

Tagungsbeitrag zu:

Jahrestagung der DBG, Kommission IV

Titel der Tagung:

„Horizonte des Bodens“

Veranstalter: DBG

Termin und Ort der Tagung:

02. – 07. September 2017, Göttingen

Berichte der DBG (nicht begutachtete online Publikation); <http://www.dbges.de>

Einfluss des Wassergehaltes auf das an der Bodenoberfläche messbare Gamma-Spektrum: Durchführung eines Austrocknungsversuches im Feld

M. Grothe¹, N. Reinhardt¹, L. Herrmann¹

Zusammenfassung

Die Gammaskopimetrie ermöglicht die nicht-invasive Ermittlung verschiedener Elementgehalte im Boden auf Grundlage natürlicher Radionuklide wie ⁴⁰Kalium, ²³⁸Uran und ²³²Thorium. Da Wasser die Gammastrahlung abschwächt, können räumlich variable Bodenwassergehalte die Interpretation gammaskopimetrischer Erkundungen erschweren. Die Stärke der daraus resultierenden Abschwächung ist von der Bodenzusammensetzung und der Photonenenergie selbst abhängig.

Das Ziel dieser Arbeit war, durch einen Austrocknungsversuch unter realen Bedingungen im Feld, den Einfluss des Bodenwassergehaltes auf das an der Bodenoberfläche messbare Gammaskopimetrum zu quantifizieren.

¹ Institut für Bodenkunde und Standortslehre, Universität Hohenheim, 70593 Stuttgart

Dafür wurde ein Bodenzylinder ($r = 0,9$ m) angelegt und mit Folie vom umgebenden Boden separiert. Nach Aufsättigung wurde das Gammaskopimetrum über drei Monate während der Austrocknungsphase unter natürlichen Verdunstungsbedingungen an der Bodenoberfläche gemessen.

Die Gammastrahlung nahm über den Versuchszeitraum um ca. ein Drittel zu. Regressionsanalysen lassen lineare Abhängigkeiten für Kalium und Thorium erkennen. Aussagen zu Uran und der Gesamtstrahlung ("Total Counts") sind vermutlich aufgrund eines säkularen Ungleichgewichtes in der Uran-Zerfallsreihe (Radon-Akkumulation) nicht möglich. Die Ergebnisse bilden eine erste Grundlage für mögliche Korrekturverfahren.

Schlüsselworte

Radioaktivität, linearer Abschwächungskoeffizient, Kalium, Uran, Thorium, Radon, proximale Erkundung

Einleitung und Fragestellung

Die Gammaskopimetrie ermöglicht die spektrale, nicht invasive Vermessung diskreter Gammastrahlung. Die Methode erlaubt sowohl den stationären als auch mobilen Einsatz im Labor und Gelände und kann als Nah- oder Fernerkundung in Anwendung gebracht werden. In den Geowissenschaften stehen insbesondere die Bestimmung von ⁴⁰K, ²³⁸U und ²³²Th bzw. daraus abgeleitete Elementgehalte im Mittelpunkt möglicher Anwendungen.

Für die Interpretation der Messdaten ist entscheidend, dass sämtliche Bodenbestandteile in Abhängigkeit ihrer Eigenschaften (z. B. Ordnungszahl, Materialdichte) unterschiedlich stark zur Ab-

schwächung der Gammastrahlung beitragen (Berger & Hubbell 1987). Der im Gelände räumlich variable Bodenwassergehalt kann dabei die Interpretation gammaspektrometrischer Daten erheblich erschweren (Cook et al. 1996). Bisher sind keine Versuche bekannt, diesen Sachverhalt unter Feldbedingungen quantitativ aufzuklären.

Diese Aufgabe wurde mit einem exemplarischen Austrocknungsversuch auf einem südwestdeutschen Lössstandort angegangen. Ziel war es eine erste Datengrundlage für mögliche Korrekturverfahren zu erarbeiten.

Literaturquellen ließen a) eine Zunahme der Gammastrahlung bei Austrocknung (Dierke & Werban 2013), b) eine deutlich erhöhte Variabilität der Uranmesswerte sowie c) eine Abhängigkeit der Abschwächung von der Photonenenergie erwarten (Grasty 1997), d. h. unterschiedliche Abschwächungskoeffizienten für die gemessenen Elemente (K>U>Th).

Material und Methoden

Im Mittelpunkt des Versuchsaufbaus stand ein Bodenzylinder, der durch eine Folie vom umgebenden Boden separiert wurde (Abbildung 1 a). Die Bodensäule wies einen Radius und eine Tiefe von 0,9 m auf. Zur Bestimmung von volumetrischen Wassergehalten (vol. WG) wurden 8 TDR-Sonden (CS 616, Campbell Scientific, UK) in 4 Tiefen verbaut. Zwei Sonden wurden senkrecht von 0-30 cm, die weiteren Sonden horizontal in den Tiefen 35 cm, 40 cm und 50 cm verbaut (Abbildung 1 b).

Die gammaspektrometrische Datenerhebung erfolgte mit einem mobilen Hand-

gerät (GRM Gamma Surveyor, GF Instruments, CZ). Aufbauend auf den „Regions of Interest“ (ROIs) nach IAEA (2003), erfolgte die Ermittlung von K ($^{40}\text{K} \rightarrow ^{40}\text{Ar}$, 1,46 MeV), Th ($^{208}\text{Tl} \rightarrow ^{208}\text{Pb}$, 2,61 MeV) und U ($^{214}\text{Bi} \rightarrow ^{214}\text{Po}$, 1,76 MeV) durch direkten Übergang bzw. durch Übergänge von Folgenukliden in den ^{238}U - und ^{232}Th -Zerfallsreihen. Es wurden 4 Messwiederholungen mit jeweils 180 s Messdauer durchgeführt.

Der Versuch begann mit der Aufsättigung des Bodenzylinders. Es wurde 1 m³ Wasser über mehrere Tage aufgetragen; Stroh wurde zur Vermeidung von Verschlammung aufgebracht. Die Fläche blieb zunächst mit Wintergerste bestockt, um das natürliche Verdunstungsgeschehen durch Transpiration in der nun folgenden Austrocknungsphase zu beschleunigen. Die Pflanzen mussten aufgrund von Lichtmangel nach 6 Wochen entfernt werden.

In regelmäßigen Abständen, mit höherer Messdichte zu Beginn des Versuches, erfolgte die gleichzeitige Messung von Wassergehalten und Gammaspektrum. Darüber hinaus wurde ein Bodenprofil in unmittelbarer Nähe zum Bodenzylinder angelegt, beschrieben und beprobt. Es erfolgte eine horizontale Beprobung zur Bestimmung der Lagerungsdichte, der Bodentextur sowie der Elemente K, Th und U nach Königswasseraufschluss.



**Abbildung 1 a: Feldversuch während einer Messung (links);
Abbildung 1 b: Verbaute TDR-Sonden im Bodenzylinder vor der Austrocknungsphase (rechts)**

Ergebnisse und Diskussion

Das Bodenprofil wurde als erodierte Acker-Parabraunerde aus Löss klassifiziert. Eine Fotografie des Bodenprofils mit Horizontabgrenzungen kann der Abbildung 2 entnommen werden. Darüber hinaus sind in der Tabelle 1 die Laborergebnisse horizontweise aufgeführt.

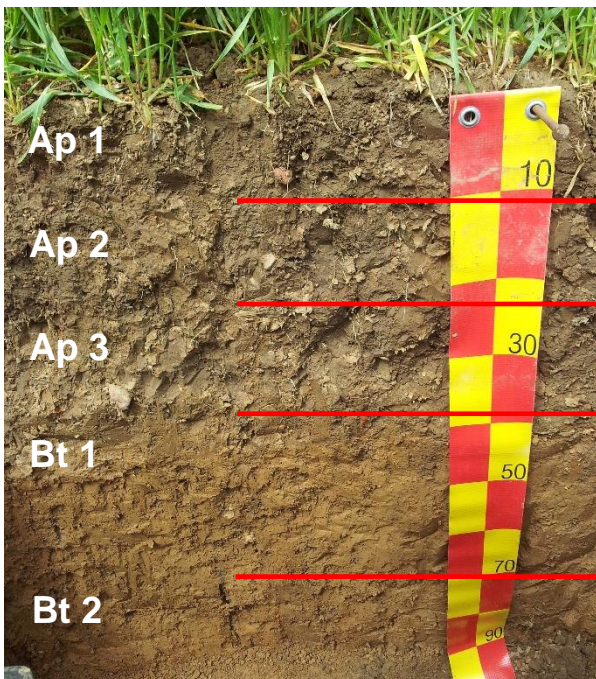


Abbildung 2: Bodenprofil mit Horizontgrenzen und Horizontbezeichnungen

Der Austrocknungsversuch wurde zwischen Juni und August 2017 durchgeführt. Es liegen an 25 verschiedenen Tagen zu 34 Zeitpunkten Messungen vor.

In der Abbildung 3 sind exemplarisch der Zeitverlauf der gammaspektrometrisch bestimmten K-Gehalte und der Verlauf der volumetrischen Wassergehalte (vol. WG) der Bodentiefe 0-30 cm dargestellt. Zunächst ist zu erkennen, dass die K-Gehalte (Beginn = 1,35 %; Ende = 1,7 %) am Ende des Versuches durch die gemessenen Laborwerte bestätigt wurden (Tab. 1). Der zeitliche Verlauf der vol. WG im Oberboden wurde durch Niederschläge beeinflusst.

Die gammaspektrometrisch gemessenen Th-Gehalte (Beginn = 10,9 ppm; Ende = 12,3 ppm) zeigen einen ähnlichen Trend und nähern sich den Laborergebnissen an. Eine stärkere Streuung der Messwerte (Abb. 4 mittig) ist auf die geringere Abundanz von Th bzw. Folgenukliden und der daraus resultierenden schlechteren Messstatistik zurückzuführen.

Tabelle 1: Kennwerte des analysierten Bodenprofils (LD = Lagerungsdichte, S = Sand, Uu = Schluff, T = Ton)

Horizonte	Tiefe	LD	S	Uu	T	K	U	Th
	[cm]	[g cm ⁻³]	Gew. [%]			[mg kg ⁻¹]		
Ap 1	-11	1,5	7	65	30	1,7	1,5	13,7
Ap 2	-23	1,6	7	63	29	1,9	1,4	13,0
Ap 3	-40	1,6	7	65	29	1,8	1,4	11,0
Bt 1	-80	1,6	3	70	28	1,4	1,1	11,4
Bt 2	-90	1,6	5	68	28	1,5	1,1	12,2

Bei den gammaspektrometrischen Uranmesswerten sind über den Versuchszeitraum nur geringe Änderungen festzustellen. Darüber hinaus zeigt sich keine Überstimmung dieser (Beginn = 2,6 ppm; Ende = 3,4 ppm) mit den Labormesswerten (Tab. 1).

Erstere übertreffen die Laborwerte um mehr als das Doppelte. Die Ursachen sind nicht abschließend zu klären, deuten jedoch auf eine Ursache im Boden hin. Zu vermuten sind a) die Einstellung eines säkularen Ungleichgewichtes, das aufgrund einer Anreicherung des ²²²Rn-Isotopes im Zuge der hohen Wassersättigung entstanden ist und/oder b) die Einrichtung einer Diffusionssperre durch die über dem Versuch befestigte Folie zum Schutz vor Niederschlagswasser. Darüber hinaus ist auch nicht auszuschließen, c) dass durch das Aufbringen von Wasser eine Verschlämmung der Bodenporen stattgefunden hat und deshalb nur eine eingeschränkte ²²²Rn-Diffusion aus dem Boden möglich war.

Bei den gemessenen vol. WG sind Veränderungen der Messwerte vor allem bei den senkrecht verbauten (0-0,3 m) TDR-Sonden festzustellen (Abb. 3). Die vol. WG beginnen bei 38 % und nehmen im Zuge der Austrocknung auf 27 % ab. Bei den tiefer und horizontal verbauten TDR-Sonden sind nur leichte bzw. keine Abnahmen der vol. WG festzustellen. Die Messwerte liegen zwischen 55 und 45 % (nicht dargestellt).

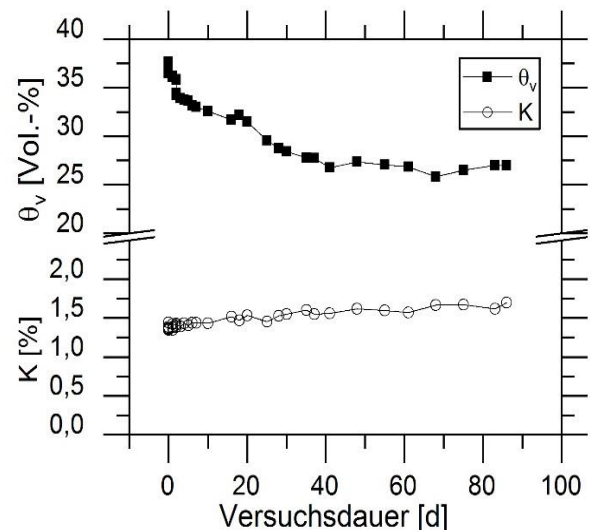


Abbildung 3: Zeitlicher Verlauf des volumetrischen Wassergehaltes (0-0,3 m, θ_v) und der gammaspektrometrisch an der Bodenoberfläche ermittelten K-Gehalte

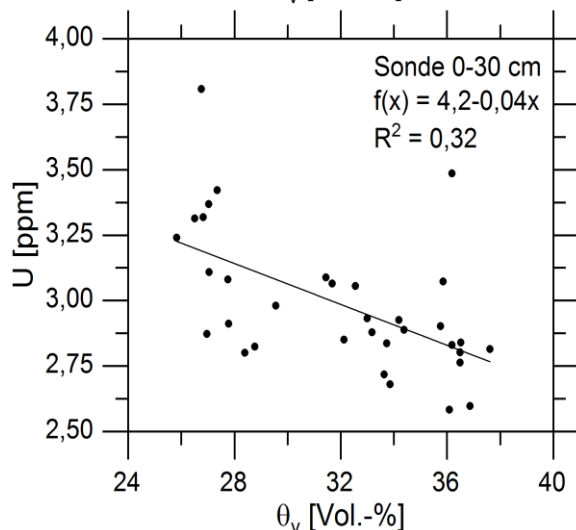
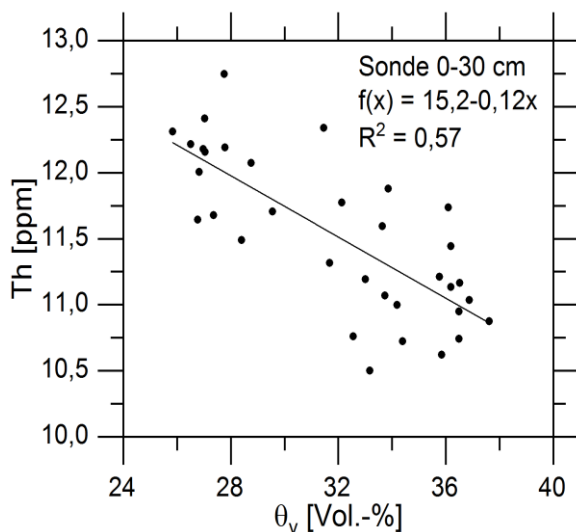
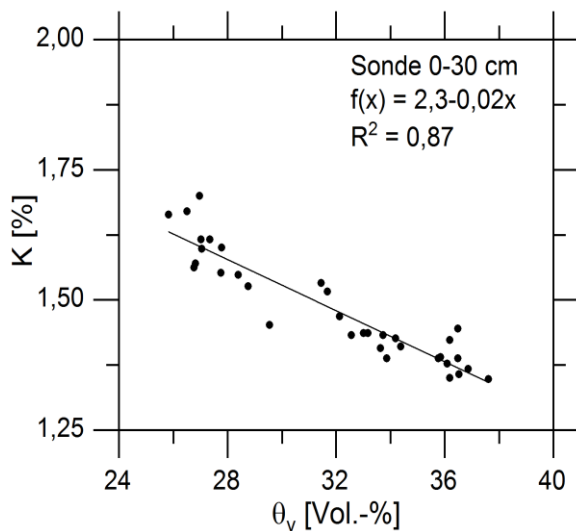


Abbildung 4: Regressionsgeraden für die Beziehung zwischen vol. WG (θ_v) der Bodentiefe 0-0,3 m sowie gammaspektrometrisch bestimmten K-, Th- und U-Konzentrationen an der Bodenoberfläche (Bitte verkürzte x- und y-Achsen beachten)

Einfluss der Wassergehalte auf die messbare Gammastrahlung

Unter den gegebenen Versuchsbedingungen - also dem Wasserspannungsbereich pF 1,8-3 - haben die aus den Gamaspektren berechneten Elementgehalte über die Zeit durch die Austrocknung um bis zu 30% (U) zugenommen. Ähnliches wurde von Dierke & Werban (2013) für Messungen unter Feldbedingungen auch auf Löss in Ostdeutschland beschrieben.

In der Abbildung 4 sind die Regressionsgeraden für die Beziehungen vol. WG (0-0,3 m) und gammaspektrometrisch ermittelte K-, U- und Th-Gehalte dargestellt. Für K kann durch das Bestimmtheitsmaß von $R^2 = 0,87$ ein linearer Zusammenhang bestätigt werden. Bei Thorium ist die Streuung der Messwerte deutlich höher, wodurch das Bestimmtheitsmaß sinkt ($R^2 = 0,57$). Bei Uran ($R^2 = 0,32$) wird das Bild noch undeutlicher. Dies kann am einfachsten über die große Halbwertszeit und die damit schlechte Zählstatistik beim Uran erklärt werden. Hinzu kommt das bereits erwähnte Problem der Gleichgewichtseinstellung zwischen den verschiedenen Isotopen. Allerdings wäre gemäß Minty (1997) auch der Sachverhalt möglich, dass sich die Streuung der Messwerte mit zunehmenden Zeitverlauf aufgrund der fortschreitenden Diffusion des ^{222}Rn verringert. Dies wird durch die Daten allerdings nicht bestätigt.

Die vol. WG ändern sich über den Versuchszeitraum insbesondere im Oberboden. Entsprechend kommt die multivariate Regressionsanalyse zu dem Ergebnis, dass sich bis zu 60 % der Varianz der Elementgehalte durch die Messergebnisse der oberflächennahen TDR-Sonden

(0-0,3 m) erklären lässt. Dies steht in Einklang mit der Hypothese, dass die an der Bodenoberfläche messbare Gammastrahlung terrestrischer Böden maßgeblich aus einer Tiefe von 0,3-0,5 m (Minty 1997) generiert wird.

Die in diesem Versuch verwendeten ROIs basieren auf der Messung verschiedener Radionuklide, die Photonen unterschiedlicher Energien generieren. Da die Abschwächung von Photonen nicht nur von dem abschwächenden Material sondern auch von der Photonenenergie selbst abhängig ist (Grasty 1997), sind für die Radionuklide unterschiedlich starke Abschwächungskoeffizienten zu erwarten. Grundsätzlich gilt, dass aufgrund unterschiedlich starker Dominanzen der drei Wechselwirkungsprozesse (Photoeffekt, Compton-Effekt, Paarbildungseffekt) höherenergetische Photonen weniger abgeschwächt werden sollten als niederenergetische (Berger & Hubbell 1987).

Berechnet man die linearen Abschwächungskoeffizienten auf der Basis der Anfangs- und Endwerte der Messungen sowie der Wassergehaltsänderungen über 0,3 m Tiefe mit den vereinfachten Annahmen unidirektionaler Strahlung und gleichmäßiger Wasserverteilung, so ergibt sich die Reihenfolge $K > U > Th$, was den Erwartungen entspricht.

Schlussfolgerungen

Als wesentliche Schlussfolgerungen bleibt festzuhalten:

- Das Bodenwasser beeinflusst das an der Bodenoberfläche messbare Gamma-signal deutlich. Daher muss diese Größe bei Erkundungen mit bestimmt werden

und ein entsprechender Korrekturalgorithmus entwickelt werden.

- Es ist davon auszugehen, dass der Bodenwassergehalt räumlich variabel ist, daher muss eine dieser Variabilität entsprechende Messdichte erreicht werden.

- Die Signalschwächung ist abhängig von der Photonenenergie des gemessenen Radionuklids, nach der Regel: je höher die Photonenenergie, desto geringer ist die Schwächung. Dies bedeutet gleichzeitig, dass bei gleichem Wassergehalt, die an der Bodenoberfläche gemessene Strahlung aus unterschiedlichen Volumina stammt, nach der Regel: je höher die Photonenenergie, desto größer das Volumen. Welche Auswirkungen dies für die Datenauswertung hat, muss in weiteren Versuchen und Modellrechnungen erarbeitet werden.

- Die praktischen Versuche haben gezeigt, dass es für zukünftige Versuche nicht notwendig ist, eine Bodensäule zu isolieren. Stattdessen sollte die räumliche Auflösung der TDR-Messungen erhöht werden. Auch ist es notwendig, die gemessene Wassergehaltsspanne zu erhöhen, um die Linearität der Beziehung vol. WG und Gammaspektrum für gängige Wassergehalte pF 1,8-4,2 zu bestätigen. Diese Versuche sollten eine Abschirmung gegen Regen aufweisen, die nicht direkt der Bodenoberfläche aufliegt, um Diffusionsperreffekte zu vermeiden.

- Die Versuchsergebnisse (insbesondere wassergehaltsabhängige K- und Th-Konzentrationen) können als erste Datengrundlage für Modellrechnungen herangezogen werden, um lineare Abschwächungskoeffizienten bzw. das Messvolu-

men für gammaspektrometrische Messungen im Gelände zu bestimmen.

Quellenverzeichnis

Berger, M. J., Hubbell, J. H. (1987): XCOM: Photon Cross Section on a Personal Computer. Center for Radiation Research, National Bureau of Standards, Gaithersburg.

Cook, S. E., Corner, R. J., Groves, P. R., Grealish, G. J. (1996): Use of airborne gamma radiometric data for soil mapping. Australian Journal of Soil Research 34, 189-194.

Dierke, C., Werban, U. (2013): Relationships between gamma-ray data and soil properties at an agricultural test site. Geoderma 199, 90-98.

Grasty, R. L. (1997): Radon emanation and soil moisture effects on airborne gamma ray measurements. Geophysics 62 (5), 1379-1385.

International Atomic Energy Agency (IAEA) (2003): Guidelines for radioelement mapping using gamma ray spectrometry data, Vienna, 179 p.

Minty, B. R. S. (1997): Fundamentals of airborne gamma-ray spectrometry. Journal of Australian Geology & Geophysics 17 (2), 39-50.