chemistry and physics*, 73rd ed.; CRC Press; Boca Raton/FL/USA.
- Lindmark, A. und Rosen, B. (1985) Radon in soil gas – exhalation tests and in situ measurements; *The Science of the Total Environment* 45; pp. 397 – 404.
- Linford, R.G., Hildebrand, J.H. (1969) Solubility of gases in mixtures of nonpolar liquids; *Journal of Physical Chemistry* 73; pp. 4410-4411.
- Lyons, J. (1994) Hydrocarbon tracing; *Scintrex Technical Information*; Scintrex Inc.; Buffalo; unveröffentlicht.
- Mason, B. und Moore, C.B. (1985) *Grundzüge der Geochemie*; Enke; Stuttgart.
- Megumi, K. und Mamuro, T. (1977) Concentration of uranium series nuclides in soil particles in relation to their size; *Journal of Geophysical Research* 82 / 2; pp. 353 - 356.
- Megumi, K. und Mamuro, T. (1974) Emanation and exhalation of radon and thoron gases from soil particles; *Journal of Geophysical Research* 79 / 23; pp. 3357 - 3360.
- Meißner, R., Rupp, H. und Schubert, M. (2000) The lysimeter – an important tool for the investigation of water, gas and solute transport in the unsaturated and saturated zone of the soil, in: Kaushish, S.P. und Rao, A.R.G. (Hrsg.). *Conference Proceedings of the third international R & D conference*, Vol. 2: Water Recourses, Jabalpur, India; pp. 254 – 260.
- Merck KgaA (2000) Persönliche Mitteilung.
- Meyer, S. und von Schweidler, E. (1916) *Naturwissenschaft und Technik in Lehre und Forschung – Radioaktivität*; Teubner; Leipzig.
- Mochizuki, S. und Sekikawa, T. (1978) Radon-222 exhalation and its variation in soil air; *Proceedings of the International Symposium on the Natural Radiation Environment* 3; pp.15 – 17.
- Mogro-Campero, A. und Fleischer, R.L. (1977) Subterrestrial fluid convection: a hypothesis for long-distance migration of radon within the earth; *Earth and Planetary Science Letters* 34; pp. 321 - 325.
- Monnin, M. und Seidel, J.L. (1998) An automatic radon probe for earth science studies; *Journal of Applied Geophysics* 39; pp. 209 – 220.
- Morse, J.G. (1989) Improving the quality of radiometric data; *Oil & Gas Journal*, October 16 / 1989; pp. 88 - 89.
- Morse, J.G. (2000) Persönliche Mitteilung.

- Morse, J.G. und Zinke, R. (1995) The origin of radiometric anomalies in petroleum basins – a proposed mechanism; *Oil & Gas Journal*, June 5 / 1995; pp. 36 - 38.
- Morse, J.G. und Rana, M.H. (1983) New perspectives on radiometric exploration for oil and gas; *Oil & Gas Journal*, June 6 / 1983; pp. 87 - 90.
- Morse, J.G., Rana, M.H. und Morse L. (1982) Radon mapping as indicator of subsurface soil and gas; *Oil & Gas Journal*, May 10 / 1982; pp. 227 - 246.
- Mowris, J.R. und Fisk, W.J. (1988) Modeling the effects of exhaust ventilation on radon-222 entry rates and indoor radon-222 concentrations; *Health Physics* 54 / 5; pp. 491 – 501.
- Nazaroff, W.W. (1992) Radon transport from soil to air; *Reviews of Geophysics* 30/2; pp. 137 – 160.
- Nazaroff, W.W. (1988) Predicting the rate of radon-222 entry from soil into the basement of a dwelling due to pressure driven air flow; *Radiation Protection Dosimetry* 24 - 1 / 4; pp. 199 – 202.
- Nazaroff, W. W. und Sextro, R.G. (1989) Technique for measuring the indoor radon-222 source potential of soil; *Environmental Science and Technology* 23; pp. 451 – 458.
- Nazaroff, W.W., Moed, B.A. und Sextro, R.G. (1988) Soil as a source of indoor radon: generation, migration, and entry; in Nazaroff, W.W. und Nero, A.V. Jr. (Hrsg.). *Radon and its decay products in indoor air*; John Wiley & Sons; New York/NY/USA (u.a.); pp. 57 - 112.
- Nero, A.V. Jr. (1988) Radon and its decay products in indoor air: an overview; in Nazaroff, W.W. und Nero, A.V. Jr. (Hrsg.) *Radon and its decay products in indoor air*; John Wiley & Sons; New York/NY/USA (u.a.); pp. 1 - 53.
- Nielson, K.K., Rogers, V.C., Rogers, V. und Holt, R.B. (1994) The RAETRAD model of radon generation and transport from soils into slab-on-grade houses; *Health Physics* 67 / 4; pp. 363 – 377.
- Owczarski, P.C., Holford, D.J., Freeman, H.D. und Gee, G.W. (1990) Effects of changing water content and atmospheric pressure on radon flux from surfaces of five soil types; *Geophysical Research Letters* 17 / 6; pp. 817 – 820.
- Peacock, J.D und Williamson, R. (1961) Radon determination as a prospecting technique; *Transactions of the Institution of Mining and Metallurgy* 71; pp. 75 – 85.
- Porstendörfer, J., Butterweck, G. und Reineking, A. (1994) Daily variations of the radon concentration indoors and outdoors and the influence of meteorological parameters; *Health Physics* 67 / 3; pp. 283 - 287.
- Porstendörfer, J., Butterweck, G. und Reineking, A. (1991) Diurnal variation of the concentrations of radon and its short-lived daughters in the atmosphere near the ground; *Atmospheric Environment* 25A, 3 / 4; pp. 709 - 713.
- Porstendörfer, J., Wicke, A. und Schraub, A. (1978) Methods for a continuous registration of radon, thoron, and their decay products indoors and outdoors; *Proceedings of the International Symposium on the Natural Radiation Environment* 3.1978; pp. 1293 – 1307.
- Prausnitz, J.M., Lichtenthaler, R.E., und de Azevedo, E.G. (1986) *Molecular thermodynamics of fluid phase equilibria*, 2nd ed.; Prentice Hall; Englewood Cliffs/NJ/USA.
- Prausnitz, J.M., und Shair, F.H. (1961) A thermodynamic correlation of gas solubilities, *American Institute of Chemical Engineering Journal* 7; pp. 682-687.
- Rama und Moore, W.S. (1984) Mechanism of transport of U – Th series radioisotopes from solids into ground water; *Geochimica et Cosmochimica Acta* 48; pp. 395 – 399.

- Rehs, B. (1999) Der Einfluß meteorologischer Parameter auf den Radontransport im Boden; Georg-August-Universität Göttingen; Göttingen; Dissertation.
- Rehs, B., Wendt, J., Reineking, A. und Porstendörfer, J. (1998) Der Einfluß von Niederschlag auf die Radonexhalationsrate; in Winter, M., Heinrichs, K. und Doerfel (Hrsg.) Radioaktivität in Mensch und Umwelt, Band 1; TÜV-Verlag; Köln; pp. 373 – 378.
- Reineking, A., Porstendörfer, J., Dankelmann, V. und Wendt, J. (1998) Die Größenverteilung der unangelagerten kurzlebigen Radonfolgeprodukte; in Winter, M., Heinrichs, K. und Doerfel (Hrsg.) Radioaktivität in Mensch und Umwelt, Band 1; TÜV-Verlag; Köln; pp. 503 – 508.
- Rice, P.A., Fontugne, D.J., Latini, R.G. und Barduhn, A.J. (1970) Anisotropic permeability in porous media; Industrial and Engineering Chemistry – international edition 62 / 6; pp. 23 – 31.
- Richter, B. und Roßbander, W. (1997) Radonrisiko bei Bodenluftsanierungen; Tagungsband des 9. Conulaqua Workshop zu innovativen Verfahren in der Erkundung, Bewertung, Gefahrenabwehr bei Altlasten; Dresden 17. – 18. 04. 1997; pp. 53 – 58.
- Rösler, H.J. (1984) Lehrbuch der Mineralogie; Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie; Leipzig.
- Rogers, V.C. und Nielson, K.K. (1991) Correlations for predicting air permeabilities and radon-diffusion coefficients in soils; Health Physics 61 / 2; pp. 225 – 230.
- DeRyck, S.M., Redman, J.D. und Annan, A.P. (1993) Geophysical monitoring of a controlled kerosene spill – proceedings of the symposium on the application of geophysics to engineering and environmental problems, San Diego/CA/USA, 04/93; pp. 5 – 20.
- Schachtschabel, P., Blume, H.-P., Brümmer, G., Hartge, K.-H. und Schwertmann, U. (Hrsg.) (1989) Lehrbuch der Bodenkunde; Enke; Stuttgart.
- Schaefer, C.E., Arands, R.R. und Kosson, D.S. (1998) Modeling of the gaseous diffusion coefficient in the presence of NAPL; Journal of Contaminant Hydrology 33; pp. 431 – 437.
- Scheidegger, A.E. (1974) The physics of flow through porous media, third edition., section 6.3; University of Toronto Press; Toronto/Ontario/Canada.
- Schery, S.D. und Whittlestone, S. (1989) Desorption of radon at the earth's surface; Journal of Geophysical Research 94 / D15; pp. 18297 - 18303.
- Schery, S.D., Gaeddert, D.H. und Wilkening, M.H. (1984) Factors affecting exhalation of radon from a gravelly sandy loam; Journal of Geophysical Research 89 / D5; pp. 7299 - 7309.
- Schery, S.D. und Patschek, A.G. (1983) Exhalation of radon and thoron: the question of the effect of thermal gradients in soil; Earth and Planetary Science Letters 64; pp. 56 – 60.
- Schiffer, R. (1996) Untersuchungen zur Erkundung der Lage überdeckter Permeabilitätszonen unter Berücksichtigung von Einflußfaktoren auf den Helium- und Radongehalt der Bodenluft; Technische Universität Clausthal; Clausthal; Dissertation.
- Schirmer, M. (1994) Literature study of radon and thoron production in the shallow subsurface and their application in detecting non-aqueous phase-liquid (NAPL) groundwater contamination; Waterloo Centre for Groundwater Research, University of Waterloo/Ontario/Canada; Geophysical Technical Note GTN-94-05; unveröffentlicht.
- Schmid, S. und Wiegand, J. (1998) The influence of traffic vibrations on the radon potential; Health Physics 74 / 2; pp. 231 – 236.
- Schubert, H. und Klug, H.P. (1999) Erfassung von Kohlenwasserstoff-Kontaminationen im Boden durch Messung des Radon-Gehaltes in der Bodenluft; FE-Verbundvorhaben, Teilvorhaben 2: Methodenentwicklung und Feldversuche; unveröffentlicht.

- Schubert, M. (1999a) Erfassung von Kontaminationen durch Non-Aqueous Phase-Liquids (NAPLs) in Aquiferen mit Hilfe der Bestimmung von Gehalten der Bodenluft an Radon-222, Ergebnisbericht; Deutsche Bundesstiftung Umwelt; Osnabrück; unveröffentlicht.
- Schubert, M. (1999b) Der Gas-Migrations-Simulator; Umweltmagazin 10 (99); p. 36.
- Schubert, M. (1999c) Erfassung von Bodenkontaminationen durch nichtwässrige Flüssigphasen (Non-Aqueous Phase-Liquids, NAPLs) mit Hilfe der Bestimmung der Radon-222-Konzentration der Bodenluft; Tagungsband der 3. Geochemiker Tagung, Göttingen 13. – 15. 05. 1999; pp. 46 – 47.
- Schubert, M. (2000) Erfassung von Kontaminationen durch Non-Aqueous Phase-Liquids (NAPLs) im Untergrund mit Hilfe der Bestimmung von Gehalten der Bodenluft an Radon-222, Ergebnisbericht; Deutsche Bundesstiftung Umwelt; Osnabrück; unveröffentlicht.
- Schubert, M. und Schulz, H. (2000) Diurnal alterations in the radon concentration of the soil gas and the soil close atmosphere and their dependence on short term changes of the meteorological parameters; (in prep.).
- Schubert, M., Freyer, K., Treutler, H.C. und Weiss, H. (2000) Radon as an indicator of subsurface NAPL contamination; in: Rosbjerg et al. (Hrsg.). Groundwater Research; Balkema, Rotterdam/Holland (u.a.); pp. 127 – 128.
- Schubert, M., Freyer, K., Meißner, R. und Rupp, H. (1999) Meßeinrichtung zur Untersuchung des Migrationsverhaltens von Gasen in Böden; DE-Patentanmeldung 199 07 461.5-52.
- Schulz, H. (2000) Persönliche Mitteilung.
- Schulz, H. und Rothe, S. (1999) Erfassung von Kohlenwasserstoff-Kontaminationen im Boden durch Messung des Radon-Gehaltes in der Bodenluft; FE-Verbundvorhaben, Teilvorhaben 1: Modellierung des Radon-Transportes; unveröffentlicht.
- Schumann, R.R. und Gundersen, L.C.S. (1996) Geologic and climatic controls on the radon emanation coefficient; Environmental International 22 / Suppl. 1; pp. S439 – S446.
- Schütz, M. (1994). Der Einfluß meteorologischer und geogener Parameter auf die Radonmigration im Erdboden; Universität des Saarlandes; Saarbrücken; Dissertation.
- Schütz, M. und Keller, G.W. (1994) Problems of radon screening in the upper layer of the soil; Radon Protection Dosimetry 56 / 1 - 4; pp. 235 - 237.
- SCINTREX (1993) Radon Prospecting: A new technique to assist in the definition of hydrocarbon contamination plume boundaries in soil and / or groundwater; Scintrex Technical Information; Scintrex Inc.; Buffalo/NY/USA; unveröffentlicht.
- Seim, R. und Tischendorf, G. (1990) Grundlagen der Geochemie; Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie; Leipzig.
- Serdyokova, A.S. und Kapitanov, Y.T. (1978) Radon isotopes and short lived products and their disintegration in nature; U.S. Department of the Interior / Bureau of Mines; Washington, DC.
- Semprini, L.M., Hopkins, O.S. und Tasker, B.R. (2000) Laboratory, field and modeling studies of radon as a natural tracer for monitoring NAPL remediation; Transport in Porous Media 38; pp. 223 – 240.
- Semprini, L.M., Cantaloub, S., Gottipati, O. und Istok, J. (1998) Radon-222 as a natural tracer for quantifying and monitoring NAPL remediation; in: Wickramanayake, G.B. und Hinchee, R.E. (Hrsg.). Nonaqueous-phase liquids - remediation of chlorinated and recalcitrant compounds, symposium proceedings, First International Conference on the Remediation of Chlorinated and Recalcitrant Compounds, Monterey/CA/USA, 18. – 21. 05. 1998; pp. 137 – 142.

- Semprini, S., Hopkins, O.S., Gottipati, S. und Tasker, B.R. (1995) Field, laboratory and modeling studies of radon-222 as a natural tracer for detecting NAPL contamination in the subsurface and monitoring the progress of remediation; EOS - Transcripts of the American Geophysical Union 76 / 46; pp. F276 – 285.
- Singh, B. und Virk, H.S. (1996) Effect of soil and sand moisture content on radon diffusion using plastic track etched detector; Radiation Measurements 26 / 1; pp. 49 – 50.
- van der Spoel, W.H., van der Graaf, E.R. und de Meijer R.J. (1997) Diffuse transport of radon in a homogenous column of dry sand; Health Physics 72 / 5; pp. 766 – 778.
- Steinberg, M. und Manowitz, B. (1959) Recovery of fission product noble gases; Industrial Engineering & Chemical Research 51; pp. 47-50.
- Stranden, E., Kolstad, A.K. und Lind, B. (1984) Radon exhalation: moisture and temperature dependence; Health Physics 47 / 3; pp. 480 - 484.
- Strong, K.P. und Lewins, D.M. (1982) Effect of moisture content on radon emanation from uranium ore and tailings; Health Physics 42 / 1; pp. 27 – 32.
- Strunz, H. (1982) Mineralogische Tabellen; Akademische Verlagsgesellschaft Geest & Portig; Leipzig.
- Tanner, A.B. (1980) Radon migration in the ground: a supplementary review; in: Gesell, T.F. und Lowder, W.M. (Hrsg.). Proceedings of the International Symposium on the Natural Radiation Environment 3, Conf-780422; US Department of Commerce, National Technical Information Service, Springfield/IL/USA; pp.5 - 40.
- Tanner, A.B. (1964) Radon migration in the ground: a review; in: Adams, J. A. S. und Lowder, W. M. (Hrsg.). Proceedings of the International Symposium on the Natural Radiation Environment; University of Chicago Press; Chicago/IL/USA; pp. 161 - 181.
- Tasker, B.R. (1995) Radon-222 as an indicator for non-aqueous phase liquids in the saturated zone: a numerical methods analysis; Oregon State University, Masters Thesis; unveröffentlicht.
- Telford, W.M. (1983) Developments in geophysical exploration methods – Vol. 4; Elsevier; Oxford/UK (u.a.); pp.155 – 197.
- Topp, G.C., Zebchuc, W.D. und Dumanski, J. (1980) The variation of in situ measured soil water properties within soil map units; Canadian Journal of Soil Science 60; pp. 497 – 509.
- Uchdorf, W. (1990) Experimentelle Untersuchungen zur diffusiven und konvektiven Radonmigration im ariden Klimabereich; Technische Universität Berlin; Berlin; Dissertation.
- Velty, S. (1999) Labor- und Felduntersuchungen zur Wechselwirkung von Radonexhalation und organischer Kontamination; TU Bergakademie Freiberg; Freiberg; Diplomarbeit; unveröffentlicht.
- Wahl, W. (1996) α , β , γ - table of commonly used radionuklides; Institution for Spectrometry and Radiation Protection; Schliersee; Germany; unveröffentlicht.
- Warren, R.K. (1977) Recent advances in uranium exploration with electronic alpha cups; Geophysics 42 / 5; pp. 982 – 989.
- Weigel, F. (1978) Radon; Chemiker-Zeitung 102 / 9; pp. 287 – 299.
- Wilkening, M. (1990) Radon in the environment.- studies in environmental science 40; Elsevier; Amsterdam/Holland (u.a.).
- Wilkening, M.H. (1974) Radon from the island of Hawaii: deep soils are more important than lava fields or volcanoes; Science 183; pp. 413 – 415.

- Wilson, R.D. und Mackay, D.M. (1995) Direct detection of residual nonaqueous phase liquid in the saturated zone using SF₆ as a partitioning tracer; *Environmental Science and Technology* 29; pp. 1255 – 1258.
- Woith, H. und Pekdeger, A. (1995) Soil radon and non tectonic effects: a contribution to the joint German-Turkish project on earthquake prediction research; in: Dubois C. et al. (Hrsg.). *Gas geochemistry*; University of France-Comté; Supplement to Vol.16; pp. 135 - 146.
- Worm, R. (1986) *Das Gaskinetische Verhalten von Radon unter dem Einfluß von Bodenwasser in Lockergesteinen über verdeckten Uranvorkommen*; Technische Universität Berlin; Berlin; Dissertation.

8 Anhang

Anhang A: Im Zuge der Mischungs- und Durchströmungsexperimente ermittelte Radon-Verteilungskoeffizienten zwischen verschiedenen NAPLs und Wasser ($K_{NAPL/W}$)

Anhang B: Siebanalysen der Urantailings und des Quarzsandes

Anhang C: Spezifische Radiumaktivitäten der Urantailings

Anhang D: GAMS-Daten des August 1999 zur Abhängigkeit der Radonkonzentration der Bodenluft von meteorologischen Parametern (Down-Load unter <ftp://safira.ufz.de/publikationen>)

Anhang E: GAMS-Daten zur Abhängigkeit der Radonkonzentration der Bodenluft von Niederschlägen, Grundwasserspiegelschwankungen und NAPL-Kontaminationen (Down-Load unter <ftp://safira.ufz.de/publikationen>)

Anhang F: Geländedaten zu den Radonkartierungen: Lokale Hoch- und Rechtswerte der Meßpunkte der Radonkartierungen auf den Standorten 1, 2 und 3 sowie Radonkonzentrationen der Bodenluft an den Meßpunkten (Down-Load unter <ftp://safira.ufz.de/publikationen>)

Anhang G: Fotodokumentation

**Anhang A: Im Zuge der Mischungs- und Durchströmungsexperimente
ermittelte Radon-Verteilungskoeffizienten zwischen
verschiedenen NAPLs und Wasser ($K_{NAPL/W}$)**

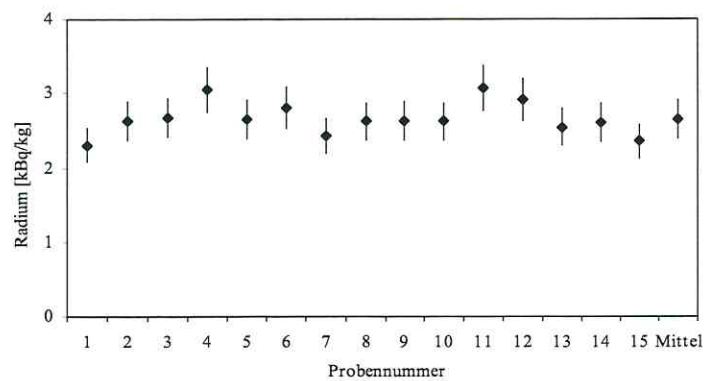
Mischungsexperimente

NAPL	C_{Rn}^{NAPL} [Bq/l]	C_{Rn}^W [Bq/l]	$K_{NAPL/W}$	Mittel	STD
Benzin 1	549	10	54,9		
Benzin 2	296	5	59,2		
Benzin 3	255	5	51,0		
Benzin 4	85	2	42,5		
Benzin 5	161	3	53,7		
Benzin 6	212	5	42,4		
Benzin 7	523	10	52,3	50,9	5,8
Diesel 1	583	14	41,6		
Diesel 2	541	13	41,6		
Diesel 3	244	5	48,8		
Diesel 4	77	2	38,5		
Diesel 5	93	2	46,5		
Diesel 6	511	10	51,1		
Diesel 7	201	4	50,3		
Diesel 8	121	3	40,3		
Diesel 9	392	10	39,2		
Diesel 10	199	5	39,8	43,8	4,6
Petroleum 1	354	8	44,3		
Petroleum 2	420	8	52,5		
Petroleum 3	255	8	31,9		
Petroleum 4	337	10	33,7	40,6	8,3

Durchströmungsexperimente

NAPL	C_{Rn}^{NAPL} [Bq/l]	C_{Rn}^W [Bq/l]	$K_{NAPL/W}$	Mittel	STD
Diesel 1	1230	32	38,4		
Diesel 2	300	8	37,5		
Diesel 3	80	2	40,0	38,6	1,0
Petroleum 1	395	10	39,5		
Petroleum 2	238	5	47,6	43,6	4,1

Anhang C: Spezifische Radiumaktivitäten der Urantailings



Probe Nr.	A_{Ra}	Standardabweichung
1	2,30	0,23
2	2,64	0,26
3	2,67	0,27
4	3,05	0,31
5	2,65	0,27
6	2,80	0,28
7	2,43	0,24
8	2,62	0,26
9	2,63	0,26
10	2,62	0,26
11	3,07	0,31
12	2,92	0,29
13	2,55	0,25
14	2,61	0,26
15	2,36	0,24
Mittel	2,66	0,27

Anhang D: GAMS-Daten des August 1999 zur Abhängigkeit der Radonkonzentration der Bodenluft von meteorologischen Parametern
(Down-Load unter <ftp://safira.ufz.de/publikationen>)

Zeitreihen

- der Radonkonzentration der Bodenluft aus den Sondenebenen S1 (0 cm), S2 (5 cm), S3 (30 cm) und S4 (70 cm)
- der Temperatur aus den Sondenebenen S1 (0 cm), S2 (5 cm), S3 (30 cm), S4 (70 cm), S5 (140 cm) und S6 (200 cm)
- der Bodenfeuchte aus den Sondenebenen S2 (5 cm), S3 (30 cm), S4 (70 cm) und S5 (140 cm)
- der Windgeschwindigkeit
- des Luftdrucks

Anhang E: GAMS-Daten zur Abhängigkeit der Radonkonzentration der Bodenluft von Niederschlägen, Grundwasserspiegelschwankungen und NAPL-Kontaminationen
(Down-Load unter <ftp://safira.ufz.de/publikationen>)

Zeitreihen

- des Beregnungsexperiments
- des Überstauexperiments
- des Benzinexperiments
- des Deselexperiments

Anhang F: Geländedaten zu den Radonkartierungen
(Down-Load unter <ftp://safira.ufz.de/publikationen>)

Lokale Hoch- und Rechtswerte der Meßpunkte der Radonkartierungen auf den Standorten 1, 2 und 3 sowie Radonkonzentrationen der Bodenluft an den Meßpunkten

Anhang G: Fotodokumentation



Bild 1: Glas-Marinelli-Becher zur Durchführung der gammaspektrometrischen Bestimmung der Radonkonzentrationen in der NAPL (links) und im Wasser (rechts).

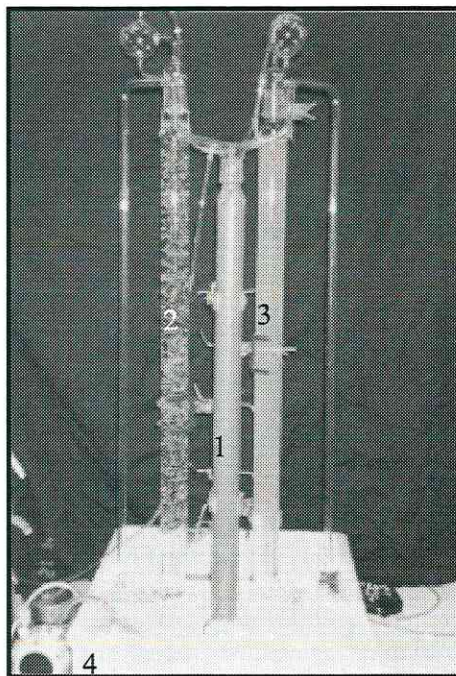


Bild 2: Apparatur zur Durchführung der Durchströmungsversuche mit 1. Radonquellmaterial (Tailingssäule), 2. Wassersäule, 3. NAPL-Säule und 4. Pumpe.



Bild 3: Gasmigrationssimulatoren (GAMS) im Viererblock. Zwei der GAMS sind durch eine an der Basis offene Plexiglashaube abgedeckt. Zwei der GAMS sind gasdicht verschlossen.

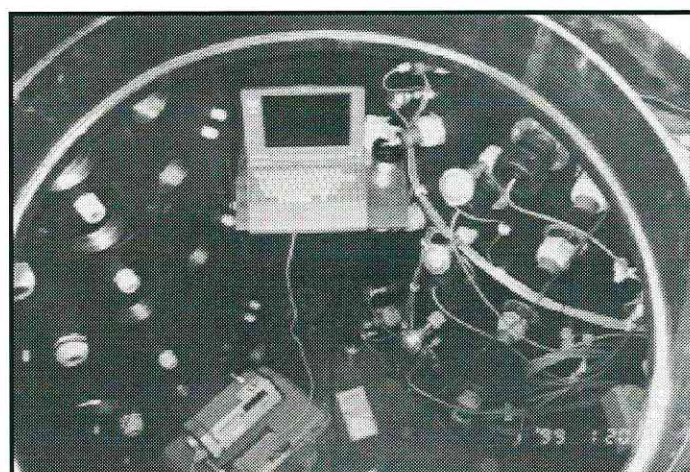


Bild 4: Blick in den Probenahmeschacht eines GAMS-Viererblocks. Der rechte GAMS ist mit Sonden bestückt (inklusive Alpha-GUARD, Mitte unten), der linke GAMS ist noch nicht in Betrieb.

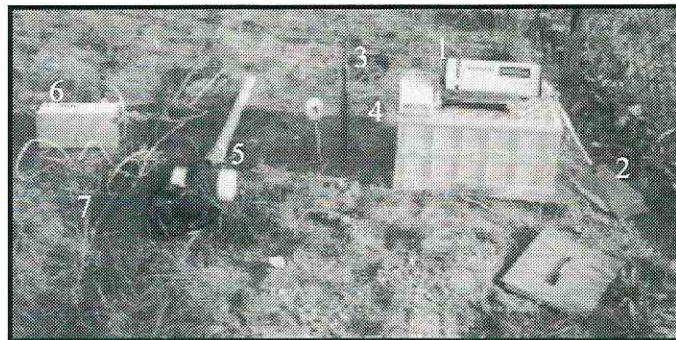


Bild 5: Komplette Feldausrüstung für eine Radonkartierung mit

- 1 Radonmonitor Alpha-GUARD
- 2 Luftsack
- 3 Sondensystem
- 4 Alpha-Pump
- 5 schwerer Kunststoffhammer
- 6 Bodenfeuchtemeßgerät Easy-Test
- 7 Bodenfeuchtesonde

Danksagung

An erster Stelle möchte ich mich bei den Herren Prof. Dr. Hartmut Heinrichs und Prof. Dr. Jürgen Schneider für die Betreuung der durchgeführten Arbeit bedanken.

Mein besonderer Dank gilt den Herren Dr. Hartmut Schulz und Dr. Heinz Schubert für die jederzeit gewährte Unterstützung, die ständige Diskussionsbereitschaft und die gute Zusammenarbeit.

Der Deutschen Bundesstiftung Umwelt danke ich für die Gewährung eines Stipendiums und für die zahlreichen Annehmlichkeiten die mir neben dieser finanziellen Unterstützung zuteil wurden.

Weiterhin gilt mein Dank allen Mitarbeitern der Arbeitsgruppe Umweltradioaktivität und des Projektbereiches Industrie- und Bergbaufolgelandschaften am Umweltforschungszentrum Leipzig-Halle GmbH für die motivierende Arbeitsatmosphäre und die vielen wertvollen Anregungen. Insbesondere danke ich den Herren Dr. Holger Weiß und Dr. Klaus Freyer für die zahlreichen Diskussionen und für die freien Gestaltungsmöglichkeiten bei der Bearbeitung des Themas. Weiterhin danke ich Herrn Dr. Albrecht Paschke für die engagierte Diskussion thermodynamischer Zusammenhänge.

Dem Umweltforschungszentrum Leipzig – Halle GmbH danke ich für die umfangreiche materielle Unterstützung der Arbeit, die keine Wünsche offen ließ und ohne die diese Arbeit nicht möglich gewesen wäre. In persona danke ich den Herren Dr. Holger Weiß, Dr. Klaus Freyer und Herrn Prof. Dr. Ralf Meißner für ihr Engagement bei der Ermöglichung der praktischen Umsetzung der zahlreichen Ideen.

Den Herren Prof. Dr. Lothar Funke, Dr. Hans-Christian Treutler und Steffen Rothe danke ich für die Unterstützung bei der Durchführung der gammaspektrometrischen Analytik. Weiterhin danke ich Herrn Dr. Holger Rupp, Herrn Ralf Engelman, Herrn Ramon Trombska und Herrn Markus Schniggenfittig für ihre Hilfe bei der Datenerhebung.

Lebenslauf

Name: Michael Schubert
Geburtsdatum: 08.10.1964
Geburtsort: Leipzig
Staatsangehörigkeit: deutsch

09/1971 - 07/1981	Zehnklassige allgemeinbildende polytechnische Oberschule in Leipzig; Abschluß der Ausbildung mit Gesamtpredikat "Gut"
09/1981 - 07/1983	Lehrausbildung zum Geologie-Facharbeiter in der Fa. Geophysik Leipzig; Abschluß der Ausbildung mit Gesamtpredikat "Gut"
08/1983 - 09/1988	Anstellung in der Fa. Geophysik Leipzig als Geologie-Facharbeiter; zwischenzeitliche Ableistung des Wehrdienstes (11/1986 - 05/1988)
03/1984 - 07/1986	Gleichzeitige Erlangung der Hochschulreife an der Volkshochschule Leipzig; Abschluß der Ausbildung mit Gesamtpredikat "Gut"
09/1988 - 02/1990	Hochschulstudium in der Fachrichtung Geologie / Paläontologie an der Ernst - Moritz - Arndt - Universität Greifswald; Erlangung des Vordiploms mit Gesamtpredikat "Gut"
03/1990 - 07/1993	Hochschulstudium in den Fächern Geochemie / Mineralogie und Geologie an der Georg - August - Universität Göttingen; Abschluß der Ausbildung als Diplom - Mineraloge mit dem Gesamtpredikat "Sehr Gut"
09/1993 - 03/1995	Anstellung bei der Fa. OVE ARUP & Partners in London als Wissenschaftler für Umweltfragen ("Environmental Scientist"); das Aufgabenfeld umfaßte die umweltrelevante Einschätzung kontaminierter Standorte
04/1995 - 10/1995	Tätigkeit bei der Fa. NOELL Umweltdienste GmbH in Leipzig als Umweltgeologe; das Aufgabenfeld umfaßte die umweltrelevante Einschätzung alter Industriestandorte
11/1995 - 05/1998	Anstellung bei der Fa. BGI zu Höne, Klußmann und Altpeter AG in Leipzig als Umweltgeologe; das Aufgabenfeld umfaßte die Erkundung und Einschätzung kontaminierter Standorte; Spezialisierung auf die Betrachtung von Kontaminationen durch Non-Aqueous Phase-Liquids
seit 06/1998	Stipendiat der Deutschen Bundesstiftung Umwelt; Tätigkeit als Umweltwissenschaftler am UFZ - Umweltforschungszentrum Leipzig - Halle GmbH im Rahmen eines Forschungsprojekts. Zielstellung des Projekts ist die Entwicklung eines innovativen Verfahrens zur Erfassung von Untergrundkontaminationen durch Non-Aqueous Phase-Liquids (NAPLs) mit Hilfe der Bestimmung der Radonkonzentration der Bodenluft