

RADON ALS INDIKATOR FÜR MINERALÖL-KOHLLENWASSERSTOFFE IM BODEN

Die Konzentration von Radon in der Bodenluft C^{Rn} wird bestimmt durch die Aktivitätskonzentration A_{Radium} der Bodensubstanzen in Bq/kg, der Trockendichte des Bodens $\rho_{trocken}$ in kg/m^3 , des Emanationskoeffizienten ϵ sowie der Porosität n und der Wassersättigung des Porenraumes s und ist durch folgende Beziehung definiert

$$C_0^{Rn} = \frac{\epsilon A_{Ra} M_{trocken}}{V_{Pore}} = \frac{\epsilon A_{Ra} M_{trocken}}{n V_{gesamt}} = \frac{\epsilon A_{Ra} \rho_{trocken}}{n(1-S)} \quad (1)$$

Die Erhöhung der Konzentration von Radon in der Bodenluft mit zunehmender Tiefe wird durch die Radonmigration im freien Porenraum, d.h. durch Diffusion und Advektion sowie durch den Radonzerfall und die Neuentstehung von Radon bestimmt.

Mit Hilfe der Migrationsgleichung kann die vertikale Verteilung der Radonkonzentration in einem Boden bestimmter Beschaffenheit und Radium-Aktivität berechnet werden.

$$\frac{\partial C^{Rn}(t, z)}{\partial t} = D \cdot \frac{\partial^2 C^{Rn}(t, z)}{\partial z^2} - v \frac{\partial C^{Rn}(t, z)}{\partial z} - \lambda C^{Rn}(t, z) + \lambda C_0^{Rn} \quad (2)$$

(A)
(B)
(C)
(D)
 Diffusionsterm Advektionsterm Radonzerfallsterm Radonbildungsterm

Die Gleichung (2) hat als homogene lineare Differentialgleichung 2. Ordnung den Funktionstyp $y''+ay'+by+c=0$. Die Lösung der allgemeinen Migrationsgleichung (2) ergibt sich zu

$$C = C_1 e^{\mu_1 z} + C_2 e^{\mu_2 z} + C_3 \quad \text{mit} \quad \mu_{1/2} = \frac{v'}{2D} \pm \sqrt{\left(\frac{v'}{2D}\right)^2 + \frac{\lambda}{D}} \quad (3)$$

Bei Vernachlässigung der Konvektion, d.h. mit $C(z=0) = C_0$ und $C(z=L_0) = C_{L_0}$ ergibt sich z.B. für eine aktive Schicht endlicher Dicke der mit Gl. 3 angegebene numerisch berechenbare Ausdruck

$$C(z) = C_0^{Rn} + \frac{(C_{L_0} - C_0^{Rn}) \cdot \sinh\left(z\sqrt{\frac{\lambda}{D'}}\right) + (C_0^{Rn} - C_0) \cdot \sinh\left((z-L_0)\sqrt{\frac{\lambda}{D'}}\right)}{\sinh\left(L_0\sqrt{\frac{\lambda}{D'}}\right)} \quad (4)$$

Die Größe D' steht hierbei für den effektiven Diffusionskoeffizient D/n , welcher die Porosität n des Bodens berücksichtigt.

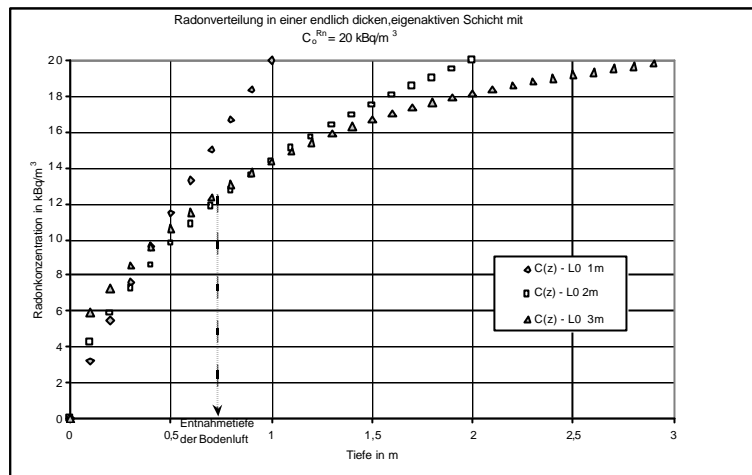


Abbildung 1 Theoretischer Verlauf der Radonkonzentration in endlich dicken Schichten von 1 m , 2 m und 3 m Mächtigkeit

Die gute Löslichkeit von Radon in Wasser führt zu teilweise erheblichen Aktivitätskonzentrationen im Grundwasser. Für das hier zu behandelnde Problem besonders bedeutsam ist allerdings die gegenüber Wasser im Mittel um den Faktor 40 gesteigerte Löslichkeit in nichtwässrigen Flüssigkeiten (NAPL's).

Durch die Arbeiten von *Hunkeler, Hoehn, Höhener und Zeyer (1997)* wurde deutlich, daß Radon als empfindlicher Indikator für den Nachweis von NAPL's in Aquiferen geeignet ist. Bedingt durch die hohe Löslichkeit von Radon in nichtwässrigen Flüssigkeiten unterschiedlichster Art gegenüber Wasser weisen NAPL-kontaminierte Wässer eine deutlich geringere Rn-Konzentration auf als unbelastetes Wasser. Bestimmungen des Verteilungskoeffizienten K_w ergaben z. B. für Diesel Werte von 40 ± 4 .

$$K_w = \frac{C_{KW} \left[\frac{Bq}{l} \right]}{C_W \left[\frac{Bq}{l} \right]}$$

K_w =Verteilungskoeffizient zwischen Kohlenwasserstoffen und Wasser (5)
 C_W =Aktivitätskonzentration von Radon in Wasser
 C_{KW} =Aktivitätskonzentration von Radon in Kohlenwasserstoffen

Aus dem hohen Verteilungskoeffizienten für NAPL's folgt, daß in dem Maße, wie die Konzentration an Kohlenwasserstoffen im Wasser zunimmt, die Radonkonzentration in der Wasserphase abnimmt. Die von *Hunkeler, Hoehn, Höhener und Zeyer (1997)* gefundene lineare Abhängigkeit macht es möglich, aus dem verbleibenden Rn-Gehalt der Wasserphase Angaben zur NAPL-Konzentration im Wasser zu machen. Der große Unterschied zwischen der Löslichkeit von Rn222 in Wasser und NAPL's wird besonders deutlich, wenn man die Löslichkeitskoeffizienten nach *Ostwald* von Wasser und verschiedenen NAPL als Funktion der Temperatur darstellt. Abbildung 1 zeigt dazu eine Zusammenstellung aus einer Datensammlung von *Clever u.a. (1979)*. Aus der Abbildung ist zu entnehmen, daß Radon in NAPL's bei einer Temperatur von $10...15^{\circ}C$ ($283...288^{\circ}K$) eine fast 20-fach höhere Löslichkeit besitzt als in Wasser.

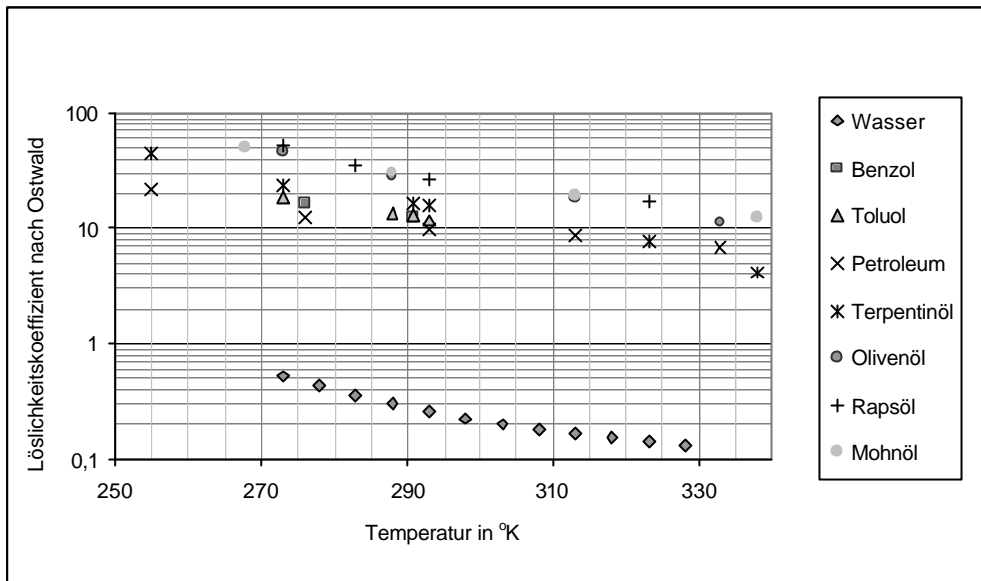


Abbildung 2 Löslichkeit des Radon in verschiedenen NAPL und Wasser

Ist der freie Porenraum eines Bodens mit Wasser und NAPL's teilweise oder vollständig gefüllt, stellt sich die in Abbildung 3 dargestellte Radonkonzentration in der Bodenluft ein.

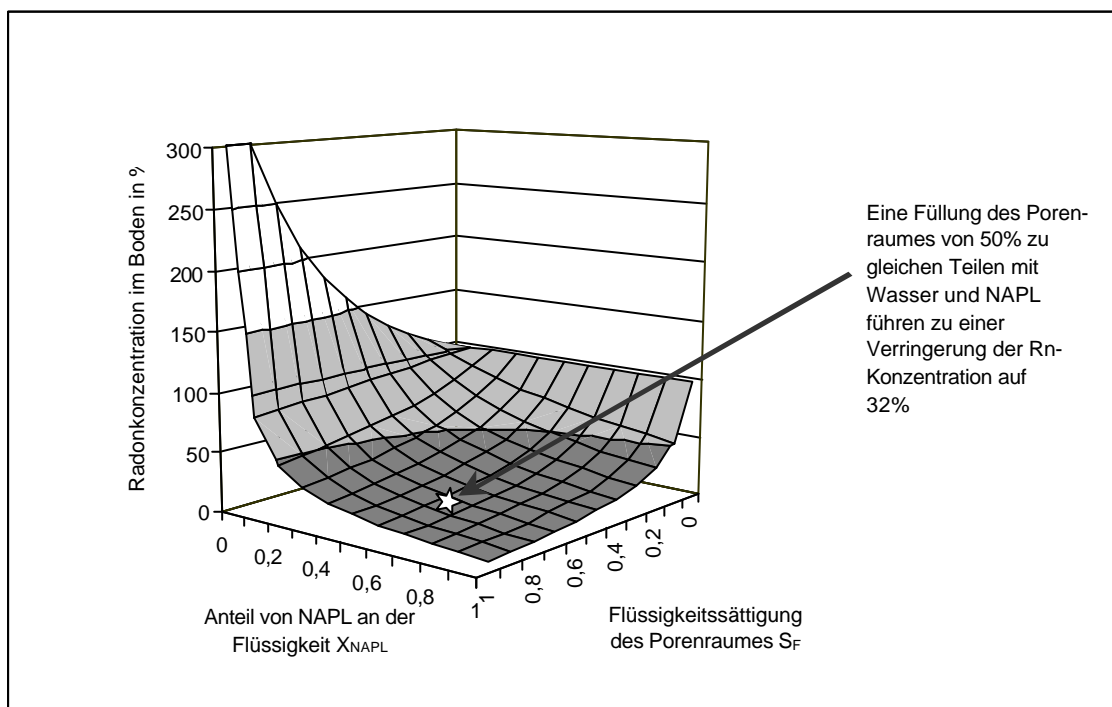


Abbildung 3 Abhängigkeit der Radonkonzentration in der Bodenluft von dem NAPL-Anteil an der Bodenfeuchtigkeit

$$C_{Rn} = \frac{\varepsilon * A_{Ra} * \rho_d}{n(1 - S_F + K_{Wasser / Luft} * S_F * (1 - X_{NAPL}) + K_{NAPL / Luft} * S_F * X_{NAPL})} \quad (6)$$

Aus dem Diagramm ist ablesbar, daß gemäß Beziehung (6) bei einer Zunahme der Bodenfeuchte von 0 auf 100% ohne Beteiligung von Kohlenwasserstoffen nur durch

die Abnahme des freien Porenraumes die Rn-Konzentration von 100% bei 0% Feuchte auf 300% bei vollständiger Füllung des Porenraumes ansteigt. Wächst dagegen die nur aus NAPL's bestehende Bodenfeuchte von 0 auf 100% an, fällt die Radonkonzentration durch Bindung des Radons an die MKW auf 10% ab. Zwischen diesen Extremwerten liegt der in Abbildung 3 markierte und als typisch für Schadensfälle zu betrachtende Fall, bei dem eine 50%-ige Bodenfeuchte zu jeweils gleichen Teilen aus Wasser und NAPL besteht. Bei solch einem Verhältnis reduziert sich die Radonkonzentration von 100% auf 32%. Als Lösungskoeffizient $K_{\text{Wasser-Luft}}$ wurde dabei der Wert 0.25, für den Wert $K_{\text{NAPL-Luft}}$ der Betrag 10 verwendet. Letzterer ergab sich aus mehreren Laborbestimmungen als mittlerer Wert für Diesel.

Die Bestimmung der Radonkonzentration in der Bodenluft

Mit den seit einigen Jahren verfügbaren Meßgeräten ist eine sehr genaue und effiziente Bestimmung der Radonkonzentration in der Bodenluft möglich. Im Boden erreicht die Radonkonzentration im Normalfall mit $10 \dots 50 \text{ kBq/m}^3$ eine um den Faktor 10^3 höhere Konzentration als in der Außenluft.

Die Ermittlung der vorliegenden Ergebnisse erfolgte mit einer von *Genitron Instruments* entwickelten und im folgenden Bild schematisch dargestellten Meßanordnung.

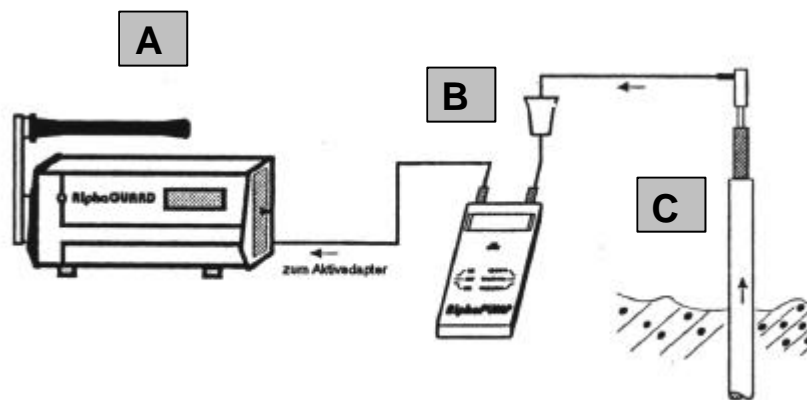


Abbildung 4 Schema der für die Bestimmungen der Radonkonzentration in der Bodenluft genutzten Meßausrüstung

Sie besteht aus dem Radonmonitor AlphaGUARD (A), der Bodenluftpumpe AlphaPUMP (B) sowie einer Bodenluftentnahmesonde des Typs STITZ (C). Im Verlaufe der Messung wird eine Luftmenge von 1 Liter mit einer Pumpleistung von 1 l/min aus dem Boden entnommen und im Radonmonitor AlphaGUARD analysiert. Nach Abtrennung des in der Bodenluft auch stets natürlich vorkommenden Isotopes Rn220 ist nach einer Zählzeit von 10....15 min im Radonmonitor die Konzentration an Rn222 in der Bodenluft in kBq/m^3 verfügbar.

Ergebnisse

Die folgenden Beispiele sind Teil eines Meßprogramms an mehr als 10 mit NAPL kontaminierten Standorten, an denen überwiegend das an den folgenden Ergebnissen demonstrierte Verhalten der Radonkonzentration in der Bodenluft angetroffen wurde.

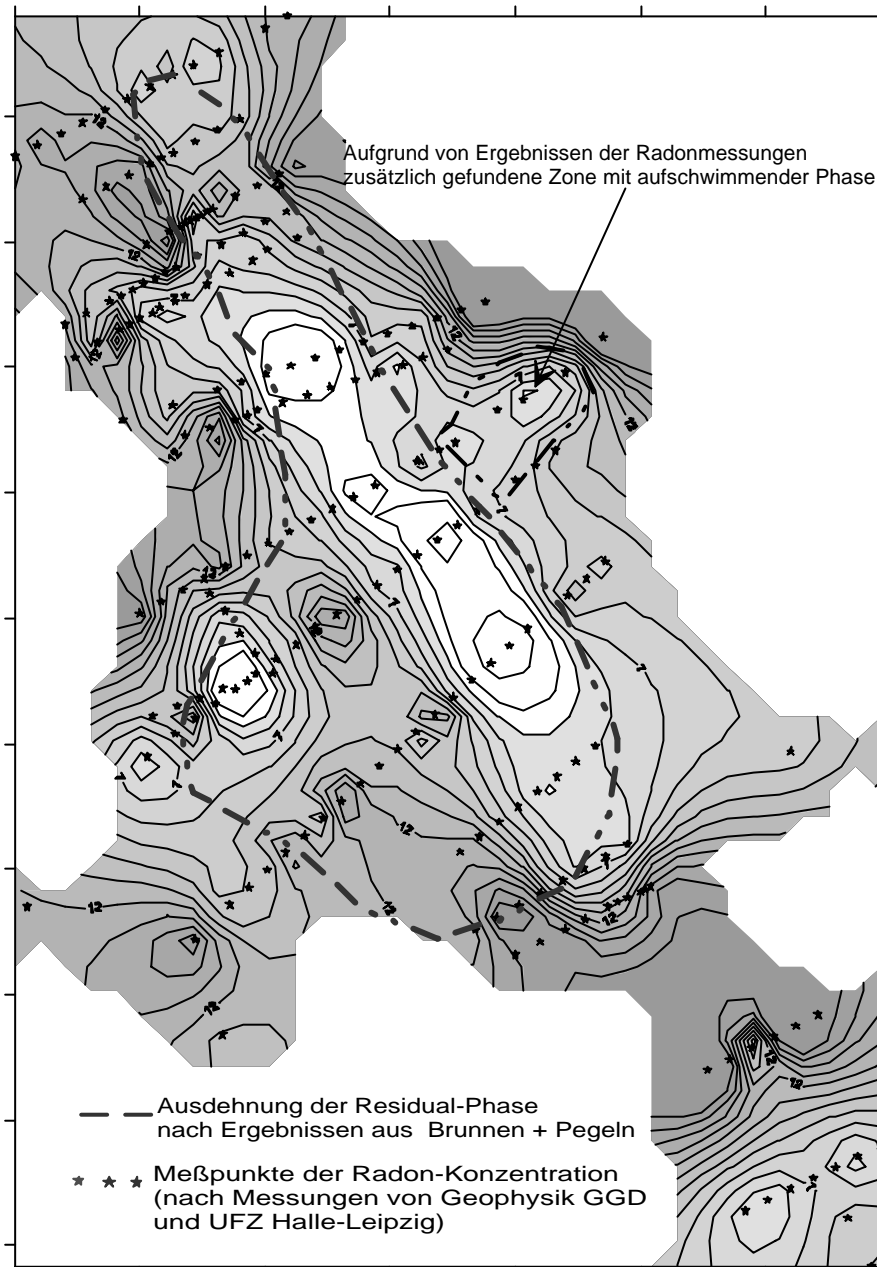


Abbildung 6 Verteilung der Radonkonzentration in der Bodenluft im Bereich eines ehemaligen Militärflugplatzes

Die Abbildung 6 zeigt die Verteilung der Radonkonzentration in der Bodenluft im Umfeld eines ehemaligen Militärflugplatzes in Mecklenburg-Vorpommern. Durch Undichtigkeiten im System der zur Betankung der Flugzeuge genutzten Rohrleitungen gelangten etwa 1000 m³ Kerosin in den Boden und kontaminierten auf einer Fläche von ca. 450 ha den in 4...6 m Tiefe liegenden ersten Aquifer mit einer aufschwimmenden Kerosinschicht von 50...75 cm Mächtigkeit. Der durch Brunnen- und Pegelbohrungen kartierte Verlauf der Kontamination zeigt eine vom Ursprung der Verunreinigung im Südosten des untersuchten Gebietes nach Nordwest gerichtete Zone hoher Kontamination. Mit Bestimmungen der Radonkonzentration auf einer Reihe von quer zum Streichen der Kerosinfahne liegenden Profilen war es möglich, sowohl die bisherige Kenntnis über die kontaminierte Fläche zu bestätigen, als auch zusätz-

lich Bereiche zu markieren, in welche das Kerosin weiter vorgedrungen war. Die durch Verminderung der Radonkonzentration in der Bodenluft markierte Verbreitungsgrenze der aufschwimmenden Kohlenwasserstoffe konnte auch durch geoelektrische Widerstandsmessungen des Institutes für Geowissenschaftliche Gemeinschaftsaufgaben (GGA) in Form eines Bereiches erhöhten spezifischen Widerstandes fixiert werden.

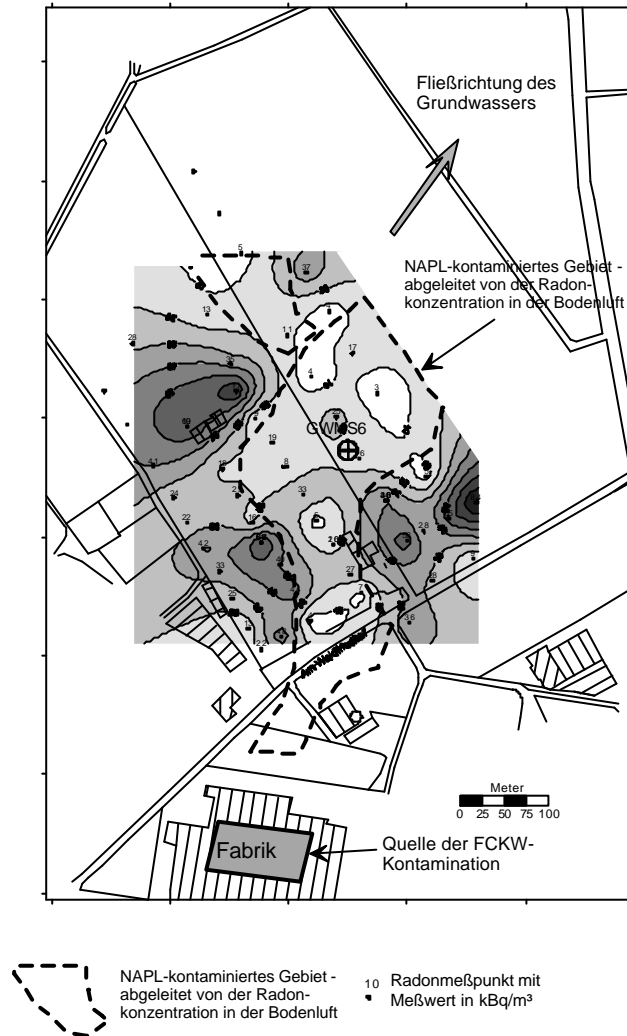


Abbildung 7 Verteilung der Radonkonzentration in der Bodenluft im Bereich einer durch ausgetretene Lösungsmittel verursachten Kontamination durch Fluorkohlenwasserstoffe (FCKW).

Mit Abbildung 7 soll gezeigt werden, daß auch Kontaminationen durch fluorierte Kohlenwasserstoffe Veränderungen der Radonkonzentration in der Bodenluft verursachen und das Verbreitungsgebiet der in den Boden gelangten FCKW ebenfalls durch Minima der Radonkonzentration markiert werden kann.

In einem Metallverarbeitungsbetrieb in Nordrhein-Westfalen kam es über einen längeren Zeitraum zum Eintrag eines im wesentlichen aus Trichlorfluorethan bestehenden Reinigungsmittels in den Boden. In Fließrichtung des Grundwassers bildete sich über mehrere hundert Meter Länge eine Kontaminationsfahne im Grundwasser mit einer FCKW-Kontamination von mehr als 10 µg/Liter.

Die Bestimmungen der Radonkonzentration in der Bodenluft erfolgten in einem Raster von 40x40 m und umfaßten eine Fläche von knapp 100000 m². Bei einer mittleren, geogen bedingten Radonkonzentration von mehr als 25...30 kBq/m³ blieben in dem durch

Bohrerergebnisse als kontaminiert eingeschätzten Gebiet die Radonkonzentrationen in der Bodenluft unter 20 kBq/m³ und verminderten sich im Bereich mit mehr als 1000 µg/Liter auf Werte kleiner 5 kBq/m³. Bedingt durch diesen Zusammenhang konnten über die Größe und Form der Fläche, welche durch eine verminderte Radonkonzentration gekennzeichnet war, die Kenntnis über die Ausdehnung des kontaminierten Gebietes präzisiert werden.

Zusammenfassung

Ausgehend von den Ergebnissen, welche in den Jahren 1999/2000 an mehr als 10 Standorten mit verschiedensten MKW-Kontaminationen erhalten wurden, kann davon ausgegangen werden, daß im Umfeld von Belastungen des Bodens und Grundwassers mit *Non-Aqueous Phase Liquids* (NAPL) die Radonkonzentration in der Bodenluft vermindert wird und dieser Effekt zu einer schnellen und kostengünstigen Kartierung bzw. Präzisierung der Verbreitungsgrenzen der Kontamination im Boden genutzt werden kann.

Literatur

CLEVER, H.L. (ED.) (1979). Solubility data Series, Volume 2: Krypton, Xenon and Radon, IUPAC, Pergamon Press

HOLLEMANN – WIBERG (1995) Lehrbuch der organischen Chemie - de Gruyter Berlin-New York

HUNKELER, D., HOEHN, E., HÖHENER, P., AND ZEYER (1997). ²²²Radon as a partitioning Tracer to detect diesel fuel contaminations in aquifers: Laboratory study and field observations, Env. Science and Technology, **31** (11), 3180.