

Diss. ETH No. 20799

^{220}Rn in Groundwater and Soil Gas

A dissertation submitted to
ETH ZURICH

for the degree of
DOCTOR OF SCIENCES

presented by
STEPHAN CASPAR HUXOL
Diplom Hydrologe, University of Freiburg, Germany
born 19.02.1981
citizen of Germany

accepted on the recommendation of
Prof. Dr. Rolf Kipfer, examiner
Dr. Eduard Hoehn, co-examiner
Dr. Heinz Surbeck, co-examiner
Prof. Dr. Dani Or, co-examiner

2012

Summary

This thesis focuses on the use of the short-lived radon isotope ^{220}Rn (half-life 55.6 s) as environmental tracer in groundwater and soil gas. Radon is a natural radioactive noble gas and its isotopes are produced by alpha decay of their precursor radium isotopes. From radium bearing minerals in the subsurface, radon isotopes are released to the environment, i.e. groundwater and soil gas.

The longer-lived ^{222}Rn (half-life 3.8 d) is used for decades as environmental tracer in subsurface fluids. The short lived ^{220}Rn , however, gained much less interest in environmental sciences and was only in soil gas rarely applied as a tracer. The initial motivation of this thesis, therefore, focused on the determination and use of ^{220}Rn as a tracer in aquatic systems. Here, ^{220}Rn could be used to study small scale processes and as a co-tracer for the long-lived ^{222}Rn in aquatic systems. In order to enable the use of ^{220}Rn as a tracer in aquatic systems, the sampling and measurement technique of ^{220}Rn -in-water concentrations had to be optimized. As the used radon isotope detector is a radon-in-air detection system, the water to be analyzed has to be degassed before analysis. By testing and modifying different degassing devices and by adding an additional air loop with an adjustable air pump to the detection system, the travel time of water and air between sampling and radon analysis was reduced. Consequently, the feasibility of ^{220}Rn -in-water detection was proven in laboratory experiments. When the system was applied to the field to sample natural groundwater, however, significant concentrations ^{220}Rn were measured only in one special case, in which water was sampled directly from a pipe with inner coatings of ^{220}Rn -producing material. In all other cases, no ^{220}Rn was detected in water.

To find out, why ^{220}Rn cannot be detected in natural groundwaters, the ^{220}Rn behavior in the gaseous phase in porous media was studied in the field and laboratory. As ^{220}Rn is known to be ubiquitous in soil gas, a soil gas measurement campaign in a vertical soil profile near a river was initiated. During this campaign, the groundwater table at the field site rose as a result of elevated river discharge. From the moment when the groundwater table reached the lowermost sampling point, the ^{220}Rn concentration in this depth dropped to zero, while ^{222}Rn was still detectable. This result indicated that the water content of soils plays a major role in the availability of ^{220}Rn in soil gas.

Laboratory experiments revealed that, due to the short half-life of ^{220}Rn , water acts as barrier in which ^{220}Rn decays before passing it diffusively. Hence, under partially saturated conditions, water films hinder the release of ^{220}Rn from the grains and water menisci limit the migration of ^{220}Rn through the pore space. Un-

der saturated conditions, ^{220}Rn decays in immobile water layers around the grains and therefore does not reach the moving water phase in natural groundwaters. Consequently, in saturated porous media, ^{220}Rn can not be detected under common natural environmental conditions by common sampling techniques. However, targeted laboratory experiments, in which uncommonly high water flow-velocities through saturated porous media were induced, show that the applied shear stress of the fast flowing water can disturb and reduce the thickness of the constraining water layers. These extreme and unnatural conditions stimulate the ^{220}Rn release from the grains to the flowing water. Similar stimulation of the ^{220}Rn -release due to advective gas movements was found under unsaturated conditions, too.

Moreover, regarding gas transport processes, the results of the thesis show that, due to its short half-life, the ^{220}Rn concentrations in the gas phase of porous media are much less affected by changes of the diffusive and advective transport conditions compared to the ^{222}Rn concentrations. Hence, the ^{220}Rn concentration are less susceptible to movements or mixing of gas, which in the field often make the interpretation of ^{222}Rn -in-soil gas concentrations difficult and its use as a tracer ambiguous. The thesis therefore proposes and shows for the first time, how by the combined determination of ^{222}Rn and ^{220}Rn the relevant soil gas transport processes can be identified.

In summary, this thesis addresses the question and yields insights, why ^{220}Rn is ubiquitous in soil gas but not detectable under saturated conditions in common natural settings and with common sampling techniques. Therefore, ^{220}Rn commonly cannot be applied as an environmental tracer in aquatic systems. In soil gas, however, it is concluded that the potential of ^{220}Rn as environmental tracer is not fully developed and its exploration should be enforced in the future.

Zusammenfassung

Diese Arbeit beschreibt die Anwendung des kurzlebigen Radonisotopes ^{220}Rn (Halbwertszeit 55.6 s) als natürlichen Tracer in Grundwasser und Bodengas. Radon ist ein natürliches radioaktives Edelgas. Radonisotope entstehen durch Alpha-Zerfall der jeweiligen Radiumvorgängerisotope. Aus radiumhaltigen Mineralien werden die Radonisotope in das Grundwasser und Bodengas freigesetzt.

Schon seit Jahrzehnten wird das langlebige Radonisotope ^{222}Rn (Halbwertszeit 3.8 d) in Grundwasser und Bodengas als Tracer verwendet. Das kurzlebige ^{220}Rn dagegen fand viel weniger Beachtung in den Umweltwissenschaften und wird nur selten und ausschliesslich im Bodengas als Tracer verwendet. Die anfängliche Motivation für diese Arbeit war deshalb die Bestimmung und Anwendung von ^{220}Rn als Tracer in aquatischen Systemen. Um dies zu ermöglichen, musste zuerst die Probenahme und die Analysemethode verbessert werden. Da der benutzte Radondetektor die Radonisotope in der Gasphase misst, muss das zu analysierende Wasser zuerst entgast werden. Es wurden verschiedene Systeme zur Entgasung von Wasser getestet und modifiziert. Unter anderem, indem ein zusätzlicher Luftkreislauf mit einer regelbaren Membranpumpe zwischen Radondetektor und Entgasungssystem installiert wurde, konnten die Verweilzeiten von Wasser und Luft zwischen der Beprobung und der Analyse verringert werden. So konnte letztendlich die Machbarkeit der Messung von ^{220}Rn in Wasser in Laborversuchen gezeigt werden. Im Feld wurden mit dem entwickelten Messsystem verschiedene Grundwässer auf ^{220}Rn -Konzentrationen getestet. Allerdings konnte, mit einer Ausnahme, in der das Wasser direkt aus einem Rohr mit ^{220}Rn produzierenden Ablagerungen strömte, kein ^{220}Rn gefunden werden konnte.

Um herauszufinden, warum ^{220}Rn in natürlichen Grundwässern nicht nachgewiesen werden kann, wurde das Auftreten von ^{220}Rn in der Gasphase von porösen Medien im Feld und Labor untersucht. Aus der Literatur ist bekannt, dass ^{220}Rn im Bodengas allgegenwärtig ist. Daher wurde ^{220}Rn in einem Bodengasprofil in der Nähe eines Flusses kontinuierlich bestimmt. Infolge eines Hochwassers während dieser Messkampagne stieg der Grundwasserspiegel so hoch, dass die unterste Messtiefe geflutet wurde. Bei Sättigung ging die ^{220}Rn -Konzentration gegen Null, während sich die ^{222}Rn -Konzentration nur geringfügig änderte. Diese Resultate zeigen, dass das Auftreten von ^{220}Rn stark durch den Bodenwassergehalt bestimmt wird.

Entsprechende Laborexperimente zeigten, dass Wasser als Barriere wirkt, welche ^{220}Rn aufgrund seiner kurzen Halbwertszeit nicht passieren kann. Das heisst, unter teilweise gesättigten Bedingungen behindern Wasserfilme die Freisetzung

von ^{220}Rn aus den Körnern. Gleichzeitig schränken Wassermenisken zwischen den Körnern die Mobilität von ^{220}Rn im Porenraum ein. Unter gesättigten Bedingungen zerfällt ^{220}Rn in immobilen Wasserschichten am Rande des durchflossenen Porenraumes und erreicht daher nicht den beweglichen Teil des Grundwassers. Daher kann ^{220}Rn in natürlichen Grundwassersystemen unter “normalen” Bedingungen nicht gemessen werden.

Zielgerichtete Laborexperimente, in denen Wasser aussergewöhnlich schnell durch ein poröses Medium bewegt wurde, zeigen allerdings, dass die unbewegten Wasserschichten durch Scherkräfte gestört und in ihrer Dicke verringert werden können. Dies bewirkt, dass ^{220}Rn das advektiv bewegte Wasser erreicht und entsprechend detektiert werden kann. Der gleiche Effekt, das heisst erhöhte ^{220}Rn -Konzentrationen durch erhöhte advektive Gasflüsse, tritt auch unter ungesättigten Bedingungen auf.

Die Arbeit zeigt ausserdem, dass die ^{220}Rn -Konzentrationen im Bodengas wegen der kurzen Halbwertszeit viel weniger stark als die ^{222}Rn -Konzentrationen durch Transportprozesse beeinflusst werden. Daher sind die ^{220}Rn -Konzentrationen viel weniger anfällig auf advektive Gasbewegungen oder Mischungsvorgänge, welche die Interpretation von ^{222}Rn -Konzentrationen im Bodengas häufig erschweren und uneindeutig machen. Die vorliegende Arbeit zeigt erstmalig, wie durch die gemeinsame Bestimmung von ^{222}Rn und ^{220}Rn in der Gasphase eines Bodenprofils die relevanten Transportprozesse identifiziert werden können.

Zusammenfassend liefert diese Arbeit eine schlüssige konzeptionelle Vorstellung, warum ^{220}Rn , im Gegensatz zu ^{222}Rn , ausschliesslich im Bodengas, aber nicht unter natürlichen Bedingungen und mit herkömmlichen Probenahmetechniken im Grundwasser zu finden ist. Daher kann ^{220}Rn nicht als Tracer in aquatische Systemen verwendet werden. Im Bodengas ist die Anwendung von ^{220}Rn als Tracer jedoch noch kaum entwickelt, weshalb die Forschung in diesem Bereich in Zukunft verstärkt werden sollte und sich deshalb als zukünftiges Forschungsfeld anbietet.