

PUBLICATIONS DU SERVICE GÉOLOGIQUE DU LUXEMBOURG
VERÖFFENTLICHUNGEN DES LUXEMBURGER GEOLOGISCHEN DIENSTES

BULLETIN No 17 / 1995

**Ein automatischer Radonsensor
für Bohrlochmessungen**

**Meßergebnisse aus der Gipsmine
Walferdingen**

von
Manfred Lenzen

Ministère des Travaux Publics – Service Géologique
Luxembourg
1995

PUBLICATIONS DU SERVICE GÉOLOGIQUE DU LUXEMBOURG
VERÖFFENTLICHUNGEN DES LUXEMBURGER GEOLOGISCHEN DIENSTES

BULLETIN No 17 / 1995

**Ein automatischer Radonsensor
für Bohrlochmessungen**

**Meßergebnisse aus der Gipsmine
Walferdingen**

von
Manfred Lenzen

Ministère des Travaux Publics – Service Géologique
Luxembourg
1995

Publ. Serv. Geol. Luxembourg

Bul. 17, - 1 - 54, 23 fig.

Luxembourg, 1995

**Ein automatischer Radonsensor
für Bohrlochmessungen**

**Meßergebnisse aus der Gipsmine
Walferdingen**

von
Manfred Lenzen

Inaugural-Dissertation
zur Erlangung des Doktorgrades
der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn

vorgelegt von
Dipl.-Phys. Manfred Lenzen
aus Mariaweiler

Anschrift des Autors:
Dipl.-Phys. Dr. M. Lenzen,
The University of Sydney, Department of Applied Physics, N.S.W. 2006, AUSTRALIA

Résumé

L'étude sur la migration et sur l'accumulation du Radon dans l'environnement humain joue un rôle de plus en plus important. Un grand nombre d'études portant sur la concentration régionale du Radon pose des questions sur les mécanismes de migration dans les sols et les roches. Les sites, présentant en surface des anomalies d'activité positive et en même temps, un bas niveau d'activité dans les roches affleurant en surface régionale présentent un intérêt tout particulier. Pour expliquer les taux de transport élevés responsables de ces anomalies, il faut, dans ce cas, prendre en compte un transport advectif ou un effet de pompe associé à des zones de faille. En particulier, la mesure des influences météorologiques et endogènes sur une courte période exige un enregistrement automatique de l'activité du Radon avec une grande résolution temporelle. L'objectif de cette dissertation est la description d'un détecteur, qui est utilisable sur le terrain et aussi dans des trous de mine. Le prototype construit appartient à un système automatique d'acquisition de données ou de contrôle, qui en plus de l'activité de Radon détecte également des mesures météorologiques. Les données recueillies sont analysées grâce à des algorithmes récursifs et à la transformée de Fourier.

Les mesures à long terme de l'activité du Radon dans une mine de gypse à Walferdange, Luxembourg indique une composante advective de transport couplée aux marées terrestres ainsi qu'une influence de la pression atmosphérique. Un modèle de transport numérique explique de façon théorique les phénomènes observés. Les résultats montrent que la diffusion, la pompe atmosphérique et la pompe de marées terrestres représentent des facteurs importants pour le transport du Radon dans la croûte terrestre.

Zusammenfassung

Die Untersuchung der Migration und Anreicherung von Radon in der Umgebung des Menschen gewinnt zunehmend an Bedeutung. Aus zahlreichen Fallstudien regionaler Aktivitätskonzentrationen entstehen Fragen nach den Migrationsmechanismen von Radon in Böden und Gesteinen. Besonderes Interesse gilt dabei Orten mit positiven Aktivitätsanomalien und niedrigem regionalem Aktivitätslevel an der Oberfläche, da hier zur Erklärung der hohen Transportraten advektiver Transport oder Pumpeffekte in Verbindung mit Störungszonen von Bedeutung sind.

Insbesondere die Erfassung kurzperiodischer meteorologischer und endogener Einflüsse auf die Radonmigration erfordert eine automatische Registrierung der Radonaktivität mit hoher zeitlicher Auflösung. Ziel dieser Dissertation ist deshalb die Entwicklung eines entsprechenden Sensors, der zudem unter Feldbedingungen wie in Bohrlöchern einsetzbar ist. Der hergestellte Geräteprototyp ist Bestandteil einer automatisierten Datenerfassungs- und Steuerungsanlage, die neben der Radonaktivität zusätzlich meteorologische Größen aufzeichnet. Die Analyse der erhaltenen Meßdaten erfolgt durch rekursive Algorithmen sowie Fouriertransformation.

Langzeitmessungen der Radonaktivität in einer Gipsmine in Walferdange/Luxemburg deuten neben einem Einfluß des atmosphärischen Luftdrucks auf eine mit den Gezeiten gekoppelte advektive Transportkomponente des Porenfluids. Eine theoretische Erklärung der beobachteten Phänomene liefert eine numerische Transportmodellierung. Die Ergebnisse zeigen, daß Diffusion, atmosphärisches Pumpen sowie Gezeitenpumpen wichtige Prozesse für den Transport von Radon in der Erdkruste darstellen.

Abstract

The study of Radon migration and accumulation in the human environment has gained significant importance over the last decade. Many case studies of regional activity concentrations raise the question of migration mechanisms of Radon in soil and rock. Sites with positive activity anomalies at the surface but at the same time low regional activity level in the surface-near rocks are of special interest, since advective transport or pumping effects in combination with faults have to be taken into account in order to explain the high transport rates, which are necessary to cause the anomalies.

In particular, the measurement of short-periodical meteorological and endogenous factors affecting Radon migration requires an automatic registration of Radon activity with high temporal resolution. The aim of this dissertation was the development of a correspondent sensor, applicable under field conditions, as for example in boreholes. The constructed prototype is part of an automatized data acquisition and control system, which is capable of measuring meteorological quantities as well as Radon activity. The collected data are analyzed via recursive algorithms and Fourier transformation.

Long term measurements of the Radon activity in a gypsum mine in Walferdange/Luxemburg indicate an advective transport component of the pore fluid coupled with the earth tides, in addition to an influence of the atmospheric pressure. A numerical transport model yields a theoretical explanation of the observed phenomena. The numerical results show, that diffusion, atmospheric pumping and tidal pumping represent important mechanisms of Radon transport in the earth's crust.

Inhaltsverzeichnis

1 Radon — physikalische Eigenschaften	4
2 Radon in der Erdkruste	9
3 Meßverfahren der Radonaktivität	12
3.1 Auswahl des Meßverfahrens	16
4 Der automatische Radonsensor	18
4.1 Gesamtsystem	18
5 Datenanalyse	20
6 Meßergebnisse	22
6.1 Meßdatenanalyse	24
6.2 Interpretation	30
6.2.1 Diffusion und konstanter Fluß	30
6.2.2 Atmosphärisches Pumpen	32
6.2.3 Gezeitenpumpen	34
6.2.4 Messung der Transportparameter	35
6.2.5 Transportmodellierung	37



Einleitung

Infolge wissenschaftlicher Erkenntnisse der letzten Jahre kommt dem radioaktiven Edelgas Radon eine völlig neue Rolle zu: Es ist für etwa die Hälfte der natürlichen Strahlenexposition des Menschen verantwortlich. Davon entfällt der größte Teil auf die radioaktive Belastung der Lunge durch die Inhalation von ^{222}Rn in Gebäuden (KELLER, 1987). Dieser Umstand trägt maßgeblich dazu bei, daß der Erforschung von Einflußfaktoren auf die Migration und Anreicherung von Radon in der Umgebung des Menschen immer mehr Beachtung geschenkt wird.

Radon ist kein Industrieprodukt. Es entsteht in vielen Böden und Gesteinen und dringt durch Gesteinsklüfte und Bodenkapillare über Fundamente in Wohnhäuser ein. Dort kann es in geschlossenen Räumen unter bestimmten Umständen zu gesundheitsgefährdenden Aktivitätskonzentrationen kommen. Eine Reihe von Fallstudien zeigt, daß dieses Belastungspotential räumlich äußerst inhomogen verteilt ist. Die gemessenen Radonkonzentrationen variieren sowohl regional als auch von Haus zu Haus. Zudem werden erhöhte Radonkonzentrationen an Orten festgestellt, an denen im oberflächennahen Gestein oder im Boden keine nennenswerten Konzentrationen radioaktiver Nuklide vorliegen, was auf einen Transport über längere Strecken hindeutet. Aus den Fallstudien entsteht die Frage, welche Mechanismen die Radonmigration aus der Erde steuern. Von besonderer Bedeutung ist dabei die Untersuchung von kurzperiodischen meteorologischen und endogenen Einflüssen. Diese lassen sich am geeignetsten aus in-situ-Messungen der Radonaktivität in der oberen Erdkruste erschließen. Aus dieser Anforderung erwächst der Bedarf eines automatisierten Sensors, der Zeitreihen der Radonaktivität mit hoher zeitlicher Auflösung aufnimmt und unter Feldbedingungen wie in Bohrlöchern einsetzbar ist. Die Entwicklung eines solchen Sensors ist Thema dieser Dissertation.

Die Kapitel 1 bis 3 geben einen Überblick über die physikalischen Eigenschaften von Radon, dessen Migration in Böden und Gesteinen und gängige Meßmethoden der Radonkonzentration. Die Darstellung erhebt keinen Anspruch auf Vollständigkeit. Ich habe nur Aspekte behandelt, die für die folgenden Ausführungen wichtig sind. Zur Ergänzung wird jeweils auf weiterführende Literatur hingewiesen. Kapitel 4 enthält eine kurze Beschreibung des von mir entwickelten Radonsensors. Kapitel 5 beschreibt die Verarbeitung der Meßdaten von der Aufbereitung der Rohdaten bis zur Spektralanalyse. Kapitel 6 stellt schließlich die Ergebnisse der ersten Feldmessung und ihre Interpretation vor.

1 Radon — physikalische Eigenschaften

Radon wurde 1899 von RUTHERFORD entdeckt. Es ist ein natürliches, farb- und geruchloses radioaktives Edelgas und als solches chemisch fast inert. Unter den Edelgasen besitzt es den höchsten Schmelz- und Siedepunkt. Die Dichte ist mit $9.73 \frac{\text{kg}}{\text{m}^3}$ mehr als siebenmal so hoch wie die von Luft. Von den 27 bekannten Radonisotopen mit Massenzahlen zwischen 200 und 226 kommen drei in der Natur vor, und zwar die Isotope $^{219}_{86}\text{Rn}$, $^{220}_{86}\text{Rn}$ und $^{222}_{86}\text{Rn}$. Sie entstehen in den drei natürlichen Zerfallsreihen der primordialen Elemente $^{235}_{92}\text{U}$, $^{232}_{90}\text{Th}$ und $^{238}_{92}\text{U}$. Da die Mutter der Aktiniumreihe $^{235}_{92}\text{U}$ nur einen Anteil von 0.72% am natürlichen Vorkommen von Uran hat ($^{238}_{92}\text{U}$ 99.28%), ist auch $^{219}_{86}\text{Rn}$ in der Natur entsprechend selten. Tabelle 1 gibt eine Übersicht über Halbwertszeiten und Strahlungsenergien von $^{222}_{86}\text{Rn}$ und $^{220}_{86}\text{Rn}$ und ihrer Töchter, Abbildung 1 zeigt die drei natürlichen radioaktiven Familien.

Tab. 1: Eigenschaften der Zerfallsreihen
(KELLER, 1987; SEELMANN-EGGEBERT et al., 1974)

Nuklid	Histor.Name	λ (s^{-1})	$T_{1/2}$	E_{α} (MeV)	E_{β} (MeV)	E_{γ} (MeV)
$^{222}_{86}\text{Rn}$	Radon	$2.098 \cdot 10^{-6}$	3.824 d	5.49 (100%)		0.510 (0.08%)
$^{218}_{84}\text{Po}$	Radium A	$3.788 \cdot 10^{-3}$	3.05 m	6.00 (100%)	0.33 ($\approx 0.018\%$)	
$^{214}_{82}\text{Pb}$	Radium B	$4.311 \cdot 10^{-4}$	26.8 m		0.67 (48%)	0.295 (19%)
					0.73 (42%)	0.352 (37%)
					1.02 (6%)	
$^{214}_{83}\text{Bi}$	Radium C	$5.835 \cdot 10^{-4}$	19.8 m	5.45 (0.012%)	1.0 (23%)	0.609 (46%)
				5.51 (0.008%)	1.51 (40%)	1.12 (15%)
					3.26 (19%)	1.764 (16%)
$^{214}_{84}\text{Po}$	Radium C'	4226.5	164 μs	7.69 (100%)		0.799 (0.014%)
$^{210}_{82}\text{Pb}$	Radium D	$9.88 \cdot 10^{-10}$	22.3 y		0.015 (81%)	0.047 (4%)
					0.061 (19%)	
$^{210}_{83}\text{Bi}$	Radium E	$1.601 \cdot 10^{-6}$	5.01 d		1.161 (100%)	
$^{210}_{84}\text{Po}$	Radium F	$5.8 \cdot 10^{-8}$	138.4 d	5.305 (100%)		0.803 (0.011%)
$^{206}_{81}\text{Pb}$	Radium G		stabil			
$^{220}_{86}\text{Rn}$	Thoron	$1.246 \cdot 10^{-2}$	55.6 s	6.29 (100%)		0.55 (0.1%)
$^{216}_{84}\text{Po}$	Thorium A	4.621	0.15 s	6.78 (100%)		
$^{212}_{82}\text{Pb}$	Thorium B	$1.809 \cdot 10^{-5}$	10.64 h		0.331 (83%)	0.239 (43%)
					0.569 (12%)	0.300 (3.2%)
$^{212}_{83}\text{Bi}$	Thorium C	$1.908 \cdot 10^{-4}$	60.55 m	6.05	1.55 (5%)	0.040 (1.1%)
				6.09	2.26 (55%)	0.727 (11.8%)
				andere	andere (4%)	1.620 (2.8%)
$^{212}_{84}\text{Po}$	Thorium C'	$2.28 \cdot 10^6$	304 ns	8.78 (100%)		
$^{208}_{81}\text{Tl}$	Thorium C''	$3.783 \cdot 10^{-3}$	3.054 m		1.28 (23%)	0.511 (23%)
					1.52 (22%)	0.583 (86%)
					1.80 (51%)	0.860 (12%)
						2.614 (100%)
$^{208}_{82}\text{Pb}$	Thorium D		stabil			

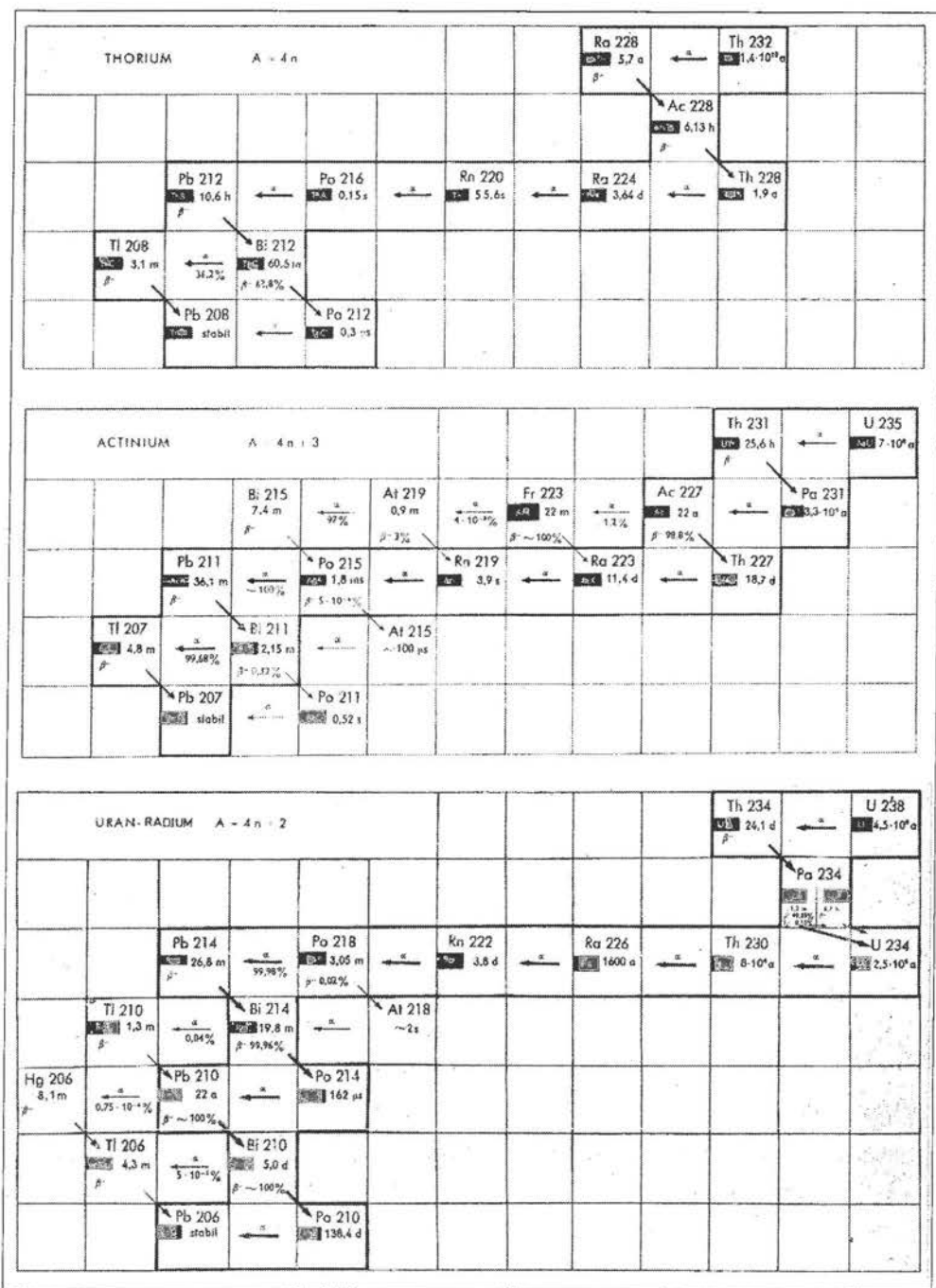


Abb. 1: Natürliche radioaktive Familien (SEELMANN-EGGEBERT et al., 1974)

Alle Radonisotope entstehen in Gesteinen, Mineralen und Wässern aus Isotopen des Elements Radium. Im folgenden verwende ich die historischen Bezeichnungen Radon, Thoron und Actinon für die Isotope ^{222}Rn , ^{220}Rn und ^{219}Rn . "Radon" im engeren Sinne bezeichnet also ^{222}Rn .

Entscheidend für das Vorkommen dieser drei Isotope sind die Konzentration und Verteilung der Mutternuklide, die Effizienz von Transportprozessen sowie insbesondere die jeweiligen Halbwertszeiten. So gelangen Thoron und Actinon aufgrund ihrer kurzen Lebensdauer nur in geringem Maße in die Atmosphäre, so daß für die Strahlenbelastung des Menschen hauptsächlich Radon und dessen Folgeprodukte verantwortlich sind. Die beobachteten Radonkonzentrationen schwanken um mehrere Größenordnungen. Einen Anhaltspunkt geben folgende Durchschnittswerte (in $\frac{\text{Bq}}{\text{m}^3}$): Außenluft über dem Ozean 1, Außenluft über Kontinenten 5-10, normale Innenräume 20-200, belastete Innenräume 500-5000, Bodenkapillare in 1 m Tiefe 1000-50000 und nichtventilierte Stollen bis maximal 300000 (VON PHILIPSBORN, 1990).

Während sich Radon in Luft gleichmäßig verteilt, lagern sich die primär elektrisch positiv geladenen Töchter an Aerosole (schwebende Staubpartikel oder Wassertröpfchen) oder scheiden sich auf Oberflächen ab (PORSTENDÖRFER und REINEKING, 1992). Dieser Effekt führt dazu, daß in der Luft in Wohnräumen oder Bergwerken niemals ein radioaktives Gleichgewicht herrscht, d.h., es befinden sich im allgemeinen weniger Radonfolgeprodukte in der Luft, als es einem Gleichgewichtszustand entsprechen würde. Außerdem führen Ventilation von Räumen und Diffusion zu Ungleichgewichten (VON PHILIPSBORN, 1990).

Schon 1903 wurde Radon als Mittel zur Behandlung von Tuberkulose vorgeschlagen. Man nahm damals an, daß dessen Wirkung im Körper sich auf Zeiten in der Größenordnung der Halbwertszeit beschränkte, übersah jedoch die Radioaktivität der Töchter. Bis in die 40er Jahre wurden radiumhaltige Präparate zur Heilung von Krankheiten wie Krebs, Rheuma, Bluthochdruck, Schlaflosigkeit, Hexenschuß, Zahnschmerzen, Mangelernährung, Taubheit und Strahlenschäden sowie zur Empfängnisverhütung angepriesen. So bot z.B. die Berliner "Allgemeine Radiogen AG" in den frühen 20er Jahren eine radiumhaltige Zahnpasta zur Verhinderung der Bildung von Zahnbelag an. Eine der am weitesten verbreitete unter den fragwürdigen Anwendungen sind die Radon-Bäder. Ehemalige Bergwerksstollen wurden zu Pilgerorten, in denen Heilungssuchende noch heute belastetes Mineralwasser trinken, radonhaltige Luft inhalieren oder Schlamm packungen anwenden. Bis in die 50er und 60er Jahre wurde in Goldkörnern eingeschlossenes Radon zur in-situ-Behandlung von Tumoren eingesetzt, jedoch später von anderen Nukliden wie ^{60}Co verdrängt (COTHERN und SMITH, 1987). Heute dient es als Tracergas dem Studium von atmosphärischen Strömungen, der Uranprospektion (GAUCHER, 1976; MORSE, 1976) und insbesondere der Erdbebenvorhersage (siehe dazu Kapitel 2).

Weitere Informationen zu Radon finden sich in COTHERN und SMITH (1987) und VON PHILIPSBORN (1990).

Radioaktiver Zerfall

Für den radioaktiven Zerfall einer Substanz gilt das Zerfallsgesetz

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t} . \quad (1)$$

Die Halbwertszeit $T_{\frac{1}{2}}$, d.h. die Zeit, nach der die Konzentration des Mutternuklids auf die Hälfte der ursprünglichen Konzentration abgesunken ist, steht mit der Zerfallskonstanten λ aus dem radioaktiven Zerfallsgesetz (1) in Zusammenhang:

$$T_{\frac{1}{2}} = \frac{\ln 2}{\lambda} . \quad (2)$$

Das zeitliche Verhalten von Konzentrationen und Aktivitäten in einer Zerfallsreihe, mit n Nukliden kann durch Lösen von n gekoppelten Differentialgleichungen berechnet werden. Für die Teilchenzahl N des Mutternuklids gilt

$$\frac{\partial N_1}{\partial t} = -\lambda_1 N_1 , \quad (3)$$

während sich die zeitliche Änderung der Teilchenzahlen instabiler Töchter aus deren eigenem Zerfall und der Zulieferung durch Zerfall der jeweiligen Mutter zusammensetzt:

$$\frac{\partial N_i}{\partial t} = \lambda_{i-1} N_{i-1} - \lambda_i N_i . \quad (4)$$

Für das stabile Endprodukt ($\lambda_n=0$) gilt schließlich

$$\frac{\partial N_n}{\partial t} = \lambda_{n-1} N_{n-1} . \quad (5)$$

Mit Hilfe der Lösung für $N_1(t)$

$$N_1(t) = N_1(t_0) e^{-\lambda_1 t} \quad (6)$$

lassen sich die Funktionen der restlichen $N_i(t)$ in der Form

$$N_i(t) = N_1(t_0) \sum_{k=1}^i \Lambda_{ik} e^{-\lambda_k t} := N_1(t_0) \sum_{k=1}^i \frac{\prod_{l=1}^{i-1} \lambda_l}{\prod_{l=1, l \neq k}^i (\lambda_l - \lambda_k)} e^{-\lambda_k t} \quad (7)$$

angeben. Diese allgemeine Lösung wurde 1910 von BATEMAN gewonnen.

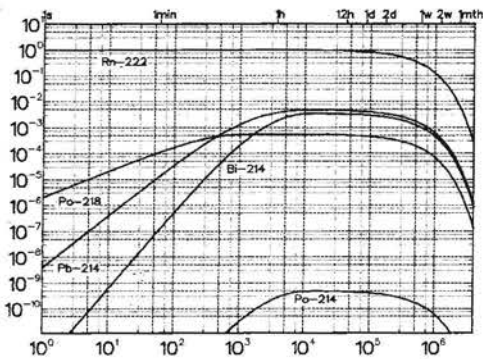


Abb. 2: Normierte Teilchenzahlkurven von Radon und Töchtern

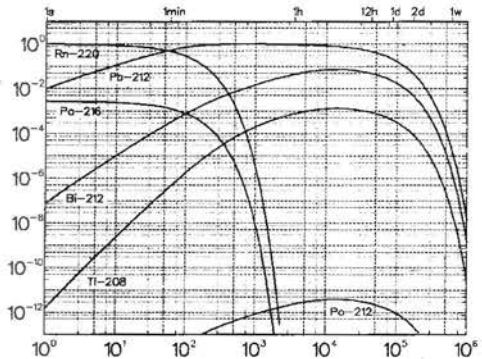


Abb. 3: Normierte Teilchenzahlkurven von Thoron und Töchtern

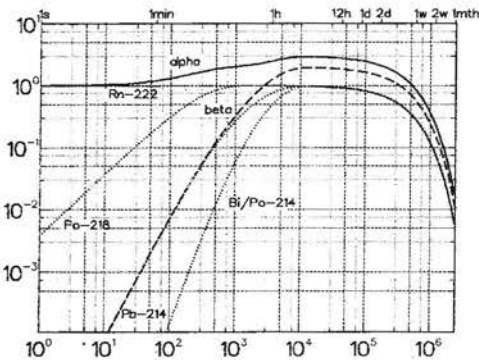


Abb. 4: Normierte Aktivitätskurven von Radon und Töchtern

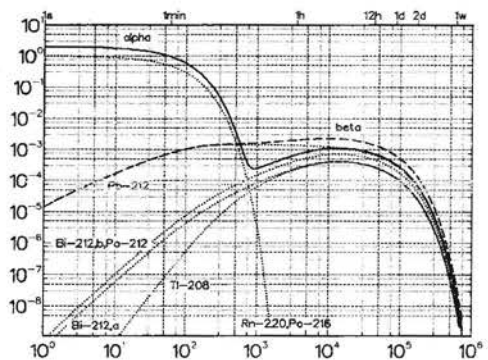


Abb. 5: Normierte Aktivitätskurven von Thoron und Töchtern

Abbildungen 2 bis 5 zeigen die nach Gleichung (7) berechneten Teilchenzahlkurven $N_i(t)$ und die entsprechenden Aktivitätskurven $\lambda_i \cdot N_i(t)$ aller Nuklide (gepunktet) und die gesamten α - (durchgezogen) und β -Aktivitäten (gestrichelt). Die untere Abszisse enthält immer die Zeit (in Sekunden) und die Ordinate die auf 1 normierten Teilchenzahlen, bzw. Aktivitäten. In Abbildung 4 erkennt man zunächst, daß nach etwa 3 Stunden sich alle Elemente im radioaktiven Gleichgewicht befinden, d.h. von jeder Substanz zerfällt pro Zeiteinheit genauso viel wie entsteht. Die gesamte α - und β -Aktivität beträgt dann das drei-, bzw. zweifache der Radonaktivität. Aufgrund dessen kurzer Halbwertszeit steht ^{214}Po praktisch immer mit ^{214}Bi im Gleichgewicht. Im gleichen Verhältnis stehen ^{216}Po und ^{220}Rn sowie ^{212}Po und ^{212}Bi (in Abbildung 5). In den Teilchenzahlkurven zeichnet sich der Gleichgewichtszustand dadurch aus, daß alle Teilchenzahlen konstant in der Zeit sind (siehe Abbildung 2). In Abbildung 5 sieht man außerdem, daß außer ^{216}Po und ^{220}Rn keine anderen Nuklide nennenswerte Aktivitätsbeiträge liefern.

Eine frühe Übersicht über das zeitliche Verhalten der Elemente der Radon-Zerfallsreihe stammt von EVANS (1969).

2 Radon in der Erdkruste

Das Verhalten von Radon in der Erde wird durch drei Prozesse bestimmt: Emanation (Freisetzung aus dem Mineral), Migration (Wanderung) und Exhalation (Übergang in die freie Atmosphäre). Über die Bewegung von Radonisotopen in Böden, Gesteinen, Mineralen oder Wässern gibt es eine Vielzahl von Untersuchungen. Einen Überblick gibt TANNER (1964 und 1978).

Der Migration von Radon geht dessen Freisetzung aus einem Mineralverband voraus (Emanation). Ein Radonatom kann mit Hilfe der Rückstoßenergie aus dem α -Zerfall von Radium ein Mineralkorn verlassen, falls es innerhalb eines Abstandes von 20-70 nm zur Mineraloberfläche gebildet wird. Durch den Rückstoß wird das Radonatom in sogenannte Nanoporen befördert, in denen es leichter diffundiert als im Kristallgitter (VON PHILIPSBORN, 1990). Von dort aus gelangt es schließlich in den mit Fluid gefüllten Gesteinsporenraum oder in Bodenkapillare.

Innerhalb eines porösen Mediums wird Radon entweder passiv durch Diffusion aufgrund eines Konzentrationsgradienten oder aktiv mit einem durch den Porenraum fließenden Fluid transportiert. Beide Prozesse können gleichzeitig auftreten. Reine Diffusion führt zu einem exponentiellen Konzentrationsgefälle in Richtung radonarmer Bereiche (siehe Abschnitt 6.2.1). Analytische Lösungen für verschiedene theoretische Probleme finden sich z.B. in GRAMMAKOV (1936), GRAMMAKOV et al. (1958), BULASHEVICH und KHAYRITDINOV (1959) sowie KHAYKOVICH (1961). Das Problem der Migration von Radon aus Böden in Gebäude behandeln z.B. KELLER und SCHÜTZ (1988), TANNER (1990) und NAZAROFF (1992).

Die Größenordnung der Transportraten infolge Diffusion und Fluß hängt von Gesteinsparametern wie Permeabilität, Porosität, Diffusionskonstante und Emanationsstärke ab (siehe dazu Abschnitt 6.2.4). Außerdem sind die Klüftung des Gesteins und die Sättigung des Porenraums mit Wasser von entscheidender Bedeutung. Hinzu treten in der Nähe der Oberfläche meteorologische Parameter wie Niederschlag, Bodenfeuchte, atmosphärischer Luftdruck, Boden- und Lufttemperatur, Windstärke und Bodenbedeckung mit Schnee. Zahlreiche Autoren beschreiben die Abhängigkeit der Radonexhalation des Bodens von diesen Größen (WORM, 1986; WOITH et al., 1989). So drängt einsickerndes Regenwasser aufsteigendes Gas in den Porenraum zurück und bewirkt so einen zeitweisen Rückgang der atmosphärischen Aktivität. Den gleichen Effekt hat eine Schneebedeckung des Bodens, denn sie wirkt wie eine undurchlässige Schicht, unter der sich Radon konzentriert. Variationen im atmosphärischen Luftdruck bewirken Druckgradienten zwischen dem Gesteinsporenraum und der freien Atmosphäre, die je nach Vorzeichen einen Transport aus dem Gestein heraus oder umgekehrt induzieren (siehe Abschnitt 6.2.2 sowie CLEMENTS und WILKENING, 1974). Einflüsse von Temperatur und Feuchte beschreiben z.B. WASHINGTON und ROSE (1990) sowie OW-CZARSKI et al. (1990).

NILSON et al. (1991) und KEMSKI et al. (1990 und 1992) belegen die Bedeutung von

Störungszonen für den Transportprozeß. Während in geologisch homogenem und isotropem Untergrund die Diffusion der dominante Transportmechanismus ist, überwiegt in geologisch inhomogenem und anisotropem Untergrund der aktive Transport mit dem Fluid im Porenraum. TANNER (1978) nennt Fallstudien, in denen Radon entlang von Klüften advektiv mit aufsteigenden vulkanischen Gasen und natürlichen Mineralwässern mitgeführt wird. Im Zuge der Uranprospektion erkannte man die Bedeutung solcher Phänomene für die Erklärung von Messungen anormaler Radonaktivitäten im Bodengas an Orten mit geringem oder durchschnittlichem Radiumgehalt im oberflächennahen Gestein. Die Annahme eines aktiven Transports wie in diesen Beispielen ist notwendig, da Radon während seiner Lebensdauer auf diffusivem Wege nur wenige Meter zurücklegt. FLEISCHER und MOGRO-CAMPERO (1978) schätzen am Beispiel eines uranhaltigen Erzkörpers (nahe Thoreau, New Mexico, ca. 100 m Tiefe) den Fluß von Radon ab, indem sie mit Hilfe der Passiven-Barriere-Methode (siehe Kapitel 3) Radon getrennt von Thoron registrieren. Aus dem Vergleich dieser Meßwerte mit den ohne Barriere erhaltenen Werten und mit Labormessungen erhalten sie einen aufwärts gerichteten Fluß von etwa $10^{-5} \frac{\text{m}^3}{\text{m}^2 \text{s}}$. Da sie atmosphärische Druckschwankungen und seismische Ereignisse als den Fluß treibende Kraft ausschließen können, vermuten FLEISCHER et al. (1980) einen mit den Erdgezeiten gekoppelten Transportmechanismus, jedoch ohne dies näher auszuführen.

Laboruntersuchungen von HOLUB und BRADY (1981) sowie KING und LUO (1990) an Granit und Beton ergaben Veränderungen der Radonexhalation während und nach dem Anlegen einseitigen mechanischen Druckes. Die Autoren erklären einen Anstieg der Radonexhalation bei hinreichend hohem Druck durch das Entstehen von Mikrorissen. Diese bewirken eine höhere Permeabilität und eine größere Oberfläche, durch die vermehrt Gas entweicht. HOLUB und BRADY beobachten außerdem einen Abfall der Radonexhalation bei sehr kleinen Drücken, für den sie eine elastische Dilatation des Porenvolumens verantwortlich machen. Demnach stehen diese Ergebnisse im Einklang mit zahlreichen Feldmessungen des Radonsignals als Vorboten von Erdbeben und anderen seismischen Ereignissen (ULOMOV und MAVASHEV, 1967; SULTANKHODZHAYEV et al., 1976; TALWANI et al., 1980; BIRCHARD und LIBBY, 1980; MOGRO-CAMPERO et al., 1980; TENG, 1980; ABDUVALIYEV et al., 1985; CHUNG, 1985; LIU et al., 1985; VARSHAL et al., 1985; TENG und SUN, 1986; KING, 1980, 1985 und 1986, eine Literatursammlung findet sich bei KING, 1981). Ebenso legen Untersuchungen des Radonsignals während aseismischer Perioden und gemessene Korrelationen zwischen Größen wie thermoelastischer Spannung, Seismizität, Sonnenfinsternis oder Brunnenpegel (SHAPIRO et al., 1980; KOTRAPPA et al., 1981; WEEMS und PERRY, 1989; BOWER, 1989) eine allgemeine Wechselwirkung des Radontransports mit tektonischen Kräften nahe. So vermuten HESS (1964), FLEISCHER et al. (1980), SUGISAKI (1981) und WOLLENBERG et al. (1985) einen direkten Zusammenhang zwischen Erdgezeiten und der Gasexhalationen aus der Erdkruste. HESS und SUGISAKI zeigen eine qualitative Ähnlichkeit ihrer gemessenen Zeitreihen (^{212}Pb in der freien Atmosphäre mit der Zwei-Filter-Methode, bzw. He/Ar-Verhältnis) mit

dem Gezeitensignal. Lediglich WOLLENBERG et al. errechnen ein Frequenzspektrum ihrer im Grundwasser gemessenen Radonzeitreihen, in welchem sie bei Perioden von 12 und 24 Stunden Einflüsse der Gezeiten sehen. Leider sind keine Variationen meteorologischer Parameter angegeben und auch die Auflösung des Spektrums im Frequenzbereich ist zu gering, um Peaks lunarer Gezeitenwellen zu separieren (siehe dazu auch Kapitel 6). Ebenso wird kein Mechanismus angegeben, durch den periodische Spannungszustände einen aufwärts gerichteten Nettofluß induzieren.

MILLICH und NEUGEBAUER (1993) zeigen, daß ein durch Gezeitenwirkung erzeugter Nettofluß entstehen kann, wenn die Permeabilität des Gesteins während des Verlaufs der positiven und negativen Gezeitenhalbwellen einen unterschiedlichen Wert annimmt. Die dazu erforderlichen Permeabilitätsvariationen resultieren indirekt aus den periodischen Spannungszuständen über Schwankungen des effektiven Porendrucks. Die aus Bohrlochmessungen (HUENGES, 1993) bekannte poredruckabhängige Permeabilitätsfunktion dient als Eingabeparameter für ein von WALLNER und NEUGEBAUER (1991) entwickeltes Transportmodell auf der Basis zweier gekoppelter nichtlinearer Differentialgleichungen für den Spannungszustand von poröser Matrix und Fluid sowie für das Fließfeld. Ich greife diesen Ansatz in Abschnitt 6.2.3 im Zusammenhang mit den eigenen Meßergebnissen noch einmal auf.

In den meisten Feldmessungen werden endogene und exogene Transportmechanismen gleichzeitig wirksam sein. Für Untersuchungen rein endogener Faktoren wie z.B. das Gezeitenpumpen stellen meteorologische Einflüsse Störungen dar. In diesem Zusammenhang zeigt sich der Vorteil von in-situ-Messungen, da die Variationen von Größen wie atmosphärischer Luftdruck oder Umgebungstemperatur in Tiefen von zehn Metern oder mehr weitestgehend abgeklungen sind.

In Abschnitt 6.2 dieser Arbeit werden deshalb auch die Ergebnisse von Messungen in einer Gipsmine in Walferdange/Luxemburg vorgestellt, die neben Einflüssen des atmosphärischen Luftdrucks auf eine mit den Gezeiten gekoppelte advective Komponente des Radonsignals deuten. Die beobachteten Aktivitätskonzentrationen lassen sich befriedigend durch ein kombiniertes Modell aus Diffusion, konstantem Fluß, atmosphärischem Pumpen und Gezeitenpumpen erklären.

3 Meßverfahren der Radonaktivität

Es gibt eine Vielzahl von Methoden, die Konzentration von Radon und dessen Folgeprodukte zu messen. Diese Methoden unterscheiden sich im wesentlichen hinsichtlich der zu messenden Nuklide, Konzentrationen und Strahlungsarten (α , β , γ) sowie der Einsatzbedingungen und des Trägermediums. So richtet sich z.B. die Häufigkeit und Dauer der Einzelmessungen nach der zeitlichen Charakteristik der aufzulösenden Konzentrationsschwankungen. Stichprobenartige ("grab sampling") und integrierende Messungen geben nur Aufschluß über langperiodische Variationen, während kontinuierliche ("flow-through") und quasikontinuierliche Messungen Signalfrequenzen bis zur halben Samplingrate erfassen. Die Konzentrationsbestimmung kann entweder direkt über die Messung von Radon oder indirekt über die Messung der Folgeprodukte ("working level") erfolgen. Einige Methoden befassen sich mit dem Radongehalt in Bodenluft oder in Gesteinen und Baumaterialien zur Erhebung der Umweltradioaktivität oder zur Uranexploration. Viele kommerziell erhältliche Meßgeräte dienen dagegen letztendlich der Abschätzung der radioaktiven Äquivalentdosis für Menschen in Wohn- und Arbeitsräumen oder Bergwerken. Passive Geräte benötigen im Gegensatz zu aktiven Geräten keine Betriebsenergie zur Probensammlung oder -vermessung.

Ein Problem aller Meßanordnungen für Umgebungsluft ist die im allgemeinen stark negativ von der Luftfeuchte abhängige Zählrate. Tritt im Meßvolumen Kondensation auf, so wird Radon aufgrund eines Konzentrationsgefälles entlang der Luft-Wasser-Grenze von Wassertropfen absorbiert. Auf diese Weise geht ein beträchtlicher Aktivitätsanteil für die Messung verloren, da die Reichweite von α -Teilchen in Wasser mit etwa $66 \mu\text{m}$ geringer ist als der durchschnittliche Durchmesser eines Tropfens (LIKES et al., 1979).

Soll die Radonkonzentration in Wasser gemessen werden, so muß die Wasserprobe in geeigneter Weise entgast werden. Dies geschieht entweder durch ein- oder mehrfaches Überlaufenlassen aus Gefäßen oder Durchperlen der Probe mit einem Trägergas. Bei der Probenentnahme ist entscheidend, daß kein ungewolltes vorzeitiges Entgasen eintritt. Auf falscher Probenhandhabung basierende Meßfehler können sehr leicht die zu messenden Konzentrationsvariationen überschreiten. Eine relativ junge Methode für die Messung von Radon in Wasser stellen flüssige Szintillatoren dar. Sie werden in Form von Lösungen der Probe im Verhältnis 1:1 bis 1:2 zugefügt. Das Gemisch wird anschließend mit einem Zähler auf seine Aktivität vermessen.

Eine Übersicht über den jeweiligen Stand der Meßtechnik geben BUDNITZ (1974), WICKE (1983), COTHERN und SMITH (1987), SCHÖPPE (1990) und VON PHILIPSBORN (1990). Im folgenden möchte ich die wichtigsten Methoden soweit vorstellen, wie es für die Auswahl des Verfahrens (siehe Abschnitt 3.1) relevant ist.

Kernspurverfahren

Eine sehr häufig eingesetzte passive Methode zur integrierenden Messung besteht darin, α -Spurfilme auf dem Boden eines Meßbechers (" α -cup") anzubringen und diesen dann in umgedrehter Position am Meßort aufzustellen. Die α -Teilchen aus den Zerfällen des in das Meßvolumen diffundierten Radon dringen in das Filmmaterial ein und hinterlassen dort Spuren, die nachfolgend im Labor durch Ätzen z.B. mit KOH oder NaOH sichtbar gemacht werden ("track etch"-Methode). Die im Mikroskop bestimmte Dichte der α -Spuren ist ein Maß für die durchschnittliche Radonkonzentration während des Meßintervalls. Dies gilt jedoch nur, falls andere Nuklide wie z.B. die Radontöchter nicht in den Meßbecher gelangen. Bei der Passiven-Barriere-Methode wird deshalb ein Filter (z.B. Schaumstoff) zwischen Umgebung und Meßvolumen eingebracht, durch das nur Radon diffundiert. Die dabei entstehende Zeitverzögerung ist bei der Auswertung kontinuierlicher Messungen zu berücksichtigen. Mit dieser passiven Methode kann außerdem Thoron extrahiert werden, da es aufgrund seiner kurzen Halbwertszeit größtenteils bei der Filterpassage zerfällt (WARD et al., 1977). Die ersten Messungen dieser Art wurden 1972 von ALTER et al. (1972) zur Prospektion von Uran in etwa 60 cm tiefen Bohrlöchern durchgeführt. WOITH et al. (1989) verwenden die Kernspurmethode als Teil einer Multiparameterregistrierung zur Untersuchung von Erdbebenvorboten in der Türkei. WARREN (1977) beschreibt die Verwendung der Meßbecher in Verbindung mit einem Halbleiterdetektor.

Thermolumineszenz-Dosimeter

So wie Kernspurfilme werden thermolumineszierende Materialien in einem Behälter der radonhaltigen Luft exponiert. Die Strahlenschäden werden hier jedoch durch Erwärmen ausgeheilt, wobei die Defektenergie als Leuchten frei wird (VON PHILIPSBORN, 1990). Die Lichtmenge ist ein Maß für die Strahlendosis.

Aktivkohleverfahren

Im klassischen Fall wird radonhaltige Luft durch trockenisgekühlte Aktivkohle gesaugt, die das Radon absorbiert. Beim nachfolgenden Erhitzen wird es wieder ausgetrieben und mit Ionisations- oder Szintillationskammern vermessen. Aktivkohle-Dosimeter lassen sich jedoch auch bei Zimmertemperatur in Verbindung mit gammaspektrometrischen Detektoren verwenden. Diese Methode ist einfach und kostengünstig, erfordert aber eine genaue Kalibrierung.

Ionisationskammer

Eine relativ einfache aktive Methode ist die Messung des Ionisationsstromes der aus dem Radonzerfall entstehenden Poloniumionen. Dazu wird getrocknete und gefilterte Luft in eine Kammer eingeleitet. Die geladenen Ionen werden dort durch ein elektrisches Feld auf eine Elektrode beschleunigt und der Strom durch einen Elektrometerverstärker in ein verwertbares Signal umgewandelt. In die Beziehung zwischen Ionisationsstrom und Radonkonzentration gehen neben Kammerkonstanten noch Faktoren für die Zerfalls-, Abscheide- und Rekombinationsverluste während der Messung ein. Anstelle eines Elektrometers tritt häufig auch ein Impulsverstärker. Ein Nachteil von Ionisationskammern ist deren Empfindlichkeit gegenüber Umgebungsstrahlung (WICKE, 1983).

Elektrostatische Abscheidung

Die Tatsache, daß ^{218}Po nach dem α -Zerfall von Radon als positives Ion vorliegt, erlaubt eine elektrostatische Isotopentrennung. Durch Anlegen einer positiven Spannung an eine meist halbkugel- oder kugelförmige Meßkammer und/oder einer negativen Spannung an die Detektoroberfläche werden die Poloniumionen auf den Detektor beschleunigt und auf dessen Oberfläche abgeschieden. Dort werden dann alle Tochterzerfälle registriert, bei denen das α -Teilchen in Richtung des Detektors emittiert wird.

WRENN et al. (1975) verwenden die Methode der elektrostatischen Abscheidung in Kombination mit ZnS-Szintillationskammern zur Konstruktion eines Radonmonitors für geschlossene Räume. Das Zentrum ihres halbkugelförmigen, aus feinem Maschendraht bestehenden Meßvolumens bildet das mit ZnS(Ag) beschichtete Ende eines Lichtleiters, der mit einem Photomultiplier verbunden ist. Die Szintillatorbeschichtung wird mit einer Elektrode aus aluminisiertem Mylar bedeckt, um eine Saugspannung anlegen zu können. Nur wenige α -Teilchen, die aus dem Radon-Zerfall stammen, gelangen zum Detektor, da ihre Reichweite in Luft klein gegenüber den Abmessungen des Meßvolumens ist. Anstelle eines Photomultipliers können auch photographische Filme zur integrierenden Registrierung der Lichtblitze verwendet werden. WICKE (1979) verwendet eine Metallkugel unter Hochspannung, in die ein Oberflächensperrschichtdetektor integriert ist, der eine spektrometrische Trennung aller Isotope erlaubt. Die untere Nachweisgrenze wird mit $0.2 \frac{\text{Bq}}{\text{m}^3}$ angegeben.

Zwei-Filter-Verfahren

Bei der Zwei-Filter-Methode (TSIVOGLU et al. 1953, KUSNETZ 1956, THOMAS et al. 1970) wird die zu untersuchende Luft durch die Passage eines Eingangsfilters zunächst von allen Radon-Folgeprodukten getrennt und durch eine Verzögerungsstrecke geleitet. Die im Ausgangsfilter aufgefangenen Folgeprodukte entstammen dann sämtlich dem in der Probe

enthaltenen Radon. Die Art der Aktivitätsmessung besteht nun darin, mittels eines Zählers die Aktivität der auf dem Ausgangsfilter deponierten Radontöchter zu registrieren. Einige Filtertypen gewährleisten, daß auch solche Folgeprodukte zurückgehalten werden, die nicht an Aerosole gebunden sind. Soll die Apparatur als Absolutmeßgerät verwendet werden, so muß bei der Kalibrierung neben dem plate-out-Effekt der Poloniumionen auch die Filtereffizienz berücksichtigt werden. Aufgrund der fast fehlenden Kontamination der Apparatur mit Folgeprodukten zeichnet sich dieses Prinzip durch eine äußerst geringe Nulldrift aus.

MELVIN et al. (1978) verwenden dieses Meßprinzip zum Aufbau eines kostengünstigen, automatischen Radonmonitors zur Erdbebenfrüherkennung. Sie verwenden Geiger-Müller-Zählrohre zur Messung der β -Strahlung der Radontöchter. In periodischen Zeitabständen wird abwechselnd ein Pumpenauslaß und ein Zählrohr vor ein positionierbares Filterband gefahren und eine Filter- und Meßsequenz durchgeführt. Da in der Thoron-Zerfallsreihe ein langlebiger β -Strahler (^{212}Pb , $\tau=10.6$ h, siehe Kapitel 1) vorkommt, eignet sich dieses Verfahren auch zur indirekten Thoron-Konzentrationsbestimmung. Die Funktionen aller Komponenten werden von einem Mikroprozessor gesteuert. Die Bewegungen werden durch Schrittmotoren, Rollen und Nockenwellen ausgeführt und durch Mikroschalter begrenzt. MELVIN et al. testeten den Radonmonitor erfolgreich an Bohrlöchern und ermittelten Korrekturfaktoren für das Signal zur Kompensation von temperatur-, druck- und feuchtebedingten Einflüssen auf Geräteteile.

Elektretkammer

Eine Variation der Spannungsquelle führt von der Methode der elektrostatischen Abscheidung zur Elektretkammer. Elektrete sind dielektrische Materialien, die elektrische Ladungen über lange Zeiten zu halten vermögen. Ein Elektret kann als Elektrode in eine Kammer integriert werden und die in der Kammerluft entstehenden Ionen sammeln. Die Abnahme der Oberflächenladung aufgrund der Kompensation durch deponierte Teilchen ist ein Maß für den zeitlichen Verlauf der Radonkonzentration. Eine solche Anordnung muß jedoch zunächst hinsichtlich ihres γ -Strahlungsuntergrundes kalibriert werden. KOTRAPPA et al. (1981 und 1988) erhalten bei einem Dosimeter auf dieser Grundlage eine Potentialdifferenz von $0.7 \frac{\text{V}}{\text{Bq/m}^3 \cdot \text{a}}$.

Szintillationskammer

Eine der frühesten Methoden für Radonkonzentrationsmessungen stellt die Verwendung von Szintillationskammern dar (LUCAS, 1957). Diese Kammern ("Lucas cells") haben ein Meßvolumen von 0.1 bis 2 l, dessen innere Oberfläche mit einem szintillierenden Material (z.B. silberaktiviertes ZnS) beschichtet ist. Auf diese Oberfläche auftreffende α -Teilchen lösen Lichtblitze aus, die wiederum von einem Photomultiplier registriert werden, der an einer als

Fenster ausgebildeten Wand der Szintillationskammer angebracht ist. Die untere Nachweisgrenze liegt bei etwa $1 \frac{\text{Bq}}{\text{m}^3}$.

Eine niedrige Untergrundzählrate kann mit Kammerwänden aus rostfreiem Stahl oder Kovar erreicht werden. Die ZnS(Ag)-Beschichtung beträgt mindestens $20 \frac{\text{mg}}{\text{cm}^2}$, da sonst die Pulshöhenverteilung von der Schichtdicke abhängt. LUCAS findet bei Kammerprototypen, daß infolge des Photokathodenpotentials des Photomultipliers auf der inneren Seite des Quarzfenster der Kammer durch Influenz Oberflächenladungen erzeugt werden, die für eine elektrostatische Konzentration eines Großteils der Radontöchter auf dem Fenster verantwortlich sind. Dies bewirkt eine niedrige Zähleffizienz. Erst nach einer Beschichtung der Fensterinnenseite mit (leitendem) Zinnoxid erfolgt eine gleichmäßige und feuchteunabhängige Abscheidung auf allen Innenwänden. LUCAS erreicht mit Testzellen ($V=0.96 \text{ l}$) Empfindlichkeiten von etwa $2.5 \frac{\text{cps}}{\text{Bq}}$. Die Untergrundzählraten von durchschnittlich 0.08 cpm zeigen keine nennenswerten Schwankungen innerhalb von 40 Tagen, jedoch je nach Aktivität der Proben infolge von Kontamination mit ^{210}Pb Abweichungen bis zu 50%. Anstelle eines Photomultipliers verwendet BEDROSIAN (1969) einen hochempfindlichen photographischen Film zur α -Dosimetrie. CHITTAPORN (1981) verwendet eine Kombination aus Elektret- und Szintillationskammer zur getrennten Registrierung von Radon und Folgeprodukten. NOGUSHI und WAKITA (1977) geben für ihren Szintillationszähler ($V=1.6 \text{ l}$) eine Drift der Zählrate von 1.6% der totalen Zählrate pro Jahr an. WOITH et al. (1989) montieren Szintillationskammern in Bohrlöchern von Tiefen von 1 bis 2 m zur passiven Überwachung des Radongehaltes der Bodenluft für die Erdbebenvorhersage. SCHEIBEL et al. (1979) schlagen Szintillationszellen mit einem Meßvolumen von 0.1 l für die Messung niedriger ^{222}Rn - oder ^{226}Ra -Konzentrationen in Baumaterialien, Lebensmitteln oder menschlichen Organen vor.

3.1 Auswahl des Meßverfahrens

Vor der Auswahl einer bestimmten Meßmethode habe ich die oben beschriebenen Verfahren unter Berücksichtigung folgender Kriterien bewertet:

- kurze Probentransferzeit aufgrund des Thoronzerfalls,
- kontinuierliche und automatisierbare in-situ-Meßweise mit hoher zeitlicher Auflösung,
- Eignung für geringe Probenvolumen,
- Möglichkeit der Rückrechnung der Radon- und Thoronkonzentration aus α -Zählraten,
- geringe oder überprüfbare Detektorkontamination,
- niedrige Kosten,
- hohe Zähleffizienz und damit niedriger statistischer Fehler,

- niedriger Untergrund,
- Feuchte-, Temperatur- und Luftdruckdriften bekannt oder nicht vorhanden,
- geringe Detektortotzeit und damit hohe Maximalzählrate,
- Variabilität des sensitiven Volumens,
- Energiesensitivität des Detektors (Eignung für Spektroskopie).

Zunächst scheidet alle Methoden aus, die die γ -Strahlung von Radon und Töchtern nachweisen (z.B. Szintillationszähler mit NaI-Kristallen), weil sie nicht nur die Zerfälle der im Porenraum migrierenden Isotope registrieren, sondern auch solche von in Kristallen gebundenen Atomen. Der zweite Anteil ist jedoch für Untersuchungen über Transportprozesse nicht relevant. Die Kernspur-, Thermolumineszenz- und Aktivkohleverfahren scheitern daran, daß die Meßintervalle zu lang sind und die Registrierung nicht automatisierbar ist. Elektretkammern und das elektrostatische Abscheideverfahren weisen eine relativ niedrige Effizienz von unter 25% auf. Die eingesetzten Geräte sind außerdem im allgemeinen recht voluminös, so daß sie im Falle von Bohrlochmessungen an der Erdoberfläche verblieben, was wiederum zu unakzeptablen Probentransferzeiten führt. Dies gilt auch für die Zwei-Filter-Methode. Ionisationskammern weisen eine hohe Totzeit von etwa 1 ms auf, so daß hier die Maximalzählrate unter 1000 Bq läge. Bei passiven Verfahren mit Halbleiterdetektoren (" α -logger") oder Szintillationskammern ist die Rückrechnung von Radon- und Thoronkonzentrationen schwierig, wenn während der Registrierung ein Gasaustausch mit der Detektorumgebung stattfindet. Nahezu alle Kriterien erfüllen lediglich die Szintillationskammern bei aktiver Meßweise. Dazu muß ein automatisierbarer Probenwechsel gewährleistet werden, bei dem die Szintillationskammer am Meßort (z.B. Bohrloch) verbleibt. Bei der Verwendung kleiner Kammern können so in idealer Weise auch geringe Probenmengen in situ ohne Aktivitätsverluste auf Transportwegen vermessen werden. Außerdem zeichnet sich dieses Verfahren durch niedrige Kosten und hohe Effizienz aus (siehe RAGHAVAYYA, 1981). Da eine hohe Feuchteabhängigkeit der Zählraten besteht, muß die Probe vor dem Einlaß in die Kammer getrocknet werden. Der einzige Nachteil dieser Methode liegt in der nicht vorhandenen Energiesensitivität. Eine getrennte Messung von Radon und Töchtern ist also nicht möglich. Radon und Thoron sind jedoch schon aufgrund ihrer stark unterschiedlichen Halbwertszeiten separierbar.

Die Eignung zu in-situ-Messungen bildete letztendlich das entscheidende Auswahlkriterium, da die Messung des Thoronanteils in der Probe von großer Bedeutung für die Untersuchung der Radonmigration ist (vgl. Gleichung (19)). Deshalb habe ich einen bohrlochauglichen Sensor entwickelt, der auf dem Prinzip der Szintillationskammer beruht. Dieser führt einen automatischen Probenwechsel durch und ist in situ kalibrierbar. Kapitel 4 enthält eine kurze Beschreibung des gesamten Sensors. Die Rückrechnung der Radonkonzentration aus den α -Zählraten ist in Kapitel 5 beschrieben.

4 Der automatische Radonsensor

4.1 Gesamtsystem

Der neu entwickelte Radonsensor besteht aus einem Detektor, je einem Druck- und Temperatursensor, einer Signalverarbeitungselektronik und zwei Magnetventilen. Diese vier Hauptbestandteile sind in einem zylindrischen Gehäuserohr untergebracht, dessen beide Enden von zwei Gehäusedeckeln abgeschlossen werden.

Ein Teil der Signalverarbeitung und die Versorgung des Sensors erfolgt in einem externen Steuergerät. Dieses ist modular aufgebaut und kann bis zu zehn Sensoren steuern. Der Ausgang des Steuergeräts ist mit einem Rechner (PC) verbunden, der die Datenerfassung und -speicherung übernimmt. Eine externe Vakuumpumpe dient zum Wechseln der Probe.

Abbildung 6 zeigt eine Übersicht über die gesamte Anlage in einer Anwendung für Bohrlochmessungen. Die in starken Linien dargestellten Geräte sind im Rahmen dieser Arbeit realisiert worden.

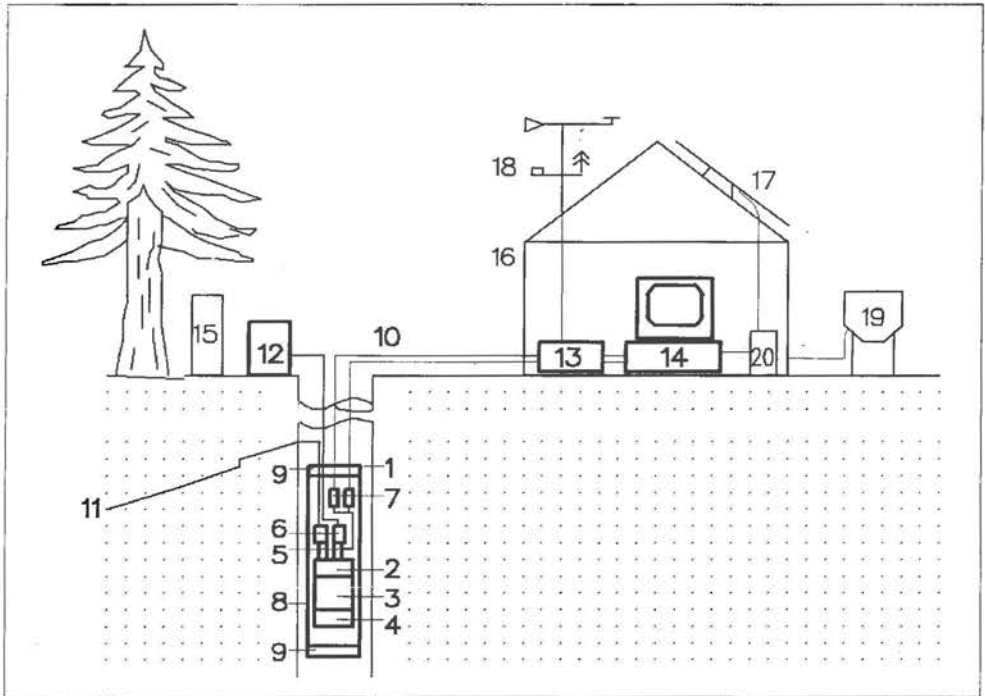


Abb. 6: Übersicht über einen automatischen Radon-Meßplatz

Im folgenden möchte ich die Funktion der Anlage kurz erläutern. Eine detaillierte Beschreibung der einzelnen Elemente erfolgt dann in den Kapiteln 4.2 bis 4.10.

Hauptbestandteil des Sensors (1) ist der Detektor (2), in den eine Luftprobe zur Vermessung der Radioaktivität des darin enthaltenen Radon eingebracht wird. Die Signale des Detektors werden vom Photomultiplier (3) in elektrische Impulse umwandelt. Die Impulsspannung wird anschließend von einem Signalverstärker (4) integriert. Der verstärkte Impuls gelangt über die Sensorzuleitung (10) in einen Kanaleinschub des Steuergerätes (13). Dort werden die "echten" Zerfälle durch Pulshöhendiskriminierung vom Rauschen getrennt und in einer Pulsformerschaltung auf vom Rechner (14) "verständliche" Impulse definierter Höhe und Zeitdauer umgewandelt.

Im Verstärkergehäuse (4) ist außer der Verstärkerschaltung ein Hochspannungsteiler zur Spannungsversorgung des Photomultipliers untergebracht. Der Detektor besitzt einen Einlaß- und einen Auslaßstutzen (5), die mit je einem Magnetventil (6) bestückt sind. An den Stutzen der Magnetventile sind Schlauchleitungen montiert, die den Auslaß des Detektors mit einer Vakuumpumpe (12) und den Einlaß mit der Radonquelle (hier z.B. eine Kluft (11) im Gestein) verbinden. Zwischen einem der Magnetventile und dem Detektor ist eine Abzweigung in einen Stutzen eingelötet, die das Kammervolumen über eine Messingleitung mit einem Druck- und einem Temperatursensor (7) verbindet. So können Druck und Temperatur in der Kammer ständig gemessen werden. Alle Sensorelemente befinden sich in einem Gehäuserohr (8), das z.Z. aus Plexiglas besteht. Das Gehäuse wird von zwei Gehäusedeckeln (9) abgeschlossen, an denen Steckverbinder für elektrische Anschlüsse und Kupplungen für Schlauchleitungen angebracht sind.

Außer den Kanaleinschüben zur Verarbeitung der Sensorsignale enthält das externe Steuergerät noch Versorgungseinschübe zur Spannungsversorgung des Sensors und einen Zusatzanschub, der zusätzliche Steuerfunktionen (z.B. eine regelmäßige Detektorkalibrierung (15)) übernehmen und weitere externe Daten (z.B. die einer Wetterstation (18)) verarbeiten kann.

Alle Analogsignale werden auf einer ADC-Karte im Rechner (14) in digitale Daten gewandelt und anschließend gespeichert. Auf der ADC-Karte befinden sich außerdem drei Zähler, die Zerfallsereignisse zählen. Ein Digital-I/O-Einschub erzeugt Gleichspannungen, die als logische Pegel auf das Steuergerät geschaltet und dort für verschiedene Schaltfunktionen (z.B. für die Vakuumpumpe oder für die Magnetventile) verwendet werden.

Als Beispiel einer möglichen Anwendung sei eine Bohrlochmessung mit paralleler Aufnahme von Wetterdaten skizziert. Rechner, Steuergerät und eine Batterie (20) befinden sich hier in einer Meßhütte (16), die auf dem Dach eine solare Stromversorgung (17) und Sensoren (18) zur Messung von Windgeschwindigkeit und -richtung, atmosphärischem Druck, relativer Feuchte und Temperatur trägt. Neben der Meßhütte steht ein Niederschlagsmesser (19).

5 Datenanalyse

Die Rohdaten des Sensors bestehen aus stündlichen Werten für verschiedene Zeit- und Meßgrößen. Diese sind: 1. Zeitpunkt von Beginn und Ende des Zählintervalls von einer Stunde, 2. sechs Zählsummen zu verschiedenen Zeiten τ_i innerhalb eines Intervalls, 3. Lufttemperatur und -druck am Ende des Intervalls, 4. Enddruck p_v nach dem Auspumpen und 5. Enddruck p_f nach erneutem Befüllen der Szintillationskammer. Abbildung 7 zeigt die zeitliche Struktur der Meßintervalle i und $i+1$ mit den jeweiligen Pumpzeiten t_p (keine Probe im Detektor) und Füllzeiten t_f (Probe im Detektor). Im Falle der in Kapitel 6 beschriebenen Messungen betragen die τ_i 30, 60, 120, 240, 480 und 3600 Sekunden. Die Kurven entsprechen zeitlich ansteigenden Zählerständen aufgrund von Zerfällen von Radon und Thoron.

Zählerstand

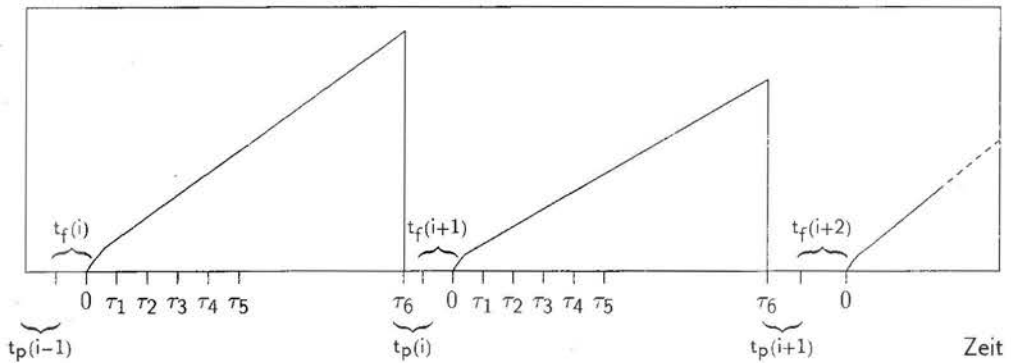


Abb. 7: Meßintervallstruktur

Aus den sechs Zählsummen, den zeitlichen Intervallrandwerten und den Enddrücken lassen sich unter Berücksichtigung der Detektoreffizienz für jedes Intervall zwei Aktivitätswerte für Radon und Thoron ermitteln (siehe auch TSIVOGLIOU et al., 1953, HARLEY, 1953, KUSNETZ, 1956, MARTZ et al., 1969 und TREMBLAY et al., 1979). Dies ist auch dann möglich, wenn das radioaktive Gleichgewicht nicht erreicht wird. In die Berechnung der Radonaktivität fließen Aktivitätswerte von vorhergehenden Intervallen ein, um der Detektorkontamination durch Radontöchter Rechnung zu tragen (diese Methode benutzen auch BUSIGIN et al. (1979) und THOMAS und COUNTESS (1979) für eine reine Radonanalyse aus Durchflußmessungen). Die beiden Isotope können separiert werden, da Thoron nur während der ersten 480 Sekunden eines Zählintervalls wesentliche Beiträge zu den Zählraten liefert. Dies ist auch am Verlauf der Zählerstandskurven zu erkennen (vgl. STRONG und DUGGAN, 1973). Aus den zwischen 480 Sekunden und einer Stunde eintreffenden Impulsen wird zunächst die Aktivität von Radon berechnet. Dieser Wert liefert dann den nur durch Radon bedingten Verlauf der Zählrate während der ersten 480 Sekunden. Die Differenz zu den tatsächlichen Werten ist

ein Maß für die durch Thoron bedingte Zählrate. Aus den gespeicherten Zählerständen bei $\tau_i = 30, 60, 120, 240$ und 480 Sekunden kann schließlich durch eine least-square-Anpassung an eine Thoron-Zerfallskurve die Thoronaktivität berechnet werden (siehe auch RAABE und WRENN, 1969).

Vor der Analyse von gemessenen Zeitreihen habe ich den oben beschriebenen Algorithmus überprüft, indem ich zunächst mit Hilfe eines Runge-Kutta-Verfahrens eine Meßreihe künstlich erzeugt und diese anschließend analysiert habe. Auf diese Weise läßt sich die Genauigkeit des Verfahrens beurteilen. Für die Radon- und Thoronaktivität ergaben sich Analysefehler um 1%. Das Detektorvolumen V_{Det} ist jedoch nur mit einer Genauigkeit von 2% bekannt. Der Fehler der ξ_e^i läßt sich auf maximal 10% abschätzen. Für $e=1$ und $e=6$ (Radon und Thoron) resultiert dieser Fehler aus Ungenauigkeiten in der Messung der Enddrücke. Diese Größen tragen jedoch nur zu einem geringen Teil zum Gesamtfehler bei, wenn die Kontamination in jedem Intervall kleiner ist als die Radon- und Töchterbeiträge. Dies ist in den untersuchten Zeitreihen (siehe Kapitel 6) jedoch immer der Fall. Bei Zählsummen um 10^4 cph kommt außerdem ein relativer statistischer Fehler von etwa 1% hinzu, so daß der Gesamtfehler für die Messung und Analyse der Radonaktivitätskonzentrationen um 5% liegen dürfte (vgl. MODERA und BONNEFOUS, 1993). Der relative Fehler der Thoronaktivitätskonzentration kann leicht 50% und mehr erreichen, wenn die Thoron-Zählsumme nur einen geringen Anteil der Gesamtzählsumme ausmacht.

6 Meßergebnisse

Nach ersten Probemessungen habe ich den Radonsensor in einer stillgelegten Gipsmine in Walferdange, Luxemburg installiert. Abbildung 8 zeigt die Lage der Mine.



Abb. 8: Lage des Meßortes

Abbildung 9 zeigt das weit verzweigte System der etwa zwei Meter hohen Stollen des Bergwerks im Sonneberg und die Lage des Radon-Meßpunktes D. Die Rahmen in allen Abbildungen kennzeichnen jeweils die Lage des vergrößert dargestellten Ausschnitts.

LABORATOIRE SOUTERRAIN DE

WALFERDANGE

(GRAND-DUCHE
DE LUXEMBOURG)

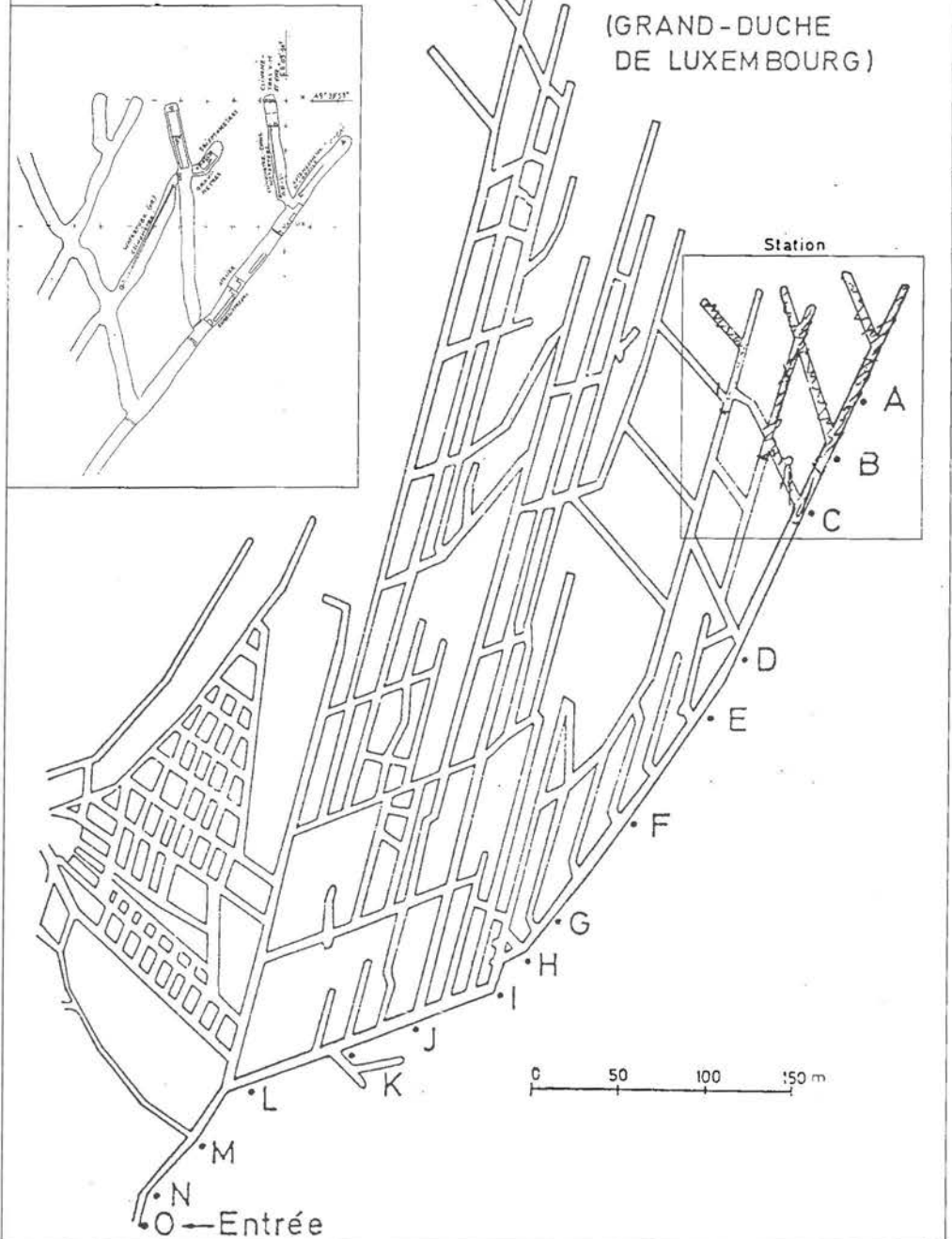


Abb. 9: Stollensystem der Mine mit Observatorium

Am Ende der östlichen Stollen befindet sich ein geodynamisches Observatorium des Europäischen Zentrums für Geodynamik und Seismologie. Hier werden unter anderem Langzeitneigungs- und -schweremessungen durchgeführt. In insgesamt vier Seitenstollen sind neben Gravimetern, Neigungsmessern und Extensometern auch Schlauchwaagen installiert. Die Signale werden in einem abgetrennten Abschnitt des Stollens digital erfaßt und zusätzlich mit Analogschreibern aufgezeichnet. Dieser Abschnitt beherbergt auch eine Werkstatt sowie eine kleine Ausstellung.

Bei dem in der Mine anstehenden Gestein (siehe NEGENDANK, 1983 und DITTRICH, 1989) handelt es sich um eine schichtgebundene, fast söhliche Gipslagerstätte von etwa sieben Metern Mächtigkeit im Gipskeuper (obere Trias; Alter ca. 220 Millionen Jahre). Diese Lagerstätte ist im Steinmergelkeuper (ca. 65 m) eingebettet. Über dem Steinmergelkeuper folgen die schwarzen Blättermergel und die roten Tone des Rhät (ca. 5 m). Darüber sind dunkle Tone und Mergel sowie bituminöse Kalke der Pylonoten-Schichten (ca. 10 m) des Lias (Unterer Jura) aufgeschlossen. Den Top bildet der Luxemburger Sandstein (ca. 40 m). Der Ausstrich aller Schichten liegt an der Basis des Sonnebiergs östlich von Walferdange. In der Lagerstätte findet man eine Wechsellagerung von Tonmergelstein mit dunklen Gipslagen und hellem, faserigem Gips auf Klüften vor. In der Stollenwand sind eine Vielzahl von horizontalen Bohrungen aus der Zeit des Gipsabbaus vorhanden.

Der Einlaß der Szintillationskammer steht über eine Schlauchleitung und dem Luftfilter mit einem dieser Bohrlocher (beim Punkt D in Abbildung 9) in Verbindung. Das Bohrloch wurde gegenüber dem Stollen durch Montageschaum abgedichtet, so daß bei jedem Probenwechsel Porenluft aus den oberflächennahen Klüften abgesaugt wird. Auf diese Weise wird gewährleistet, daß auch Thoron registriert wird, welches aufgrund seiner geringen Diffusionslänge in der Stollenluft sehr inhomogen verteilt ist. Aufgrund der intensiven Klüftung des Gesteins kann jedoch nicht völlig ausgeschlossen werden, daß über die Wandoberfläche in der Umgebung des Bohrlochs auch ein Teil der Stollenluft angesaugt wird.

6.1 Meßdatenanalyse

Abbildung 10 zeigt die Ergebnisse der Messungen vom 28.12.1993 bis zum 1.3.1994.

Die Teilabbildungen enthalten von oben nach unten die Zählraten während der Meßzeit von einer Stunde, die daraus errechneten korrigierten Aktivitäten (siehe Abschnitt 5.1) und schließlich Luftdruck und -temperatur. Aufgrund der statistischen Schwankungen der Aktivitätswerte habe ich zur besseren Übersichtlichkeit zusätzlich eine gemittelte Kurve eingezeichnet. Die negativen Aktivitätswerte bei Thoron haben keine physikalische Bedeutung sondern sind das Ergebnis der least-square-Anpassung an die Zählraten. Die gemittelten Thoronaktivitäten sind bis auf wenige Ausnahmen positiv. Im Verlauf der Lufttemperatur erkennt man aufgrund der geringen Variation die Quantisierungsstufen des Analog-Digital-Wandlers.

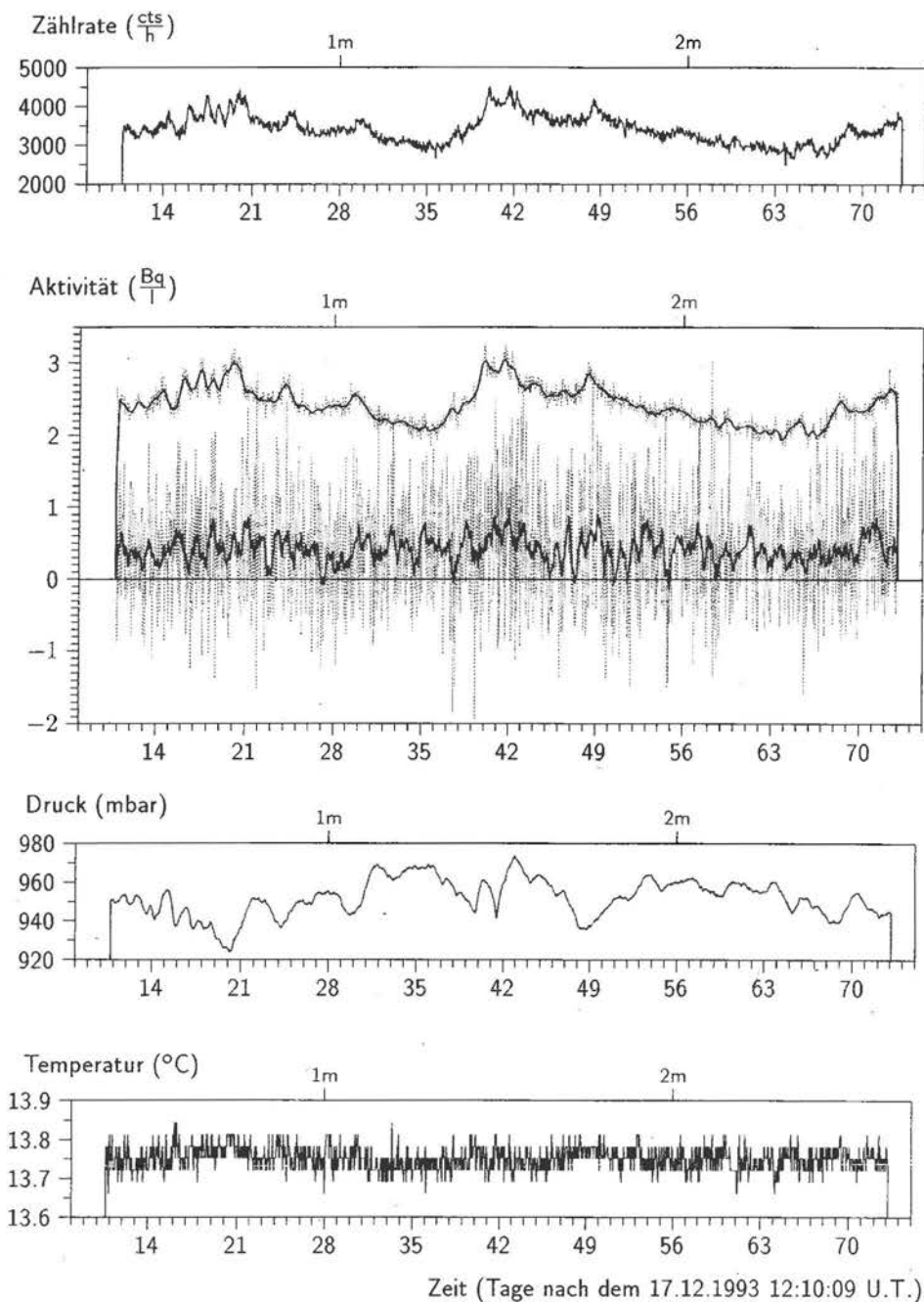


Abb. 10: Rohdaten, von oben nach unten:

Zählrate, korrigierte Aktivität von Radon (oben) und Thoron (unten) mit Mittelwert,
Luftdruck im Porenraum, Temperatur im Porenraum

Tabelle 2 enthält die Mittelwerte, Standardabweichungen und Produktmoment-Korrelationskoeffizienten aller Zeitreihen.

Tab. 2: Eigenschaften der Zeitreihen

	Radon ($\frac{\text{Bq}}{\text{l}}$)	Thoron ($\frac{\text{Bq}}{\text{l}}$)	Druck (mbar)	Temperatur (K)
Mittelwert	2.54	0.44	952.01	13.75
Standardabweichung	0.27	0.62	9.40	0.03
Korrelationskoeffizienten	Radon	Thoron	Druck	Temperatur
Radon	1.00	0.07	-0.48	0.30
Thoron	0.07	1.00	-0.01	0.03
Druck	-0.48	-0.01	1.00	-0.38
Temperatur	0.30	0.03	-0.38	1.00
Gezeiten	0.36	0.03	-0.13	0.06

Aus den Meßdaten lassen sich auch ohne detaillierte Spektralanalyse schon einige physikalische Zusammenhänge ablesen. Abbildung 12 zeigt einen qualitativen Vergleich der Radon-Aktivität mit dem Verlauf der Variation der Erdbeschleunigung $\overline{\Delta g}$ (theoretische Gezeiten) und mit dem Porenluftdruck p . Die Abszissen sind wie in Abbildung 10 skaliert. Die Ordinaten besitzen keine Skalierung, da die Kurven normiert sind. Die stark variierende Kurve entspricht in beiden Teilabbildungen der Radon-Zeitreihe. Die relativ glatten Kurven repräsentieren die Variation der Erdbeschleunigung (oben) und den Verlauf des Porenluftdrucks (unten). Die Werte für $\overline{\Delta g}$ habe ich aus den theoretischen Gezeiten in Abbildung 11 durch Mittelung über sechs Tage erhalten. Der Verlauf dieser Mittelwerte entspricht etwa dem der oberen Einhüllenden der ungemittelten Gezeitenkurve. Die theoretischen Gezeiten (Vertikalkomponente) wurden mit einem Computerprogramm von WENZEL für den Meßort Walferdange (49°39'20" N, 6°8'30" W, 298 m ü.NN) und den betreffenden Registrierzeitraum ermittelt. Ein erster Vergleich des Kurvenverlaufs legt eine positive Korrelation der Radon-Aktivität mit den Erdgezeiten und eine negative Korrelation mit dem Luftdruck nahe (siehe auch Tabelle 2). Die etwa 28tägige Variation der Gezeiten beruht auf einer Überlagerung von solaren und lunaren Partialwellen des Gezeitenspektrums im Tagesbereich.

Die hier schon vermuteten Zusammenhänge möchte ich in den Abschnitten 6.2.1 bis 6.2.3 näher erläutern. Es folgt nun eine quantitative Analyse der spektralen Eigenschaften der Zeitreihen.

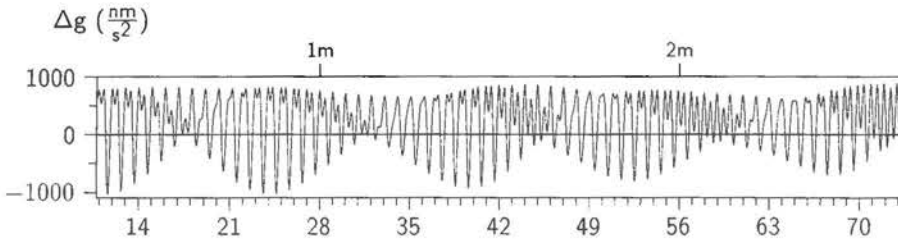


Abb. 11: Variation der Erdbeschleunigung (Theoretische Gezeiten)

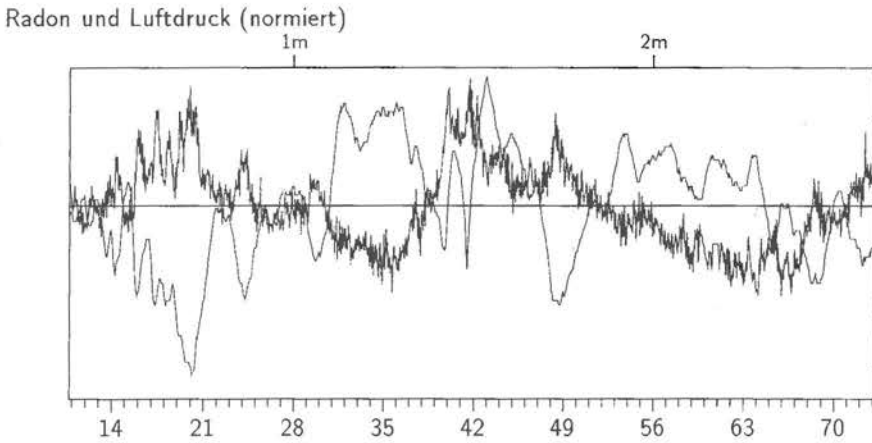
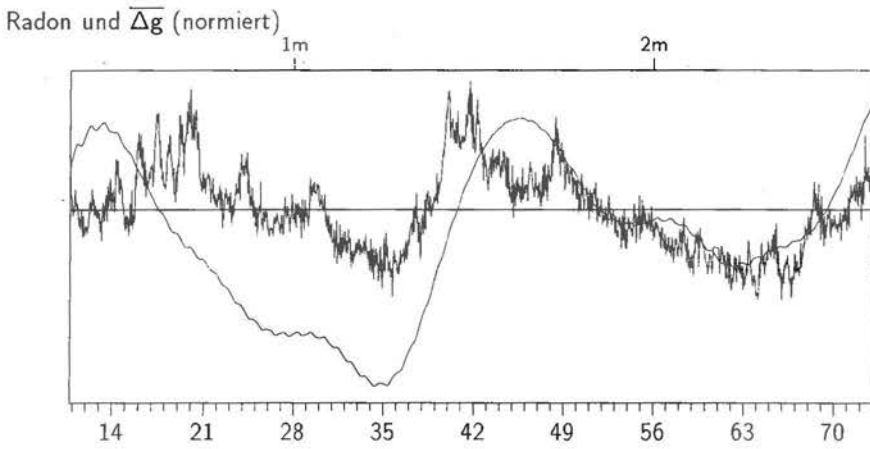


Abb. 12: Qualitative Vergleiche der Zeitreihen, von oben nach unten:
Radon und mittlere Variation der Erdbeschleunigung, Radon und Luftdruck

Abbildung 13 zeigt Periodogramm-Schätzungen \hat{G}_{xx}^T der einseitigen Spektraldichtefunktionen der Meßwerte und der theoretischen Gezeiten. Auf den Abszissen ist die Periode $T = \frac{1}{f}$ im Bereich von 5.5 Stunden bis zu einer Woche aufgetragen, während die Ordinaten in den Einheiten der jeweiligen Meßgröße skaliert sind. Periodizitäten von mehr als einer Woche können aufgrund der begrenzten Länge der Zeitreihe von 1496 Stunden nicht mehr nachgewiesen werden. Die Kurven stellen nicht den Verlauf der Spektraldichtefunktion dar, sondern das Produkt $\hat{G}_{xx}^T \cdot f$, das ich im folgenden kurz als (Power·f)-Spektrum bezeichnen möchte. MENDENHALL et al. (1981) geben diese Darstellungsweise als die für Radonspektren geeignetste an. Der Grund dafür ist die Tatsache, daß die physikalische Situation einer radioaktiven Quelle in einem porösen Medium mit konstanten Parametern (Emanationsrate, Porosität, Fluidgeschwindigkeit, etc.) einer Quelle weißen Rauschens entspricht, welches sich diffusiv in einem umgebenden Medium ausbreitet. Die Spektraldichtefunktion eines solchen Systems zeigt nach MENDENHALL et al. einen $\frac{1}{f}$ -förmigen Verlauf ("pink noise"). Ein (Power·f)-Spektrum eines ungestörten Radon-Signals besitzt demnach eine flache Basis. Jede Abweichung davon beruht dann auf dem Einfluß einer veränderlichen Größe. Von den Werten des Produkts $\hat{G}_{xx}^T \cdot f$ gelangt man zu den Partialwellenamplituden $|X(f_k)|$ des Spektrums durch

$$|X(f_k)| = \sqrt{\frac{(\hat{G}_{xx}^T \cdot f) T}{2 \Delta t}} \quad (8)$$

Alle Zeitreihen wurden zunächst mit einem Hanning-Fenster mit $a=0.2$ gefiltert. Das Spektrum des Radon-Signals zeigt vier ausgeprägte Peaks bei Perioden von 12, 12.4, 24 und 84 Stunden, während das Thoron-Spektrum nur einen schwach ausgeprägten Peak bei 12 Stunden aufweist und ansonsten bei hohen Frequenzen stark schwankt. Die Zeitreihe des Luftdrucks zeigt hauptsächlich langperiodische Veränderungen im Bereich von 50 bis 120 Stunden und einen kleinen, aber deutlichen Peak bei 12 Stunden. Das Spektrum der Lufttemperatur ist relativ "weiß" mit schwach ausgeprägten Peaks bei 8, 21 und 24 Stunden und um 12 Stunden (vgl. KING, 1985 und WOTH et al., 1989). Im Spektrum der theoretischen Gezeiten sind deutlich die halbtägigen Partialwellen S2 und M2 bei 12.0, bzw. 12.4 Stunden und die ganztägigen Partialwellen S1/K1/P1 und O1 bei 24.0, bzw. 25.8 Stunden zu sehen (siehe dazu MELCHIOR, 1983).

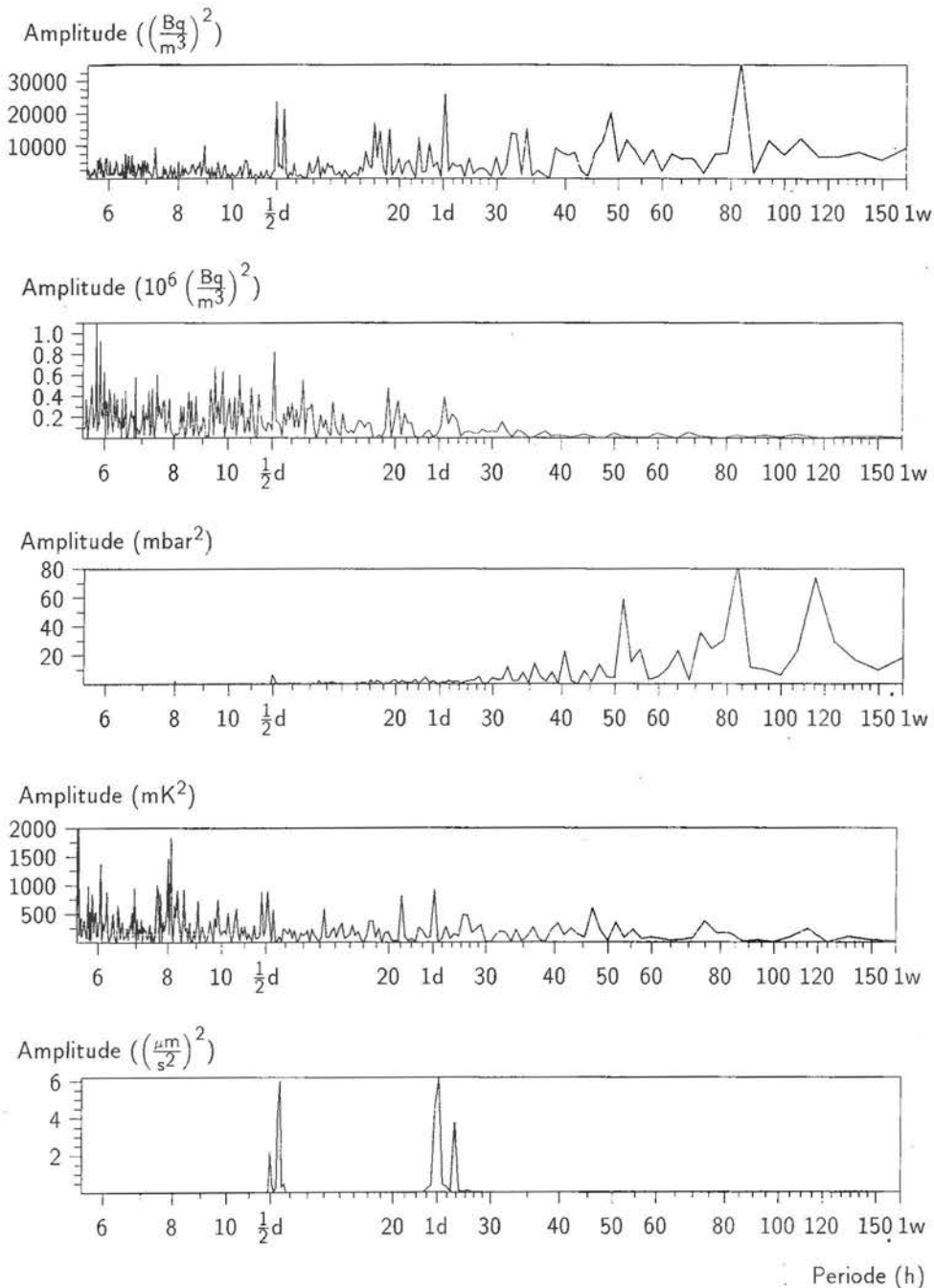


Abb. 13: (Power · f)-Spektren:
 von oben nach unten: $\hat{G}_{\text{Rn}}^T \cdot f$, $\hat{G}_{\text{Tn}}^T \cdot f$, $\hat{G}_{\text{p}}^T \cdot f$, $\hat{G}_{\text{T}}^T \cdot f$, $\hat{G}_{\Delta g}^T \cdot f$

Ein erster qualitativer Vergleich der Radon- und Thoron-Spektren mit denen der drei Einflußgrößen p , T und Δg zeigt eine geringe Abhängigkeit der spezifischen Aktivitäten von der Lufttemperatur und eine starke Abhängigkeit vom Luftdruck und von den Erdgezeiten. Die Peaks im Spektrum der Temperatur sind in denen von Radon und Thoron nicht zu finden (vgl. ENGE et al., 1990). Allein bei Perioden von einem Tag und zwei Tagen könnte eine schwache Abhängigkeit beim Radon vorhanden sein. Der Luftdruck hingegen übt erwartungsgemäß einen großen Einfluß auf die Aktivität in der stollennahen Porenluft aus. So sind die Peaks bei 12 und 84 Stunden im Radon-Spektrum wohl zum größten Teil auf den Luftdruck zurückzuführen. Eine recht auffällige Korrespondenz besteht zwischen den Spektren von Radon und den theoretischen Gezeiten bei einer Periode von 12.4 Stunden. In diesem Bereich besitzt keine der meteorologischen Größen eine ausgeprägte spektrale Leistung. Deshalb muß hier ein direkter Zusammenhang der Radon-Aktivität mit den Erdgezeiten vermutet werden. Abschließend möchte ich auf die Ergebnisse einer halbjährigen Registrierung der Radonaktivität im Tunnelboden in einem Bohrloch senkrecht zur Schichtung hinweisen. Zunächst steigt dort der konstante Anteil der Aktivität auf etwa $4 - 6 \frac{\text{Bq}}{\text{l}}$. Weiterhin sind im Periodenspektrum - wie bei der schon behandelten Zeitreihe - die Einflüsse des Luftdrucks deutlich zu sehen. Es fehlt jedoch ein eindeutiger Hinweis auf eine Kopplung des Radonsignals an die Erdgezeiten. Ich komme auf diesen Sachverhalt noch einmal in Abschnitt 6.2.5 zurück.

6.2 Interpretation

In den folgenden Abschnitten möchte ich im Anschluß an die Spektralanalyse der Meßdaten eine physikalische Interpretation der Ergebnisse der Spektralanalyse geben. Dabei betrachte ich drei Phänomene: Atmosphärisches Pumpen und Gezeitenpumpen als Verursacher charakteristischer spektraler Eigenschaften sowie reine Diffusion und konstanten Fluß als Verursacher des unkorrelierten Rauschens. Die Messung verschiedener Transportparameter an Gesteinsproben ermöglicht auch eine quantitative Modellierung des Transportprozesses.

6.2.1 Diffusion und konstanter Fluß

Zur Beschreibung der Radonmigration in Gesteinen unter ungestörten Bedingungen betrachten CLEMENTS und WILKENING (1974) molekulare Diffusion und Gasfluß in einem homogenen porösen radioaktiven Medium, das zudem isothermal und trocken sein soll. Die Betrachtung geschieht eindimensional mit dem Ursprung in der freien Grenzfläche des radioaktiven Mediums und der positiven z -Achse senkrecht zu dieser Grenzfläche in Richtung des freien Raums. Die Diffusion erfolgt proportional zu einem Konzentrationsgradienten gemäß dem Fickschen Gesetz

$$j_d^* = -D^* \nabla C, \quad (9)$$

wobei j_d^* den Diffusionsstrom, D^* den effektiven Diffusionskoeffizienten von Radon im Gestein und C die örtliche Radonkonzentration in der Porenluft bezeichnet. Man unterscheidet den effektiven Diffusionskoeffizienten D^* vom Porendiffusionskoeffizienten D durch $D^* = D \cdot \phi$, wobei ϕ die effektive Porosität des Gesteins ist. Die (meist gemessene) Größe D^* bezieht sich also auf das poröse Medium als Ganzes und D nur auf das Porenvolumen (siehe dazu WORM, 1986). Der Transportstrom von Radon bei einem Volumenstrom v^* ist $j_t^* = C \cdot v^*$. Zwischen dem Volumenstrom v^* und der Flußgeschwindigkeit besteht die gleiche Relation wie bei der Diffusionskonstanten: $v^* = v \cdot \phi$. Im folgenden beziehen sich alle mit einem Stern indizierte Größen stets auf das gesamte Gesteinsvolumen. In der Literatur ist dieser Unterschied nicht immer deutlich ausgewiesen. Welche Größen verwendet werden, läßt sich oft nur schwer entscheiden (siehe auch TANNER, 1978).

Die Transportgleichung dieses kombinierten Problems enthält neben der Diffusion und dem Fluß noch Konzentrationsänderungen infolge Emanation des Gesteins und radioaktiven Zerfalls:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{D^*}{\phi} \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - \frac{1}{\phi} \frac{\partial(v^* C)}{\partial z} - \lambda C + \frac{q^*}{\phi} \quad (10)$$

Hier bedeuten λ die Zerfallskonstante von Radon und q^* die volumenspezifische effektive Produktionsrate von Radon im Gestein. Die Randbedingungen sind

$$C(0, t) = C_0 \quad , \quad C(-\infty, t) = \frac{q^*}{\lambda \phi} =: C_{-\infty} \quad (11)$$

Gleichung (10) ist analytisch nur für einfache Ausdrücke der Geschwindigkeit v^* lösbar. Die stationäre Lösung für $v^* = \text{const.}$ und $-\infty < z \leq 0$ lautet

$$C(z) = C_{-\infty} (1 - e^{\frac{z}{l}}) + C_0 e^{\frac{z}{l}} \quad (12)$$

mit der charakteristischen Transportlänge

$$l^{-1} = \frac{v^*}{2D^*} + \sqrt{\frac{v^{*2}}{4D^{*2}} + \frac{\phi \lambda}{D^*}} \quad (13)$$

Der Gesamtstrom im Porenvolumen ist die Summe aus Diffusionsstrom und Transportstrom:

$$j^* = j_d^* + j_t^* = (C_0 - C_{-\infty}) \left(v^* - \frac{D^*}{l} \right) e^{\frac{z}{l}} + C_{-\infty} v^* \quad (14)$$

Die stationäre Konzentration im Stollenvolumen C_0 läßt sich aus der Bilanz des Zuflusses j^* durch die Stollenwandfläche A und dem Zerfall im Stollenvolumen V ermitteln, falls kein weiterer Abfluß angenommen wird:

$$\frac{\partial C_0}{\partial t} = \frac{1}{V} \int j^*(z=0) dA - \lambda C_0 = 0 \quad (15)$$

Vereinfacht man den Stollen zu einem Zylinder mit Radius R , so ist $\frac{A}{V} = \frac{2}{R}$ und für $j^*(z=0)=\text{const.}$

$$C_0 = C_{-\infty} \frac{1}{1 + \frac{l}{D^*} \left(\frac{\lambda R}{2} - v^* \right)} \quad (16)$$

Diese Betrachtung ist jedoch nur gültig für $R \gg l$, da sonst die Transportgleichung in Zylinderkoordinaten gelöst werden muß (siehe dazu WRENN et al., 1969, EDWARDS und BATES, 1980 und BIGU, 1994). Im Falle reiner Diffusion ist $v^*=0$ und

$$l = \sqrt{\frac{D^*}{\phi \lambda}} \quad , \quad j^* = j_d^* = (C_0 - C_{-\infty}) \sqrt{D^* \phi \lambda} e^{\frac{z}{l}} \quad (17)$$

Die Beziehung für C_0 gilt unverändert. Aus (16) läßt sich der Volumenstrom v^* über die Messung der restlichen Parameter bestimmen. Eine weitere Methode zur Abschätzung von v^* ist der Vergleich der Aktivitäten $A_{0,Rn}$ und $A_{0,Th}$ von Radon und Thoron. Aufgrund der kurzen Halbwertszeit von Thoron wird dieses nur diffusiv transportiert, wie man in (13) leicht sieht. Radon wird jedoch diffusiv und advektiv transportiert (siehe auch FLEISCHER und MOGRO-CAMPERO, 1978). Unter Berücksichtigung unterschiedlicher Produktionsraten q^* erhält man aus (16) das Verhältnis der Aktivitäten A_0 zu

$$\frac{A_{0,Th}}{A_{0,Rn}} \approx \frac{q_{Th}^*}{q_{Rn}^*} \frac{\lambda_{Rn} l_{Rn}}{\lambda_{Th} l_{Th}} \quad (18)$$

und daraus

$$v^* = \left[\frac{\lambda_{Rn} A_{0,Rn} q_{Th}^*}{A_{0,Th} q_{Rn}^*} - \frac{\lambda_{Th} A_{0,Th} q_{Rn}^*}{A_{0,Rn} q_{Th}^*} \right] \sqrt{\frac{D^* \phi}{\lambda_{Th}}} \quad (19)$$

6.2.2 Atmosphärisches Pumpen

Wie CLEMENTS und WILKENING (1974) ausführen, gilt die Transportgleichung (10) auch dann, wenn äußere Einflüsse eine Fluidbewegung im Gestein induzieren. Dies geschieht im Falle von Schwankungen des atmosphärischen Drucks, die sich, wenn auch gedämpft, im Porenraum des Gesteins fortsetzen und zu lokalen Druckgradienten führen. Für die Variation des Luftdruckes p wird angenommen, daß sie klein gegenüber dem Mittelwert des Drucks p_0 ist. Das Eindringen der Druckschwankungen in das poröse Medium verhält sich dann gemäß einer Diffusionsgleichung:

$$\frac{\partial p}{\partial t} = \alpha \frac{\partial^2 p}{\partial z^2} \quad (20)$$

Die Größe $\alpha = \frac{k\phi_0}{\eta}$ heißt pneumatische Diffusivität. Darin ist die dynamische Permeabilität k der Quotient aus der statischen Permeabilität des Gesteins und der Viskosität η des Fluids. Der Volumenstrom v^* im porösen Medium wird durch das Darcy-Gesetz bestimmt:

$$v^* = -k \nabla p. \quad (21)$$

BATES und EDWARDS (1980) finden bei der numerischen Auswertung der Transportgleichung für periodische Druckschwankungen von $\pm 4\%$ asymmetrische Schwankungen im Radontransportstrom in der Größenordnung von einigen zehn Prozent. Der Ausstrom von Fluid aus dem Gesteinskörper wird bei negativer Druckhalbwellen stärker unterstützt als er bei positiver Druckhalbwellen gehemmt wird. SCHERY et al. (1982) bestätigen diesen theoretischen Befund durch Messungen in einer stillgelegten Silbermine bei Socorro, New Mexico. Demnach hängt die Stärke der Transportstromschwankungen auch von der Druckänderungsrate ab. Die gemessenen periodischen Transportströme sind jedoch mehr als doppelt so hoch wie die für das homogene Medium zu erwartenden theoretischen Werte. SCHERY et al. schließen daraus auf eine bedeutende Rolle von Klüften beim Fluidtransport. NILSON et al. (1991) behandeln Transport in einem vertikal geklüfteten porösen Medium in einem "double-porosity"-Modell. Ihr gekoppeltes Differentialgleichungssystem beschreibt die Ausbreitung einer Druckwelle in vertikaler Richtung entlang der Klüfte und im porösen Medium und in horizontaler Richtung von den Klüften in das Medium hinein. NILSON et al. zeigen auf diese Weise, daß der Transport durch Klüfte um Größenordnungen über dem im porösen Medium liegen kann. Für den Fall ungeklüfteten Gesteins und einer periodischen Druckrandbedingung $p(0, t) = p_0 + \Delta p e^{i\omega t}$ läßt sich Gleichung (20) lösen zu

$$p(z, t) = p_0 + \Delta p \exp\left(\sqrt{\frac{i\omega}{\alpha}} z\right) e^{i\omega t} \quad (22)$$

und daraus aus dem Darcy-Gesetz (21) der Volumenstrom v^* ableiten:

$$v^*(z, t) = -k \sqrt{\frac{i\omega}{\alpha}} \Delta p \exp\left(\sqrt{\frac{i\omega}{\alpha}} z\right) e^{i\omega t}. \quad (23)$$

Der Betrag des Volumenstromes an der freien Grenzfläche lautet (in Übereinstimmung mit SCHERY et al., 1982)

$$|v^*(z=0)| = -\Delta p \sqrt{\frac{k\phi_0}{p_0}} e^{i\omega t}. \quad (24)$$

6.2.3 Gezeitenpumpen

Auf der Basis der Biot'schen Gleichungen für Fließen in porösen Medien (BIOT, 1941) untersuchen MILLICH et al. (1995) einen von Gezeitendeformationen induzierten gerichteten Fluß. Der entsprechende Mechanismus beruht auf der Wirkung von Deformationen der porösen Gesteinsmatrix auf den Druck des im Porenraum eingeschlossenen Fluids. Bei zeitlich und räumlich variablen Deformationen stellt sich ein Fluß entlang von Druckgradienten gemäß dem Darcy-Gesetz (21) ein. Aus der Literatur ist bekannt (z.B. HUENGES, 1993), daß die Permeabilität von Gesteinen nicht konstant ist, sondern vom effektiven Druck $p_e = \frac{1}{3} \text{Spur}(\vec{\sigma}) - p$ abhängt. Hier ist $\vec{\sigma}$ die Spannung in der Gesteinsmatrix und p der Porendruck. YEUNG et al. geben eine Abhängigkeit der Form

$$k(p_e) = k_0 e^{-\alpha(p_e - p_{e0})} \quad (25)$$

an, wobei die angegebenen Parameter k_0 , α , und p_{e0} aus Messungen erschlossen werden müssen. Die Spannung $\vec{\sigma}$ läßt sich aus der Matrixdeformation \vec{u} und der Elastizitätsmatrix \mathbf{D} über das Elastizitätsgesetz $\vec{\sigma} = \mathbf{D} \cdot \vec{u}$ bestimmen. WALLNER und NEUGEBAUER (1991) bringen diesen Ansatz einer dynamischen Permeabilität zusammen mit den Biot'schen Gleichungen in die Form eines gekoppelten nichtlinearen Differentialgleichungssystems

$$\begin{aligned} \mathbf{L}^t \mathbf{D} \mathbf{L} \dot{\vec{u}} - \mathbf{L}^t \beta \vec{m} \dot{p} &= \vec{f} & \text{(Matrix)} \\ -\vec{\nabla}^t \mathbf{k} \vec{\nabla} p - \vec{m}^t \beta \mathbf{L} \dot{\vec{u}} - \kappa \dot{p} &= q & \text{(Fluid)} \end{aligned} \quad (26)$$

mit $\beta = \mathbf{1} - \frac{K_m \mathbf{D}}{3}$, $\kappa = \frac{1 - \phi}{K_m} + \frac{\phi}{K_{fl}} + \frac{\vec{m}^t \mathbf{D} \vec{m}}{9 K_m^2}$

mit den Variablen \vec{u} und p . \mathbf{L} ist der Dehnungsoperator, während der Einheitsvektor $\vec{m} = (1, 1, 0)$ zur Skalarmultiplikation und Spurbildung dient. Die dynamische Permeabilität ist hier als Tensor \mathbf{k} aufgefaßt, um Anisotropien der Matrix beschreiben zu können. β ist eine Kopplungsmatrix zur Berücksichtigung des Porendruckes p in der Matrixgleichung und der Deformationen \vec{u} in der Fluidgleichung. κ beschreibt die Kompressibilität des Matrix-Fluid-Systems in Abhängigkeit von der Porosität ϕ und den Einzelkompressibilitäten K_m und K_{fl} . q berücksichtigt Fluidquellen, während die äußere Kraft \vec{f} als periodische Gezeitenkraft (Variation der Vertikalkomponente der Erdbeschleunigung g) angenommen wird:

$$\vec{f}(t) = \vec{f}_0 \sin(\omega t) \quad (27)$$

Berücksichtigt man im Falle periodischer Kräfte die Druckabhängigkeit der dynamischen Permeabilität (25), so kann neben periodischen Fließbewegungen auch ein gerichteter Nettofluß entstehen, wenn die Permeabilität während zweier Gezeitenhalbwellen unterschiedlicher Polarität einen jeweils verschiedenen Wert annimmt. In Richtung der Gezeitenkraft während

der negativen Halbwelle wird dann infolge der Entlastung des Porenraums eine größere Permeabilität wirksam als in der Gegenrichtung, wodurch das "Gezeitenpumpen" erzeugt wird. MILLICH et al. (1995) zeigen, daß die Größenordnung und Richtung des Flusses in starkem Maße von räumlichen Permeabilitätsinhomogenitäten und Anisotropien abhängt, wie sie in der Natur durch Klüfte o.ä. repräsentiert sind. Außerdem bestimmt die Art der Druckabhängigkeit der dynamischen Permeabilität, d.h. die Größe des Parameters α in (25) das Verhältnis von gerichtetem und periodischem Fluß. Das System (27) ist nur in beschränktem Maße analytischen Lösungsmethoden zugänglich, so daß ich an dieser Stelle auf eine konkrete Transportmodellierung in Abschnitt 6.2.5 verweise.

6.2.4 Messung der Transportparameter

Theoretische Vorstellungen über physikalische Vorgänge lassen sich mit entsprechenden Meßwerten durch die Auswertung eines Modells in Einklang bringen. In den Abschnitten 6.2.1 bis 6.2.3 habe ich die drei Bestandteile eines solchen Transportmodells für Radon beschrieben. Grundlage einer quantitativen Modellierung sind die Differentialgleichungen des Transports, in die verschiedene Eigenschaften des Gesteins eingehen. Deshalb wurden folgende Parameter des in der Gipsmine von Walferdange anstehenden Gesteins einer Labormessung unterzogen: Dichte ρ , Porosität ϕ , Diffusionskonstante D^* , Permeabilität k und Radon- und Thoronquellstärken q_{Rn}^* und q_{Tn}^* .

Die Matrixdichte und Porosität wurde mit Hilfe von Quecksilber-Pyknometern bestimmt. Aus den Partialdichten der Hauptbestandteile Gips ($\rho_{Gips} = 2.35 \frac{g}{cm^3}$) und Ton ($\rho_{Ton} = 2.73 \frac{g}{cm^3}$) kann außerdem der Tongehalt der Proben bestimmt werden.

Die Diffusionskonstanten des trockenen und wassergesättigten Gesteins wurde mit der Methode der elektrostatischen Abscheidung (vgl. Kapitel 3) gemessen. Dabei wird eine Probenplatte zwischen zwei Halbkugeln eingebracht, wobei die eine Luft sehr hoher Radonkonzentration enthält. Die Gleichgewichtskonzentration von Radon im Halbraum auf der gegenüberliegenden Probenseite ist ein Maß für die effektive Diffusionskonstante des porösen Mediums (siehe dazu KELLER et al., 1982 und FOLKERTS et al., 1986).

Die statische Permeabilität kann sowohl hinsichtlich ihrer Größe als auch ihrer Druckabhängigkeit gemessen werden. Dazu verwenden SIEGSMUND et al. (1993) eine dynamische Drucktransientenmethode. Auf einer Stirnseite einer zylindrischen Probe wird ein konstanter Vordruck eingestellt, während in einem Meßvolumen auf der gegenüberliegenden Seite der zeitliche Verlauf des Druckanstiegs infolge der Entspannung des Vordrucks durch die permeable Probe registriert wird. Dabei kann zusätzlich ein variabler Manteldruck auf den Zylinder ausgeübt werden.

Sowohl Diffusionskonstante als auch Permeabilität wurden für zwei senkrecht aufeinanderstehende Richtungen gemessen, da das vorliegende Gestein aufgrund der Lagerungsverhältnisse eine starke Anisotropie aufweist.

Die Quellstärke von Radon habe ich bestimmt, indem ich eine Schüttung unterschiedlicher Bruchstückgröße des Stollenmaterials für etwa vier Wochen in ein abgeschlossenes Volumen eingebracht und anschließend die Aktivität der Volumenluft mit dem automatischen Radonsensor gemessen habe. Bei der Berechnung der spezifischen Quellstärke muß die Verdünnung beim Übergang vom Porenraum zum abgeschlossenen Volumen berücksichtigt werden. Die dabei gemessenen Werte wurden durch Parallelmessungen mit der elektrostatischen Abscheidung und durch Abschätzungen aus der gemessenen Exhalationsrate von $10^{-4} \frac{\text{Bq}}{\text{m}^2 \text{s}}$ bestätigt. Die einzelnen Messungen ergaben folgende Ergebnisse:

Tab. 3: Materialparameter

ρ	ϕ	D_{\parallel}^*	D_{\perp}^*	k_{\parallel}	k_{\perp}	q_{Rn}^*	q_{Tn}^*
$2.48 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$	11.3 %	$5 \cdot 10^{-8} \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$	$2 \cdot 10^{-9} \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$	$2 \cdot 10^{-13} \text{m}^2$	$2 \cdot 10^{-15} \text{m}^2$	$7 \frac{\text{Bq}}{\text{l}}$	$7 \frac{\text{Bq}}{\text{l}}$

Als Anhaltspunkt für die Thoronquellstärken habe ich Ergebnisse von gammaspektroskopischen Vermessungen des Gesteins herangezogen. Die spezifische Gesamtaktivität beläuft sich für Radon und Thoron auf etwa $30 \frac{\text{Bq}}{\text{l}}$. Vermindert man diesen Wert um die gemessene Quellstärke von Radon (siehe Tabelle 3), so ergibt sich ein Wert von $23 \frac{\text{Bq}}{\text{l}}$ für den Stoffanteil, der nicht im Porenraum verfügbar, sondern in Kristallen gebunden ist. Ich nehme im folgenden vereinfachend an, daß die beiden Radium-Mutterisotope von Radon und Thoron die gleiche räumliche Verteilung im Gestein aufweisen und deshalb die Quellstärke von Thoron gleich der von Radon ist.

Die Konzentration von Thoron in der Stollenluft ist aufgrund dessen sehr geringen charakteristischen Transportlänge räumlich sehr inhomogen und im Durchschnitt kleiner als $1 \frac{\text{Bq}}{\text{m}^3}$, also mit dem automatischen Radonsensor nicht mehr meßbar. Unter der Annahme, daß Thoron zumindest in dem gegenüber der Stollenluft abgedichteten Bohrloch ($R \approx 1 \text{cm}$) homogen verdünnt wird, ergibt sich aus (17) für die dortige Aktivitätskonzentration $A_{0,\text{Tn}}$ ein Wert von $0.6 \frac{\text{Bq}}{\text{l}}$, der etwa der gemessenen Aktivität nahekommt.

Die Angaben zur Diffusionskonstanten beziehen sich auf das trockene poröse Medium und sind absolute Obergrenzen der tatsächlichen Diffusionskonstanten. Die Indices "||" und "⊥" beziehen sich auf Meßwerte bezüglich der Richtung parallel zur Gesteinsklüftung (horizontale Ebene) und senkrecht dazu (im Stollen von oben nach unten). Die Werte für das gesättigte Medium sind um einen Faktor 10^4 niedriger als die des trockenen Mediums. Dieser Faktor entspricht etwa dem Verhältnis der Diffusionskonstanten für die kontinuierlichen Medien Luft ($D_{\text{air}} \approx 10^{-5} \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$) und Wasser ($D_{\text{H}_2\text{O}} \approx 10^{-9} \frac{\text{m}^2}{\text{s}}$) (TANNER, 1964).

Der Verlauf der Druckabhängigkeit der statischen Permeabilität parallel zur Gesteinsklüftung

ergibt sich aus Abbildung 14.

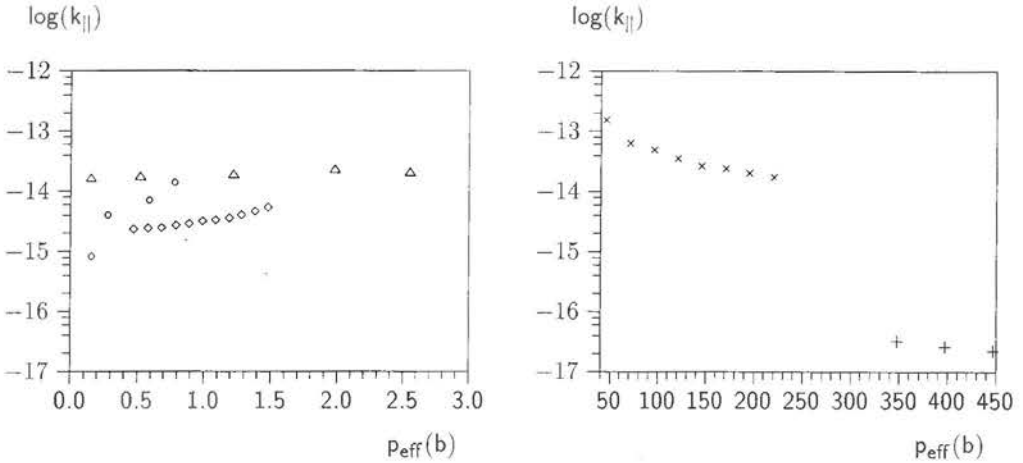


Abb. 14: Meßwerte der Permeabilität für verschiedene Druckbereiche

In den mit verschiedenen Symbolen gekennzeichneten Meßreihen wurden jeweils der Vor- oder Manteldruck auf die Gesteinsprobe als Parameter festgesetzt. Die Symbole kennzeichnen folgende Parameter: Δ : $p_{\text{Vor}} = 0.2 b$, \circ : $p_{\text{Mantel}} = 1 b$, \diamond : $p_{\text{Mantel}} = 2 b$, \times : $p_{\text{Vor}} = 4.5 b$, $+$: $p_{\text{Vor}} = 52 b$. Bei hohen Drücken zeigt die Permeabilität die bekannte negative Abhängigkeit vom effektiven Druck. Dieses Verhalten kehrt sich bei kleinen Drücken um: Hier steigt die Permeabilität mit dem effektiven Druck. Außerdem steigen in beiden Druckbereichen die Werte aus unterschiedlichen Meßreihen zu niedrigen Vordrücken hin an.

Im Falle der Gipsschicht im Sonneberg liegen die zu erwartenden lithostatischen Drücke aufgrund der 100 m mächtigen Deckschicht bei etwa 25 b, so daß für eine Modellierung von Gezeiteffekten die Meßpunkte "x" herangezogen werden müssen. Eine least-square-Anpassung der Werte an eine Funktion der Form (25) ergibt $k_0 = 1.376 \cdot 10^{-13} \text{ m}^2$, $p_{e0} = 45.45 b$ und $\alpha = 2.13 \cdot 10^{-2} b^{-1}$. Durch Extrapolation dieser Funktion auf $p_e = p_{\text{litho}} \approx 25 b$ habe ich auch die Permeabilitätswerte in Tabelle 3 berechnet.

6.2.5 Transportmodellierung

Im folgenden werden die in den Abschnitten 6.2.1 bis 6.2.3 behandelten Phänomene in ein Transportmodell integriert. Das Modell beschreibt die Transportraten von Radon in einem radioaktiven porösen Medium und orientiert sich an der geologischen und topographischen Situation des Sonnebergs bei Walferdange. Abbildung 15 zeigt einen Querschnitt durch den Berg in NO-SW-Richtung und Lage und Mächtigkeit aller stratigraphischen Einheiten.

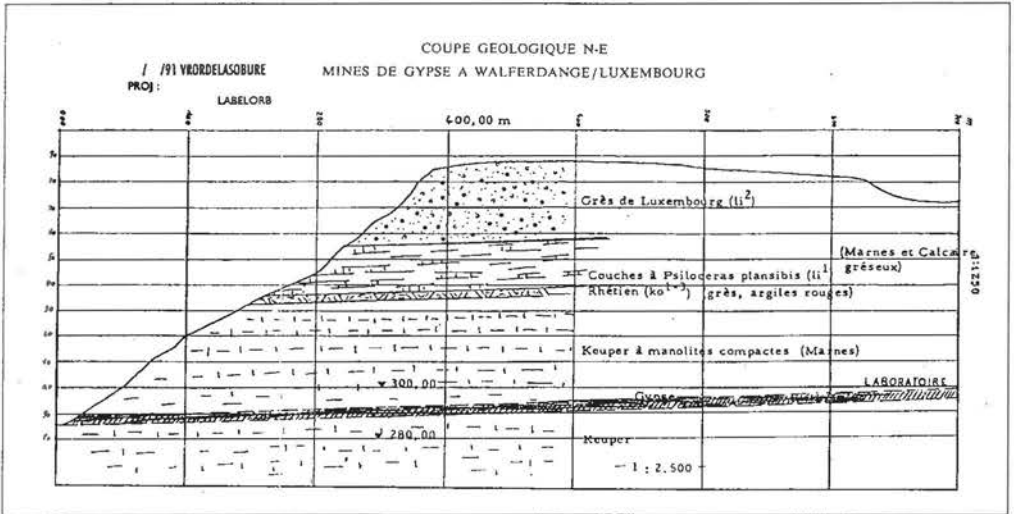


Abb. 15: Geologischer Schnitt durch den Sonneberg bei Walferdange

Die Modellierung geschieht auf zwei Ebenen. Den zeitlichen und räumlichen Verlauf der Radonkonzentration im Gestein habe ich anhand eines eindimensionalen expliziten Finite-Differenzen-Verfahren für die Transportgleichung (10) bestimmt. Dabei gehen neben den Materialparametern aus Tabelle 3 ein durch atmosphärisches Pumpen erzeugter Volumenstrom v_a^* nach Gleichung (23) in die Differentialgleichung ein.

Die durch Gezeiteneinwirkung zu erwartende Änderung der Diffusivität des Gesteins ist gering, da die Änderungen der Porenraumgeometrie in der Größenordnung des volumetrischen Strains liegen. Die entsprechende spektrale Komponente im Radonsignal muß also auf einem advektiven Transport mit einem Fluid beruhen. Ein durch Gezeiten induzierter Volumenstrom v_g^* wurde von MILICH (1995) mit Hilfe eines zweidimensionalen Finite-Element-Verfahrens (siehe dazu WALLNER und NEUGEBAUER, 1991) berechnet und die Ergebnisse anschließend in das Differenzenverfahren des Radontransports eingegeben.

Radontransport

In dem Finite-Differenzen-Verfahren wird die Transportgleichung (10)

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{1}{\phi} \frac{\partial}{\partial z} \left(D^* \frac{\partial C}{\partial z} \right) - \frac{1}{\phi} \frac{\partial (v^* C)}{\partial z} - \lambda C + \frac{q^*}{\phi} \quad (28)$$

auf einem eindimensionalen Gitter

$$z(0) = -5 \text{ m} , \quad z(i) = z(i-1) + 10^{-4} \cdot 1.11^{(40-i)} , \quad 1 \leq i \leq 39 , \quad z(40) = 0 \quad (29)$$

mit 40 Stützstellen diskretisiert. Dabei liegt der Ursprung der z-Achse in der Grenzfläche Gestein/Luft und die Koordinaten werden in Richtung des Stollenzentrums positiv gezählt. Die Fluidbewegung findet hier also stets senkrecht zur Stollenoberfläche statt. Die eindimensionale Betrachtungsweise ist gerechtfertigt, da das Problem eine Zylindergeometrie aufweist. Wie BIGU (1994) zeigt, kann von einer Behandlung des Problems in Zylinderkoordinaten abgesehen werden, falls $\frac{R}{l} \gg 1$. Im vorliegenden Fall ist $\frac{R}{l} \approx \frac{1 \text{ m}}{0.1 \text{ m}} = 10$, so daß nach BIGU bei der Verwendung der ebenen Geometrie mit einem Fehler von etwa 5 % zu rechnen ist.

Das poröse Medium wird angenommen als homogen in der Koordinatenrichtung. Bei der Quantifizierung der Materialparameter wird also vorausgesetzt, daß sich Inhomogenitäten des Gestein wie Klüfte auf einer Skala ausprägen, die klein gegenüber den Dimensionen der Materialproben und der Meßstelle sind.

Die geologische Situation im Sonneberg und die hohe Luftfeuchte in der Gipsmine lassen darauf schließen, daß der Porenraum des Gipskeupers im Innern des Berges wassergesättigt ist und die Sättigung zum Stollen hin abnimmt. Deshalb wird das Gestein bezüglich seiner Diffusivität als parallel zur Stollenoberfläche geschichtet betrachtet. Die Diffusionskonstanten D_{wet}^* und D_{sat}^* des feuchten, bzw. gesättigten Mediums habe ich abgeschätzt durch (siehe TANNER, 1978 und NILSON et al., 1991)

$$D_{wet}^* \approx D_{air} \left(\frac{\phi_{wet}}{\phi_{dry}} \right)^4 , \quad D_{sat}^* \approx D_{H_2O} \cdot \tau = D_{dry}^* \frac{D_{H_2O}}{D_{air}} , \quad (30)$$

wobei D_{dry}^* die im trockenen Zustand am Gestein gemessene Diffusionskonstante bedeutet (siehe Tabelle 3). $\frac{\phi_{wet}}{\phi_{dry}}$ entspricht dem luftgefüllten Anteil des Porenraums im partiell gesättigten Zustand. τ heißt "tortuosity" des porösen Mediums und ist ein Maß für die bei der Überwindung einer bestimmten Distanz effektiv zurückzulegende Strecke im verwundenen Porenraum. τ nehme ich für das trockene und gesättigte Medium als gleich an. Im vorliegenden Modell betrachte ich drei Schichten mit

$$D_{||}^*(z) = \begin{cases} 10^{-12} \frac{\text{m}^2}{\text{s}} , & -5 \text{ m} \leq z < -0.5 \text{ m} & \text{(gesättigt)} , \quad l = 2 \text{ m} , \quad v_d = 5 \cdot 10^{-10} \frac{\text{m}}{\text{s}} \\ 10^{-10} \frac{\text{m}^2}{\text{s}} , & -0.5 \text{ m} \leq z < -0.1 \text{ m} & \frac{\phi_{wet}}{\phi_{dry}} \approx \frac{1}{5} , \quad l = 2 \text{ cm} , \quad v_d = 5 \cdot 10^{-9} \frac{\text{m}}{\text{s}} \\ 10^{-8} \frac{\text{m}^2}{\text{s}} , & -0.1 \text{ m} \leq z < 0 & \frac{\phi_{wet}}{\phi_{dry}} \approx \frac{2}{3} , \quad l = 20 \text{ cm} , \quad v_d = 5 \cdot 10^{-8} \frac{\text{m}}{\text{s}} \end{cases} \quad (31)$$

in Richtung der Gesteinsklüftung und

$$D_1^*(z) = \begin{cases} 10^{-13} \frac{m^2}{s}, & -5 m \leq z < -1 m \\ 10^{-11} \frac{m^2}{s}, & -1 m \leq z < -0.2 m \\ 10^{-9} \frac{m^2}{s}, & -0.2 m \leq z < 0 \end{cases} \quad \begin{array}{l} \text{(gesättigt)}, l = 0.65 \text{ mm}, v_d = 1.5 \cdot 10^{-10} \frac{m}{s} \\ \frac{\phi_{wert}}{\phi_{dry}} \approx \frac{1}{5}, l = 6.5 \text{ mm}, v_d = 1.5 \cdot 10^{-9} \frac{m}{s} \\ \frac{\phi_{wert}}{\phi_{dry}} \approx \frac{2}{3}, l = 6.5 \text{ cm}, v_d = 1.5 \cdot 10^{-8} \frac{m}{s} \end{array} \quad (32)$$

senkrecht dazu. Die beiden Szenarien entsprechen zwei verschiedenen Meßreihen in Bohrlöchern in der Stollenwand und im Stollenboden. Aufgrund der Gravitation ist zu erwarten, daß der partiell gesättigte Bereich von der Stollendecke über die Wände bis zum Boden zunehmen sollte (vgl. Abbildung 23). Deshalb habe ich die Bereiche mit hohem D^* im Falle der Messungen im Stollenboden um einen Faktor 2 vergrößert. Die zusätzlich angegebenen Werte beschreiben die Sättigung des Porenraumes, die Diffusionslänge l aus (17) und die Diffusionsgeschwindigkeit $v_d = \frac{D^*}{l}$. Die Viskositäten sind $\eta_{air} = 1.75 \cdot 10^{-5} \frac{kg}{m \cdot s}$ und $\eta_{H_2O} = 10^{-3} \frac{kg}{m \cdot s}$.

Die Ränder des Rechengebietes $[-5 m; 0]$ werden mit Hilfe der Gleichungen (11) und (15) definiert, als Anfangswerte nehme ich den stationären Konzentrationsverlauf im rein diffusiven Gleichgewicht aus (12).

Da die Thoronkonzentration im Stollen sehr inhomogen verteilt und außerdem sehr gering ist, läßt sich Gleichung (19) zur Berechnung des konstanten Stromes nicht mehr anwenden. Die Existenz eines konstanten advektiven Anteils zusätzlich zur Diffusion muß vielmehr mit Hilfe von (16) aus der in der Stollenluft gemessenen Aktivität belegt werden.

Die Parameter α und ω der einbezogenen Volumenstromgleichung (23) für das atmosphärische Pumpen ergeben sich mit $p_0 = 10^5 \text{ Pa}$, bzw. aus (8) für drei starke Partialwellen des Druckspektrums mit

$$\Delta p = \begin{cases} 500 \text{ Pa}, & T = 12 \text{ h} \\ 4000 \text{ Pa}, & T = 50 \text{ h} \\ 6000 \text{ Pa}, & T = 84 \text{ h} \end{cases} \quad (33)$$

Dabei verringere ich die Permeabilität k für das Medium Luft um einen Faktor 100, um der partiellen Sättigung des Porenraumes mit Wasser Rechnung zu tragen. Die Eindringtiefen $\sqrt{\frac{\alpha}{i\omega}}$ liegen dann in der Größenordnung von einem halben Meter und passen somit zur Abstufung der Diffusionskonstanten in (31) und (32). Die Anteile unterschiedlicher Perioden betrachte ich als unabhängig voneinander, so daß der Gesamtstrom in Analogie zu einer Fouriersumme als Überlagerung dreier Partialströme (23) dargestellt werden kann.

Volumenstrom durch Gezeitenpumpen

Der in Abbildung 15 dargestellte Schnitt durch den Sonneberg sei durch das Gitter in Abbildung 16 (10fach überhöht in vertikaler Richtung) repräsentiert. Dabei werden nur die Gipschicht und der darüberliegende 50 m mächtige Steinmergelkeuper berücksichtigt.

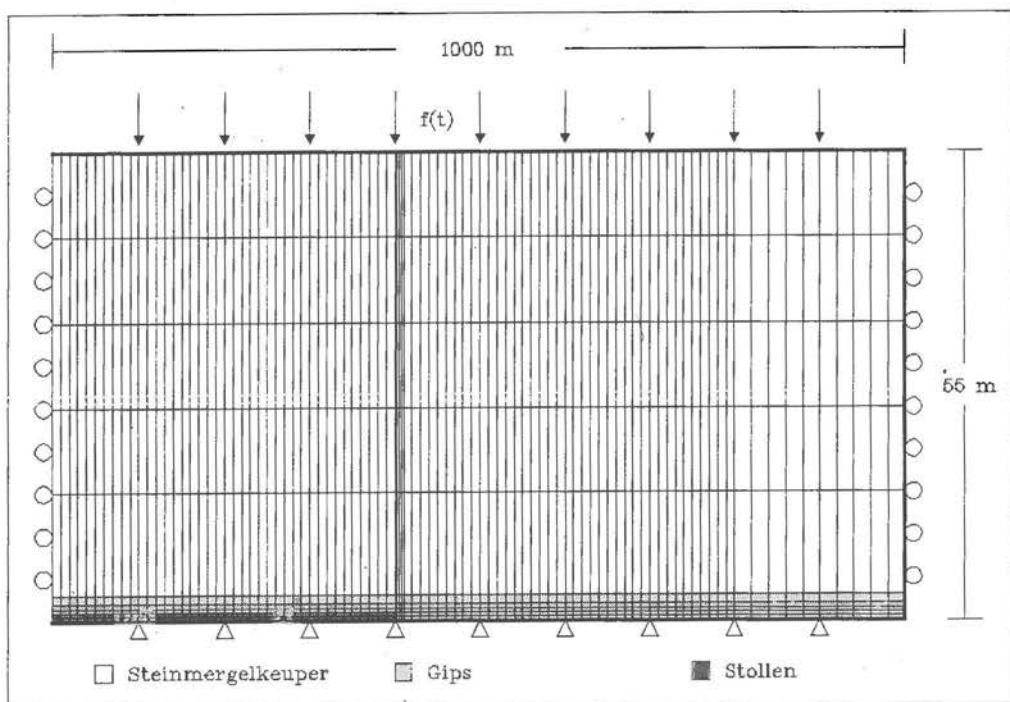


Abb. 16: Rechengitter des Finite-Element-Modells (10fach überhöht)

Das Rechengebiet endet mit dem Kontakt des Steinmergelkeupers zu den Schichten des Rhät am oberen Rand und in der Höhe des Stollenzentrums am unteren Rand. Der linke Rand entspricht dem Südosthang und wird daher als durchlässig für Fluide angenommen. Der obere Rand sei undurchlässig (starke Linie), weil die Tone des Rhät relativ niedrigerpermeabel sind. Der rechte und untere Rand können ebenfalls als undurchlässig angesehen werden, da sie keine echte Grenzschicht darstellen, sondern das Rechengebiet sich über diese Ränder symmetrisch fortsetzt. Die viereckigen Elemente des Rechengebietes gehören zu drei Materialgruppen (durch unterschiedlichen Grauton gekennzeichnet): Steinmergelkeuper, Gips und Stollenluft. Tabelle 4 zählt die Parameter der ersten beiden Gruppen auf (vgl. auch HO, 1989).

Tab. 4: Materialgruppen

Bezeichnung	k_{\parallel}	k_{\perp}	ϕ	E	ν	κ_{Korn}	κ_{Fluid}
Steinmergelkeuper	10^{-13} m^2	10^{-13} m^2	1%	10^{10} GPa	0.25	10^{-11} Pa^{-1}	$4.6 \cdot 10^{-10} \text{ Pa}^{-1}$
Gips	10^{-12} m^2	10^{-14} m^2	10%	10^{10} GPa	0.1	10^{-11} Pa^{-1}	$4.6 \cdot 10^{-10} \text{ Pa}^{-1}$

E und ν bezeichnen das Elastizitätsmodul und die Querkontraktionszahl des Gesteins und κ Kompressibilitäten. Die Permeabilitätswerte wurden um einen Faktor 5 höher veranschlagt, um der Skalentransformation von den Labormessungen ($\approx \text{cm}$) auf Feldmessungen ($\approx \text{m}$) Rechnung zu tragen (siehe dazu CLAUSER, 1992). Bei der Vorgabe der äußeren Kräfte (27) wurden die Parameter so eingestellt, daß sich Dehnungen um $1.5 \cdot 10^{-8}$ ergeben. Dieser Wert ist etwas geringer als die Summe der in Walferdange gemessenen Dehnungen für halbtägige Partialwellen. Die Periode wurde zu 12 Stunden gewählt.

Für die genannten Parameter ergibt sich folgendes Feld des periodischen Volumenstromes (siehe Abbildung 17):

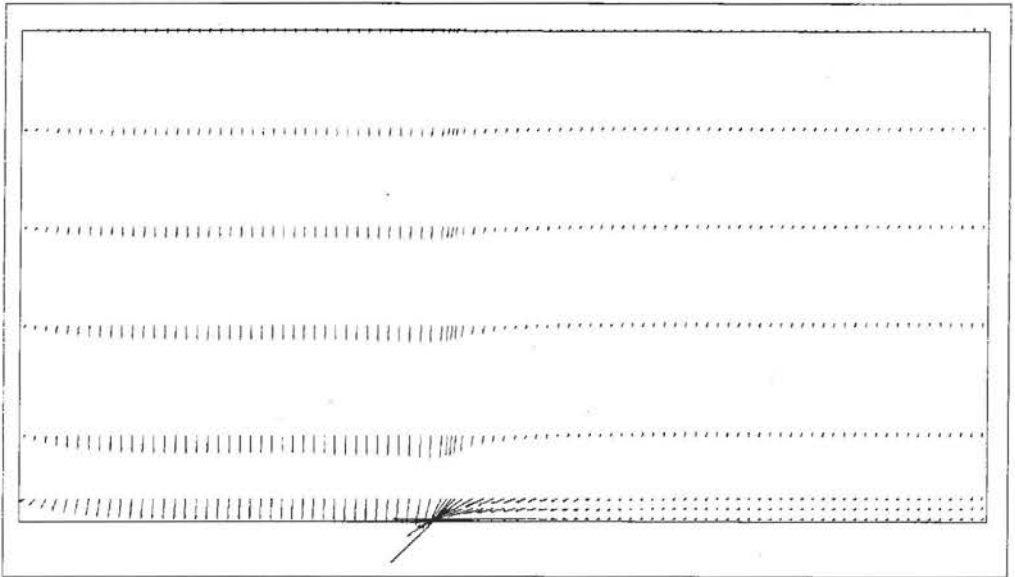


Abb. 17: Periodisches Fließfeld im Rechengebiet (10fach überhöht)

Man sieht deutlich, wie der Fluidstrom aus dem relativ schlecht permeablen Steinmergelkeuper auf die Gipsschicht fokussiert wird. Dabei kommt es dort aufgrund der Anisotropie der Permeabilität insbesondere in der Nähe der Stollenwand zu hohen Volumenströmen in horizontaler Richtung. Dies gilt auch für seitliche Einströmung in den Stollen, da die Gipsschicht senkrecht zur Schnittebene des Gitters fortgesetzt gedacht werden muß. Es besteht also eine Drehsymmetrie der Modellgeometrie bezüglich einer Achse durch den linken Gebietsrand.

Der Volumenstrom durch die Stollendecke, (und wegen der vertikalen Spiegelsymmetrie des Modells auch durch den Stollenboden) ist etwa zehnmal niedriger. Abbildung 18 zeigt die Abhängigkeit des periodischen Volumenstroms von der horizontalen Koordinate ("x"). Dabei hat die linke untere Ecke des Rechengebiets die Koordinate (0,0). Die Vertikalkomponente des Stroms v_y^* (gestrichelt) wurde für $y=1.25$ m, also knapp oberhalb des Stollens berechnet, während die Horizontalkomponente v_x^* (durchgezogen) für $y=0.75$ m (Meßhöhe im Stollen) bestimmt ist.

$$v_x^*(x, y = 1.25 \text{ m}) , \quad v_y^*(x, y = 0.75 \text{ m}) \quad (10^{-9} \frac{\text{m}^3}{\text{m}^2 \text{s}})$$

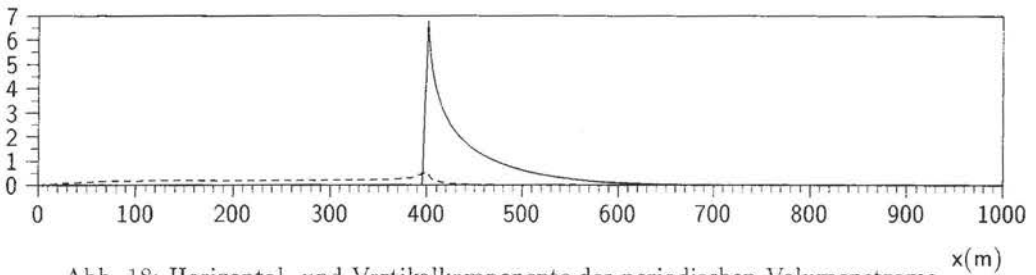


Abb. 18: Horizontal- und Vertikalkomponente des periodischen Volumenstroms

Man sieht zunächst, daß aufgrund der Anisotropie der Gipsschicht der vertikale Volumenstrom um eine Größenordnung geringer ist als der horizontale Strom. Im linken Teil des Rechengebietes ist der Vertikalstrom größer, da dort ein relativ hoher Fluß durch den linken Rand des Stollens nach außen tritt und Gas von oben nachströmt. Der Einflußbereich des Stollens auf den Horizontalstrom beträgt etwa 100 m. Im Innern des Berges (rechter Rand) sind die Verhältnisse weitestgehend ungestört von den strukturellen Elementen des linken Teils.

Analoge Rechnungen mit druckabhängiger Permeabilität gemäß (25) wurden auf einem zweiten Gitter ähnlich dem in Abbildung 16 durchgeführt. Der betrachtete Querschnitt liegt hier in Richtung NW-SO senkrecht zur Stollenachse. Die Gitterlänge beträgt daher nur noch 300 m, wobei die Materialgruppe "Stollen" bis $x=1$ m reicht. Berücksichtigt man die rampenförmige Auflast der unterschiedlich mächtigen Bedeckung der Gipsschicht, so erhält man den für das Gezeitenpumpen notwendigen Permeabilitätskontrast in horizontaler Richtung (vgl. MILLICH und NEUGEBAUER, 1994). Die Auflast sinke linear von 25 b oberhalb des Stollens bis auf 0 am Gebietsrand (Südwesthang des Sonnebiergs). Daraus resultiert aufgrund der Abhängigkeit vom effektiven Druck eine Permeabilitätsvariation von etwa 50%. Der induzierte gerichtete Nettostrom fließt dann von Bereichen hoher Permeabilität in solche mit niedriger Permeabilität, d.h. vom Berghang zum Zentrum. Das Reservoir für den Fluß in das Stollenvolumen bildet im Modell also die freie Atmosphäre am Ausstrich der Gipsschicht. Die numerische Modellierung ergibt einen gerichteten Horizontalstrom in der Gipsschicht von etwa $5 \cdot 10^{-10} \frac{\text{m}^3}{\text{m}^2 \text{s}}$. Im Radon-Transportmodell setze ich deshalb für den durch Gezeiten induzierten Volumenstrom $v_g^* = 10^{-9} \frac{\text{m}^3}{\text{m}^2 \text{s}} + 10^{-8} \frac{\text{m}^3}{\text{m}^2 \text{s}} \cdot \sin(\omega t)$ an.

Ergebnisse der Transportmodellierung

Im folgenden erläutere ich die drei Transportphänomene aus den Abschnitten 6.2.1 bis 6.2.3 getrennt anhand des Radon-Transportmodells (10).

Abbildung 19 zeigt den stationären Aktivitätsverlauf bei reiner Diffusion gemäß (31) (durchgezogen) sowie (32) (gestrichelt). Die senkrechten Linien trennen für jeden Fall die Bereiche verschiedener Diffusionskonstanten.

$$A_{||}(z), A_{\perp}(z) \left(\frac{\text{Bq}}{\text{l}} \right)$$

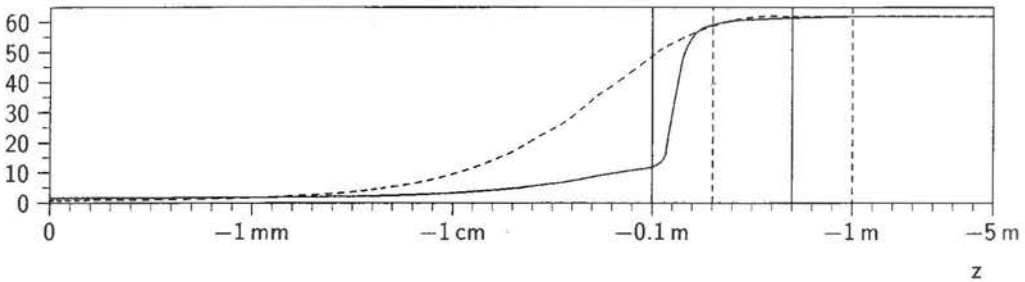


Abb. 19: Aktivitätsprofil im stollennahen Gestein infolge reiner Diffusion

Im Vergleich der Aktivitätsprofile mit den Werten der Diffusionslängen aus (31) und (32) wird der Diffusionsprozeß klar. Bis zu einer Tiefe von 0.1 m ist die Aktivität in Klüftungsrichtung sehr gering, da in diesem Fall die Diffusionslänge größer ist als der Tiefenbereich. Der Übergang zu $A_{\infty} = 61.9 \frac{\text{Bq}}{\text{l}}$ geschieht hier abrupt im Bereich $-0.1 \text{ m} < z < -0.5 \text{ m}$ mit einer charakteristischen Länge von 2 cm. Senkrecht zur Klüftung liegt die Diffusionslänge mit 6.5 cm unterhalb des Tiefenbereichs, so daß sich die Aktivität schon bis $z = -20 \text{ cm}$ fast auf A_{∞} einstellt. Dahinter ändert sich die Aktivität kaum noch.

Während der Messungen in der Stollenwand und im Stollenboden wurde den Bohrlöchern jeweils stündlich eine Gasmenge von 150 ml entnommen. Für Bohrlochabmessungen in Zentimeterbereich läßt sich leicht abschätzen, daß diese Gasmenge aus dem Porenraum bis zu einigen Millimetern Tiefe stammt. Bei den folgenden Erläuterungen betrachte ich deshalb stets diesen Tiefenbereich.

Die stationären Aktivitätswerte infolge reiner Diffusion betragen in Richtung der Klüftung $2.1 \frac{\text{Bq}}{\text{l}}$ und etwa $5.5 \frac{\text{Bq}}{\text{l}}$ senkrecht dazu. Diese Werte werden durch die gemessenen Werte von etwa $2.5 \frac{\text{Bq}}{\text{l}}$ und $4.5 \frac{\text{Bq}}{\text{l}}$ bestätigt, so daß ich für die Untersuchung der Pumpeffekte die angenommene Zonierung der Diffusionskonstanten beibehalte.

Die Abbildungen 20 bis 22 zeigen den zeitlichen Verlauf der Radonaktivität unter der Annahme von Volumenströmen $v_p^*(z, t)$ und $v_g^*(t)$ infolge von atmosphärischem und Gezeitenpumpen mit

$$v_p^*(z, t) = \sum_{i=1}^3 -k \sqrt{\frac{i\omega_i}{\alpha}} \Delta p_i \exp\left(\sqrt{\frac{i\omega_i}{\alpha}} z\right) e^{i\omega_i t} \quad (34)$$

mit ω_i und Δp_i gemäß (33). Bezüglich des Gezeitenpumpens berücksichtige ich die Partialwellen M2 und S1/K1/P1 mit Perioden von 12.4, bzw. 24.0 Stunden:

$$v_g^*(t) = v_{M2}^* \left[\frac{1}{10} + \sin\left(\frac{2\pi t}{12.4 \text{ h}}\right) \right] + v_{S1/K1/P1}^* \left[\frac{1}{10} + \sin\left(\frac{2\pi t}{24.0 \text{ h}}\right) \right] \quad (35)$$

mit $v_{M2}^* = v_{S1/K1/P1}^* = 10^{-8} \frac{\text{m}^3}{\text{m}^2 \text{ s}}$. Da der Bereich hohen v_g^* (siehe Abbildung 17) viel größer ist als 5 m, nehme ich v_g^* als räumlich konstant auf $[-5 \text{ m}; 0]$ an.

Abbildung 22 zeigt den Effekt der Summe beider Pumpphänomene. Der Anfangswert ist in allen Fällen die rein diffusive stationäre Aktivität bei $z=0$.

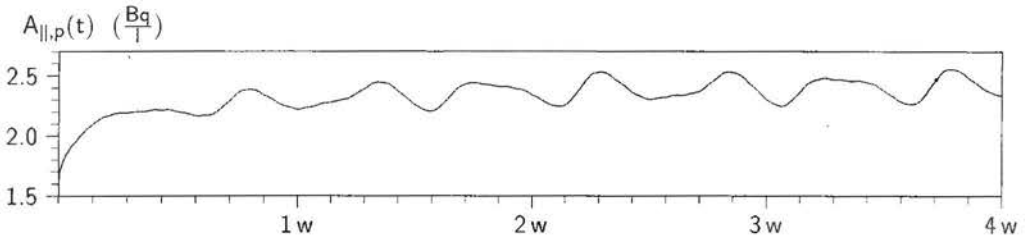


Abb. 20: Aktivitätsverlauf im stollennahen Gestein infolge atmosphärischen Pumpens t

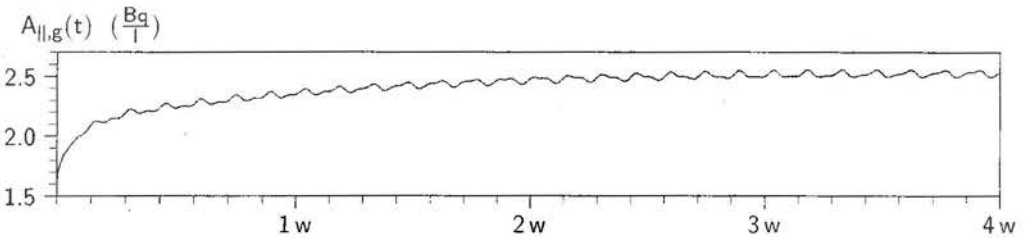


Abb. 21: Aktivitätsverlauf im stollennahen Gestein infolge Gezeitenpumpens t

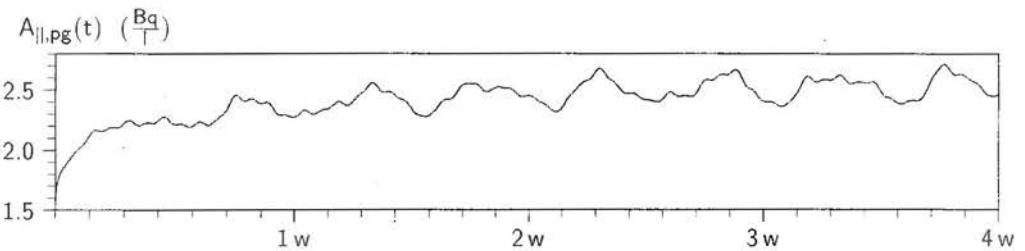


Abb. 22: Aktivitätsverlauf im stollennahen Gestein, Gesamteffekt t

Die Aktivitätskurven entsprechen in ihrer Größenordnung sowohl hinsichtlich des konstanten Anteils als auch der Amplituden den gemessenen Kurven in Abbildung 10. Zur Erklärung des Aktivitätsniveaus braucht neben der Diffusion kein weiterer konstanter Fluß herangezogen werden. Es muß jedoch beachtet werden, daß die Modellergebnisse stark davon abhängen, welche Zonierung der Diffusionskonstanten angenommen wird und in welcher Tiefe die Aktivität betrachtet wird.

Aus den beschriebenen Ergebnissen läßt sich abschließend folgende Interpretation der physikalischen Situation am Meßort ableiten (siehe dazu Abbildung 23):

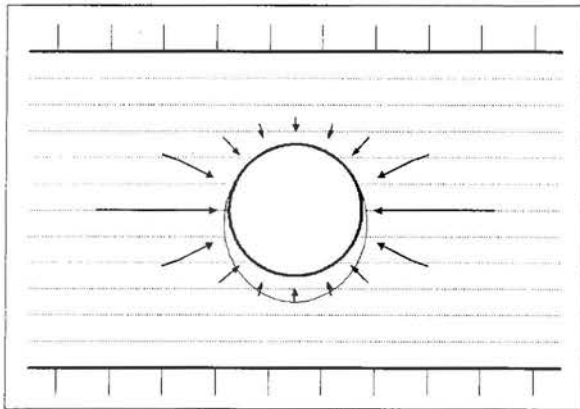


Abb. 23: Schematischer Querschnitt durch den Stollen

Unterschiedlich hohe diffusive Aktivitätsniveaus in der Wand und im Boden des Stollens lassen sich durch einen (wie in Abbildung 23 dargestellten) exzentrischen teilweise gesättigten Kluftbereich begründen. Die Form der Sättigungsgrenze entsteht im Zusammenwirken von Verdunstung in das Stollenvolumen und gravitativem Fließen von Porenwasser.

In der Gipschicht ist der Volumenstrom in der Klüftungsebene aufgrund der Anisotropie der Permeabilität etwa zehnmals größer als der senkrecht zur Klüftung. In einem Bereich von einem Meter oberhalb der Stollendecke und unterhalb des Stollenbodens wird der Fluß zum Teil in Richtung des Stollens abgelenkt, da ein radialer Druckgradient in Richtung des Stollenzentrums existiert. Im Bereich von einigen Zentimetern Tiefe existiert also stets ein Radialfluß. Die unterschiedlich starke Ausprägung dieses Radialflusses erklärt somit, warum in Klüftungsrichtung ein Gezeiteneinfluß meßbar ist, jedoch nicht senkrecht dazu.

Literaturverzeichnis

- Abduvaliyev, A.K., V.K.Andreyev, G.I.Voytov und N.K.Sergeyev, 1985 : Time Pattern of Radon Content in the Subsoil in the Seismically Active Zones of Western Fergana before the Earthquake of 18 October, 1980 and the Nazarbek Earthquake of 11 December, 1980. Engl.Translation from *Proceedings of the Academy of Science of the USSR (Доклады Академии Наук СССР)*, Earth Science Section 271, 1-3. Ottawa.
- Alter, H.W. und P.B.Price, 1972 : U.S.Patent No.3, 665, 194, issued 1972. Track Etch owned and supplied by Terradex Corp., Walnut Creek, Ca.
- Analog Devices, 1990 : Linear Products Databook. Norwood, Ma.
- Analog Devices, 1991 : An IC Amplifier User's Guide to Decoupling, Grounding and Making Things Go Right for a Change. Application Note. Norwood, Ma.
- Bartlett, M.S., 1948 : Smoothing Periodograms from Time Series with Continuous Spectra. *Nature* 161, 686-687. London.
- Bateman, H., 1910 : The Solution of a System of Differential Equations Occurring in the Theory of Radioactive Transformations. *Proceedings of the Cambridge Philosophical Society* 15, 423-427.
- Bates, R.C. and J.C.Edwards, 1980 : Mathematical modeling of time dependent radon flux problems. In: *Second International Mine Ventilation Congress*, 412-419. New York.
- Bedrosian, P.H., 1969 : Photographic Technique for Monitoring Radon-222 and Daughter Products. *Health Physics* 16, 800-802.
- Bendat, J.S. und A.G.Piersol, 1986 : Random Data. New York.
- Bigu, J., 1994 : Theoretical Considerations Regarding the Migration of ^{222}Rn and ^{220}Rn from Uranium- and Thorium-Bearing Underground Environments. *Health Physics* 67, 60-69.
- Biot, M.A., 1941 : General Theory of Three-Dimensional Consolidation. *Journal of Applied Physics* 12, 155-164.
- Birchard, G.F. und W.F.Libby, 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, 3100-3106.
- Bower, D.R., 1989 : Tidal and coseismic well-level observations at the Charlevoix Geophysical Observatory, Quebec. *Tectonophysics* 167, 349-361.
- Budnitz, R.J., 1974 : Radon-222 and its Daughters - A Review of Instrumentation for Occupational and Environmental Monitoring. *Health Physics* 26, 145-163.
- Bürkert, 1990 : Produktinformation 2/2-Wege-Magnetventil Typ 200. Ingelfingen.
- Булашевич, Ю.П. и Р.К.Хайритдинов (Bulashevich, Yu.P. und R.K.Khayritdinov), 1959 : К теории диффузии эманаций в пористых средах (On the theory of diffusion of emanation in porous media). *Известия Академии Наук СССР, Серия геофизическая (Reports of the Academy of Science of the USSR, Geophysical Series)* 10, 469-481. Москва (Moskau).
- Busigin, A., A.W.Van der Vooren und C.R.Phillips, 1979 : Interpretation of the Response of Continuous Radon Monitors to Transient Radon Concentrations. *Health Physics* 37, 659-667.
- Buttkus, B., 1991 : Spektralanalyse und Filtertheorie in der angewandten Geophysik. Berlin.

- Chittaporn, P., 1981** : A Continuous Monitor for the Measurement of Environmental Radon. *Health Physics* 41, 405-410.
- Chung, Y., 1985** : Radon Variations at Arrowhead and Murrieta Springs: Continuous and Discrete Measurements. *PAGEOPH* 122, 294-308.
- Clauser, C., 1992** : Permeability of Crystalline Rocks. *EOS* 73, 233,7.
- Clements, W.E. und M.H.Wilkening, 1974** : Atmospheric Pressure Effects on ^{222}Rn Transport Across the Earth-Air Interface. *Journal of Geophysical Research* 79, 5025-5029.
- Cothorn, C.R. und J.E.Smith, 1987** : Environmental Radon. New York.
- Daniell, P.J., 1946** : Discussion following "On the Theoretical Specification and Sampling Properties of Autocorrelated Time Series" by M.S.Bartlett. *J.Roy.Statist.Soc.Suppl.* 8, 27-41.
- Dittrich, D., 1989** : Beckenanalyse der Oberen Trias der Trier-Luxemburger Bucht. *Publications du Service Géologique du Luxembourg XXVI*, Luxembourg.
- ECA, 1991** : tdv1 Transistoren Datenlexikon und Vergleichstabelle. München.
- Edwards, J.C. und R.C.Bates, 1980** : Theoretical Evaluation of Radon Emanation Under a Variety of Conditions. *Health Physics* 39, 263-274.
- Enge, W., G.Matthess und A.Pekdeger, 1990** : Gesamtbericht Dezember 1987 - Dezember 1989. *Turkish-German Earthquake Research Project*. Kiel.
- Evans, R.D., 1969** : Engineer's Guide to the Elementary Behavior of Radon Daughters. *Health Physics* 17, 229-252.
- Fleischer, R.L., H.R.Hart und A.Mogro-Campero, 1980** : Radon Emanation over an Ore Body: Search for Long-Distance Transport of Radon. *Nuclear Instruments and Methods* 173, 169-181.
- Fleischer, R.L. und A.Mogro-Campero, 1978** : Mapping of Integrated Radon Emanation for Detection of Long-Distance Migration of Gases Within the Earth: Techniques and Principles. *Journal of Geophysical Research* 83, 3539-3549.
- Folkerts, K.H., G.Keller und H.Muth, 1986** : Experimental Investigations on Diffusion and Exhalation of ^{222}Rn and ^{220}Rn from Building Materials. *Radiation Protection Dosimetry* 7, 41-44.
- Garbesi, K., 1993** : Toward Resolving Model-Measurement Discrepancies of Radon Entry into Houses. Dissertation. *University of California, Berkeley, Ca.*
- Gaucher, E., 1976** : Alphameters: Uranium Prospecting by Radon Detection. *Canadian Mining Journal* 97, 28-34.
- Gerthsen, C., H.O.Kneser und H.Vogel, 1982** : Physik. Berlin.
- Gräff, 1992** : Schriftliche Mitteilung der Firma Gräff, Troisdorf vom 1.10.1992.
- GRACE, 1992** : Molekularsieb 514. Produktinformation. Worms.
- Граμμαков, А.Г. (Grammakov, A.G.), 1936** : О влиянии некоторых факторов на распространение радиоактивных эманаций в природных условиях (On the influence of some factors in the spreading of radioactive emanations under natural conditions). *Журнал геофизики (Geophysical Journal)* 6, 123-148.
- Grammakov, A.G., N.V.Kvashnevskaya, A.I.Nikonov, M.M.Sokolov, N.N.Sochevanov, S.A. Suppe und G.P.Tafeyev, 1958** : Some theoretical and methodical problems of radiometric prospecting and survey. *Proc. 2nd United Nations International Conference on Peaceful Uses of Atomic Energy* 2, 732-743.

- Gruppen, K., 1993 : Teilchendetektoren. Mannheim.
- HAENNI, 1991 : Druckaufnehmer und Druckmeßumformer Baureihe ED 500. Stuttgart.
- Harley, J.H., 1953 : Sampling and Measurement of Airborne Daughter Products of Radon. *Nucleonics* 11, 12-15.
- Heß, B., 1964 : Die Gezeiten der natürlichen Radioaktivität der Atmosphäre. *Zentralblatt für Biologische Aerosol-Forschung* 11, 495-507.
- Ho, C.Y., 1989 : Physical Properties of Rocks and Minerals. New York.
- Holub, R.F. und B.T.Brady, 1981 : The Effect of Stress on Radon Emanation From Rock. *Journal of Geophysical Research* 86, 1776-1784.
- Huenges, E., 1993 : Profiles of Permeability and Formation-Pressure down to 7.2 km. *KTB-Report* 93/2, 273-285.
- Kanašewich, E.R., 1981 : Time Sequence Analysis in Geophysics. Edmonton, Alberta.
- Keithley, 1992 : Data Acquisition. Reference and User Guide. Taunton, Ma.
- Keller, G., 1987 : Die natürliche Strahlenexposition des Menschen und ihre Beeinflussung durch menschliche Tätigkeiten. Habilitationsschrift. *Universität des Saarlandes, Homburg/Saar*.
- Keller, G., K.H.Folkerts und H.Muth, 1982 : Method for the Determination of ^{222}Rn (Radon)- and ^{220}Rn (Thoron)-Exhalation Rates Using Alpha-Spectroscopy. *Radiation Protection Dosimetry* 3, 83-89.
- Keller, G. und M.Schütz, 1988 : Radon Exhalation from Soil. *Radiation Protection Dosimetry* 24, 43-46.
- Kemski, J., R.Klingel, H.Schneiders, A.Siehl und J.Wiegand, 1992 : Geological Structure and Geochemistry Controlling Radon in Soil Gas. *Radiation Protection Dosimetry* 45, 235-239.
- Kemski, J., B.Plate, H.Schneiders, A.Siehl, R.Stamm, T.Werner und J.Wiegand, 1990 : Geological Factors Controlling Radon Potential. In: *Proc. Int. Colloquium on Gas Geochemistry*. Mons, Belgien.
- Хайкович, И.М. (Khaykovich, I.M.), 1961 : Распределение радона в рудном пласте, пересечённом цилиндрической скважиной (The Distribution of Radon in an Ore Layer cut by a Cylindrical Borehole). *Вопросы Рудной Геофизики (Problems of Mining Geophysics)* 2, 94-101. Всес. Научно-Исследовательский Институт Разведочной Геофизики (All-Union Scientific Research Institute for Exploration Geophysics), Москва (Moskau).
- Khinchine, A., 1934 : Korrelationstheorie der stationären stochastischen Prozesse. *Math. Ann.* 109, 604-615.
- King, C.-Y., 1980 : Episodic Radon Changes in Subsurface Soil Gas Along Active Faults and Possible Relation to Earthquakes. *Journal of Geophysical Research* 85, 3065-3078.
- King, C.-Y., 1981 : A Special Collection of Reports on Earthquake Prediction: Hydrologic and Geochemical Studies. *Geophysical Research Letters* 8, 421-424.
- King, C.-Y., 1985 : Impulsive Radon Emanation on a Creeping Segment of the San Andreas Fault, California. *PAGEOPH* 122, 340-352.
- King, C.-Y., 1986 : Gas Geochemistry Applied to Earthquake Prediction: An Overview. *Journal of Geophysical Research* 91, 10789-10795.

- King, C.-Y. und Luo, G., 1990 : Variations of Electric Resistance and H₂ and Rn Emissions of Concrete Blocks under Increasing Uniaxial Compression. *PAGEOPH* 134, 45-56.
- Klein, M., 1993 : Einführung in die DIN-Normen. Stuttgart.
- Koopmans, L.H., 1974 : The Spectral Analysis of Time Series. New York.
- Kotrappa, P., J.C.Dempsey, J.R.Hickey und L.R.Stieff, 1988 : An Electret Passive Environmental ²²²Rn Monitor based on Ionization Measurement. *Health Physics* 54, 47-56.
- Kotrappa, P., S.K.Dua, P.C.Gupta und Y.S.Mayya, 1981 : Electret - A New Tool for Measuring Concentrations of Radon and Thoron in Air. *Health Physics* 41, 35-46.
- Kotrappa, P., Y.S.Mayya, S.K.Dua und P.C.Gupta, 1981 : Increase in Ground Level Concentration of Radon During a Solar Eclipse. *Health Physics* 40, 559-560.
- Kusnetz, H.L., 1956 : Radon Daughters in Mine Atmospheres - A Field Method for Determining Concentrations. *Industrial Hygiene Quarterly* 17, 85-88. American Industrial Hygiene Association.
- Leybold-Heraeus, 1955 : Berechnungen und Tabellen zur Vakuumtechnik. Köln.
- Likes, R.S., A.Mogro-Campero und R.L.Fleischer, 1979 : Moisture-Insensitive Monitoring of Radon. *Nuclear Instruments and Methods* 159, 395-400.
- Liu, K.-K., T.-F.Yui, Y.-H.Yeh, Y.-B.Tsai und T.-L.Teng, 1985 : Variations of Radon Content in Groundwaters and Possible Correlation with Seismic Activities in Northern Taiwan. *PAGEOPH* 122, 243-244.
- Lucas, M.F., 1957 : Improved Low-Level Alpha Scintillation Counter for Radon. *Rev.Sci.Instrum.* 28, 680-684.
- Martz, D.E., D.F.Holleman, D.E.McCurdy und K.J.Schiager, 1969 : Analysis of Atmospheric Concentrations of RaA, RaB and RaC by Alpha Spectroscopy. *Health Physics* 17, 131-138.
- Melchior, P.J., 1983 : The Tides of the Planet Earth. Oxford.
- Melvin, J.D., M.H.Shapiro und N.A.Copping, 1978 : An Automated Radon-Thoron Monitor for Earthquake Prediction Research. *Nuclear Instruments and Methods* 153, 239-251.
- Mendenhall, M.H., M.H.Shapiro, J.D.Melvin und T.A.Tombrello, 1981 : Preliminary Spectral Analysis of Near-Real-Time Radon Data. *Geophysical Research Letters* 8, 449-452.
- Millich, E., 1995 : Dissertation am Lehrstuhl für Geodynamik der Universität Bonn zur numerischen Modellierung von Fluidbewegungen aufgrund von Gezeitenkräften (in Vorbereitung).
- Millich, E. und H.J.Neugebauer, 1993 : Pumping of Fluids in Porous Media Induced by Earth Tides. *KTB-Report* 93/2, 313-316.
- Millich, E. und H.J.Neugebauer, 1994 : Durch Erdgezeiten bewirkte gerichtete Fluidbewegungen aufgrund druckabhängiger Permeabilität. 7.Kolloquium des DFG-Schwerpunktprogramms "Kontinentales Tiefbohrprogramm der Bundesrepublik Deutschland", Gießen.
- Millich, E., H.J.Neugebauer und M.Lenzen, 1995 : Directed porous flow by tidal deformations under dynamic permeability conditions (in Vorbereitung).
- Modera, M.P. und Y.Bonnefous, 1993 : Statistical Uncertainties Associated with Multiplexed Sampling with a Continuous Radon Monitor. *Health Physics* 64, 291-299.
- Mogro-Campero, A., R.L.Fleischer und R.S.Likes, 1980 : Changes in Subsurface Radon Concentrations Associated With Earthquakes. *Journal of Geophysical Research* 85, 3053-3057.

- Morse, R.H., 1976 : Radon Counters in Uranium Exploration. In: *Exploration for Uranium Ore Deposits. Symposium Proceedings IAEA-SM-208/55*, 229-239. Wien.
- National Semiconductor, 1989 : General Purpose Linear Devices. Databook. Santa Clara, Ca.
- Nazaroff, W.W., 1992 : Radon Transport from Soil to Air. *Reviews of Geophysics* 30, 137-160.
- Negendank, J.F.W., 1983 : Trier und Umgebung. In: *Sammlung Geologischer Führer*, Band 60, Berlin.
- Neuert, H., 1966 : Kernphysikalische Meßverfahren zum Nachweis für Teilchen und Quanten. Karlsruhe.
- Nilson, R.H., E.W.Peterson, K.H.Lie, N.R.Burkhard und J.H.Hearst, 1991 : Atmospheric Pumping: A Mechanism Causing Vertical Transport of Contaminated Gases Through Fractured Permeable Media. *Journal of Geophysical Research* 96, 21933-21948.
- Nogushi, M. und H.Wakita, 1977 : A Method for Continuous Measurement of Radon in Groundwater for Earthquake Prediction. *Journal of Geophysical Research* 82, 1353-1357.
- Owczarski, P.C., D.J.Holford, H.D.Freeman und G.W.Gee, 1990 : Effects of Changing Water Content and Atmospheric Pressure on Radon Flux from Surfaces of five Soil Types. *Geophysical Research Letters* 17, 817-820.
- PHILIPS, 1994 : Photomultiplier tubes : principles & applications. Brive, Frankreich.
- von Philipsborn, H., 1990 : Radon und Radonmessung. Teil I: Eigenschaften, Meßgrößen und Methoden, Teil II: Geräte und Verfahren, Vorkommen und Verbreitung, Strahlenbiologie und Strahlenschutz. *Die Geowissenschaften* 8, 220-228 und 324-338.
- Porstendörfer, J. und A.Reineking, 1992 : Indoor Behaviour and Characteristics of Radon Progeny. *Radiation Protection Dosimetry* 45, 302-311.
- Price, W.J., 1964 : Nuclear Radiation Detection. New York.
- Pylon, 1992 : Models 110A, 300A Lucas Cells. *Pylon Electronic Development Company, ltd.*, Ottawa, Ontario.
- Raabe, O.G. und M.E.Wrenn, 1969 : Analysis of the Activity of Radon Daughter Samples by Weighted Least Squares. *Health Physics* 17, 593-605.
- Raghavayya, M., 1981 : An Inexpensive Radon Scintillation Cell. *Health Physics* 40, 894-896.
- Riedel-deHaën, 1992 : Schriftliche Mitteilung der Firma Riedel-deHaën, Seelze vom 27.Mai 1992.
- Roth, A., 1976 : Vacuum Technology. Amsterdam.
- Scheibel, H.G., J.Porstendörfer und A.Wicke, 1979 : A Device for the Determination of Low Natural ^{222}Rn and ^{226}Ra Concentrations. *Nuclear Instruments and Methods* 165, 345-348.
- Schery, S.D., D.H.Gaeddert und M.H.Wilkening, 1980 : Two-Filter monitor for atmospheric ^{222}Rn . *Rev.Sci.Instrum.* 51, 338-343.
- Schery, S.D., D.H.Gaeddert und M.H.Wilkening, 1982 : Transport of Radon From Fractured Rock. *Journal of Geophysical Research* 87, 2969-2976.
- Schöppe, B., 1990 : Strahlenbelastung durch Radon - Grundsätzliches - Meßverfahren - Meßgeräte. Diplomarbeit. *Fachhochschule Gießen-Friedberg*.
- Seilmann-Eggebert, W., G.Pfennig und H.Münzel, 1974 : Nuklidkarte. *Gesellschaft für Kernforschung* Karlsruhe.

- Shapiro, M.H., J.D.Melvin und T.A.Tombrello, 1980 : Automated Radon Monitoring at a Hard-Rock Site in the Southern California Transverse Ranges. *Journal of Geophysical Research* 85, 3058-3064.
- Shapiro, M.H., A.Rice, M.H.Mendenhall, J.D.Melvin, und T.A.Tombrello, 1984 : Recognition of Environmentally Caused Variations in Radon Time Series. *PAGEOPH* 122, 309-326.
- Sharpe, J., 1964 : Nuclear Radiation Detectors. London.
- Siegesmund, S., A.Vollbrecht, T.Chlupac, G.Nover, H.Dürrast, J.Müller und K.Weber, 1993 : Fabric-Controlled Anisotropy of Petrophysical Properties Observed in KTB Core Samples. *Scientific Drilling* 4, 31-54.
- Strong, J.C. und M.J.Duggan, 1973 : The Effect of the Presence of Thoron Daughters on the Measurement of Radon Daughter Concentrations. *Health Physics* 25, 299-300.
- Sugisaki, R., 1981 : Deep-Seated Gas Emission Induced by the Earth Tide: A Basic Observation for Geochemical Earthquake Prediction. *Science* 212, 1264-1266.
- Султанходжаев А.Н., И.Г.Чернов и Т.Закиров (Sultankhodzhaev A.N., I.G.Chernov und T.Zakirov), 1976 : Гидрогеоцеисмологические предвестники Газлийского землетрясения (Hydrogeoseismological Premonitors of the Gazli Earthquake). *Доклады Академии Наук Узбекской ССР (Proceedings of the Academy of Science of the Uzbek SSR)* 7, 51-53. Ташкент (Tashkent).
- Talwani, P., W.S.Moore und J.Chiang, 1980 : Radon Anomalies and Microearthquakes at Lake Jocassee, South Carolina. *Journal of Geophysical Research* 85, 3079-3088.
- Tanner, A.B., 1964 : Radon Migration in the Ground: A Review. In: *The Natural Radiation Environment*, 161-190. Houston.
- Tanner, A.B., 1978 : Radon Migration in the Ground: A Supplementary Review. In: *The Natural Radiation Environment III*, 5-56. Houston.
- Tanner, A.B., 1990 : The Role of Diffusion in Radon Entry into Houses. In: *The 1990 International Symposium on Radon and Radon Reduction Technology. February 19-23, Atlanta, Ga.*
- Teng, T.-L., 1980 : Some Recent Studies on Groundwater Radon Content as an Earthquake Precursor. *Journal of Geophysical Research* 85, 3089-3099.
- Teng, T.-L. und L.-F. Sun, 1986 : Research on Groundwater Radon as a Fluid Phase Precursor to Earthquakes. *Journal of Geophysical Research* 91, 12305-12313.
- Thomas, J.W. und R.J.Countess, 1979 : Continuous Radon Monitor. *Health Physics* 36, 734-738.
- Thomas, J.W. und P.C.LeClare, 1970 : A Study of the Two-Filter Method for Radon-222. *Health Physics* 18, 113-122.
- Tietze, U. und C.Schenk, 1986 : Halbleiter-Schaltungstechnik. Berlin.
- Tremblay, R.J., A.Leclerc, C.Mathieu, R.Pepin und M.G.Townsend, 1979 : Measurement of Radon Progeny Concentration in Air by α -Particle Spectrometric Counting During and After Air Sampling. *Health Physics* 36, 401-411.
- Tsimoglou, E.C., H.E.Ayer und D.A.Holaday, 1953 : Occurrence of Nonequilibrium Atmospheric Mixtures of Radon and Its Daughters. *Nucleonics* 11, 40-46.

- Уломов В.И. и Б.З.Мавашев (Ulomov V.I. und B.Z.Mavashev), 1967** : О предвестнике сильного тектонического землетрясения (A Precursor of a Strong Tectonic Earthquake). *Доклады Академии Наук СССР (Reports of the Academy of Science of the USSR)* 176, 319-321. Москва (Moskau).
- Valvo, 1987** : Data Handbook Photomultipliers. Hrsg.: *Valvo Unternehmensbereich Bauelemente der Philips GmbH*. Hamburg.
- Varshal, G.M., G.A.Sobolev, V.L.Barsukov, A.V.Koltsov, B.I.Kostin, T.F.Kudinova, Yu.I. Stakheyev und S.P.Tretyakova** : Separation of Volatile Components from Rocks under Mechanical Loading as the Source of Hydrogeochemical Anomalies Preceding Earthquakes (Results of a Large-scale Model Experiment). *PAGEOPH* 122, 463-477.
- Wallner, H. und H.J.Neugebauer, 1991** : A Dynamic Permeability Approach of Coupled Fluid-Rock Systems. *EOS* 177.
- Ward, W.J., R.L.Fleischer und A.Mogro-Campero, 1977** : Barrier technique for separate measurement of radon isotopes. *Rev.Sci.Instrum.* 48, 1440-1441.
- Warren, R.K., 1977** : Recent Advances in Uranium Exploration with Electronic Alpha Cups. *Geophysics* 42, 982-989.
- Washington, J.W. und A.W.Rose, 1990** : Regional and Temporal Relations of Radon in Soil Gas to Soil Temperature and Moisture. *Geophysical Research Letters* 17, 829-832.
- Weems, R.E. und W.H.Perry, 1989** : Strong correlation of major earthquakes with solid-earth tides in part of the eastern United States. *GEOLOGY* 17, 661-664.
- Wenzel, H.-G.** : Computerprogramm ETGTAB Version 920107 FORTRAN 77. *Geodätisches Institut der Universität Karlsruhe*.
- Wicke, A., 1979** : Untersuchungen zur Frage der natürlichen Radioaktivität der Luft in Wohn- und Aufenthaltsräumen. Dissertation. *Universität Gießen*.
- Wicke, A., 1983** : Methoden zur Messung von Radon und seinen kurzlebigen Zerfallsprodukten in der Luft. Beitrag zum 5.Fachgespräch "Überwachung der Umweltradioaktivität" 22.-24.März 1983. Kernforschungszentrum Karlsruhe.
- Wiener, N., 1930** : Generalized Harmonic Analysis. *Acta Math.* 55, 117-258.
- Woith, H., W.Enge, S.Gencoglu, G.Matthess, A.Pekdeger und J.Zschau, 1989** : On the feasibility of monitoring Radon in soil gas and groundwater as a precursor to earthquakes. In: *Zschau, J. und O.Ergünay (Ed.): Turkish-German Earthquake Research Project*, 112-129. Kiel.
- Wollenberg, H.A., A.R.Smith, D.F.Mosier, S.Flexser und M.Clark, 1985** : Radon-222 in Groundwater of the Long Valley Caldera, California. *PAGEOPH* 122, 327-339.
- Worm, R., 1986** : Das gaskinetische Verhalten von Radon unter dem Einfluß von Bodenwasser in Lockergesteinen über verdeckten Uranvorkommen. Dissertation, *Technische Universität Berlin*.
- Wrenn, M.E., J.C.Rosen und W.R.Van Pelt, 1969** : Steady State Solutions for the Diffusion Equations of Radon-222 Daughters. *Health Physics* 16, 647-656.
- Wrenn, M.E., H.Spitz und N.Cohen, 1975** : Design of a Continuous Digital-Output Environmental Radon Monitor. *IEEE Transactions on Nuclear Science NS-22*, 645-647.
- Yeung, K., C.Chakrabarty und X.Zhang, 1993** : An Approximate Analytical Study of Aquifers with Pressure-Sensitive Formation Permeability. *Water Resource Research* 29, 3495-3501.

Danksagung

Mein erster Dank gilt Herrn Prof.Dr.Neugebauer vom Lehrstuhl für Geodynamik an der Universität Bonn, für die Motivation und Unterstützung während meiner Arbeit, sowie für die Freizügigkeit bei der Arbeitszeitgestaltung und die Gewährung einer dreimonatigen Unterbrechung der Promotion zur Vorbereitung eines Forschungsaufenthaltes in Australien.

Von Seiten des Geologischen Institutes der Universität Bonn wurde das Projekt von Herrn Prof.Dr.Siehl unterstützt.

Ich danke dem Verantwortlichen des Service Géologique in Luxembourg, Herrn Robert Maquil, für die Unterstützung bei der Veröffentlichung dieser Dissertation.

Herr Antoine Kies vom Centre Universitaire in Luxembourg betreute bislang über mehr als ein Jahr den Radonmeßplatz in der Gipsmine in Walferdange. Außerdem danke ich ihm für die vielen angenehmen Aufenthalte in Luxembourg.

Herr Stefan Hergarten hatte zu jeder Zeit für meine wissenschaftliche Fragen aller Art ein offenes Ohr und fast immer eine wertvolle Antwort. Herr Dr.Ralf Klingel wies und ebnete mir manchen Weg bei schwierigen Organisationsproblemen und war für mich der Ansprechpartner für alle fachübergreifenden Fragen. Herr Elmar Millich führte alle Berechnungen zum Gezeitenpumpen durch.

Herr Scheid trug maßgeblich zur technischen Realisierung des Sensorgehäuses bei.

Herr Dr.Menze diskutierte mit mir viele Probleme bezüglich der Detektorelektronik und überließ mir zudem zwei Photomultiplier.

Schließlich danke ich Herrn Dr.Nover für umfangreiche Permeabilitätsmessungen, Herrn Prof.Dr.Keller und Herrn Dr.Schütz für Messungen von Diffusionskonstanten und Radon-Exhalationsraten, Herrn Dr.Debschütz für die Bestimmung von Porositäten, sowie Herrn Dr.Kemski für die Aufnahme von γ -Spektren.

ISBN 2-919994-04-2

Imprimerie Graphic Press S.à r.l., Mamer